

Verbundprojekt Strahlung und Umwelt II:

Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen

- Arbeitspaket 1.1: Modellierung des Verbleibs von Radionukliden in städtischer Umgebung und der resultierenden Exposition
(A. Schelle, C. Staudt, A. Wieser, J.C. Kaiser, Institut für Strahlenschutz)
- Arbeitspaket 1.3: Radioökologie bei Schnee
(K. Hürkamp, F. Bernauer, S. Tafelmeier, J. Tschiersch, Institut für Strahlenschutz)
- Arbeitspaket 3.1: Verbesserte Abschätzung der internen Dosis nach Inkorporation natürlicher Radionuklide aus Böden mit Hilfe von Modellstudien mit Heilerde
(V. Höllriegl, S. Träber, Abteilung Medizinische Strahlenphysik und Diagnostik)
- Arbeitspaket 3.3: Probandenspezifische Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers
(P. Nogueira, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz)
- Arbeitspaket 3.4: Biokinetische Modellierung und interne Dosisabschätzung auf der Basis experimenteller Messdaten
(W.B. Li, U. Oeh, K. Brudecki, Abteilung Medizinische Strahlenphysik und Diagnostik)
- Arbeitspaket 4.1: Aufnahme und Ausscheidung von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 an NORM/TENORM-Arbeitsplätzen
(T. Shinonaga, A. Dieter, Institut für Strahlenschutz;
W.B. Li, Abteilung Medizinische Strahlenphysik und Diagnostik)
- Arbeitspaket 4.2: Entwicklung von aktiven Detektoren zur Bestimmung individueller Radon- und Thoronexpositionen
(J. Irlinger, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz)
- Arbeitspaket 4.3: Innenraumexposition durch Thoron
(O. Meisenberg, S. Burgert, J. Tschiersch, Institut für Strahlenschutz)

– Abschlussbericht –

**Helmholtz Zentrum München
Abteilung Medizinische Strahlenphysik und Diagnostik
Institut für Strahlenschutz
Jochen Tschiersch (Koordination)**

Gefördert durch das
Bundesministerium für Bildung und Forschung

Förderkennzeichen 02NUK015B
Förderzeitraum 01.09.2010 – 31.12.2014

Die diesem Bericht zu Grunde liegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF), vertreten durch den Projektträger Forschungszentrum Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE), unter dem Förderkennzeichen 02NUK015B gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieses Berichts liegt allein bei den Autoren.

Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung und Übersicht.....	9
1.1	Aufgabenstellung.....	11
1.2	Voraussetzungen, Planung und Ablauf.....	17
1.3	Wissenschaftlicher und technischer Stand.....	24
1.4	Zusammenarbeit mit anderen Stellen.....	35
2.	Ergebnisse.....	39
2.1	Arbeitspaket 1.1: Modellierung des Verbleibs von Radionukliden in städtischer Umgebung und der resultierenden Exposition.....	39
2.1.1	Einleitung.....	39
2.1.2	Material und Methoden.....	41
2.1.2.1	Studiengebiet für die automatische Auswertung.....	41
2.1.2.2	Depositionsmodell.....	42
2.1.2.3	Konzept des Umgebungsfaktors.....	44
2.1.2.4	Umgebungsfaktoren für Cs-137 Kontamination.....	45
2.1.2.5	Automatische numerische Berechnung.....	47
2.1.2.6	Berechnung von Umgebungsfaktoren für Messpunkte um das Kernkraftwerk Fukushima Daiichi.....	48
2.1.3	Ergebnisse.....	50
2.1.4	Diskussion.....	60
2.1.5	Anhang.....	62
2.1.6	Referenzen.....	67
2.2	Arbeitspaket 1.3: Radioökologie bei Schnee.....	70
2.2.1	Einleitung und Übersicht.....	70
2.2.2	Stand der Forschung.....	70
2.2.2.1	Deposition von aerosolgebundenen Radionukliden.....	70
2.2.2.2	Charakterisierung von Niederschlagsereignissen.....	72
2.2.2.3	Transport von Radionukliden in der Schneedecke.....	73
2.2.3	Methoden.....	74
2.2.3.1	Schneeprobeentnahme und Probenvorbereitung für die Gammaspektrometrie	74
2.2.3.2	Schneecharakterisierung mit dem 2D-Video-Distrometer.....	75
2.2.3.3	Klassifizierung der Niederschlagsereignisse.....	78
2.2.3.4	Sammlung von Gesamtaerosol-Proben.....	81
2.2.3.5	Partikelgrößenfraktionierte Sammlung von Aerosolen.....	81
2.2.3.6	Berechnung von Scavenging-Koeffizienten.....	82
2.2.3.7	Tracerexperimente mit Schneesäulen im Labor.....	83
2.2.3.8	Aktivitätsbestimmung mittels Gammaspektrometrie.....	84
2.2.4	Ergebnisse und Diskussion.....	85
2.2.4.1	Deposition von Radionukliden mit Schnee.....	85
2.2.4.2	Niederschlagscharakterisierung und –klassifizierung.....	87
2.2.4.3	Scavenging-Koeffizienten und Parametrisierung.....	91
2.2.4.4	Aktivitäts-Scavenging-Koeffizienten.....	96
2.2.4.5	Radionuklide in partikelgrößenfraktionierten Aerosolen.....	97
2.2.4.6	Verhalten, Migration und Freisetzung von Radionukliden in der Schneedecke.....	98
2.2.5	Referenzen.....	102

2.3	Arbeitspaket 3.1: Verbesserte Abschätzung der internen Dosis nach Inkorporation natürlicher Radionuklide aus Böden mit Hilfe von Modellstudien mit Heilerde.....	106
2.3.1	Einleitung und Übersicht.....	106
2.3.2	Methoden und Material.....	106
2.3.2.1	Bodenproben.....	106
2.3.2.2	Bestimmung von U-238 in Magen-Darmsaft, Boden/Düngerprobe sowie in Urin mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS).....	107
2.3.2.3	Gesamtgehalt von Uran in Heilerde bzw. uranhaltigen Böden/Düngemittel	108
2.3.2.4	In vivo Ph-Metrie des Magens.....	108
2.3.2.5	In vitro Löslichkeitstest - Bestimmung von DF.....	108
2.3.2.6	In vivo Humanstudie - Bestimmung von f_A	110
2.3.2.7	Experimentelles Design und Berechnung des Faktors f_A^{sol}	111
2.3.2.8	Biokinetische Modellierung.....	112
2.3.2.9	Berechnung der effektiven Folgedosis.....	113
2.3.2.10	Berechnung der Ingestionsdosis.....	115
2.3.3	Ergebnisse und Diskussion.....	115
2.3.3.1	Gehalt von U-238 in den Boden/Düngerproben.....	115
2.3.3.2	Ergebnisse der pH-Metrie.....	115
2.3.3.3	In vitro Löslichkeitstest und Bestimmung von DF.....	116
2.3.3.4	Humanstudie - Bestimmung von f_A	118
2.3.3.5	Bestimmung des f_A^{sol} -Faktors.....	120
2.3.3.6	In vitro Löslichkeitsversuche und rechnerische Bestimmung von f_A nach Ingestion von hochkontaminierten, uranhaltigen Böden/Dünger.....	121
2.3.3.7	Berechnung der effektiven Folgedosis.....	123
2.3.3.8	Validierung der Dosisberechnung.....	125
2.3.4	Schlussfolgerung.....	125
2.3.5	Referenzen.....	126
2.4	Arbeitspaket 3.3: Probandenspezifische Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers.....	129
2.4.1	Introduction.....	129
2.4.2	Materials and Methods.....	130
2.4.2.1	Description of Partial Body Counter used.....	130
2.4.2.1.1	Counting chamber.....	130
2.4.2.2	Calibration phantoms.....	131
2.4.2.2.1	USTUR case 102.....	131
2.4.2.2.2	BfS Phantom.....	131
2.4.2.2.3	CSR Phantom.....	132
2.4.2.3	Monte Carlo Simulations.....	132
2.4.2.3.1	Detector model – definition and validation.....	133
2.4.2.4	Anthropomorphic Computational Phantoms.....	136
2.4.3	Person-specific parameters and detection efficiency.....	137
2.4.3.1	Activity distribution.....	137
2.4.3.1.1	Case 102 activity distribution pattern.....	137
2.4.3.1.1.1	Results.....	138
2.4.3.1.2	Cortical bone and Trabecular bone activity distribution.....	138
2.4.3.1.2.1	Results	139
2.4.3.2	Scalp thickness.....	142
2.4.3.2.1	MAX-06 head phantom modification.....	142
2.4.3.2.2	Results.....	143

2.4.3.3	Size and shape Influence.....	146
2.4.3.3.1	Size impact on detection efficiency.....	147
2.4.3.3.2	Results.....	148
2.4.3.3.3	Shape impact in detection efficiency.....	152
2.4.4	Individual specific calibration.....	152
2.4.4.1	Methods.....	152
2.4.4.2	Results.....	155
2.4.4.3	Correction factors.....	159
2.4.4.4	Estimation of Dose.....	160
2.4.5	Conclusions and Outlook.....	163
2.4.6	References.....	164
2.5	Arbeitspaket 3.4: Biokinetische Modellierung und interne Dosisabschätzung auf der Basis experimenteller Messdaten.....	167
2.5.1	Overview.....	167
2.5.2	Age-dependent inhalation dosimetry of thoron progeny.....	167
2.5.2.2	Materials and methods.....	167
2.5.2.2.1	Aerosol fractional deposition in the human respiratory tract.....	168
2.5.2.2.2	Biokinetic model of the thoron progeny.....	168
2.5.2.2.3	Dosimetric model.....	169
2.5.2.2.4	Dose conversion coefficient for thoron progeny.....	170
2.5.2.3	Results and discussion.....	170
2.5.2.3.1	Aerosol fractional deposition in the human respiratory tract.....	170
2.5.2.3.2	Dose coefficients.....	171
2.5.2.3.3	Dose conversion coefficients.....	177
2.5.2.4	Conclusion.....	177
2.5.3	Age-dependent inhalation dosimetry of radon progeny.....	178
2.5.3.1	Introduction.....	178
2.5.3.2	Materials and methods.....	178
2.5.3.2.1	Deposition of radon progeny in human respiratory tract.....	178
2.5.3.2.2	Biokinetic models.....	179
2.5.3.2.3	Equivalent dose and effective dose.....	180
2.5.3.2.4	Dose conversion factor.....	182
2.5.3.3	Results and discussion.....	182
2.5.3.4	Conclusion.....	189
2.5.4	Biokinetic modelling and internal dose of soil-derived U-238 in humans....	189
2.5.4.1	Introduction.....	189
2.5.4.2	Materials and methods.....	190
2.5.4.2.1	Experimental design and assessment of f_A^{soil}	190
2.5.4.2.2	Biokinetic modelling and internal dosimetry of ingested soil-derived uranium.....	190
2.5.4.3	Results and discussion.....	190
2.5.4.4	Conclusion.....	191
2.5.5	Biokinetic modelling of Ra-228, Th-228, Pb-210 and Po-210 by ingestion	191
2.5.5.1	Introduction.....	191
2.5.5.2	Materials and methods.....	192
2.5.5.2.1	Biokinetic model of Ra.....	192
2.5.5.2.2	Biokinetic model of Pb.....	192
2.5.5.2.3	Biokinetic model of Th.....	193
2.5.5.2.4	Biokinetic investigation in humans.....	194
2.5.5.3	Results and discussion.....	194
2.5.5.4	Conclusion.....	195

2.5.6	Biokinetic modelling of Ra-226 in humans for in-vivo measurement.....	196
2.5.6.1	Introduction.....	196
2.5.6.2	Biokinetic modelling of intake of Ra-226.....	196
2.5.6.3	Biokinetic model prediction and in-vivo measurement.....	198
2.5.6.4	Conclusion.....	198
2.5.7	Uncertainty and sensitivity analysis in biokinetic models.....	199
2.5.7.1	Introduction.....	199
2.5.7.2	Analysis of ICRP proposed Cs biokinetic model.....	200
2.5.7.2.1	Some concepts used in the present study.....	201
2.5.7.2.2	Caesium model structure and parameter.....	201
2.5.7.2.3	Parameter uncertainty analysis.....	201
2.5.7.2.4	Distributions of model parameters.....	203
2.5.7.2.5	Parameter sensitivity analysis.....	203
2.5.7.3	Results.....	203
2.5.7.3.1	Uncertainty of model parameters.....	203
2.5.7.3.2	Uncertainty of model prediction.....	203
2.5.7.3.3	Sensitivity of model parameter.....	206
2.5.7.3.4	Inference of parameter uncertainty and sensitivity.....	206
2.5.7.4	Discussion.....	207
2.5.7.5	Conclusion.....	208
2.5.8	References.....	208
2.6	Arbeitspaket 4.1: Aufnahme und Ausscheidung von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 an NORM/TENORM-Arbeitsplätzen.....	212
2.6.1	Introduction	212
2.6.2	Objectives of the project	213
2.6.3	Program and performance	214
2.6.3.1	Participants in the program	215
2.6.3.2	Diet program	215
2.6.3.3	Cleaning work of heat-exchanger	216
2.6.3.4	Analysis of activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in foods and drinks.....	216
2.6.3.5	Radon-222 concentration measurement in air surrounding participants	216
2.6.3.6	Collection and analysis of urine and feces of the participants	217
2.6.4	Determination of activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in certified reference materials, foods and drinks.....	217
2.6.4.1	Analytical procedure of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 by gamma-spectrometry.....	217
2.6.4.2	Analytical results of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in certified reference materials by gamma-spectrometry	217
2.6.4.3	Analytical results of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in foods and drinks supplied to the participants by gamma-spectrometry	218
2.6.4.4	Analytical procedure of activity concentration of Po-210 and Th-228 in certified reference materials, foods and drinks by alpha-spectrometry.....	223
2.6.4.4.1	Chemical separation method for Po-210	223
2.6.4.4.2	Chemical separation method for Th-228	223
2.6.4.4.3	Analytical results of Po-210 and Th-228 in certified reference materials ...	223
2.6.4.4.4	Analytical results of Po-210 and Th-228 in foods and drinks supplied to the participants.....	224
2.6.5	Minimum activity amount of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 ingested by each participant through diet	228
2.6.6	Radon-222 concentration in the air surrounding the participants	229

2.6.7	Effective dose assessment for workers and references/members of the public through diet and Rn-222 exposure	231
2.6.7.1	Effective doses by ingestion of foods and drinks for each participant	231
2.6.7.2	Rn-222 annual doses to the participants	232
2.6.8	Conclusions	232
2.6.9	References	233
2.7	Arbeitspaket 4.2: Entwicklung von aktiven Detektoren zur Bestimmung individueller Radon- und Thoronexpositionen.....	235
2.7.1	Introduction.....	235
2.7.2	Theory on Radon.....	236
2.7.2.1	Appearance and origin.....	236
2.7.2.2	Radon, Thoron and progenies.....	237
2.7.2.2.1	Radon decay chain	240
2.7.2.2.2	Thoron decay chain	241
2.7.2.3	Radon transport.....	241
2.7.2.3.1.	Diffusion at thin barriers.....	241
2.7.2.3.2	Diffusion in media.....	242
2.7.2.4	Indoor Radon occurrence.....	243
2.7.2.4.1	Concentration in German homes.....	244
2.7.2.4.2	Indoor distribution.....	245
2.7.2.5	Thoron occurrence.....	245
2.7.2.5.1	Concentration in German homes.....	246
2.7.2.5.2	Indoor distribution.....	246
2.7.2.6	Exposure to dose conversion.....	247
2.7.2.6.1	Potential alpha energy concentration.....	247
2.7.2.6.2	Equilibrium-equivalent concentration.....	247
2.7.2.6.3	Equilibrium factor F.....	248
2.7.2.6.4	Exposure.....	248
2.7.2.7	Health effects of radon.....	248
2.7.3	Principle and design of the exposimeter.....	249
2.7.3.1	Measurement principles.....	250
2.7.3.2	Discrimination methods.....	251
2.7.3.3	Electronic design.....	251
2.7.3.4	Setup.....	252
2.7.4	Calibration.....	252
2.7.4.1	Calibration factor.....	253
2.7.4.2	Calibration chamber setup.....	254
2.7.4.3	Radon calibration.....	254
2.7.4.3.1	Calibration factors.....	255
2.7.4.3.2	Spectrum.....	257
2.7.4.4	Thoron calibration.....	258
2.7.4.4.1	Spectrum.....	259
2.7.4.5	Mixed concentrations.....	260
2.7.4.5.1	Acquired spectra.....	261
2.7.4.5.2	Evaluation method.....	262
2.7.5	Monte-Carlo simulations.....	264
2.7.5.1	Model.....	264
2.7.5.1.1	Environmental parameters.....	265
2.7.5.1.2	Assumptions.....	265
2.7.5.1.3	Geometry.....	266
2.7.5.2	Results.....	267

2.7.5.3	Radon spectra.....	268
2.7.5.4	Thoron spectra.....	270
2.7.5.5	Calibration factors.....	271
2.7.5.6	Conclusion.....	271
2.7.6	Application.....	272
2.7.6.1	Thoron field measurements.....	272
2.7.6.1.1	Bavarian clay house.....	273
2.7.7	Conclusions and outlook.....	273
2.7.8	References.....	276
2.8	Arbeitspaket 4.3: Innenraumexposition durch Thoron.....	283
2.8.1	Einleitung.....	283
2.8.2	Material und Methoden.....	284
2.8.2.1	Auswahl von Wohnhäusern.....	284
2.8.2.2	Aktive Messung der Konzentration von Thoron-Folgeprodukten.....	285
2.8.2.3	Passive Messung der Konzentration von Thoron-Folgeprodukten, Optimierung und Test eines integrierenden Folgeprodukt-Messgeräts.....	286
2.8.2.4	Zeitauflösende Messung der Thoron-Konzentration mit aktiver Luftprobenahme.....	287
2.8.2.5	Zeitauflösende Messung der Thoron-Konzentration mit passiver Luftprobenahme – Radon-Thoronexposimeter.....	287
2.8.2.6	Passive Messung der Thoron-Konzentration.....	287
2.8.2.7	Messung der Exhalation von Thoron aus Baumaterial.....	288
2.8.2.8	Berechnung von Inhalationsdosen.....	288
2.8.3	Ergebnisse.....	288
2.8.3.1	Detailmessung zur Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten: Fachwerkhaus.....	288
2.8.3.2	Detailmessung zur Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten: modernes Lehmhaus.....	293
2.8.3.3	Passive Messungen von Thoron-Gas und von seinen Folgeprodukten.....	295
2.8.3.4	Passive Messungen von Thoron-Gas.....	298
2.8.3.5	Kurzzeitmessung in einem Lehmhaus mit geringer Thoron-Konzentration	300
2.8.3.6	Einflüsse auf die Exhalation von Thoron.....	301
2.8.4	Diskussion.....	304
2.8.4.1	Generalisierung der Ergebnisse.....	304
2.8.4.2	Erfordernis von Senkungsmaßnahmen.....	305
2.8.4.3	Anforderungen an Messungen.....	305
2.8.4.4	Entwicklung einer Standardmethode für die Bestimmung der Exposition...	306
2.8.5	Ausblick.....	307
2.8.6	Referenzen.....	308
3.	Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit.....	310
4.	Erfolgte und geplante Veröffentlichungen.....	312
5.	Zusammenfassung.....	318
6.	Summary.....	325

1. Einleitung und Übersicht

Das Verbundprojekt „Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ hat in vernetzten Einzelprojekten offene Fragen der Radioökologie bearbeitet, um das Wissen in der Strahlenforschung auszubauen und die Kompetenz in diesem Gebiet durch gezielte Ausbildung von wissenschaftlichen Nachwuchs zu erhalten. Um das breite Feld der Radioökologie strukturiert zu bearbeiten, wurde das Vorhaben thematisch in vier Teilprojekte gegliedert:

- 1) Ausbreitungspfade von Radionukliden in Luft, Wasser und Boden
- 2) Mikrobiologische Prozesse an der Schnittstelle Pflanzen - Boden und der Transport von Radionukliden in Pflanzen und in die Nahrungskette
- 3) Biokinetische Stoffwechselmodelle im Menschen und deren Validierung
- 4) Strahlenbelastung durch natürliche Radionuklide, Radon und seine Folgeprodukte

Die Teilprojekte gruppieren sich alle um das Ziel, die Strahlenexposition des Menschen durch Radionuklide in der Umwelt besser zu quantifizieren (**Abb. 1.1**). Insgesamt wurden in 14 Arbeitspaketen (AP) offene Probleme von spezialisierten Gruppen aus neun verschiedenen Forschungseinrichtungen, Forschungszentren und Hochschulen untersucht.

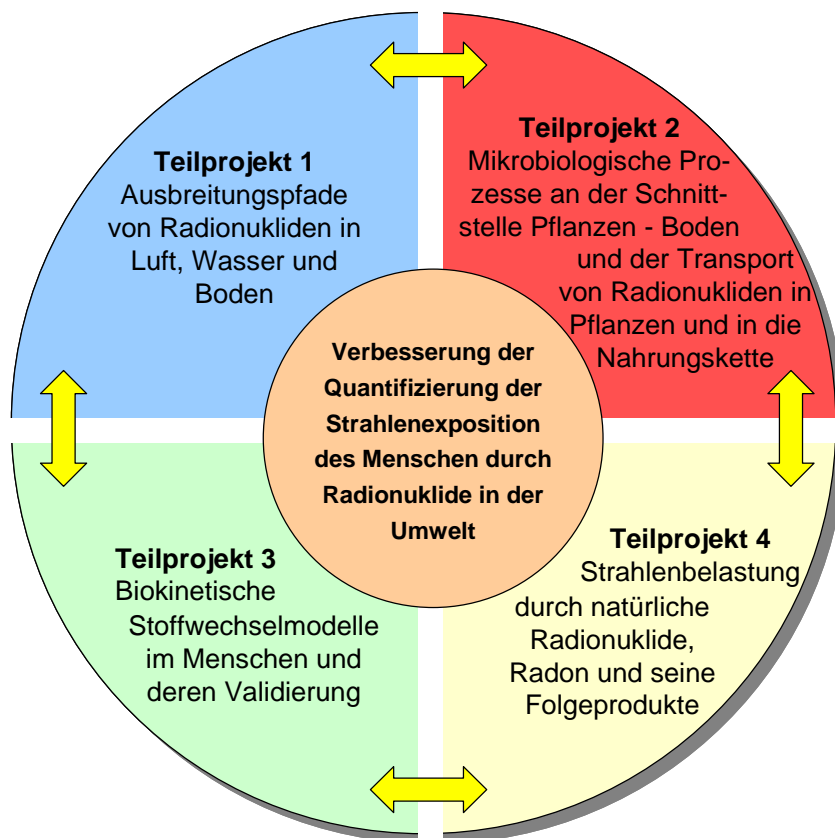


Abb. 1.1 Das Verbundprojekt „Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ mit seinen Teilprojekten und der Gesamtzielsetzung.

Das Helmholtz Zentrum München (HMGU) hat mit dem Institut für Strahlenschutz (ISS) und der Abteilung für Medizinische Strahlenforschung und Diagnostik (AMSD) zum Gesamtverbund durch die Bearbeitung von acht Arbeitspaketen beigetragen.

Dem Helmholtz Zentrum München oblag auch die Koordinierung des Verbunds, die von Dr. Jochen Tschiersch wahrgenommen wurde. Die für die einzelnen Arbeitspakete eingestellten NachwuchswissenschaftlerInnen hatten bei insgesamt sechs internen Workshops (15.3.2011, KIT Karlsruhe; 15.9.2011, Rheinbach; 28./29.2.2012, HMGU Neuherberg; 8./9.10.2012, Uni Jena; 20./21.6.2013, HMGU Neuherberg; 25.3.2014, Uni Hannover) Gelegenheit, ihre Forschungsergebnisse vorzustellen und zu diskutieren. Dabei wurden auch Arbeitsgruppentreffen der APs untereinander abgesprochen und insgesamt die Vernetzung organisiert. Die gute Zusammenarbeit mit dem Projektträger PTKA-WTE, vertreten durch Frau S. Gräber und Herrn W. Chroscicki, macht sich auch an deren regelmäßigen Besuchen der Workshops fest. So konnte kontinuierlich der Fortschritt der Arbeitspakete und der Zusammenarbeit untereinander weiterentwickelt werden, aber auch etwaige Schwierigkeiten auch administrativer Natur zeitnah direkt besprochen und Lösungen erarbeitet werden.

Der Verbund „Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ wurde auf Veranstaltungen des Projektträgers (Projektstatusgespräch zur BMBF-geförderten nuklearen Sicherheitsforschung, 6./7.März 2013) und des Kompetenzverbunds Strahlenforschung (KVSF-Satellitenmeetings zur jährlichen GBS-Tagung) vorgestellt und der Stand der Forschung berichtet.

1.1. Aufgabenstellung

Zum Erhalt und Weiterentwicklung der Kompetenz in der radioökologischen und biokinetischen Strahlenforschung wurden im Rahmen des Verbundprojekts „Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ am Helmholtz Zentrum München acht wissenschaftliche Arbeitspakete bearbeitet. Zur Durchführung der Arbeitspakete wurden überwiegend Nachwuchskräfte (Doktoranden, Post-Docs, Studenten) eingesetzt und auf den Gebieten Radioökologie, Radiochemie und Biokinetik von Radionukliden ausgebildet. Ein wesentliches Ziel war die Stärkung der Vernetzung zwischen den Arbeitspaketen, um die Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Radioökologie systematisch zu fördern. Die Arbeitspakete mit ihrer Aufgabenstellung sind im Einzelnen:

Arbeitspaket 1.1: Modellierung des Verbleibs von Radionukliden in städtischer Umgebung und der resultierenden Exposition (A. Schelle, C. Staudt, A. Wieser, J.C. Kaiser, ISS)

Nach einer Freisetzung von radioaktivem Material in die Umwelt nach zum Beispiel einem Zwischenfall in einer kerntechnischen Anlage oder terroristischem Akt, ist es notwendig das betroffene Gebiet zu definieren und die Dosen denen eine Population in diesem Gebiet ausgesetzt ist, zu bestimmen. Zusätzlich ist die Notwendigkeit der Implementation von Gegenmaßnahmen wie eine Evakuierung von Personen oder eine Dekontamination des betroffenen Gebietes zu beurteilen. Dazu ist eine effektive und möglichst genaue Kartierung der Kontamination notwendig.

Kontaminationskarten werden in der Regel durch die geostatistische Interpolation von Messdaten erstellt. Dabei werden etwa die Bodenkontamination durch Radionuklide wie ^{134}Cs oder ^{137}Cs sowie Ortsdosisleistungen an definierten Messorten bestimmt. Potentielle Kontaminationen zwischen den Messpunkten werden anschließend durch Interpolation errechnet. Die Umgebung des Messortes beeinflusst dabei das Verhältnis zwischen der Kontamination mit Radionukliden und der gemessenen Ortsdosisleistung. Diese Umgebung ist durch das Vorhandensein von unterschiedlichen Geländeformen wie etwa Wald, Wiesen oder Gebäude definiert. Als Hilfsmittel zur Beurteilung des Einflusses der Messumgebung auf die Ortsdosisleistung wurde deshalb das Konzept des Umgebungsfaktors definiert. Der Umgebungsfaktor ist dabei definiert als das Verhältnis der an einer realen Messstelle gemessenen γ -Dosisrate (GDR) und einer hypothetisch für eine ideale Umgebung, in diesem Falle einem unendlich großen Rasen.

In dem Arbeitspaket wurden zwei Aufgaben behandelt. Die erste Aufgabe ist die Entwicklung und Test einer automatisierten Routine zur Berechnung von Umgebungsfaktoren aus digitalem Kartenmaterial. Die zweite Aufgabe ist der Test des Umgebungsfaktorprinzips anhand von gemessenen Kontaminationsdaten und Ortsdosisleistungen an Messorten um das Kernkraftwerk Fukushima Daiichi, Japan im Sommer 2011.

Arbeitspaket 1.3: Radioökologie bei Schnee (K. Hürkamp, F. Bernauer, S. Tafelmeier, J. Tschiersch, ISS)

Bisher konzentrierten sich radioökologischen Studien auf Untersuchungen in der Vegetationsperiode, um die direkte Kontamination von Pflanzen und Böden nach

Radionuklidfreisetzungen zu quantifizieren. Radioökologische Prozesse, die mit Schnee verbunden sind, wurden bisher selten untersucht und viele Probleme sind nicht geklärt. In vielfacher Hinsicht sind aber auch der Transport und das Verhalten von Radionukliden in der Winterperiode von Relevanz:

- Wintergetreide und mehrjährige Pflanzen können direkt kontaminiert werden;
- bei der Schneeschmelze kann kontaminiertes Schmelzwasser Böden, Gewässer, Klärsysteme und ggf. sogar Trinkwasserreservoirs kontaminieren.
- Die Verlängerung der Vegetationsperiode durch die Klimaänderung erhöht darüber hinaus die Wahrscheinlichkeit einer direkten Kontamination des Bewuchses durch sporadische Wintereinbrüche.
- Mit dem Klimawandel einhergehende Verschiebungen der Schneedeckenperioden, zeitlich veränderte Schmelzwasserabflüsse und Extremereignisse führen zu einem veränderten Abfluss von radionuklidhaltigen Schmelzwässern.

Zudem spielen Parameter basierend auf Schnee in europäischen radioökologischen Ausbreitungsmodellen (z.B. ARTM, RODOS, Symbiose) bisher keine Rolle. Nasse Deposition durch Schnee-Scavenging gilt als sehr effektiver Prozess der Ablagerung aerosolgebundener Radionuklide. Eine genaue Quantifizierung und Parametrisierung mit meteorologischen und Schnee-Parametern stand allerdings noch aus und wurde als eines der Ziele dieser Studie festgelegt. So wurde die Abhängigkeit der nassen Deposition aerosolgebundener Radionuklide für unterschiedliche Niederschlagsereignisse von der Niederschlagsintensität und der Schneeflockenart untersucht. Neben der Berechnung von Scavenging-Koeffizienten für die Deposition von Aerosolpartikeln mit Niederschlag wurde auch die Deposition von Radionukliden direkt im Schnee sowie in Gesamtaerosolproben in bodennaher Luft quantifiziert, um im Vergleich auch Aktivitäts-Scavenging-Koeffizienten daraus zu bestimmen.

Um die Abhängigkeit des Auswaschprozesses von der Art des Schneefallereignisses bestimmen zu können, war eine Charakterisierung der Schneeereignisse notwendig. Für das 2D-Video-Distrometer, das zur Bestimmung der notwendigen Schneeparameter zum Einsatz kam, existiert nur eine zuverlässige Auswertesoftware für Regen. Ein weiteres Ziel des Projektes war daher die Programmierung eines neuen Algorithmus zur Auswertung von Schnee und die Entwicklung einer entsprechenden Schneeklassifizierung auf Grundlage der gemessenen Parameter.

In Abschmelzversuchen mit Schneesäulen im Labor wurde ferner das zeitliche Verhalten der Radionuklidkonzentration in der Schneedecke und die Freisetzung mit dem Schmelzwasser studiert. Dafür wurden die künstlichen Nuklide Cs-134 und Sr-85 als Tracer eingesetzt.

Arbeitspaket 3.1: Verbesserte Abschätzung der internen Dosis nach Inkorporation natürlicher Radionuklide aus Böden mit Hilfe von Modellstudien mit Heilerde (V. Höllriegel, S. Träber, AMSD)

Das Element Uran ist ein natürlich vorkommendes radioaktives Material (NORM) und ubiquitär im Boden in einer Konzentration von etwa 3 mg/kg vorhanden. Uran umfasst die Radioisotope ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U mit Molanteilen von 0,0054%, 0,72% und 99,27% (WHO 2001, Bleise 2003). In einigen Bereichen ist die Urankonzentration in Böden technologisch erhöht (TENORM) (Jovanovic 2012, Schnug 2013). Nuklearunfälle, wie der Chernobyl-

Unfall in 1986 oder das Fukushima Daiichi-Ereignis in 2011 können für eine Anreicherung von Uran in Böden eine Rolle spielen. Folglich könnte eine Bodeningestion zu einer gewissen Erhöhung der internen Dosis im Menschen führen. Die Abschätzung der internen Strahlenbelastung nach Aufnahme hochbelasteter Böden ist daher in dieser Arbeit von besonderem Interesse.

Ziel der vorliegenden Studie war es, die Bioverfügbarkeit, d.h. die Aufnahme von Uran aus Böden, sowie sein biokinetisches Verhalten im menschlichen Körper und daraus resultierend die innere Strahlenbelastung beim Menschen abzuschätzen. Da es zur Bestimmung der Bioverfügbarkeit von Uran aus hochkontaminierten Böden eher nicht angebracht war, *in vivo* Studien mit Probanden und diesen hoch belasteten Böden durchzuführen, wurden daher in einer ersten Phase des Projekts Modellstudien mit Heilerde unternommen, deren Ergebnisse sich dann auch auf andere Böden übertragen lassen. Die Experimente mit Heilerde waren zweigeteilt: zum einen konnte anhand von *in vivo* Studien mit freiwilligen Probanden die Bioverfügbarkeit des mit der Heilerde inkorporierten Urans ermittelt werden. Diese experimentell ermittelte Bioverfügbarkeit wurde mit ICRP-Standardwerten verglichen. Andererseits wurden im Labor *in vitro* Experimente durchgeführt, in denen die Löslichkeit der in der Heilerde befindlichen Uranverbindungen in einem synthetischen Magen-Darmsaftgemisch bestimmt wurde. Mit dieser Methode ließ sich auf einfacher Weise der tatsächlich gelöste Anteil ingestierter Radionuklidverbindungen im Magen-Darmtrakt simulieren. Anhand der Ergebnisse der Modellstudien mit Heilerde wurde ein Faktor, benannt als f_A^{sol} , eingeführt, der die Beziehung zwischen dem im menschlichen Magen-Darmsaft gelösten Anteil und dem tatsächlich ins Blut aufgenommenen Bruchteil (f_A -Wert, Bioverfügbarkeit) des inkorporierten Urans beschreiben soll. Diese Beziehung wurde anschließend auf andere Böden aus Uranabbaugebieten übertragen. Somit ist es schließlich auch z.B. für hoch belastete Bodenproben möglich, allein durch die Bestimmung von Löslichkeitsparametern mittels *in vitro* Experimenten die Bioverfügbarkeit von Uran beim Menschen zu bestimmen. Diese Ergebnisse wurden in das Biokinetikmodell von Uran integriert, um die interne Dosis für Erwachsene nach Aufnahme von hochkontaminierten, uranhaltigen Böden abzuschätzen. Dies ermöglichte somit die Berechnung realistischerer Werte für die interne Dosis beim Menschen.

Arbeitspaket 3.3: Probandenspezifische Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers (P. Nogueira, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz)

Eine Reihe von Radionukliden wie zum Beispiel ^{210}Pb , ^{241}Am oder ^{226}Ra werden nach Inkorporation langfristig in das menschliche Skelett eingebaut. Sie emittieren beim Zerfall Photonen mit niedrigen Energien und sind daher *in-vivo* nur schwer nachzuweisen. Zum Nachweis müssen daher spezielle Germaniumzähler verwendet werden, die je nach Messort außerhalb des menschlichen Körpers (Schädel, Knie) positioniert werden. Diese Zähler müssen mit anthropomorphen Schädel- bzw. Kniephantomen, die entweder künstlich kontaminiert wurden oder auf realen Inkorporationsfällen beruhen, kalibriert werden.

Generell stimmen die wenigen weltweit verfügbaren Schädel bzw. Knie-Phantome, die für eine experimentelle Kalibrierung von Teilkörperzählern verwendet werden können, nur in Ausnahmefällen mit den individuellen Geometrien eines Probanden (z.B. Schädelumfang, Kniedicke, etc.) überein. Daher ist der *in-vivo* Nachweis von inkorporierten Radionukliden

grundsätzlich mit einer hohen Unsicherheit behaftet. Dies trifft besonders dann zu, wenn ein Radionuklid wie z.B. ^{226}Ra nachgewiesen werden muss, für das weltweit kein menschliches Phantom verfügbar ist.

Aufgabe von AP 3.3 war daher es, mittels Photonentransportrechnungen und computer-gestützten Voxelfantomen die Effizienz von Germanium-Detektoren eines Teilkörperzählers insbesondere für den Nachweis von ^{241}Am theoretisch zu berechnen und mit realen Messungen zu vergleichen. Zudem sollten Parameter identifiziert werden, die einen besonderen Einfluss auf die Nachweiswahrscheinlichkeit haben (z.B. die Mikroverteilung des nachzuweisenden Radionuklids im Knochen) und Verfahren entwickelt werden, um von bestehenden Phantommessungen auf beliebige Photonenenergien und Messgeometrien extrapolieren zu können. Auf diese Weise sollte eine individuelle Kalibrierung eines Teilkörperzählers entsprechend der individuellen Eigenschaften eines Probanden erreicht und so der Nachweis eines Radionuklids nach Inkorporation im Menschen in-vivo verbessert werden.

Arbeitspaket 3.4: Biokinetische Modellierung und interne Dosisabschätzung auf der Basis experimenteller Messdaten (W.B. Li, U. Oeh, K. Brudecki, AMSD)

Dieses Arbeitspaket konzentriert sich dabei auf die Untersuchung des biokinetischen Verhaltens von Radionukliden im menschlichen Körper und deren Bedeutung für die resultierende Dosis. Dazu werden auf Grundlage von experimentellen Messdaten biokinetische Modellierungen durchgeführt, die wiederum Grundlage für eine realistische Folgedosisbewertung für den Menschen sind. Im Rahmen dieses Arbeitspakets sind in diesem Zusammenhang verschiedene Kooperationen mit anderen Arbeitspaketen geplant, um durch den Einsatz von biokinetischer Modellierung Aussagen zu resultierenden Dosis für verschiedene Fragestellungen und Radionuklide zu erhalten.

Im Einzelnen sind folgende Arbeiten geplant:

- Validierung biokinetischer Parameter für die Inkorporation natürlicher Radionuklide (Uran) aus dem Boden anhand von Löslichkeitsstudien und Probandenexperimenten mit Heilerde bzw. Bodenproben und Modellierung der jeweiligen Folgedosis (in Zusammenarbeit mit AP 3.1);
- Validierung biokinetischer Parameter für die Inkorporation natürlicher Radionuklide ($^{226,228}\text{Ra}$, ^{210}Pb und ^{210}Po) aus Nahrung und Wasser anhand von Ausscheidungsanalysen und Modellierung der jeweiligen Folgedosis (in Zusammenarbeit mit AP 4.1);
- Optimierung des Messzeitpunkts für die Ausscheidungsanalytik (in vitro-Messung) und die Messungen mittels Teilkörperzähler (in vivo-Messung) durch Modellierung der jeweiligen Organretention auf Grundlage experimenteller Ergebnisse (in Zusammenarbeit mit AP 3.3 und AP 4.1);
- Biokinetische Modellierung für Thoron und dessen Folgeprodukte, in Abhängigkeit des Alters, insbesondere für Kinder (in Zusammenarbeit mit AP 4.3).

Arbeitspaket 4.1: Aufnahme und Ausscheidung von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 an NORM/TENORM-Arbeitsplätzen (T. Shinonaga, A. Dieter, ISS; W.B. Li, AMSD)

Die Energieversorgung durch Kernenergie, die im Jahr 2013 einen Anteil von 15,4 % an den deutschen Energiequellen stellte, wird bis zum Jahr 2022 eingestellt werden. Laut vorläufiger Zahlen des Bundesverbandes der Energie- und Wasserwirtschaft e.V., veröffentlicht am 29. Dezember 2014, wird der Anteil an erneuerbarer Energie für 2014 bei 25,8 % liegen und somit die wichtigste Energiequelle unter verschiedensten Quellen darstellen. Auf der anderen Seite wurde der totale Energieverbrauch um 3,6 % von 6,332 Mrd. kWh auf 6,104 Mrd. kWh gesenkt und der Anteil an fossilen Energiequellen verringert. Geotherme Energie, die zu 80 % durch radioaktive Zerfälle entsteht, ist eine Quelle für erneuerbare Energie. Anstelle von Kontaminationen durch künstliche Radionuklide aus Kernkraftwerken, besteht bei Geothermiekraftwerken die Möglichkeit der Freisetzung von sogenannten „technisch angereicherten natürlich vorkommenden radioaktiven Materialien“ (technically-enhanced naturally-occurring radioactive materials (TENORM)) durch technische Arbeiten und damit der Kontakt mit radioaktiven Stoffen nicht nur beim Personal sondern auch bei der Bevölkerung.

Einige Arbeiter in der geothermischen Industrie müssen Reinigungsarbeiten von Einrichtungen und Werkzeugen in Bereichen mit messbaren Konzentrationen an „angereicherten natürlich vorkommenden Radionukliden“ (naturally occurring radionuclides (NORM)) und/oder TENORM durchführen. Die Inhalationsdosis dieser Personen während dieser Arbeiten, speziell bei der Reinigung von Wärmetauschern und Ein-/Auslassfilter, sind wichtige Daten für die jeweiligen Strahlenbelastungen.

In dieser Studie zeigen wir die Bestimmung der Inhalationsdosis durch Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 von Arbeitern während der Reinigung von Werkzeug/Einrichtungen aus/in geothermischen Anlagen anhand der Analyse dieser Nuklide in Urin und Ausscheidungen von Arbeitern über sieben Tage. Als Referenz wurden Büroangestellte (keine Reinigungsarbeiten) in das Programm aufgenommen.

Arbeitspaket 4.2: Entwicklung von aktiven Detektoren zur Bestimmung individueller Radon- und Thoronexpositionen (J. Irlinger, W. Rühm, ISS)

Das Lungenkrebsrisikos der Bevölkerung durch das Vorhandensein von ^{222}Rn („Radon“) in Wohnräumen wurde in der Vergangenheit im Rahmen von epidemiologischen Studien untersucht. Diese Studien beruhen auf Messungen der Radon-Konzentrationen in Wohnungen der Studienteilnehmer. Die tatsächliche individuelle Radonexposition dieser Personen wurde jedoch nicht gemessen. Dies liegt zum einen daran, dass die Radonexposition retrospektiv über einen Zeitraum von mehreren Jahrzehnten abgeschätzt werden musste. Zum anderen gab es kein Messgerät, das die individuelle Radonexposition einer Person zeitaufgelöst erfassen konnte. Daher war am Helmholtz Zentrum München (HMU) bereits vor Beginn des Vorhabens ein neuartiges elektronisches Exposimeter entwickelt worden, das zeitaufgelöste Messungen von individuellen Personenexpositionen ermöglichte.

Im Gegensatz zum Kenntnisstand über die Wirkung von Radon ist der Kenntnisstand über die gesundheitlichen Auswirkungen und die durchschnittliche Raumluft-Konzentration des Radioisotops ^{220}Rn („Thoron“) in Wohnungen noch begrenzt. Für dieses Isotop wurde viele

Jahre angenommen, dass es einen vernachlässigbaren Beitrag zur effektiven Jahresdosis der Bevölkerung liefert. Vor kurzem wurde jedoch in mehreren internationalen Studien gezeigt, dass die Lungendosis durch Thoron unter bestimmten Bedingungen höher sein kann als die durch Radon. Zudem können Radon-Messgeräte eine erhebliche Empfindlichkeit gegenüber Thoron zeigen, die meist vernachlässigt wird, was zu einer Verfälschung einer Radonmessung führen kann.

Der zu Beginn von AP 4.2 bereits vorhandene Prototyp eines elektronischen Radon-Exposimeters sollte weiterentwickelt werden, um über die Verwendung größerer Si-Detektoren eine um den Faktor zwei verbesserte Empfindlichkeit des Nachweises von Radon zu erreichen. Das verbesserte Gerät sollte zudem in der Lage sein, die Energie der beim Zerfall von Radon und seiner Folgeprodukte entstehenden Alphateilchen zu bestimmen. Ziel war es, über diese Energiebestimmung auch das Isotop Thoron, dessen beim Zerfall frei werdenden Alphateilchen eine andere Energie als die beim Radonzerfall frei werdenden Alphateilchen aufweisen, nachzuweisen, und so die Bestimmung von Radon- und Thoron-Konzentrationen in Echtzeit zu ermöglichen.

Arbeitspaket 4.3: Innenraumexposition durch Thoron (O. Meisenberg, S. Burgert, J. Tschiersch, ISS)

Das Isotop ^{220}Rn (Thoron) aus der Thorium-Zerfallsreihe wurde häufig bei der Expositionsabschätzung vernachlässigt, weil es aufgrund seiner vergleichsweise kurzen Halbwertszeit von 55,6 Sekunden nur aus dünnen, oberflächlichen Schichten des Bodens oder von Baumaterial die Innenraumluft von Gebäuden erreichen kann und durch Diffusionsbarrieren wie ein Gebäudefundament zurückgehalten wird. Jedoch wurden vor einigen Jahren erhöhte Thoron-Konzentrationen in Häusern gefunden, die aus ungebranntem Lehm gebaut sind oder als Höhlen in Lehmboden gegraben sind. Häuser, in denen solches Material an den Oberflächen des Innenraums verwendet wird, sind auf Grundlage dieser Ergebnisse mögliche Orte einer signifikanten Thoron-Exposition.

Ungebrannter Lehm ist ein Baustoff, der in den meisten Gebieten der Erde weit verbreitet ist. In Deutschland wurde Lehm traditionell vor allem in Fachwerkhäusern zur Ausfüllung der Gefache in der Holzständerkonstruktion verwendet. Im modernen Lehmbau, der aufgrund seiner Zutraglichkeit für ein gesundes Wohnklima und seiner ökologischen Vorteile seit einigen Jahren Bedeutung besitzt, werden dagegen häufig Lehmputze oder Lehmbauplatten auf einer tragenden Konstruktion aus anderen Baustoffen verwendet. Der Bestand an Häusern, in denen Lehm aus Baustoff vorhanden ist, in Deutschland wird auf zwei Millionen geschätzt.

Thoron ist Teil der bei ^{232}Th beginnenden Thorium-Zerfallsreihe und unmittelbares Folgeprodukt von ^{224}Ra . In der Zerfallsreihe folgen ihm eine Reihe radioaktiver Isotope von Schwermetallen, die im Gegensatz zum Edelgas Thoron bei einer Inhalation an den Wänden des Atemtrakts deponieren können. Wie beim Radon tragen deshalb die Folgeprodukte einen wesentlich größeren Beitrag zur Inhalationsdosis bei als das Gas. Aufgrund ihrer vergleichsweise langen Halbwertszeit besitzen dabei ^{212}Pb und ^{212}Bi die größte Bedeutung für die Dosimetrie; physikalische Prozesse in der Luft wie eine Anlagerung an Aerosolteilchen oder eine Deposition auf Oberflächen wirken aus demselben Grund an diesen Folgeprodukten am stärksten.

Primäres Ziel des Arbeitspakets ist die Abschätzung der Thoron-Exposition und des dadurch verursachten Beitrags zur Inhalationsdosis der Bevölkerung in Deutschland. Ausgehend vom Stand der Wissenschaft zu Beginn der Arbeiten wurden zur Erreichung dieses Ziels folgende Fragen beantwortet:

- In welchen Konzentrationen treten Thoron und seine Folgeprodukte in einer repräsentativen Auswahl von Häusern, in denen Lehm als Baustoff verwendet wird, auf?
- Reicht es für eine Bestimmung der Exposition gegenüber der Zerfallsreihe des Thorons so, dass daraus der Beitrag zur Inhalationsdosis berechnet werden kann, aus, die Konzentration des Thorons zu messen, oder müssen dafür die dosisverursachenden Folgeprodukte gemessen werden?
- Welche Faktoren beeinflussen die Exhalation von Thoron aus Lehmen?

1.2. Voraussetzungen, Planung und Ablauf

Im Folgenden werden die Voraussetzungen, unter denen die acht Arbeitspakete durchgeführt wurden, sowie deren Planung und tatsächlicher Ablauf dargestellt.

Arbeitspaket 1.1: Modellierung des Verbleibs von Radionukliden in städtischer Umgebung und der resultierenden Exposition (A. Schelle, C. Staudt, A. Wieser, J.C. Kaiser, ISS)

Zur Durchführung des Projektes wurden die notwendigen Softwarepakete beschafft. Dazu gehört das kommerzielle Softwarepaket ArcGIS (ESRI) und das als Freeware erhältliche Programm ImageJ (EPA) und Google Earth (Google). Kontaminationsdaten von Messorten aus der Umgebung des Kernkraftwerkes Fukushima Daiichi wurden vom Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology Japan (MEXT) gesammelt und dem Projekt vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) zur Verfügung gestellt.

Im ersten Teil des Arbeitspaketes wurden Umgebungsfaktoren über einen in GIS implementierten automatischen Arbeitsablauf aus vorliegenden ATKIS Karten berechnet. Als Studienumgebung wurde die bei München liegende Ortschaft Moosach gewählt. Landnutzkarten dieser Ortschaft im ATKIS Format waren frei erhältlich im Internet verfügbar.

Zur Verifizierung des Umgebungsfaktoren Prinzips sollten anschließend im zweiten Teil des Arbeitspaketes Umgebungsfaktoren für Messorte um das Fukushima Daiichi Kernkraftwerk berechnet werden. Dazu wurden digitale Karten der Fukushima Präfektur Japan beschafft. Leider erwiesen sich diese digitalen Karten als unbrauchbar zur automatischen Bestimmung der Umgebungsfaktoren, da sowohl deren Auflösung, als auch die Informationen über unterschiedliche Geländetypen nicht ausreichend waren. Aus diesem Grund wurden die Umgebungsfaktoren an 91 Messorten mit hoher Ortsdosisleistung mit Hilfe von digitaler Bildauswertung aus Satellitenbildern bestimmt. Mit dieser Auswertung konnte das Umgebungsfaktor-Prinzip verifiziert werden.

Arbeitspaket 1.3: Radioökologie bei Schnee (K. Hürkamp, F. Bernauer, S. Tafelmeier, J. Tschiersch, ISS)

Die experimentellen Arbeiten wurden an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS, s. **Abb. 1.2**) auf der Zugspitze (2.650 m ü. NN) durchgeführt. Auf Grund der Höhenlage fällt dort der Niederschlag über etwa acht Monate im Jahr als Schnee und mit einem Jahresniederschlag von durchschnittlich 2.003 mm (1961-1990) im „Nordstau der Alpen“ sind die Bedingungen zur Studie der nassen Deposition insbesondere durch Schnee nahezu ideal.

Im Sommer 2011 wurde mit dem Aufbau der Messgeräte auf den vom Helmholtz Zentrum München angemieteten Flächen in einem Laborraum und auf einer Messterrasse im 4. OG des Schneefernerhauses begonnen. Für die Durchführung der Arbeiten konnte auf die Geräteausstattung der UFS zurückgegriffen werden, die während der Projektlaufzeit den Projektarbeitern exklusiv zur Verfügung standen. Dazu zählte ein Reinst-Germanium-Gammaspektrometer zur Aktivitätsbestimmung der Schneeproben, ein elektrischer Niederdruck-Impaktor zur partikelgrößenfraktionierten Sammlung von Aerosolproben sowie ein Hochvolumen-Sammler zur Gewinnung von Gesamt-Aerosolproben. Aufbau, Installation und erste Versuchsreihen zur Optimierung der Messergebnisse dauerten unterschiedlich lange, sodass erst ab Ende 2012 alle Parameter von Interesse gleichzeitig und zuverlässig aufgenommen werden konnten. Die für die Ergebnisauswertung herangezogenen Messdatenreihen beginnen daher Ende November 2012 und reichen bis einschließlich Dezember 2014.



Abb. 1.2: Experimentelle Arbeiten fanden auf den Messterrassen der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS) auf der Zugspitze (2.650 m ü. NN) statt.

Ferner konnte für die Berechnung der Scavenging-Koeffizienten auf Messdaten von partikelgrößenfraktionierten Aerosolkonzentrationen des Umweltbundesamtes zurückgegriffen werden, die im Rahmen des Monitoring-Programms „Global Atmosphere Watch“ der UN-WMO (United Nations – World Meteorological Organization) kontinuierlich mit einem SMPS-Spektrometer (Scanning Mobility Particle Sizer) am Schneefernerhaus aufgezeichnet werden.

Ein 2D-Video-Distrometer zur Charakterisierung der Niederschlagsereignisse wurde 2012 aus Projektmitteln beschafft und installiert. Es wurde notwendig, einen neuen Algorithmus für die Charakterisierung von Schneekristallen zu programmieren (vgl. Bernauer et al. 2015a), da die

mitgelieferte Software nur für die Auswertung von Regenereignissen zuverlässig brauchbar war. Zuverlässige Daten auch für Schnee liegen ab November 2012 vor.

Der Ablauf der Probenahme gestaltete sich so, dass neben der kontinuierlichen Aufzeichnung der Messwerte für die partikelgrößenfraktionierten Aerosole und die Schneecharakterisierung Probenahmekampagnen von 3-5 Tagen i.d.R. von zwei Mitarbeitern durchgeführt wurden. Mit dem Fokus auf Schneefällen wurden die Zeiträume der Kampagnen entsprechend der Niederschlagsvorhersage so geplant, dass erste Proben der atmosphärischen Gesamt-Aerosolkonzentrationen vor Einsetzen des Ereignisses gesammelt werden konnten und nach dem Beginn langzeitiger Schneefälle dann in etwa zweistündigem Abstand Proben von Gesamtaerosol und gefallenem Schnee genommen werden konnten. Nur aus solchen vollständig erfassten Niederschlagsereignissen lässt sich die Abnahme der Aerosolkonzentration in der Atmosphäre durch Washout belegen. Gleichzeitig erfolgte eine visuelle Beobachtung der Schneeparameter, um die methodisch ermittelten Daten zur Schneecharakterisierung zu verifizieren.

In 2012 wurden weiterhin im Rahmen einer Masterarbeit Experimente mit Schneesäulen im Kontrollbereich des Institut für Strahlenschutz, Helmholtz Zentrum München durchgeführt. Nach Auftrag der künstlichen Tracernuklide Cs-134 und Sr-85 auf präparierte Schneesäulen wurden das Transportverhalten und die Freisetzung der Radioaktivität in der Schneedecke in Diffusions-, Tau- und Tag/Nacht-Zyklus-Experimenten räumlich und zeitlich aufgelöst.

Arbeitspaket 3.1: Verbesserte Abschätzung der internen Dosis nach Inkorporation natürlicher Radionuklide aus Böden mit Hilfe von Modellstudien mit Heilerde (V. Höllriegel, S. Träber, AMSD)

Die Berechnung der internen Dosis nach Aufnahme von Radionukliden hängt entscheidend von deren biokinetischen Verhalten ab. Da die interne Dosis in exponierten Personen nicht direkt gemessen werden kann, basiert die interne Dosimetrie auf biokinetischen Modellen, die die Exposition und die Dosis miteinander vernetzen. Die biokinetischen Parameter wurden in dieser Arbeit durch experimentelle Untersuchungen am Menschen ermittelt.

Die Löslichkeit von Radionukliden im Gastrointestinal-Trakt kann durch *in vitro* Löslichkeitstests mit künstlich hergestelltem Magen- und Darmsaft simuliert werden. Als Grundlage diente in dieser Arbeit der Löslichkeitstest DIN E 19738, der weiterhin optimiert wurde.

Das Projekt war folgenderweise unterteilt:

- Durchführung einer Humanstudie mit freiwilligen Probanden, orale Gabe von 20 g Heilerde (aufgeschlämmt in Wasser), Sammlung von Blut- und Urinproben nach einem vorgegebenem Zeitplan;
- Bestimmung der (^{238}U)-Uran-Konzentration in den gesammelten Urinproben, Messung via ICP-Massenspektrometrie;
- Bestimmung der Bioverfügbarkeit (f_A) von Uran auf Basis der Humanstudie;
- Durchführung eines *in vitro* Löslichkeitstests zur Bestimmung der Löslichkeit (DF) von Uran aus Böden in synthetischen Magen-Darmflüssigkeiten;
- Bestimmung des f_A^{sol} -Faktors (Verknüpfung von f_A und DF)

- Berechnung der Bioverfügbarkeit (f_A) von Uran für Erwachsene bei einer hypothetischen Ingestion von Uran aus hochkontaminierten, uranhaltigen Böden
- Integrierung der Ergebnisse in das Biokinetikmodell von Uran;
- Dosisabschätzungen und Vergleich der Ergebnisse mit dem bestehenden biokinetischen ICRP-Modell für Uran.

Arbeitspaket 3.3: Probandenspezifische Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers (P. Nogueira, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz)

Mit dem Teilkörperzähler am Institut für Strahlenschutz (ISS) des Helmholtz Zentrums München (HMGU) konnten zu Beginn des Projekts Radionuklide, die nach einer Inkorporation langfristig in den Knochen eingebaut werden, mit variabler Detektoranordnung und hoher Effizienz nachgewiesen werden. Der Zähler bestand aus Germaniumdetektoren, die auf Grund der verwendeten Germaniumkristalle insbesondere für den Nachweis von Radionukliden wie ^{210}Pb , ^{241}Am oder ^{226}Ra geeignet waren. Zudem existierten weltweit einige wenige anthropomorphe Schädelphantome, die zumindest im Prinzip für eine experimentelle Kalibrierung eines Teilkörperzählers verwendet werden können.

Im Folgenden wird der Arbeitsablauf des Teilprojekts AP 3.3, der im Großen und Ganzen wie geplant ablief, detailliert beschrieben:

- Ausleihen von verfügbaren Schädelphantomen zum Nachweis von ^{241}Am beim Bundesamt für Strahlenschutz, dem „US Uranium and Transuranium Registries“ und dem „National Radiation Protection Institut“ (CSR) in der Tschechischen Republik, und Durchführung umfangreicher Messreihen an verschiedenen Positionen der Phantome, bei unterschiedlichen Abständen.
- Organisation eines internationalen Messvergleichs im Rahmen einer durch EURADOS (European Radiation Dosimetry Group) unterstützten Aktion unter Teilnahme von Teilkörperzählern aus Deutschland, Europa, den USA und Kanada.
- Auswertung der erzielten Messergebnisse, Validierung der im Rahmen von AP 3.3 erzielten Ergebnisse, sowie Identifizierung von optimalen Messgeometrien bzw. von standardisierten Messgeometrien.
- Implementierung der Geometrie der verwendeten Germaniumdetektoren in GEANT4 nach Abgleich und Überprüfung von Herstellerangaben, und Optimierung der Geometrie unter Verwendung von radioaktiven Punktquellen.
- Verwendung von Voxelmodellen der verwendeten Schädelphantome und Implementierung in GEANT4.
- Simulation des Ansprechvermögens der verwendeten Germaniumzähler unter Verwendung der Voxelphantome und von GEANT4, und Vergleich mit entsprechend gemessenen Ansprechvermögen.
- Durchführung ausführlicher Sensitivitätsanalysen zur Identifizierung von Parametern, die das Ansprechvermögen der Germaniumdetektoren für eine Schädelgeometrie beeinflussen. Zu diesen zu untersuchenden Parametern zählten insbesondere die Verteilung von ^{241}Am im Schädelknochen (homogen oder heterogen), die Schädelform, die Schädelgröße, und die Dicke der den Schädelknochen bedeckenden Kopfhaut.

- Entwicklung eines Verfahrens zur Korrektur des mit Schädelphantomen experimentell bestimmten Ansprechvermögens auf die individuellen Schädelparameter von Probanden.
- Anwendung der erzielten Korrekturfaktoren in einem realen Inkorporationsfall und Quantifizierung der mittels dieser Korrekturfaktoren erzielten Verbesserung bei der experimentellen in-vivo Bestimmung einer ^{241}Am im menschlichen Skelett.

Arbeitspaket 3.4: Biokinetische Modellierung und interne Dosisabschätzung auf der Basis experimenteller Messdaten (W.B. Li, U. Oeh, K. Brudecki, AMSD)

Die biokinetische Modellierung spielt eine zentrale Rolle für die Berechnung der Folgedosis und für die letztendliche Bewertung der gesundheitlichen Auswirkungen dar (= Gesamtziel des Verbundprojekts). Dies gilt gleichermaßen für die einzelnen im Verbundprojekt angedachten experimentellen Studien zur Aufnahme von Radionukliden aus Böden, Nahrung oder Wasser. Aus diesem Grund ist dieses Arbeitspaket mit einer Reihe verschiedener anderer Arbeitspakete direkt verknüpft, die im Rahmen des Verbundprojekts bearbeitet werden. Im Einzelnen sind dies die Arbeitspakete 3.1, 3.3, 4.1 und 4.3. Zur Bearbeitung der Einzelfragestellungen wurden daher spezifische Teilprojekte mit den einzelnen Arbeitspaketen besprochen und definiert.

Im Einzelnen wurden folgende Arbeiten geplant und durchgeführt:

- Validierung biokinetischer Parameter für die Inkorporation natürlicher Radionuklide (Uran, evtl. Th) aus dem Boden anhand von Löslichkeitsstudien und Probandenexperimenten mit Heilerde bzw. Bodenproben und Modellierung der jeweiligen Folgedosis (in Zusammenarbeit mit AP 3.1)
- Validierung biokinetischer Parameter für die Inkorporation natürlicher Radionuklide ($^{226,228}\text{Ra}$, ^{210}Pb und ^{210}Po) aus Nahrung und Wasser anhand von Ausscheidungsanalysen und Modellierung der jeweiligen Folgedosis (in Zusammenarbeit mit AP 4.1)
- Optimierung des Messzeitpunkts für die Ausscheidungsanalytik (in vitro-Messung) und die Messungen mittels Teilkörperzähler (in vivo-Messung) durch Modellierung der jeweiligen Organretention auf Grundlage experimenteller Ergebnisse (in Zusammenarbeit mit AP 3.3 und AP 4.1)
- Biokinetische Modellierung für Thoron und dessen Folgeprodukte, in Abhängigkeit des Alters, insbesondere für Kinder (in Zusammenarbeit mit AP 4.3)

Arbeitspaket 4.1: Aufnahme und Ausscheidung von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 an NORM/TENORM-Arbeitsplätzen (T. Shinonaga, A. Dieter, ISS; W.B. Li, AMSD)

Die Durchführung des Programmes erfolgte über sieben Tage (22.-28. September 2012) von denen drei Tage für die Reinigung des Wärmetauschers vorgesehen waren. Die Teilnehmer des Programmes wurden in zwei Gruppen aufgeteilt: Gruppe 1 bestehend aus drei Arbeitern, die an der Reinigung des Wärmetauschers eines Geothermiekraftwerkes in Neustadt-Glewe teilnahmen, Gruppe 2: Referenzpersonen bestehend aus nicht im Kraftwerk arbeitenden Personen (Büroangestellte). Die Teilnahme war auf Nichtraucher beschränkt, um eine

Beeinflussung der Ergebnisse durch Aufnahme von Pb-210 und Po-210 aus Tabakkomponenten zu verhindern.

Um einen Einfluss auf die Ergebnisse durch eine unterschiedliche Ernährung zu minimieren, wurden Nahrung und Getränke, die die Teilnehmer während der Durchführung der Studie zu sich nahmen, vom Projektkoordinator zubereitet und bereitgestellt. Die Zubereitung der Speisen erfolgte durch einen Lieferdienst und Fertignahrung und Getränke wurden an die Teilnehmer ausgegeben. Die Teilnehmer protokollierten die Namen und Menge der verzehrten Nahrung und Getränke sowie die zusätzlich selbst zubereitete Ernährung. Dieselbe Menge an zusätzlich verzehrten Lebensmitteln wurde aufbewahrt. Die Aufnahme von Nüssen, Schokolade mit Nüssen, Obst und Gemüse war limitiert. Der Verzehr von ungefilterten Getränken wie Weizenbier war verboten, obwohl der Genuss von gefilterten Getränken wie Wein und harter Alkohol erlaubt war.

Blei-210 und Polonium-210 sind die Zerfallsprodukte von Radon-222, welches eine Umgebungskonzentration im Freien von rund $10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und in Häusern von rund $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ aufweist. Um den Einfluss dieser Aktivitäten auf die Inhalationsdosis während der Reinigungsarbeit zu verhindern, wurde die Rn-222-Konzentration in der Umgebungsluft jedes Teilnehmers mittels einer Radon-Exposimeter (AP 4.2) gemessen. Die Teilnehmer wurden während der gesamten Laufzeit des Programmes mit diesem tragbaren Personen-Exposimeter ausgestattet. Zusätzlich wurden die Aktivitäten und Aufenthaltsorte durch die Teilnehmer notiert, um eine Korrelation zwischen Rn-222 Konzentrationen und den Gegebenheiten treffen zu können.

Urine und Stuhl der Teilnehmer wurden kontinuierlich über sieben Tage gesammelt. Vom 3. bis 5. Tag erfolgten die Reinigungsarbeiten. Die Sammlung der Ausscheidungen wurde am 2. Tag der vorgegeben Ernährung gestartet und am 7. Tag beendet. Die Ausscheidungen wurden als 24h-Proben gesammelt.

Der Ablauf war folgender:

- Organisation des Modelexperimentprogrammes zur Bestimmung der Inhalationsdosis von Arbeitern bei Reinigungsarbeiten in einem Geothermiekraftwerk.
- Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 in Nahrung und Getränken, die den Teilnehmern bereitgestellt wurden.
- Messung von Rn-222 in der Umgebungsluft der Teilnehmer.
- Bestimmung der Aktivität von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 in Urin und Ausscheidungen der Teilnehmer für jeden Tag während der Laufzeit (VKTA).
- Berechnung der effektiven Ingestionsdosis durch die Lebensmittel und der Jahresdosis von Rn-222.

Arbeitspaket 4.2: Entwicklung von aktiven Detektoren zur Bestimmung individueller Radon- und Thoronexpositionen (J. Irlinger, W. Rühm, ISS)

Zu Beginn von AP 4.2 waren mehrere Prototypen des am HMGU entwickelten elektronischen Radon-Exposimeters vorhanden, die bereits bei unterschiedlichen Umweltbedingungen getestet worden waren. Unter anderem konnten damit bereits die individuellen Radonexpositionen von Personen, die am Institut für Strahlenschutz des HMGU beschäftigt waren, sowohl in den Büroräumen als auch in Wohnräumen bestimmt werden. Zudem waren

bereits individuelle Radon-Expositionen von Beschäftigten des Radon-Heilstollens in Bad Gastein und in den Pharaonengräbern im Tal der Könige in Ägypten bestimmt worden.

Im Folgenden wird der Arbeitsablauf des Teilprojekts AP 4.2, der wie geplant ablief, detailliert beschrieben:

- Entwicklung eines Geräts mit verbesserter Radon-Nachweisgrenze durch Verwendung größerer Si-Detektoren ;
- Gleichzeitige Entwicklung einer verbesserten elektronischen Schaltung, die es erlaubt, Alphateilchen nicht nur nachzuweisen, sondern auch deren Energie zu bestimmen;
- Bau und von etwa 25 Prototypen des neuen Geräts;
- Test der neuen Prototypen und Kalibrierung relativ zu einem auf dem Markt befindlichen kommerziellen Referenzgerät (AlphaGuard der Firma Saphymo) in Bezug auf den Nachweis von Radon;
- Test der neuen Prototypen und Kalibrierung relativ zu einem auf dem Markt befindlichen kommerziellen Referenzgerät (RAD7 der Firma Durrige Company Inc.) in Bezug auf den Nachweis von Thoron;
- Entwicklung eines Auswerteverfahrens bei gleichzeitigem Vorhandensein von Radon und Thoron in der Atmosphäre;
- Test der Prototypen in gemischten Radon/Thoron-Atmosphären im Labor;
- Messungen unter Feldbedingungen;
- Simulation des Ansprechvermögens der entwickelten Prototypen mit dem Strahlungstransport-Programm GEANT4;
- Durchführung systematischer Parameterstudien zur Untersuchung der Abhängigkeit des Ansprechvermögens der neuen Prototypen von Umweltparametern (Temperatur, Luftdruck, etc.);
- Durchführung von Simulationen zur Optimierung des gewählten Detektorkonzepts (z.B. Optimierung der Abmessungen des Detektorgehäuses).

Arbeitspaket 4.3: Innenraumexposition durch Thoron (O. Meisenberg, S. Burgert, J. Tschiersch, ISS)

Als Voraussetzung der Studie wurde ein Thoron-Innenraummodell verwendet, dessen Transferparameter im ISS vorhandenen Thoron-Experimentierhaus ermittelt wurden. Das Modell und die Werte der Transferkoeffizienten wurden in Messungen in Häusern in Indien und China, in denen erhöhte Thoron-Konzentrationen gefunden wurden, validiert. Auf Grundlage des ICRP-Modells des Atemtrakts wurden bereits die Dosiskoeffizienten für die Nuklide der Thoron-Zerfallsreihe, für die Folgeprodukte getrennt in den Zuständen unangelagert und angelagert, berechnet.

Der geplante und durchgeführte Arbeitsablauf des APs sah wie folgt aus:

- Auswahl von geeigneten Wohnhäusern (Lehmbauweise) für die Messung von Thoron und seinen Zerfallsprodukten;
- Aktive Messung in zwei ausgewählten Modellhäusern;
- Passive Messung in 17 Wohnhäusern;
- Messung der Exhalation von Thoron aus Baumaterial;
- Berechnung der Inhalationsdosen;

- Entwicklung einer Standardmethode für die Bestimmung der Exposition;
- Überlegung zur Expositionsminimierung.

1.3. Wissenschaftlicher und technischer Stand

Im Folgenden wird ein knapper Überblick des wissenschaftlichen Stands der Forschung anhand der einschlägigen Literatur für die einzelnen Arbeitspakete gegeben. Detailliertere Ausführungen und die Einordnung der Ergebnisse finden sich in Kapitel 2.

Arbeitspaket 1.1: Modellierung des Verbleibs von Radionukliden in städtischer Umgebung und der resultierenden Exposition (A. Schelle, C. Staudt, A. Wieser, J.C. Kaiser, ISS)

Das Umgebungsfaktoren Prinzip wurde nach Messung der Ortsdosisleistung an unterschiedlichen Orten beobachtet (Jacob *et al.* 1990). Die entsprechenden Ergebnisse wurden durch Strahlentransportrechnungen in stilisierten städtischen Modellumgebungen reproduziert (Meckbach und Jakob 1988, Meckbach *et al.* 1988). Zur Korrektur von Ortsdosisleistungsmessungen mit Umgebungsfaktoren wurde für eine kleine Anzahl von Messorten im deutschen IMIS Netzwerk schematische Diagramme der Sensorumgebung von Hand erstellt (Zähringer und Sempau 1997). Um störende Effekte bei der geo-statistischen Interpolation zu vermeiden verwendet das Inhabited Areas Monitoring Module (IAMM) als Teil des JRODOS Software Pakets korrigierte GDR Messungen für die Erstellung von Kontaminationskarten (Thiessen *et al.* 2009). Außerdem werden Umgebungsfaktoren für IAMM durch Begutachtung von Satellitenbildern abgeschätzt (Kaiser und Pröhl 2007).

Zur automatisierten Berechnung von Umgebungsfaktoren wurde eine im Internet verfügbare ATKIS Karte von Moosach verwendet. Kontaminationsdaten von Messorten aus der Umgebung des Kernkraftwerkes Fukushima Daiichi wurden vom Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology Japan (MEXT) gesammelt und dem Projekt vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) zur Verfügung gestellt.

Auf folgende Literatur wurde zurückgegriffen:

- Andersson, K. (2009). Radioactivity in the Environment (Elsevier Science).
- Andersson, K., Roed, J., and Fogh, C. (2002). Weathering of radiocaesium contamination on urban streets, walls and roofs. *Journal of Environmental Radioactivity* 62, 49-60.
- ATKIS-Wiki (2012). Amtliches Topographisch-Kartographisches Informationssystem.
- ATKIS (2009). release no. R2009 V1.0, Gauss-Krüger Zone 4.0 (Bayerische Vermessungsverwaltung).
- Bleher, M., and Stölker, U. (2003). The impact of ambient dose rate measurement network and precipitation radar system for detection of environmental radioactivity released by accident. In: 12. Fachgespräch Überwachung der Umweltradioaktivität (Bonn, Germany).
- de Cort, M., de Vries, G., Breitenbach, L., and Dubois, G. (1998). EURDEP: A System for Radiological Data Exchange in Europe. In: Proceedings of the Sixth Topical Meeting on Emergency Preparedness and Response (American Nuclear Society, San Francisco, California, USA).
- Eckerman, K., and Ryman, J. (1993). External exposure to radionuclides in air, water, and soil. U.S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C., Federal Guidance Report no. 12, EPA-402-R-93-081.
- Genkel, S., and Schnadt, H. (2010). Übersicht der Maßnahmen zur Verringerung der Strahlenexposition nach Ereignissen mit nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen (Maßnahmekatalog). Vol. 60 of Berichte der Strahlenschutzkommission (SSK) des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.

- Gering, F. (2005). Data assimilation methods for improving the prognoses of radionuclide deposition from radioecological models with measurements. Ph.D. thesis (Leopold-Franzens Universität Innsbruck, Austria.).
- Heuvelink, G., Jiang, Z., Bruin, S., and CJW Twenhöfel (2010). Optimization of mobile radioactivity monitoring networks. *International Journal of Geographical Information Science* 24, 365-382.
- Hopmeier, M., Abrahams, J., and Carr, Z. (2010). Some considerations for mass casualty management in radiation emergencies. *Health Physics* 98, 790-794.
- ICRU (1994). Gamma-ray spectrometry in the environment. International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, MD, ICRU Report No. 53.
- INES (2012). The International Nuclear and Radiological Event Scale, International Atomic Energy Agency, Information Series, Division of Public Information, IAEA publication no. 08 24941/E.
- Jacob, P., Meckbach, R., Müller, H., and Meimberg, K. (1990). Abnahme der abgelagerten künstlichen Radioaktivität in städtischer Umgebung. GSF-Bericht 17/90, Neuherberg, Germany, GSF-Institut für Strahlenschutz.
- JRODOS (2012). Realtime Online Decision Support System for Nuclear Emergency Management.
- Kaiser, J. (2012). Empirical risk analysis of severe reactor accidents in nuclear power plants after Fukushima. *Science and Technology of Nuclear Installations* Article ID 384987.
- Kaiser, J., and Pröhl, G. (2007). Harnessing monitoring measurements in urban environments for decision making after nuclear accidents. *Kerntechnik* 72, 218-221.
- Katata, G., Ota, M., Terada, H., Chino, M., and Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part I: Source term estimation and local-scale atmospheric dispersion in early phase of the accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 109, 103-113.
- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., T Nishimura, Wong, Y., Honda, K., Takahashi, T., Sato, M., et al. (2011). Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108, 19526-19529.
- Lelieveld, J., Kunkel, D., and Lawrence, M. (2012). Global risk of radioactive fallout after major nuclear reactor accidents. *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, 4245-4258.
- Meckbach, R., and Jacob, P. (1988). Gamma exposures due to radionuclides deposited in urban environments. part II: Location factors for different deposition patterns. *Radiation Protection Dosimetry* 25, 181-190.
- Meckbach, R., Jacob, P., and Paretzke, H. (1988). Gamma exposures due to radionuclides deposited in urban environments. part I: Kerma rates from contaminated urban surfaces. *Radiation Protection Dosimetry* 25, 167-179.
- MEXT (2012). Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology - Japan, Monitoring information of environmental radioactivity level.
- Moosach-Wiki (2012). Moosach (Landkreis Ebersberg in Bayern).
- Paasikallio, A., Rantavaara, A., and Sippola, J. (1994). The transfer of cesium-137 and strontium-90 from soil to food crops after the Chernobyl accident. *The Science of the Total Environment* 155, 109-124.
- Pebesma, E., Cornford, D., Dubois, G., Heuvelink, G., Hristopulos, D., Pilz, J., Stöhlker, U., Morin, G., and Skøien, J. (2011). INTAMAP: The design and implementation of an interoperable automated interpolation web service. *Computer and Geosciences* 37, 343-352.
- Safecast (2012). Global sensor network for collecting and sharing radiation measurements to empower people with data about their environments.
- Schimmack, W., Bunzl, K., and Bachhuber, H. (1987). Variability of the sorption of Cs, Zn, Sr, Co, Cd, Ce, Ru, Tc and I at trace concentrations by a forest soil along a transect. *Environmental International* 13, 427-436.
- Schimmack, W., and Schultz, W. (2006). Migration of fallout radiocesium in a grassland soil from 1986 to 2001, Part I: Activity depth profiles of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs. *Science of the Total Environment* 368, 853-862.
- Terada, H., Katata, G., Chino, M., and Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the

- source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *Journal of Environmental Radioactivity* 112, 141-154.
- Thiessen, W., Andersson, K., Batandjieva, B., Cheng, J., WT Hwang, Kaiser, J., Kamboj, S., Steiner, M., Tomas, J., Trifunovic, D., et al. (2009). Modelling the long-term consequences of a hypothetical dispersal of radioactivity in an urban area including remediation alternatives. *Journal of Environmental Radioactivity* 100, 445-455.
 - Thompson, I. (2000). Technical recommendations on measurements of external environmental gamma radiation doses - A report of EURADOS Working Group 12 Environmental Radiation Monitoring. *Radiation Protection Dosimetry* 92, 71-76.
 - Thompson, I., Bøtter-Jensen, L., Deme, S., Pernicka, F., and Saez-Vergara, J. (1983). Principles of environmental monitoring related to the handling of radioactive materials. *Annals of the ICRP* 11-13.
 - Twenhöfel, C., Beynen, C.d.H.v., Lunenburg, A.v., Slagt, G., Tax, R., Westerlaak, P.v., and Aldenkamp, F. (2005). Operation of the Dutch 3rd generation national radioactivity monitoring network. In: Dubois, G. (Ed.), Automatic mapping algorithms for routine and emergency monitoring data, Report on the Spatial Interpolation Comparison (SIC2004) exercise. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, pp. 19-31, Report EUR 21595 EN.
 - Urso, L., Astrup, P., Helle, K., Raskob, W., Rojas-Palma, C., and Kaiser, J. (2013). Improving evaluation criteria for monitoring networks of weak radioactive plumes after nuclear emergencies. *Environmental Modelling & Software* 38, 108-116.
 - Yasunari, T., Stohl, A., Hayano, R., Burkhart, J., Eckhardt, S., and Yasunari, T. (2011). Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108, 19530-19534.
 - Zähringer, M., and Sempau, J. (1997). Calibration factors for dose rate probes in environmental monitoring networks obtained from monte-carlo simulations. *BfS-IAR-Berichte* 2/97, 2-83.

Arbeitspaket 1.3: Radioökologie bei Schnee (K. Hürkamp, F. Bernauer, S. Tafelmeier, J. Tschiersch, ISS)

Die Studie ist grob in drei Bereiche der radioökologischen Prozesse, bei denen Schnee beteiligt ist, gegliedert. 1) Der atmosphärische Depositionspfad (Washout und Schnee-Scavenging), 2) die Charakterisierung und Klassifizierung der Schneereignisse und 3) das Verhalten der Radionuklide in der Schneedecke und die Freisetzung mit dem Schmelzwasser.

Im Folgenden sind einige ausgewählte Arbeiten zum Schnee-Scavenging und Washout gelistet, aus denen teilweise Grundlagen zur Berechnung und Parametrisierung der Scavenging-Koeffizienten in diesem Arbeitspaket verwendet wurden:

- Chate, D.M. und Pranisha, T.S., 2004. Field studies of scavenging of aerosols by rain events. *Aerosol Science*, 35, 695-706.
- Ebert, P., Kibler, M., Mainka, A., Tenberken, B., Bächmann, K., Frank, G., Tschiersch, J., 1998. A field study of particle scavenging by raindrops of different sizes using monodisperse trace aerosol. *Journal of Aerosol Science*, 29, 173-186.
- Frank, G. und Tschiersch, J., 1992. Parametrisation of below cloud scavenging at low precipitation intensities by using a fluorescent tracer method. *Journal of Aerosol Science*, 23, S885-S888.
- Graedel, T.E. und Franey, J.P., 1974. Field measurements of submicron aerosol washout by snow. *Geophysical Research Letters*, 2, 325-328.
- Ioannidou, A. und Paatero, J., 2014. Activity size distribution and residence time of ⁷Be aerosols in the Arctic atmosphere. *Atmospheric Environment*, 88, 99-106.
- Kyrö, E.-M., Grönholm, T., Vuollekoski, H., Virkkula, A., Kulmala, M., Laakso, L., 2009. Snow scavenging of ultrafine particles: field measurements and parameterization. *Boreal Environment Research*, 6095, 527-538.

- Laakso, L., Grönholm, T., Rannik, U., Kosmale, M., Fiedler, V., Vehkamäki, H., Kulmala, M., 2003. Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements. *Atmospheric Environment*, 37, 3605-3613.
- Paramonov, M., Grönholm, T., Virkkula, A., 2011. Below-cloud scavenging of aerosol particles by snow at an urban site in Finland. *Boreal Environment Research*, 16, 304-320.
- Sparmacher, H., Fuebler, K., Bonka, H., 1993. Below-cloud scavenging of aerosol particles: particle-bound radionuclides – experimental. *Atmospheric Environment*, 27A, 605-618.
- Sportisse, B., 2007. A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment*, 41, 2683-2698.
- Tschiersch, J., Trautner, F., Frank, G., 1995. Deposition of atmospheric aerosol by rain and fog. In: *Deposition of radionuclides, their subsequent relocation in the environment and resulting implications. Report European Commission EUR 16604 EN, DG Science, Research and Development*, 3-11.
- Tschiersch, J., Busch, B., Lange Fogh, C., 1997. Measurements of concentration, size distribution and hygroscopicity of Munich winter aerosol. *Journal of Aerosol Science*, 28, S209-S210.
- Tschiersch, J., Frank, G., Winkler, R., 2000. Scavenging of aerosol-fixed radionuclides with rain and snow. *Tech. Rep. BMU-2001-564, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit*.
- Tschiersch, J., 2001. Snow deposition of a trace aerosol. *Journal of Aerosol Science*, 32, S195-S196.
- Volken, M. und Schumann, T., 1993. A Critical Review of Below-Cloud Aerosol Scavenging Results on Mt. Rigi. *Water, Air and Soil Pollution*, 68, 15-28.
- Winkler, R., Dietl, F., Frank, G., Tschiersch, J., 1998. Temporal variation of ⁷Be and ²¹⁰Pb size distributions in ambient aerosol. *Atmospheric Environment*, 32, 983-991.

Für die Schneecharakterisierung und Klassifizierung wurde auf folgende Publikationen zurückgegriffen:

- Barthazy, E. und Schefold, R., 2006. Fall velocity of snowflakes of different riming degree and crystal types. *Atmospheric Research*, 82, 391-398.
- Battaglia, A., Rustmeier, E., Tokay, A., Blahak, U., Simmer, C., 2010. PARSIVEL Snow Observations: A Critical Assessment. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 27, 333-344.
- Brandes, E.A., Ikeda, K., Zhang, G., Schönhuber, M., Rasmussen, R.M., 1986. A Statistical and Physical Description of Hydrometeor Distributions in Colorado Snowstorms Using a Video Disdrometer. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46, 634-650.
- Gavrilov, S., Kubo, M., Tran, V.A., Ngo, D.L., Nguyen, N.G., Nguyen, L.A.T., Lumbanraja, F.R., Phan, D., Satou, K., 2015. Feature Analysis and Classification of Particle Data from Two-Dimensional Video Disdrometer. *Advances in Remote Sensing*, 4, 1-14.
- Grazioli, J., Tuia, D., Monhart, S., Schneebeli, M., Raupach, T., Berne, A., 2014. Hydrometeor classification from two-dimensional video disdrometer data. *Journal of Atmospheric Measurement Technique*, 7, 2869-2882.
- Hanesch, M., 1999. Fall Velocity and Shape of Snow Flakes. Ph.D. thesis, Swiss Federal Institute of Technology, Zürich.
- Kruger, A. und Krajewski, W.F., 2002. Two-Dimensional Video Disdrometer: A Description. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 19, 602-617.
- Locatelli, J.D. und Hobbs, P.V., 1974. Fall speeds and masses of solid precipitation particles. *Journal of Geophysical Research*, 79, 2185-2197.
- Nešpor, V., Krajewski, W.F., Kruger, A., 2000. Wind-Induced Error of Raindrop Size Distribution Measurement Using a Two-Dimensional Video Disdrometer. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 17, 1483-1492.
- Zhang, G., Luchs, S., Ryzhkov, A., Xue, M., 2011. Winter Precipitation Microphysics Characterized by Polarimetric Radar and Video Disdrometer Observations in Central Oklahoma. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 50, 1558-1570.

Das Verhalten von Radionukliden bzw. Ionen in der Schneedecke und deren Freisetzung mit dem Schmelzwasser beschreiben:

- Bales, R.C., Davis, R.E., Stanley, D.A., 1989. Ion elution through shallow homogeneous snow. Water resources Research, 25, 1869-1877.
- Brimblecombe, P., Tranter, M., Tsiouris, S., Davis, T.D., Vincent, C.E., 1986. The chemical evolution of snow and meltwater. International Association of Hydrological Sciences, IAHS Press, Wallingford, 283-295.
- Cadle, S.H., Dasch, J.M., Grossnickle, N.E., 1984. Northern Michigan snowpack – a study of acid stability and release. Atmospheric Environment, 18, 807-816.
- Colbeck, S.C., 1977. Trace movement through snow. International Association of Hydrological Sciences, Adlard & Son Ltd, Bartholomew Press, Dorking, 255-262.
- Cragin, J.H., Hewitt, A.D., Colbeck, S.C., 1996. Grain-scale mechanisms influencing the elution of ions from snow. Atmospheric Environment, 30, 119-127.
- Davis, R.E., Petersen, C.E., Bales, R.C., 1995. Ion flux through a shallow snowpack: effects of initial conditions and melt sequences. International Association of Hydrological Sciences, IAHS Press, Wallingford, 115-126.
- Herrmann, A. und Stichler, W., 1981. Isotope Input into Runoff Systems from Melting Snow Covers. Nordic Hydrology, 12, 309-318.
- Johannes, A.H., Galloway, J.N., Troutman, D.E., 1981. Snowpack storage and ion release. In: Integrated Lake-Watershed Study. EPRI report, EA-125, 6-1.
- Johannessen, M. und Henriksen, A., 1978. Chemistry of snow meltwater: changes in concentration during melting. Water Resources Research 14, 615-619.
- Tsiouris, S., Vincent, C.E., Davis, T.D., Brimblecombe, P., 1985. The elution of ions through field and laboratory snowpacks. Annals of Glaciology, 7, 196-201.
- Vakulovskii, S.M., Novitskii, M.A., Mazurin, N.F., Tertyshnik, E.G., Khachaturova, L.M., 2007. Preliminary Results of Modeling Studies on Washout of Stable and Radioactive Analogs of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs from Snow-Covered Areas. Russian Meteorology and Hydrology, 8, 508-513.

Arbeitspaket 3.1: Verbesserte Abschätzung der internen Dosis nach Inkorporation natürlicher Radionuklide aus Böden mit Hilfe von Modellstudien mit Heilerde (V. Höllriegel, S. Träber, AMSD)

Uran kann nach Ingestion und Aufnahme in den Körper ein mögliches radiologisches Risiko für den Menschen bedeuten. Die ICRP hat für das Element Uran ein biokinetisches Modell entwickelt und vorgeschlagen, welches die Aufnahme, Verteilung und Ausscheidung von Uran (und seinen Zerfallsprodukten) beschreibt. Die biokinetischen Parameter sind hauptsächlich für lösliches Uran aus Trinkwasser erstellt worden. Die EU-Richtlinie 92/96 EURATOM enthält Daten für die derzeit verbindlichen Ingestions- und Inhalationsdosiskoeffizienten für die Allgemeinbevölkerung; diese entsprechen den Werten der ICRP-Publikationen Nr. 56, 57, 69, und 72 (ICRP 1989, 1993, 1995a, 1995b, 1996). Die diesen Dosiskoeffizienten für die Allgemeinbevölkerung zugrunde liegenden Werte für die Löslichkeit der Radionuklide im Gastrointestinal-Trakt und dem daraus absorbierten Bruchteil (f_1 -Wert) wurden weitgehend aus Expositionsbedingungen am Arbeitsplatz abgeleitet. Für umweltbedingte Expositionen liegen nur wenig belastbare Daten für die Aufnahme von Radionuklide vor. Uran kann z.B. durch Verschlucken von Boden, durch Einatmen von Staub, über mit Erde behafteten Nahrungsmitteln oder über sogenannte Hand-zu-Mund-Aktivitäten bei kleinen Kindern aufgenommen werden (Abrahams 2002, Sing 2010). Zudem ist ein bewusstes Essen von Erde möglich (z.B. Essen von medizinischer Heilerde zur Linderung von Verdauungsproblemen). Bei Erwachsenen wird eine tägliche Aufnahme von 10 mg Erde

angenommen, dabei können bei einer Behandlung mit Heilerde sogar täglich 6-40 g Erde über mehrere Wochen gegessen werden (Höllriegl 2010, Stanek 1997). Die tägliche Aufnahme von Erde liegt bei Kindern zwischen 26 und 100 mg/Tag (Stanek 2012, UNSCEAR 2013).

Die Löslichkeit von Radionukliden aus Bodenmaterial kann durch *in vitro* Löslichkeitstests (Ruby 1999, Harmsen 2007, Höllriegl 2010, Jovanovic 2012,) unter Verwendung von synthetischen Magen- und Darmflüssigkeiten bestimmt werden. Damit kann z.B. abgeschätzt werden, wieviel Uran nach einer Ingestion von Boden im Magendarmtrakt gelöst vorliegt und für eine mögliche Aufnahme in den menschlichen Kreislauf verfügbar ist. Da die ermittelte Löslichkeit von den verwendeten *in vitro* Methoden stark abhängig ist (Van de Wiele 2007), war es notwendig, die Methode für dieses Projekt zunächst zu optimieren.

Bekannt sind verschiedene Untersuchungen, die darauf abzielten, die Bioverfügbarkeit von Uran aus Böden mittels *in vitro* Löslichkeitsdaten abzuleiten. So wurde z.B. angenommen, dass der Gesamtanteil des löslichen Urans in das Blutkreislaufsystem aufgenommen wird; diese Wissenschaftler setzten damit die Bioverfügbarkeit gleich der Löslichkeit (Frelon 2007). Andere gingen von einem Anteil von 0,2% - 5% an löslichem Uran im Verdauungstrakt aus, der ins Blut resorbiert werden kann (Höllriegl 2010). Folglich variierten die geschätzten Bioverfügbarkeitswerte für Uran aus Böden bis zu einem Faktor von etwa drei Größenordnungen.

Verwendete Fachliteratur:

- Abrahams, P. W. 2002. Soils: their implications to human health. *Sci. Total Environ.*, 291, (1-3), 1-32.
- Frelon, S.; Chazel, V.; Tourlonias, E.; Blanchardon, E.; Bouisset, P.; Pourcelot, L.; Paquet, F. (2007). Risk assessment after internal exposure to black sand from Camargue: uptake and prospective dose calculation. *Radiat. Prot. Dosimetry* 127, 64-7.
- Harmsen, J. (2007) Measuring bioavailability: from a scientific approach to standard methods. *J. Environ. Qual.* 36, 1420–1428.
- Höllriegl, V., Li, W.B., Leopold, K., Gerstmann, U., Oeh, U. (2010) Solubility of uranium and thorium from a healing earth in synthetic gut fluids: A case study for use in dose assessments. *Sci. Tot. Environ* 408, 5794-5800.
- ICRP (1989) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 1. Publication 56, Pergamon Press, Oxford
- ICRP (1993) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 2: Ingestion dose coefficients. Publication 67, Elsevier, Oxford
- ICRP (1995a) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 3: Ingestion dose coefficients. Publication 69, Elsevier, Oxford
- ICRP (1995b) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 4: Inhalation dose coefficients. Publication 71, Elsevier, Oxford
- ICRP (1996) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 5: Compilation of inhalation and ingestion dose coefficients. Publication 72, Elsevier, Oxford
- Jovanovic S.V., Pan P., Wong L. (2012) Bioaccessibility of uranium in soil samples from Port Hope, Ontario, Canada. *Environ Sci Technology* 46, 9012-9018.
- Ruby, M. V.; Schoof, R.; Brattin, W.; Goldade, M.; Post, G.; Harnois, M.; Mosby, D. E.; Casteel, W.; Berti, W.; Carpenter, M.; Edwards, D.; Cragin, D.; Chappell, W. R., Advances in evaluation the oral bioavailability of inorganics in soil for use in human health risk assessment. *Environ. Sci. Technol.* 1999, 33, (21), 3697-3705.
- Sing, D.; Sing, C. F., Impact of direct soil exposures from airborne dust and geophagy on human health. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2010, 7, (3), 1205-23.
- Stanek, E. J., 3rd; Calabrese, E. J.; Barnes, R.; Pekow, P., Soil ingestion in adults--results of a second pilot study. *Ecotox. Environ. Safety* 1997, 36, (3), 249-57.

- Stanek, E. J. 3rd.; Calabrese, E. J.; Xu, B., Meta-analysis of mass-balance studies of soil ingestion in children. Risk Anal. 2012, 32, (3), 433-47.
- UNSCEAR Sources, effects and risks of ionizing radiation, Annex B - Effects of radiation exposure of children; 2013.
- Van de Wiele, T.R. (2007) Comparison of five in vitro digestion models to in vivo experimental results: Lead bioaccessibility in the human gastrointestinal tract. J. Environ. Sci. Health, Part A 42,1203-1211.

Arbeitspaket 3.3: Probandenspezifische Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers (P. Nogueira, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz)

Teilkörperzähler zum Nachweis von Radionukliden, die nach Inkorporation in das menschliche Skelett eingebaut werden, werden mit anthropomorphen Phantomen von Schädeln oder anderen Teilen des menschlichen Skeletts experimentell kalibriert. Für das Teilprojekt AP 3.3 konnten drei Schädelphantome verwendet werden.

- Ein relativ kleines Schädelphantom des Bundesamts für Strahlenschutz in Neuherberg: Das Phantom basiert auf einem relativ kleinen menschlichen Schädel, auf den auf der Innen- und Außenseite der Schädelkalotte mittels kontaminierter Filterplättchen eine bestimmte Aktivität an ^{241}Am aufgebracht worden war. Der Schädel wurde anschließend mit gewebeäquivalentem Wachs einer Dicke, die der typischen Dicke der menschlichen Kopfhaut entspricht, bedeckt.
- Ein zweites Schädelphantom stammt vom USTUR in den USA. Dieses Phantom basiert auf dem Schädel einer Person, die sich berufsbedingt mit ^{241}Am kontaminiert hatte und die ihren Körper im Falle des Todes der Wissenschaft vermacht hatte. Aus der einen Hälfte des Schädels wurde ein Schädelphantom hergestellt, das auf der anderen Seite mit einem unkontaminierten menschlichen Schädel ähnlicher Größe ergänzt wurde.
- Im Laufe des Teilprojekts AP 3.3 wurde schließlich ein drittes Phantom verfügbar. Dieses Phantom wurde im Rahmen einer EURADOS Projekts am „National Radiation Protection Institut“ (CSR) in der Tschechischen Republik hergestellt. Es besteht aus einer künstlich aus Gips hergestellten kugelförmigen Halbschale die mit einer definierten Aktivität an ^{241}Am kontaminiert wurde.

Folgende Simulationsrechnungen wurden durchgeführt:

- Das ISS des HMGU verfügte zu Beginn des AP 3.3 bereits über umfangreiche Erfahrungen auf dem Gebiet von Strahlentransport-Simulationen. Dazu wurden die Programme MCNP, MCNPX und GEANT4 verwendet. Insbesondere wurde GEANT4 verwendet, um die durch die kosmische Strahlung in der Atmosphäre erzeugten Sekundärteilchen (Neutronen, Protonen, Elektronen, Positronen, Müonen, etc.) zu simulieren und die dadurch entstehende Organdosis für fliegendes Personal zu berechnen (Doktorarbeit G. Simmer). GEANT4 wurde am ISS außerdem verwendet, um die Dosis durch Neutronen und Photonen eines Patienten bei der Neutronentherapie am Forschungsreaktor II der TU München zu berechnen (Doktorarbeit S. Garny).
- Für die Dosisberechnungen bei der Neutronentherapie wurde das ICRP-Voxelphantom des menschlichen Körpers in GEANT4 implementiert. Damit konnte eine dreidimensionale Dosisverteilung durch Photonen und Neutronen im Patienten bestimmt werden (Doktorarbeit S. Garny).

Damit waren am ISS alle wissenschaftlichen Voraussetzungen vorhanden, um mittels GEANT4 das Ansprechvermögen von außerhalb des menschlichen Körpers positionierten

Halbleiterzählern zu simulieren, wobei der Proband, in dessen Skelett sich z.B. das Radionuklid ^{241}Am befindet, das die vom außerhalb des Körpers befindlichen Detektors nachzuweisenden Photonen emittiert, mittels eines in die GEANT4-Simulation implementierten Voxelfantoms beschrieben wird.

Arbeitspaket 3.4: Biokinetische Modellierung und interne Dosisabschätzung auf der Basis experimenteller Messdaten (W.B. Li, U. Oeh, K. Brudecki, AMSD)

Im Rahmen des Strahlenschutzes ist die realistische Ermittlung von Strahlendosen eine Grundvoraussetzung für die Bewertung der gesundheitlichen Risiken und Auswirkungen inkorporierter Radionuklide. Werden Radionuklide vom menschlichen Körper aufgenommen, so kann die resultierende interne Strahlendosis nicht direkt gemessen, sondern muss unter Zuhilfenahme biokinetischer Modelle berechnet werden (ICRP, 1996). Als Datengrundlage können dabei *in vitro*-Messungen (Ausscheidungsmessungen) dienen, wo die Radionuklidkonzentration im Urin und Stuhl, aber auch im Blut, im Schweiß, in den Zähnen, in den Haaren und Nägeln gemessen wird (Karpas, 1996; Oeh, 2007). Zusätzlich können auch die Ergebnisse von *in vivo*-Messungen (Messungen mittels Ganz- oder Teilkörperzähler) zur biokinetischen Modellierung herangezogen werden (Rühm, 2008). Durch die experimentell zugänglichen Daten aus den *in vitro*- und *in vivo*-Messungen können so mit Hilfe gegebener biokinetischer Modelle verschiedene Fragestellungen hinsichtlich des biokinetischen Verhaltens von Radionukliden im Körper bis hin zur resultierenden effektiven Dosis beantwortet werden. Dies wurde am Helmholtz Zentrum München bereits für eine Vielzahl von Einzelbeispielen durchgeführt (Oeh, 2007; Rühm, 2008; Li, 2008a).

Auf der anderen Seite können die experimentell bestimmten Daten durch eine geschickte Auswahl ebenso zur Validierung des biokinetischen Modells herangezogen werden (Li, 2008b). Die Modellvalidierung und gegebenenfalls Verbesserung des Modells ist von großer Bedeutung, da viele Biokinetischen Modelle nach wie vor ungenau sind, da sie entweder auf einer unzureichend großen Datengrundlage oder anhand von Tierdaten erstellt wurden.

- ICRP (1996) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 5: Compilation of inhalation and ingestion dose coefficients. ICRP Publication 72, Elsevier, Oxford. 1996
- Karpas Z, Paz-Tal O, Lorber A, Salonen L, Komulainen H, Auvinen A, Saha H, Kurttio P (2005) Urine, hair, and nails as indicators for ingestion of uranium in drinking water. *Health Phys* 88:229-242
- Li WB, Gerstmann U, Giussani A, Oeh U, Paretzke HG (2008a) Internal dose assessment of ^{210}Po using biokinetic modeling and urinary excretion measurement. *Radiat Environ Biophys* 47:101-110
- Li WB, Höllriegl V, Roth P, U. Oeh (2008b) Influence of human biokinetics of strontium on internal ingestion dose of ^{90}Sr and absorbed dose of ^{89}Sr to organs and metastases. *Radiat Environ Biophys* 47:225-239
- Oeh U, Li WB, Höllriegl V, Guissani A, Schramel P, Roth P, Paretzke HG (2007) Daily Uranium Excretion in German peacekeeping Personnel serving on the Balkans compared to ICRP Model Prediction. *Radiat Prot Dosim* 125:500-5005
- Rühm W (2008) Rekonstruktion einer potentiellen ^{226}Ra -Skelettaktivität mit einem Teilkörperzähler. Interner HMGU-Bericht

Arbeitspaket 4.1: Aufnahme und Ausscheidung von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 an NORM/TENORM-Arbeitsplätzen (T. Shinonaga, A. Dieter, ISS; W.B. Li, AMSD)

Natürlich vorkommende radioaktive Materialien (NORM) und technisch angereicherte natürlich vorkommende radioaktive Materialien (TENORM) weisen Konzentrationen in

Größenordnungen auf, die in Einrichtungen von Geothermiekraftwerken, wie Wärmetauschern und Ein-/Auslassfilter, angesammelt werden und diese Konzentrationen wurden zuvor berichtet (Bou-Rabee, 2009; Köhler, 2010; Cuenot, 2011). Die Inhalationsdosis der Arbeiter während dieser Arbeiten, speziell bei der Reinigung von Wärmetauschern und Ein-/Auslassfilter, sind wichtige Daten für die jeweiligen Strahlenbelastungen.

- Bou-Rabee, F., Al-Zamel, A. Z., Al-Fares, R. A., Bem, H. Technologically enhanced naturally occurring radioactive materials in the oil industry (TENORM). A review, NUKLEONIKA 54, 3-9 (2009).
- Köhler, M., Degering, D. Radiation protection for deep geothermal facilities. In: Proceedings of the Annual Conference 2010 of the Fachverband für Strahlenschutz e.v. Borkum. 153-158. FS-2010-153-T (2010).
- Cuenot, N.; Goerke, X.; Guéry, B.; Bruzac, S.; Meneust, P.; Sontot, O.; Maquet, J. & Vidal, J. Evolution of the natural radioactivity within the Soultz geothermal installation. Soultz Geothermal Conference, October 5 & 6, (2011).

Radium-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228, welche in Anlagen von Geothermiekraftwerken gefunden werden, sind NORM/TNORM. In diesem Projekt beschäftigt sich diese Studie mit der Analyse der Aktivitätskonzentrationen der oben genannten Radionuklide am HMGU in gekochten Lebensmitteln und gekauften Lebensmitteln und Getränken, die für die Arbeiter und Referenzpersonen, die nicht bei der Reinigung beteiligt waren, bereitgestellt wurden und in Urin und Ausscheidungen der Arbeiter analysiert beim VKTA. Viele Analysemethoden für Radionuklide in Lebensmitteln und Getränken wurden zuvor veröffentlicht. Die veröffentlichten Konzentrationen von Radionukliden in Lebensmitteln und Trinkwasser sind in UNSCEAR 2000 zusammengefasst. Ebenfalls wurden die Gehalte an Po-210 und K-40 in gekochten Nahrungsmitteln und die jeweiligen Analysemethoden veröffentlicht (Sugiyama, 2009).

- UNSCEAR, UNSCEAR 2000 REPORT VOL.1 SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION ANNEX B: Exposures from natural radiation sources. 2000.
- Sugiyama, H., Terada, H., Isomura, K., Iijima, I., Kobayashi, J., Kitamura, K. Internal exposure to ²¹⁰Po and ⁴⁰K from ingestion of cooked daily foodstuffs for adults in Japanese cities. J. Toxicol. Sci, 34, 4, 417-425 (2009).

Für die Analyse von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 in Lebensmitteln und Getränken wurden die zerstörungsfreie Gamma-Spektrometrie (Ra-226, Pb-210, Ra-228) und Alpha-Spektrometrie zusammen mit einer chemischen Trennung (Po-210 und Th-228) angewendet. Die Validierungsstudie der Analysemethoden erfolgte mit Referenzmaterialien nach ISO 17025. Nachweisgrenzen und Erkennungsgrenzen wurden nach ISO 11929: 2010 bestimmt. Unsicherheiten wurden nach dem Prinzip des GUM und der DIN V ENV 13005 bestimmt.

- ISO 17028:2005 General requirements for the competence of testing and calibration laboratories.
- DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation - Fundamentals and applications (ISO 11929:2010). 2011.
- International Organisation for Standardisation, Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. 1995.
- DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim Messen. DIN V ENV 13005, 1999.

Die Konzentration von Radon-222 liegt im Freien bei rund 10 Bq/m³ und in Häusern bei rund 50 Bq/m³. Um die Aufnahme von Rn-222 von jedem Teilnehmer zu bestimmen, wurde die Rn-222-Konzentration in der Umgebungsluft jedes Teilnehmers mittels eines Radon-Exposimeters (AP 4.2) gemessen.

- Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., Thoron detection with an active Radon exposure meter—First results. Review of Scientific Instruments, 85, 022106 (2014).

Die effektive Folgedosis wurde individuell unter Berücksichtigung des Aufnahmeszenarios der untersuchten Person anhand der altersabhängigen Dosiskoeffizienten, veröffentlicht von der ICRP (ICRP 68, 1994; ICRP 72, 1996), berechnet. Für den Zeitraum vor und nach der Untersuchung wurden die altersabhängigen durchschnittlichen täglichen Aufnahmen der untersuchten Radionuklide der deutschen Bevölkerung ermittelt. Die Berechnung erfolgte anhand des täglichen Verzehrs an Nahrungsmitteln und Trinkwasser der deutschen Bevölkerung (BMJ 2001) und den Radionuklidgehalten in diesen Nahrungsmitteln und Trinkwasser in Deutschland (UNSCAER Report 2000). Wenn der Verbrauch und die Konzentrationen der untersuchten Radionuklide für Deutschland nicht zur Verfügung standen, wurden Referenzwerte für die Weltbevölkerung, bereitgestellt von UNSCEAR (UNSCAER Report 2000), verwendet.

- UNSCEAR 2000. Sources and effects of ionizing radiation: 2000 report to the General Assembly, with scientific annexes, Vol 1, Annex B. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York.
- ICRP 1996. Age-dependent doses to members of public from intake of radionuclides: Part 5 Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. ICRP Publication 72, Pergamon Press. Oxford.
- BMJ 2001. Bundesgesetzblatt Teil I: Verordnung für die Umsetzung von EURATOM-Richtlinien zum Strahlenschutz, G 5702, Nr. 38, Bundesanzeiger, Bundesministerium der Justiz.

Arbeitspaket 4.2: Entwicklung von aktiven Detektoren zur Bestimmung individueller Radon- und Thoronexpositionen (J. Irlinger, W. Rühm, ISS)

Zu Beginn von AP 4.2 standen Prototypen eines am Helmholtz Zentrum München entwickelten neuartigen elektronischen Exposimeters zur Verfügung, die zeitaufgelöste Messungen der individuellen Personenexposition ermöglichte.

Dieses Gerät hatte die Größe einer Zigarettenschachtel und wog etwa 150 g, so dass es problemlos auch während der Arbeit getragen werden kann. Wegen seines geringen Energieverbrauchs reichte die eingebaute Batterie für etwa ein Jahr. Das Gerät akkumulierte alle nachgewiesenen Ereignisse von Alphateilchen und speicherte sie nach einer einstellbaren Messzeit (z.B. eine Stunde) ab, so dass kontinuierlich die Radonexposition, der die tragende Person ausgesetzt ist, gemessen werden konnte. Es konnte zu einem beliebigen Zeitpunkt ausgelesen werden, so dass lückenlose Zeitreihen der individuellen Radonexposition aufgezeichnet werden konnten.

Das Gerät war bereits unter verschiedensten äußeren Umständen getestet worden. Zum Beispiel konnten damit die Radonkonzentrationen für Personen, die am Institut für Strahlenschutz des HMGU beschäftigt waren, sowohl in deren Büroräumen als auch in deren Wohnräumen (Wohnzimmer und Schlafzimmer) bestimmt werden. Die Teilnehmer der Studie trugen zudem ein Exposimeter die ganze Zeit am Körper, um auch die individuelle Exposition zu bestimmen. Die über einen typischen Zeitraum von einer Woche nachgewiesenen Radonkonzentrationen lagen zwischen etwa 10 Bq/m^3 (was einer typischen Radonkonzentration der Außenluft entspricht) und 2.000 Bq/m^3 (in einem Büroraum am Montag früh, wobei während des Wochenendes der Raum nicht belüftet wurde).

Zudem waren individuelle Radon-Expositionen von Beschäftigten des Radon-Heilstollens in Bad Gastein gemessen worden. Dazu trugen Probanden und Zugführer der Patientenbahn für einen Tag einige Prototypen des Exposimeters, wobei Radonkonzentrationen von bis 160.000 Bq/m^3 in der Luft vorhanden waren. Die Geräte funktionierten einwandfrei, obwohl während der Messungen eine Luftfeuchtigkeit von etwa 100% vorhanden war.

Schließlich wurde Aufsichtspersonal in den Pharaonengräbern im Tal der Könige in Ägypten für einige Tage mit Prototypen der Exposimeter ausgestattet. Die in den Gräbern gemessenen Radonkonzentrationen waren bis zu 12.000 Bq/m^3 , während die Radonkonzentrationen in den Wohnhäusern der Teilnehmer der Studie sehr gering waren.

Die vorhandenen Prototypen funktionierten also zuverlässig, und es wurden zu Beginn des Projekts AP 4.2 Verhandlungen mit einem industriellen Partner zur Entwicklung eines marktfähigen Produkts geführt.

- E. Gruber, E. Salama, W. Rühm. Real-time measurement of individual occupational radon exposures in tombs of the Valley of the Kings. *Radiation Protection Dosimetry* (2011), Vol. 144, No. 1-4, pp. 620-626.
- F.L. Karinda, B. Haider, W. Rühm. A new electronic personal exposure meter for radon gas. *Radiation Measurements*, 43, 1170-1174, 2008.

Arbeitspaket 4.3: Innenraumexposition durch Thoron (O. Meisenberg, S. Burgert, J. Tschiersch, ISS)

Zur Ableitung von Hypothesen über das Vorkommen und Verhalten von Thoron und seinen Folgeprodukten im Innenraum wurde am Helmholtz Zentrum München ein mathematisches Modell für die Konzentrationen der beteiligten Nuklide in der Luft in Abhängigkeit verschiedener Umweltparameter wie der Raumgröße, der Luftwechselrate und der Aerosolkonzentration entwickelt (Meisenberg und Tschiersch, 2010). Die in dem Modell vorkommenden Transferkoeffizienten wurden in Messungen in einem am Helmholtz Zentrum München vorhandenen Thoron-Experimentierhaus (Tschiersch und Meisenberg, 2010) bestimmt. Das Modell und die Werte der Transferkoeffizienten wurden in Messungen in Häusern in Indien und China, in denen erhöhte Thoron-Konzentrationen gefunden wurden, validiert (Meisenberg und Tschiersch, 2011). Eine Validierung in Häusern in Deutschland stand zum Zeitpunkt des Projektbeginns noch aus.

Auf Grundlage des ICRP-Modells des Atemtrakts (ICRP, 1994) wurden Dosiskoeffizienten für die Nuklide der Thoron-Zerfallsreihe, für die Folgeprodukte getrennt in den Zuständen unangelagert und angelagert, berechnet (Li et al., 2008).

Aus den Ergebnissen der Innenraum-Modellierung, der Messungen und der Dosimetrie können folgende strahlenschutzrelevante Aussagen zur Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten abgeleitet werden, die in den Messungen zur Bestimmung der Exposition der Bewohner von Lehmhäusern angewendet wurden:

- Ähnlich wie bei der Exposition gegenüber der Radon-Zerfallsreihe wird die Inhalationsdosis bei Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten fast ausschließlich von den Folgeprodukten verursacht.
- Den größten Anteil zur Inhalationsdosis liefert unter Bedingungen, die im Wohnumfeld üblich sind, angelagertes ^{212}Pb . Der Beitrag der unangelagerten Folgeprodukte ist aufgrund ihrer geringen Konzentration klein.

- Die räumliche Verteilung der Konzentration von Thoron im Innenraum kann mit zwei Anteilen beschrieben werden: einem Anteil hoher Konzentration innerhalb weniger Zentimeter zu den Thoron-Quellen mit etwa exponentiellem Abfall mit steigendem Abstand und einem Anteil kleiner, homogener Konzentration im Raum.
- Der Gleichgewichtsfaktor, definiert als das Verhältnis der Konzentration der Thoron-Folgeprodukte zur mittleren Konzentration des Thorons, ist aufgrund der längeren Halbwertszeit der Folgeprodukte kleiner als in der Radon-Zerfallsreihe und stärker von äußeren Einflüssen, vor allem von der Luftwechselrate, abhängig.

Referenzen:

- ICRP: Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. ICRP Publication 66. Annals ICRP 24. Pergamon, 1994.
- Li W.B., Tschiersch J., Oeh U., Hoeschen C.: Lung dosimetry of inhaled thoron decay products. Proceedings IRPA 12. Buenos Aires, 2008.
- Meisenberg O., Tschiersch J.: Specific properties of a model of thoron and its decay products in indoor atmospheres. Nukleonika 55 (2010) 463–469.
- Meisenberg O., Tschiersch J.: Thoron in indoor air: modeling for a better exposure estimate. Indoor Air 21 (2011) 240–252.
- Tschiersch J., Meisenberg O.: The HMGU thoron experimental house: a new tool for exposure assessment. Radiation Protection Dosimetry 141 (2010) 395-399.

1.4. Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Ein wesentliches Ziel des Verbunds „Strahlung und Umwelt II“ war die Stärkung der Vernetzung der radioökologischen und biokinetischen Forschung in Deutschland. Deshalb wurde in Workshops des Verbundes die Zusammenarbeit zwischen den Arbeitspaketen systematisch befördert. In insgesamt sechs internen Workshops (15.3.2011, KIT Karlsruhe; 15.9.2011, Rheinbach; 28./29.2.2012, HMGU Neuherberg; 8./9.10.2012, Uni Jena; 20./21.6.2013, HMGU Neuherberg; 25.3.2014, Uni Hannover) wurden die Arbeitsfortschritte besprochen und Kollaborationen verabredet. Die Folge waren viele bi- und trilaterale Kooperationen, um die Stärken einzelner Partner für die jeweiligen Fragestellungen zu nutzen. Der offensichtliche Erfolg dieser Zusammenarbeiten spiegelt sich bereits in einer Vielzahl von Publikationen wider, zu denen mehrere APs beigetragen haben (siehe Kap. 4). Darüber hinaus haben verschiedene APs individuelle Zusammenarbeiten mit anderen Stellen gepflegt. Diese werden im Folgenden dargestellt.

Arbeitspaket 1.1: Die Kontaminationsdaten zur Berechnung von Umgebungsfaktoren in der Nähe des Fukushima Daiichi Kernkraftwerkes wurden vom Bundesamt für Strahlenschutz zur Verfügung gestellt. Ursprünglich wurden diese Daten vom Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology Japan gesammelt.

Arbeitspaket 1.3: Innerhalb des Verbunds fand ein intensiver Austausch mit der Arbeitsgruppe der Leibniz-Universität Hannover statt, die das AP 1.2 bearbeitet hat. Für die Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen von I-129 in unterschiedliche Umweltmedien wurden an der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS) bei jeder Probenahmekampagne zusätzliche Schneeproben gesammelt. 2014 hat es zudem eine

gemeinsame Messkampagne an der UFS gegeben, bei der die Kollegen aus Hannover Proben zur Messung der atmosphärischen Konzentrationen von I-129 gesammelt haben.

Für die experimentellen Projektarbeiten gab es eine enge Kooperation mit der Betriebsmannschaft der UFS, die bei der Schneeräumung der Messterrassen, der Aufstellung und Wartung der Messgeräte geholfen und einen Teil der Messgeräte (Gammaskpektrometer, Aerosolspektrometer ELPI+, HV-Sammler) zur ausschließlichen Nutzung zur Verfügung gestellt haben.

Andere Partner im Konsortium des Schneefernerhauses oder assoziierte Arbeitsgruppen haben dem Projekt Daten bzw. Messgeräte zur Verfügung gestellt und standen für fruchtbare Diskussionen zur Verfügung, z.B.

- Bereitstellung meteorologischer Daten vom Deutschen Wetterdienst (Zugspitz-Gipfel und UFS) sowie vom Bayerischen Lawinenwarndienst (Zugspitzplatt) (Dr. W. Fricke, H. Schmözl)
- Nutzung einer Aerosol-Ansaugleitung für die Probenahme von partikelgrößenfraktionierten Aerosolen (ELPI+) vom Deutschen Wetterdienst (G. Frank, Dr. T. Steinkopff)
- Bereitstellung von Daten partikelgrößenfraktionierter Aerosolkonzentrationen (SMPS) vom Umweltbundesamt (Dr. L. Ries)
- Nutzung eines Niederschlagssammlers (Pluvio2) vom Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität Köln (Dr. S. Kneifel)
- Validierung der Schneecharakterisierung mit mikrophysikalischen Schneeparametern (Mikrowellenradiometer HATPRO, Wolkenradar MIRA-36 und PARSIVEL Distrometer), Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität Köln und Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) (Dr. S. Kneifel, Dr. M. Hagen)

Zudem gab es regen Austausch mit dem Hersteller des verwendeten 2D-Video-Distrometers, Joanneum Research in Graz bezüglich der festgestellten Unzulänglichkeiten der Auswertungs-Software für Schnee und Unterstützung bei der Programmierung eines neuen Algorithmus (M. Schwinzerl).

In Arbeitspaket 3.1 wurde im Rahmen der biokinetischen Studien an freiwilligen Probanden mit folgenden Einrichtungen kooperiert:

- HMGU-Institut für Molekulare Toxikologie und Pharmakologie und Lehrstuhl für Toxikologie und Umwelthygiene der TU München (Prof. M. Göttlicher);
- HMGU-Institut für Strahlenschutz, AG Experimentelle Radioökologie (Dr. J. Tschiersch); AG Fortbildung (Dr. W. Kirchinger);
- Klinik rechts der Isar, TU München, Prof. Dr. H. Feußner und H. Wirnhier.

Analytisch wurde das Arbeitspaket bei der Messung der Proben mittels ICP-MS durch den Verein für Kernverfahrenstechnik & Analytik Rossendorf (VKTA), Ute Czeslik (AP 4.1.) und durch die HMGU-Abteilung Analytische Biogeochemie (Prof. B. Michalke) unterstützt. Die uranhaltigen, hochkontaminierten Bodenproben wurden von Frau Katja Nebelung (AP 2.2, Friedrich Schiller Universität Jena) zur Verfügung gestellt.

Arbeitspaket 3.3: Im Rahmen des AP wurde eng mit EURADOS (European Radiation Dosimetry Group) zusammen gearbeitet. Motivation war, die im Teilprojekt durchgeführten Messungen des Ansprechvermögens von Germaniumdetektoren eines Teilkörperzählers bei

Schädelgeometrie mit den Messergebnissen internationaler Messlabors bei ähnlicher Geometrie vergleichen zu können und so die eigenen Messungen zu validieren. Dazu organisierte der mit AP3.3 beauftragte Doktorand im Rahmen einer EURADOS-Aktion selbständig einen internationalen Messvergleich. Dabei war er mit folgenden Aufgaben betraut:

- Regelmäßige Teilnahme an EURADOS Besprechungen
- Kontaktaufnahme mit relevanten Messlabors in Deutschland, Europa, den USA und Kanada
- Organisation des Messvergleichs einschließlich Routenplanung, Verschicken der Schädelphantome
- Auswertung der von den Teilnehmern erzielten Messergebnisse
- Bewertung der erzielten Messergebnisse und Vorstellung auf EURADOS Treffen

Zusammenarbeit mit AP 3.2: Das AP 3.2 (KIT) befasste sich mit einer ähnlichen Problematik, Zähleffizienz-Kalibrierung von *in vivo* Messsystemen mit Probanden-adaptierten anthropomorphen Modellen. In diesem Projekt lag der Schwerpunkt auf Torsomessungen (Lunge, Leber). Da jedoch die *in-vivo* Messtechnik ähnlich war, bestand enger Kontakt zwischen beiden Teilprojekten, und das mit AP3.2 betraute Labor nahm an dem oben beschriebenen EURADOS Messvergleich für Schädelphantome teil.

In Arbeitspaket 3.4 wurde im Rahmen der biokinetischen Modellierung und internen Dosimetrie mit folgenden nationalen und internationalen Einrichtungen kooperiert:

Nationale Einrichtungen:

- HMGU-Institut für Strahlenschutz, AG Experimentelle Radioökologie (Dr. J. Tschiersch; Dr. T. Shinonaga)
- HMGU-Institut für Strahlenschutz, AG Personendosimetrie (Prof. Dr. W. Rühm)
- HMGU-Institute of Computational Biology (Prof. Dr. F. Theis)
- Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e.V. (VKTA) (Dr. D. Walther)
- BfS-Fachbereich Strahlenschutz und Gesundheit, Ingolstädter Landstr. 1, 85764, Oberschleißheim (Dr. D. Noßke)
- KIT-Institut für Nukleare Entsorgung, Hermann-von-Helmholtz-Platz 1, 76344, Eggenstein-Leopoldshafen (Dr. W. Klein)
- KIT- Sicherheit und Umwelt, Karlsruhe, Hermann-von-Helmholtz-Platz 1, 76344, Eggenstein-Leopoldshafen (Dr. B. Breustedt)

Internationale Einrichtungen:

- IRSN-Internal Dose Assessment Lab., PRP-HOM/SDI/LEDI, BP-17, Fontenay-aux-Roses Cedex F-92262, France (Dr. E. Blanchardon)
- PHE-Department of Toxicology, Centre for Radiation, Chemical and Environmental Hazards, Public Health, England, Chilton, Didcot OX11 0RQ, United Kingdom (Dr. M. Puncher)
- Environmental Sciences Division, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN 37831, United States of America (Dr. R.W. Leggett)
- CIEMAT-Dosimetría Interna, Departamento de Medio Ambiente, Avda Complutense 40, 28040, Madrid, Spain (Dr. M.A. Lopez)

Arbeitspaket 4.1: Dieses Projekt wurde in Zusammenarbeit mit dem VKTA-Strahlenschutz, Analytik und Entsorgung Rossendorf e.V. durchgeführt. Das Programm wurde mit dem VKTA geplant und durchgeführt. Die Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide in den Ausscheidungen der Teilnehmer wurden vom VKTA analysiert. Dankenswerterweise konnte die Doktorandin des AP (A. Dieter) einen Teil ihre Messungen im Labor des VKTA durchführen.

Die Rn-222-Konzentration in der Umgebungsluft der Teilnehmer wurde mittels des Rn-Exposimeters (AP 4.2) ermittelt.

Die internen Dosen wurden in Zusammenarbeit mit Dr. W.B. Li (AP 3.4) berechnet.

Arbeitspaket 4.2 hat seine durchgeführten Arbeiten eng mit AP 4.3 („Innenraumexposition durch Thoron“) abgestimmt. Insbesondere wurde die experimentelle Infrastruktur der für AP 4.3 verantwortlichen Arbeitsgruppe genutzt (z.B. das am HMGU vorhandene Thoronhaus), Messkampagnen wurden gemeinsam durchgeführt (z.B. in einem bayerischen Lehmhaus) und Messergebnisse verglichen.

Ferner wurde in beiden Arbeitspaketen intensiv an Konzepten gearbeitet, wie die in AP 4.2 angewandte Technik des elektronischen Nachweises von Alphateilchen für AP 4.3 genutzt werden kann.

Arbeitspaket 4.3: Es bestand eine enge Kooperation mit AP 4.2, was sich in gemeinsamen Messkampagnen in einem Wohnhaus in Lehmbauweise mit Vergleichsmessungen ausdrückte. Lehmproben einer örtlichen Lehmgrube wurden von AP 2.2 für Exhalationsmessungen zur Verfügung gestellt. Folgende internationale Kooperationen haben zu dem AP beigetragen:

- NIRS, Chiba, Japan zur Kalibrierung von Messgeräten;
- Beijing Daxue, Peking, China zur Geräteweiterentwicklung;
- Bhaba Atomic Research Center, Mumbai, Indien zum Gerätevergleich.

2. Ergebnisse

2.1 Arbeitspaket 1.1: Modellierung des Verbleibs von Radionukliden in städtischer Umgebung und der resultierenden Exposition

A. Schelle, C. Staudt, A. Wieser, J.C. Kaiser, Institut für Strahlenschutz

2.1.1 Einleitung

Im Falle eines Zwischenfalls in kerntechnischen Anlagen kann es zu Freisetzungen von radioaktivem Material in die Umwelt kommen. Die Internationale Bewertungsskala für nukleare Ereignisse (INES) klassifiziert Zwischenfälle in kerntechnischen Anlagen von Stufe 0 (keine Sicherheitstechnische Relevanz) bis Stufe 7 (katastrophaler Unfall) (INES, 2012). Ab Freisetzungen der INES Stufe 5 kommt es zum Einsatz einzelner Katastrophenschutzmaßnahmen. Schwere Unfälle wie die INES 7 Zwischenfälle in Tschernobyl 1986 und im Kernkraftwerk Fukushima Daiichi 2011, die zu großflächigen Kontaminationen und Auswirkungen auf die Umwelt und Bevölkerung führen, erfordern weitreichende und geplante Gegenmaßnahmen.

Die Betrachtung von historischen Ereignissen und Berechnungen mit der Anzahl von in Betrieb befindlichen Kernreaktoren ergibt eine mittlere geschätzte Zeit zwischen schwerwiegenden Unfällen von etwa 10 Jahren (Kaiser, 2012) mit möglichen Risiken großflächiger Kontaminationen in Europa, Japan und der nordamerikanischen Ostküste (Lelieveld et al., 2012). Zum Schutz der Bevölkerung und zur Erleichterung der Implementation von Gegenmaßnahmen sind effektive Methoden zur Kartierung von Kontaminationsereignissen notwendig (Genkel and Schnadt, 2010; Hopmeier et al., 2010).

Kontaminationskarten werden in der Regel durch geostatistische Interpolation von Messdaten erstellt. Messdaten sind häufig geo-referenzierte Messungen der γ -Dosisrate (GDR) zu definierten Zeitpunkten, oder Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Radionukliden im Boden. Nach dem Fukushima Daiichi Zwischenfall wurden mit γ -Spektroskopie Aktivitätskonzentrationen von ^{129m}Te , ^{131}I , ^{134}Cs , ^{136}Cs und ^{137}Cs in Bodenproben im Umkreis von 20-30 km um das Kernkraftwerk gemessen (Kinoshita et al., 2011). Mit dieser Methode können auch geringe Radionuklidkonzentrationen durch spezifische Emissionsspektren detektiert werden. Bei Messungen nach dem Tschernobyl Unfall wurden große Schwankungen der gemessenen Aktivitätskonzentrationen zwischen eng zusammenliegenden Messpunkten festgestellt, was auf eine gewisse Heterogenität der Radionukliddeposition und Verteilung hindeutet (Schimmack et al., 1987). Fluktuationen der Messungen von Aktivitätskonzentrationen im Boden, die, unter Umständen, nur bedingt mit der Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre korrelieren, reduzieren die Genauigkeit der interpolierten Karten. Diese Fluktuationen können durch Entnahme mehrerer Bodenproben in einem Messgebiet verringert werden. Allerdings ist es für eine substantielle Reduktion der Ungenauigkeit notwendig eine große Anzahl von Bodenproben zu entnehmen, was die Effizienz dieser Methode vermindert.

Vor allem im Boden abgelagertes ^{137}Cs stellt ein potentielles Gesundheitsrisiko dar, da es für lange Zeit in die Nahrungskette aufgenommen werden kann (Paasikallio et al., 1994). Aus diesem Grund hat die verlässliche Kartierung von ^{137}Cs Bodenkontaminationen eine hohe Priorität. Nach dem Fukushima Zwischenfall wurden entsprechende Karten aus einer Kombination von Messwerten und Modellergebnissen für ganz Japan erstellt (Yasunari et al., 2011). Im Internet wurden offizielle Kontaminationskarten mit einer Rasterauflösung von 2 km für die Präfekturen um das Fukushima Daiichi Kernkraftwerk veröffentlicht (MEXT, 2012). Allerdings ist die Auflösung dieser Karten für eine effektive Planung von Dekontaminationsmaßnahmen zu grob.

Nach dem Tschernobyl Unfall wurden in Deutschland (Bleher and Stölker, 2003) und den Niederlanden (Twenhöfel et al., 2005) dichte Netzwerke zur Überwachung der GDR eingerichtet. Der Hauptzweck dieser Netzwerke ist die Frühwarnung der Bevölkerung bei radiologischen Zwischenfällen. Modellergebnisse zeigen, dass die Netzwerke dicht genug sind, um alle relevanten Ereignisse zu erfassen (Urso et al., 2013). Im Falle eines nuklearen Zwischenfalls können Daten der gemessenen GDR von allen europäischen Ländern gesammelt (de Cort et al., 1998) und für automatische Kartierung der Kontamination verwendet werden (Heuvelink et al., 2010; Pebesma et al., 2011). Nach dem Fukushima Unfall wurde eine große Zahl von geo-referenzierten GDR Messungen von verschiedenen mobilen und festinstallierten Messeinrichtungen gesammelt und über das Internet veröffentlicht (Safecast, 2012). Diese Datensätze sind eine umfassende Quelle für die Erstellung von Kontaminationskarten.

Fluktuationen der GDR sind im Gegensatz zu Aktivitätsmessungen von Bodenprobe weitaus geringer, wenn der Sensor in einem kleinen homogenen Gebiet an verschiedenen Orten Messungen aufnimmt. Das setzt voraus, dass die Photonen von der Kontaminationsquelle nicht durch Geländemerkmale oder Gebäude abgeschirmt werden. Unterschiedliche Gebietstypen, wie zum Beispiel Wiesen, asphaltierte Flächen oder Wälder, zeigen deutliche Unterschiede in der gemessenen GDR, selbst wenn ähnliche Radionuklidaktivitäten deponiert worden sind.

Dieser Effekt wurde in langen Messreihen der Umgebungs-GDR an unterschiedlichen Orten beobachtet (Jacob et al., 1990). Bei diesen Messreihen wurden die Geländeformen Rasen, überwiegend unbefestigt, überwiegend befestigt und befestigt eingeteilt. Diese Ergebnisse konnten durch Strahlungstransportberechnungen in stilisierten städtischen Modellumgebungen reproduziert werden (Meckbach and Jacob, 1988; Meckbach et al., 1988). Um die Auswirkungen der Messumgebung auszugleichen, wurde in diesen Berechnungen das Konzept von Umgebungsfaktoren eingeführt. Der Umgebungsfaktor ist dabei definiert als das Verhältnis der an einer realen Messstelle gemessenen GDR und einer hypothetisch für eine Ideale Umgebung, in diesem Falle ein unendlich großer Rasen, berechneten kontaminationsabhängigen GDR. Mit dieser Definition wird der Einfluss der Messumgebung und der Radionukliddeposition auf die GDR berücksichtigt.

Um GDR Messungen mit Umgebungsfaktoren zu korrigieren wurde für eine kleine Anzahl von festen Messstellen im deutschen IMIS Netzwerk schematische Diagramme der Sensorumgebung von Hand erstellt (Zähringer and Sempau, 1997). Um störende Effekte bei

der geo-statistischen Interpolation zu vermeiden verwendet das Inhabited Areas Monitoring Module (IAMM) korrigierte GDR Messungen für die Erstellung von Kontaminationskarten (Thiessen et al., 2009). IAMM ist Teil des JRODOS Software Pakets (JRODOS, 2012). Gegenwärtig werden Umgebungsfaktoren für IAMM durch Begutachtung von Satellitenbildern abgeschätzt (Kaiser and Pröhl, 2007).

Bis heute ist die Ermittlung von Umgebungsfaktoren eine langwierige Aufgabe, was die Korrektur von großen Messdatensätzen für die Erstellung von Kontaminationskarten erschwert. Das hier vorgestellte Projekt soll die Situation durch die Einführung eines schnellen automatisierten Algorithmus verbessern. Dabei sollen die Umgebungsfaktoren anhand von hochaufgelösten Geographical Information System (GIS) Karten erstellt werden. Zur Demonstration der Anwendbarkeit des Algorithmus wird nur eine Kontamination mit ^{137}Cs berücksichtigt.

In einem weiteren Teil des Projekts wird das Konzept des Umgebungsfaktors Anhand von Kontaminationsdaten aus der Fukushima Präfektur aus dem Sommer 2011 überprüft. Dazu werden aus den Kontaminationsdaten ermittelte Umgebungsfaktoren mit theoretischen Umgebungsfaktoren verglichen. Da Kartenmaterial mit der entsprechenden Auflösung und Eigenschaften für das Projekt nicht zur Verfügung stand, wurden diese theoretischen Umgebungsfaktoren mit digitaler Bildanalyse von Satellitenbildern der Messorte ermittelt.

2.1.2 Material und Methoden

2.1.2.1 Studiengebiet für die automatische Auswertung

Das Dorf Moosach 30 km südöstlich der Stadt München wurde mit deiner näheren Umgebung als Studiengebiet ausgewählt (**Abbildung 2.1.1**). Das Studiengebiet liegt etwa 500 m über dem Meeresspiegel, erstreckt sich über 6445 km^2 und hat ca. 1500 Einwohner (Moosach-Wiki, 2012).

Für die Kartierung von Moosach wurde eine Landnutzungskarte von ATKIS (Amtliches Topographisches-Kartographisches Informationssystem) verwendet. Die entsprechende Karte steht im Internet zum Herunterladen in der Auflösung 1:2500 zur Verfügung (ATKIS-Wiki, 2012; ATKIS, 2009). Die ATKIS Karten beinhalten etwa 100 Landnutzungsformen, die in diesem Projekt auf sieben Hauptlandnutzungstypen vereinfacht werden. Die Anteile der einzelnen Landnutzungsformen Landwirtschaft, Wohngebiet, Wald, Schotter, Rasen, Industriegebiet und Wasserfläche für das Gebiet um Moosach sind in **Tabelle 2.1.1** zusammengefasst.

Tabelle 2.1.1: Anteil der einzelnen Landnutzungsformen an der Gesamtfläche von 6445 km² in dem Dorf Moosach.

Landnutzungstyp	Anteil [%]
Landwirtschaft	4,14
Wohngebiet	6,37
Wald	56,40
Schotter	0,87
Rasen	25,29
Industriegebiet	4,25
Wasser	2,68

Die Berechnung von Umgebungsfaktoren wurde für 170 Punkte durchgeführt. Diese Punkte waren gleichmäßig auf einem Gitternetz mit einem Abstand von 200 m angeordnet (**Abbildung 2.1.1**). Punkte am Rand des Kartengebiets wurden dann berücksichtigt, wenn sie mindestens ein kartiertes Gebiet mit 80 % der Fläche eines Kreises mit dem Radius 100 m (0,025 km²) beinhalten. Für einige kleiner Gebiete innerhalb der ATKIS Karte für Moosach waren keine Landnutzungstypen bekannt. Wenn dadurch das Gebiet um einen Netzwerk Punkt unter die oben definierten 80 % sinkt, wird dieser Punkt von der Analyse ebenfalls ausgenommen. In **Abbildung 2.1.1** ist ein solcher Punkt in der Mitte der Karte unterhalb des Flusses zu sehen.

2.1.2.2 Depositionsmodell

Es wird angenommen, dass eine Kontamination durch die Deposition von radioaktivem Material aus einer Wolke entsteht. Diese Wolke kann zum Beispiel durch einen Unfall in einer Nuklearanlage, oder einen terroristischen Anschlag entstehen. Im Falle des in **Abbildung 2.1.1** gezeigten Gebietes ist das nächste Kernkraftwerk etwa 80 km entfernt. Bei einer derartigen Entfernung kann angenommen werden, dass die Konzentration der radioaktiven Partikel in der Wolke im dargestellten Gebiet gleichmäßig verteilt ist. Diese Annahme ist vergleichbar mit der Größe des Berechnungsrastergitters der JRODOS Software (JRODOS, 2012). In dieser Software wird für eine Zelle eines Rastergitters von 4 km Länge ein einheitlicher Wert für die Oberflächenkontamination angenommen (Kaiser and Pröhl, 2007).

Die Air Kerma Rate von durch abgelagerte Radionuklide emittierten Photonen wird durch einen GDR Sensor gemessen, der 1 m über einer flachen Oberfläche angebracht ist. Für einen idealen Messort, mit einer anfänglich exponentiell verlaufenden Tiefenverteilung von ¹³⁷Cs die einer Relaxationsmasse von 0,3 g/m² entspricht, werden 92% der emittierten Photonen in einem Umkreis von 100 m gemessen (Zähringer and Sempau, 1997). Für die Berechnung der Umgebungsfaktoren werden Landnutzungstypen innerhalb dieses 100 m Radius verwendet. Photonen die von weiter entfernt als 100 m kommen, werden vernachlässigt. Ein ideales Messgebiet wäre ein großer, flacher Rasen.

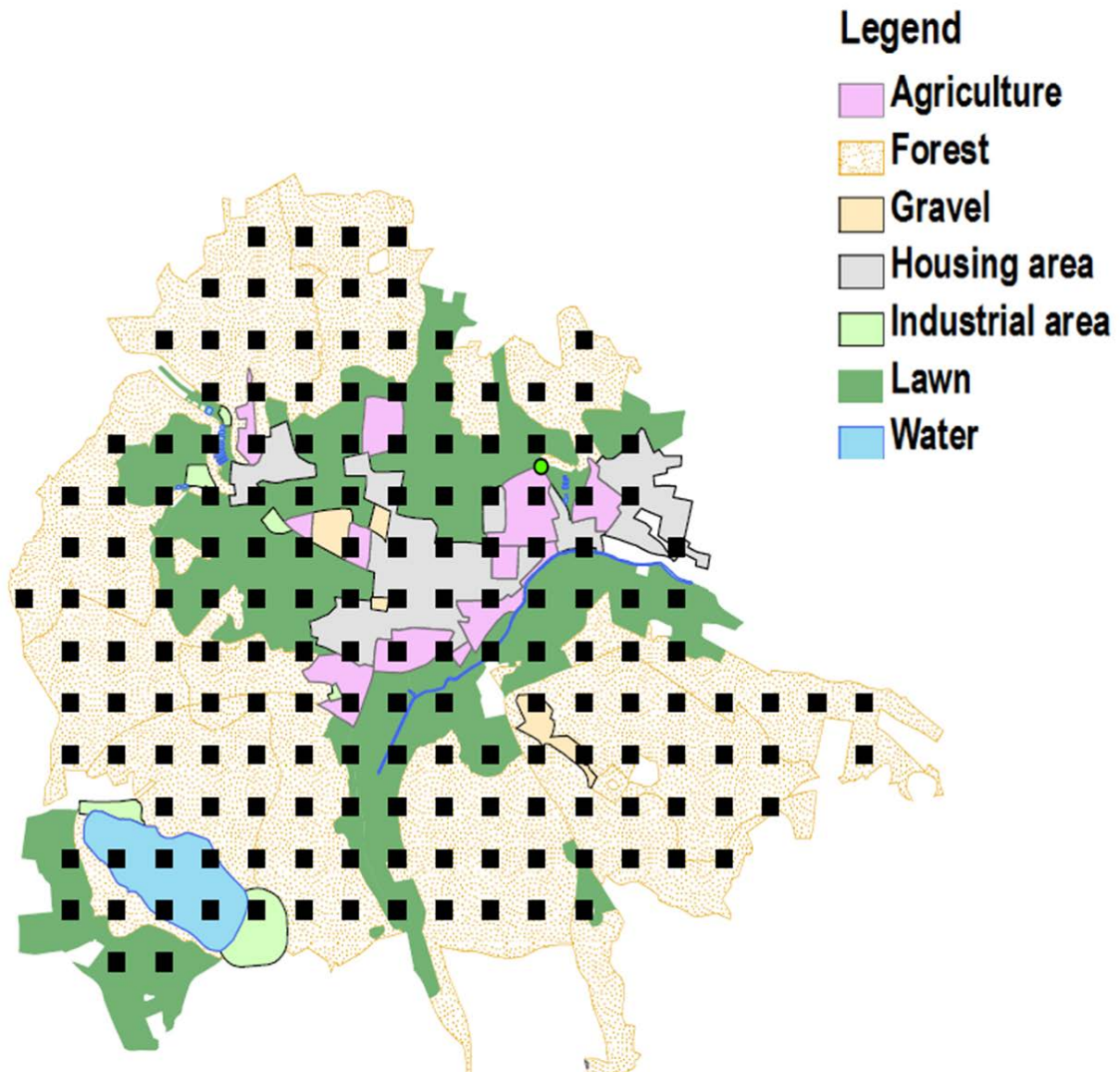


Abbildung 2.1.1: ATKIS Karte der Landnutzungstypen in dem Dorf Moosach nahe München mit 170 Netzpunkten (schwarze Quadrate) mit einem Abstand von 200 m. Der grüne Kreis im Nordosten der Karte markiert die Position eines Detektors für die Beispielrechnung in Abbildung 2.1.2.

Um die Kontamination $A_n(d, i, \vec{r}, t = 0)$ (Einheit Bq/m^2) für Radionuklide n auf der Oberfläche i an dem Punkt \vec{r} bei trockener Deposition zu erhalten, wird die zeitintegrierte Konzentration in der Wolke $\bar{C}_{n,air}$ (Einheit $\text{Bq s}/\text{m}^3$) mit der Depositionsgeschwindigkeit $v_n(d, i)$ (Einheit m/s) multipliziert (**Gleichung 2.1.1**). Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird die Deposition als vollständig beendet angenommen.

$$A_n(d, i, \vec{r}, t = 0) = v_n(d, i) \bar{C}_{n,air}(\vec{r}) \quad (2.1.1)$$

Es wird weiterhin angenommen, dass der Vorgang der trockenen Deposition abhängig von der Jahreszeit ist. Dabei werden folgende Jahreszeiten unterschieden: Sommer ($d = s$),

Winter ($d = w$), Frühling/Herbst ($d = s/a$). Die Depositionsgeschwindigkeit $v_n(d, i)$ ist stark von der Oberfläche abhängig und kann bei sich um einen Faktor von 50 zwischen einer Deposition auf Gebäudewänden und Bäumen unterscheiden. Die Effektivität der nassen Deposition ($d = wet$) wird durch Oberflächenabflussfaktoren bestimmt. Das Verhältnis der Oberflächenkontamination durch nasse Deposition relativ zur Kontamination einer Referenzoberfläche beträgt zwischen 0,5 und 1.

Eine umfassende Diskussion von Depositionsprozessen liegt außerhalb des Aufgabenbereichs dieses Projektes. Genauere Informationen dazu können in anderen Veröffentlichungen nachgeschlagen werden (Andersson, 2009; Gering, 2005). Daten zur Deposition von ^{137}Cs aus diesen Veröffentlichungen werden hier verwendet.

2.1.2.3 Konzept des Umgebungsfaktors

Reale GDR Messungen werden in verschiedenen Umgebungen durchgeführt, was dazu führt, das das Messsignal teilweise um einen Faktor 20 für trockene Deposition bei ähnlicher Radionuklidkonzentration in der Atmosphäre variiert (Kaiser and Pröhl, 2007). Diese Variation entsteht durch unterschiedliche Depositionsgeschwindigkeiten auf den unterschiedlichen Oberflächen, die zur GDR beitragen. Aus diesem Grund fluktuieren reale Messungen aufgrund unterschiedlicher Messumgebungen. Diese Fluktuationen führen zu Ungenauigkeiten bei der geostatistischen Interpolation von Kontaminationskarten. Idealerweise könnten solche Fluktuationen minimiert werden, wenn die Messungen immer an möglichst idealen Umgebungen, das heißt auf möglichst großen und flachen Rasenflächen durchgeführt werden (Thompson, 2000). Derart ideale Bedingungen sind allerdings selten an den Messorten verfügbar. Umgebungsfaktoren können dazu verwendet werden, verschiedene Landschaftsmerkmale in der Messumgebung auszugleichen.

An einem definierten Messort \vec{r} und der definierten Messzeit t ist der Umgebungsfaktor:

$$f(d, \vec{r}, t) = \frac{D^{meas}(d, \vec{r}, t)}{D^{ref}(d, \vec{r}, t)} \quad (2.1.2)$$

Dabei beschreibt der Umgebungsfaktor $f(d, \vec{r}, t)$ das Verhältnis der gemessenen GDR $D^{meas}(d, \vec{r}, t)$ der hypothetischen gesamten Referenz-GDR an einem idealen Messort $D^{ref}(d, \vec{r}, t)$ für die Depositionsart d (Meckbach and Jacob, 1988). Für einen Vektor mit den Radionukliden n die über verschiedene Oberflächen i deponiert worden sind, ist der Umgebungsfaktor somit:

$$f(d, \vec{r}, t) = \frac{\sum_{n,i} \hat{c}_n(i, \beta) A_n(d, i, t)}{\sum_n c_n^{ref}(\beta) A_n^{ref}(d, t)} \quad (2.1.3)$$

Dabei wird die Referenzoberflächenaktivität $A_n^{ref}(d, t)$ mit fortschreitender Zeit t nach der Deposition durch radioaktiven Zerfall und Abwitterungsvorgänge reduziert (Andersson et al.,

2002). Durch Multiplikation mit dem radionuklid-spezifischen Referenzdosis-konversionsfaktor (DCF) $c_n^{ref}(\beta)$ erhält man die radionuklidspezifische Referenz-GDR $D_n^{ref}(d, \vec{r}, t)$. Summiert man $D_n^{ref}(d, \vec{r}, t)$ aller Radionuklide erhält man die gesamt Referenz-GDR.

Der DCF $\hat{c}_n(i, \beta)$ für die Depositionsoberfläche i wird durch Größe und Umgebung der Oberfläche in Bezug auf den GDR Sensor definiert, die Oberflächenaktivität $A_n(d, i, t)$ wird nach **Gleichung 2.1.1** berechnet. Die Summe der Beiträge aller Oberflächen und Radionuklide ergibt die tatsächlich gemessene GDR $D^{meas}(d, \vec{r}, t)$.

Der Referenz-DCF bezieht sich auf eine exponentiell verteilte Bodenkontamination mit einer Relaxationsmasse von $\beta = 0,1 \text{ g/m}^2$ für trockene Deposition und 1 g/m^2 für nasse Deposition. Parameterwerte hierfür werden aus der Literatur verwendet (ICRU, 1994; Zähringer and Sempau, 1997). Eckerman und Ryman (Eckerman and Ryman, 1993) stellen in ihren Tabellen II.6 und II.11 DCF Werte für kontaminierte dünne Erdschichten in verschiedenen Bodentiefen, welche durch Integration den DCF Werten der ICRU (ICRU, 1994) entsprechen. In der hier vorgestellten Analyse wird ein exponentielles Verteilungsmodell im Boden verwendet, da vorher gezeigt wurde, dass derartig berechnete exponentielle Verteilungen real gemessene Bodenprofile für Radiocäsium für die ersten Jahre nach Deposition gut abbilden (Schimmack and Schultz, 2006).

Setzt man Gleichung 2.1.1 für trockene Deposition in Gleichung 2.1.3 ein, erhält man:

$$f(d, \vec{r}, t) = \frac{\sum_{n,i} \hat{c}_n(i, \beta) s_n(d, i)}{\sum_n c_n^{ref}(\beta)} \quad \text{wobei } s_n(d, i) = \frac{v_n(d, i)}{v_n(d, lawn)} \quad (2.1.4)$$

der Verstärkungsfaktor für die Depositionsarten $d = s, s/a$ und w bei trockener Deposition auf der Depositionsoberfläche i in Verhältnis zur trockenen Deposition auf Rasen ist. Für nasse Deposition kann ein entsprechender Faktor definiert werden.

2.1.2.4 Umgebungsfaktoren für ^{137}Cs Kontamination

Ein relevantes Radionuklid bezüglich Bodenkontaminationen ist ^{137}Cs . ^{137}Cs zerfällt mit einer Halbwertszeit von 30,1 Jahren unter Abgabe von γ -Strahlung der Zerfallsenergie $e = 662 \text{ keV}$ zu stabilem ^{137}Ba (Thompson et al., 1983). Es wird angenommen, dass der Zerfall und die Abwitterung von ^{137}Cs in den ersten Wochen nach der Deposition für die Berechnung der Umgebungsfaktoren keine Bedeutung für die Berechnung haben. Um die Aufrechnung der Landflächenanteile nahe dem Detektor zu vereinfachen, wird die Detektorumgebung in vier konzentrische Ringzonen unterteilt. Diese Ringzonen reichen von 0-3 m, 3-7 m, 7-20 m und 20-100 m (**Abbildung 2.1.2**). Diese Unterteilung wurde gewählt, da die Anteile zur gesamt GDR aus diesen Zonen für trocken deponiertes ^{137}Cs bei einer Relaxationsmasse von $0,3 \text{ g/m}^2$ etwa gleich sind. Daraus ergibt sich für ein Einzelspitzenpektrum der partielle Umgebungsfaktor:

$$f(d, \vec{r}) = \sum_{r,i} f_{r,i}(d) \omega_{i,r} \quad \text{mit} \quad f_{r,i}(d) = \frac{c_r^{\text{ref}}(\beta) s(d,i)}{c^{\text{ref}}(\beta)}$$

(2.1.5)

als partiellen Umgebungsfaktor für die Landnutzungsform der Oberfläche i in Ringzone r mit $\sum_r f_{r,i}(d) = s(d,i)$. Das dimensionslose Matrix Element $\omega_{i,r}$ beschreibt den Oberflächenanteil der Landnutzungsform der Oberfläche i in Ringzone r bei einer Normalisierung von $\sum_i \omega_{i,r} = 1$.

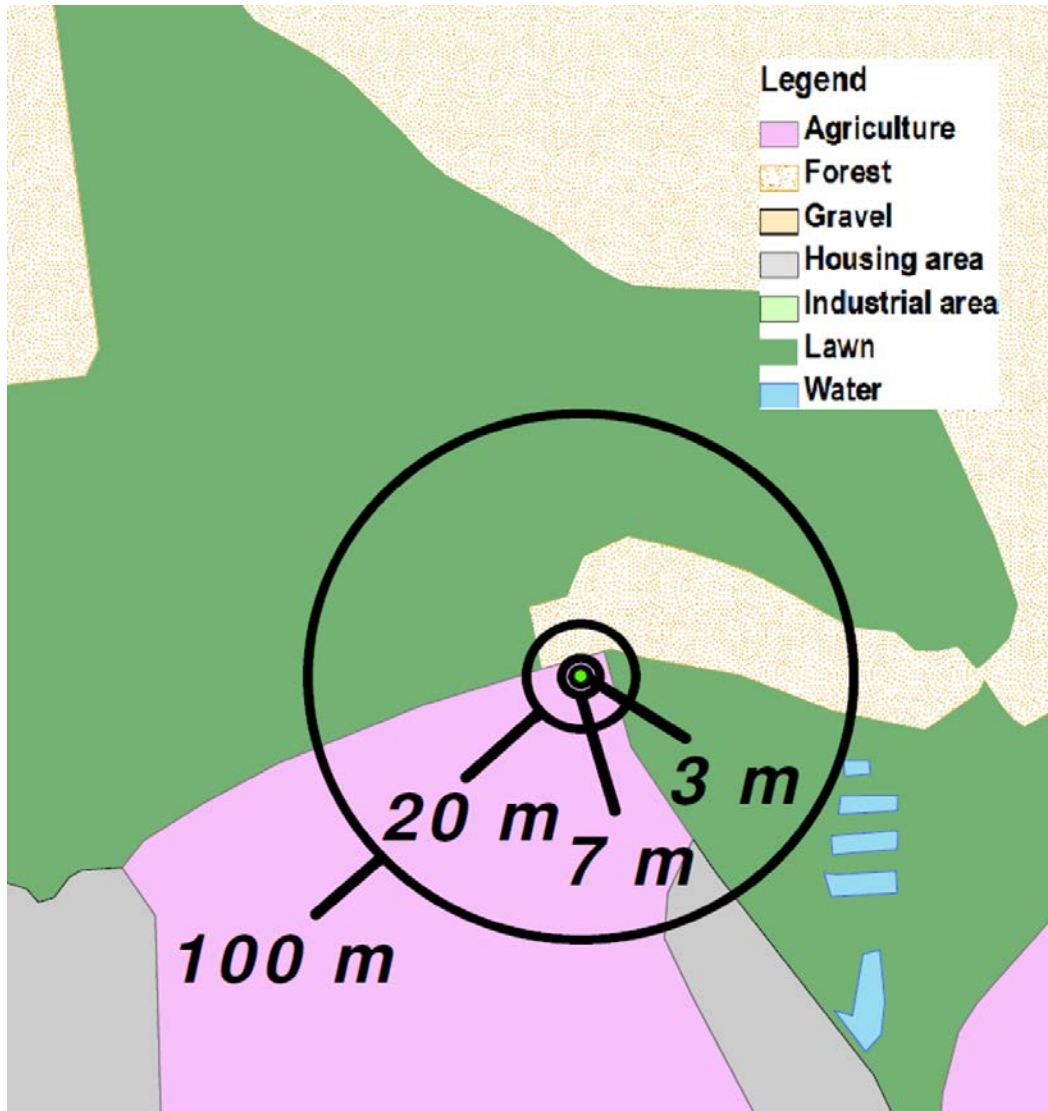


Abbildung 2.1.2: Landnutzungstypen um eine Detektorlokation mit den Ringzonen 0-3 m, 3-7 m, 7-20 m und 20-100 m. Die Oberflächenanteile der unterschiedlichen Landnutzungstypen für diesen Standort sind in Tabelle 2.1.2 aufgeführt.

Die Auswertung von **Gleichung 2.1.5** benötigt Parameterwerte für ringspezifische $c_r^{\text{ref}}(\beta)$ die in der Literatur für verschiedene Photonenenergien und Relaxationsmasse verfügbar sind (Zähringer and Sempau, 1997). Parameterwerte für partielle Umgebungsfaktoren $f_{r,i}(d)$ wurden ebenfalls aus der Literatur entnommen (Gering, 2005) und werden in den **Tabellen 2.1.5-2.1.8** zusammengefasst.

2.1.2.5 Automatische numerische Berechnung

Oberflächenanteile $\omega_{i,r}$ für **Gleichung 2.1.5** werden über ein in GIS implementierten automatischen Arbeitsablauf aus vorliegenden ATKIS Karten berechnet. Der Arbeitsablauf ist in drei Schritte unterteilt: 1) Import der geo-referenzierten Gitternetzpunkte nach GIS, 2) Berechnung und Export von Oberflächenanteilen aus GIS und 3) Verrechnung der Oberflächenanteile mit den partiellen Umgebungsfaktoren aus **Tabelle 2.1.5-2.1.8**. Der Arbeitsablauf kombiniert automatisierte Standard GIS Routinen des ArcView (ESRI) Softwarepakets mit einer in einem Python Skript implementierten Analyse großer Datenmengen.

Ein Beispiel für die Berechnung des in **Abbildung 2.1.2** gezeigten Standortes sind die in **Tabelle 2.1.2** gezeigten Oberflächenanteile der verschiedenen Landnutzungstypen. Für den Fall einer trockenen Deposition von ^{137}Cs im Sommer werden diese Oberflächenanteile mit den entsprechenden partiellen Umgebungsfaktoren $f_{r,i}(d=s)$ aus **Tabelle 2.1.7** multipliziert. Eine Berechnung der Summe Anhand von **Gleichung 2.1.5** ergibt einen Umgebungsfaktor $f(d=s) = 2,32$ für diese Messposition. Dieser Umgebungsfaktor bedeutet, dass der gemessene Umgebungsfaktor um den Faktor 2,32 höher ist als die hypothetische GDR über einer idealen großen Rasenfläche.

Tabelle 2.1.2: Oberflächenanteile $\omega_{i,r}$ in den Ringzonen 1-4 um den Beispielmessort Moosach aus Abbildung 2.1.2. Die rechte Spalte zeigt die Beiträge der einzelnen Landnutzungstypen, die zu dem Umgebungsfaktor $f(d=s) = 2,32$ aufaddiert werden.

Landnutzungstyp i	ω_{i1}	ω_{i2}	ω_{i3}	ω_{i4}	$\sum_r f_{r,i} \omega_{ir}$
Landwirtschaftlich	1,00	1,00	0,51	0,31	1,66
Wohngebiet	0,00	0,00	0,00	0,01	0,01
Mischwald	0,00	0,00	0,31	0,14	0,43
Schotter	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Industriegebiet	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Rasen	0,00	0,00	0,18	0,54	0,22
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

2.1.2.6 Berechnung von Umgebungsfaktoren für Messpunkte um das Kernkraftwerk Fukushima Daiichi

Zur Überprüfung des Umgebungsfaktoren-Konzepts wurden landnutzungsform-abhängige theoretische Umgebungsfaktoren für Messstellen um das Fukushima Daiichi Kernkraftwerk berechnet und mit Umgebungsfaktoren, die aus Messungen der GDR, ^{134}Cs und ^{137}Cs Kontamination an diesen Messstellen ermittelt wurden, verglichen. Da digitale Karten mit der entsprechenden Auflösung und Genauigkeit dem Projekt nicht zur Verfügung standen,

wurden die Oberflächenanteile der Landnutzungsformen mit Hilfe von digitaler Bildanalyse von Satellitenbildern der Messorte ermittelt.

Die Berechnung der empirisch ermittelten Umgebungsfaktoren ($f(d, \vec{r})_{emp}$) wurde für Messorten durchgeführt, die nach einem von der MEXT und BfS zur Verfügung gestellten Datensatz im Sommer 2011 eine GDR von $\geq 5 \mu\text{Gy/h}$ aufwiesen. Neben der GDR waren in diesem Datensatz auch die ^{134}Cs und ^{137}Cs Kontamination an den entsprechenden Messorten angegeben. Ein Teil der Kontamination im nahen Umfeld um das Fukushima Daiichi Kernkraft wurde laut Literatur durch trockene Deposition abgelagert (Katata et al., 2012; Terada et al., 2012). Allerdings kam es in der Umgebung von Fukushima einige Tage nach Beginn des Zwischenfalls am 12.03.2011 zu leichten und am 16.03.2011 zu schweren Regefällen. Aus diesem Grund wurden die Umgebungsfaktoren ebenfalls für gemischt und nasse Deposition berechnet. Die entsprechenden Air Kerma Werte für ^{134}Cs und ^{137}Cs wurden mit Literaturdaten (Zähringer and Sempau, 1997) für Relaxationsmassen von $\beta=0,1 \text{ g/m}^2$ für trockene, $\beta=0,3 \text{ g/m}^2$ für gemischte und $\beta=1 \text{ g/m}^2$ für nasse Deposition berechnet. Um den $f(d, \vec{r})_{emp}$ zu erhalten wurde anschließend die an diesem Ort gemessene GDR durch die berechnete Air Kerma Rate von ^{134}Cs und ^{137}Cs geteilt.

Für die Berechnung der landnutzungsformabhängigen, theoretischen Umgebungsfaktoren ($f(d, \vec{r})_{the}$) wurden Satellitenbilder aus der ArcGIS (ESRI) Datenbank für die entsprechenden Messorte verwendet. Diese wurden mit Satellitenbildern derselben Orte aus der Google Earth Datenbank (Google) vom März 2011 verglichen um größere Veränderungen der Messumgebung seit dem Messzeitpunkt auszuschließen. Messorte mit einer GDR $\geq 5 \mu\text{Gy/h}$ wurden in dem MEXT Datensatz identifiziert und anhand ihrer Dezimalgrad Koordinaten auf den Satellitenbildern markiert (**Abbildung 2.1.3**). Diese Messorte wurden mit Satellitenbilder aus der Google Earth Datenbank vom März 2011 verglichen, um größere Abweichungen auszuschließen. Um diese Koordinaten wurden mit dem ArcGIS Buffering Tool Ringzonen im Abstand von 0-3 m, 3-7 m, 7-20 m und 20-100 m erstellt. Die Satellitenbilder wurden anschließend im TIFF Format gespeichert und zur Quantifizierung in ImageJ (NIH) importiert. Die Oberflächenanteile von Rasen, Schotter/Asphalt, Gebäuden, Bäumen und Wasser in jeder Ringzone wurden separat durch Markierung quantifiziert (**Abbildung 2.1.4**). Anschließend wurden die Umgebungsfaktoren anhand der oben gezeigten Formeln berechnet.

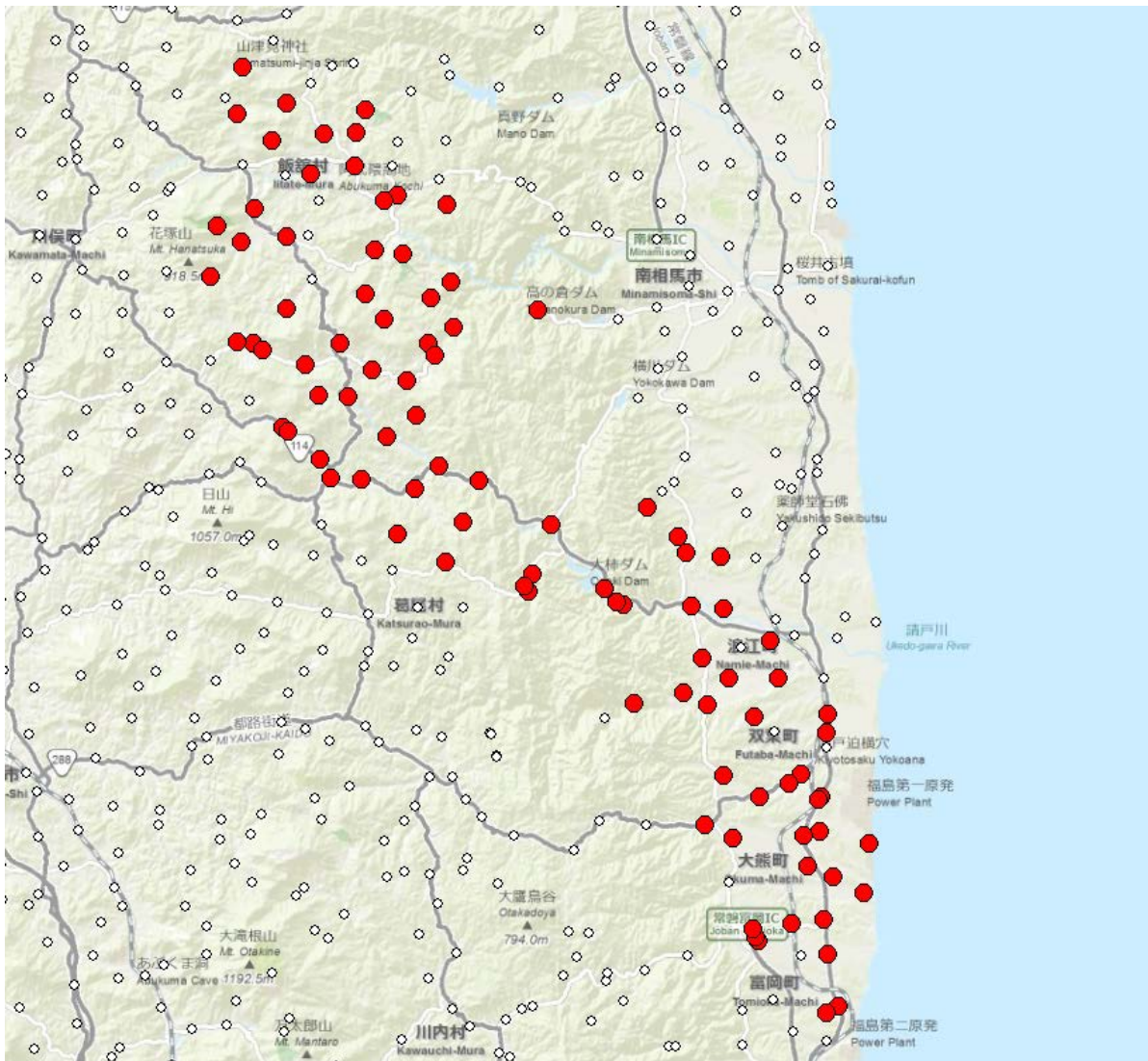


Abbildung 2.1.3: Karte der Fukushima Präfektur, Japan. Die Messorte die im Sommer 2011 eine GDR $\geq 5 \mu\text{Gy/h}$ aufwiesen sind mit roten Punkten markiert. Die weißen Punkte zeigen Messorte mit einer niedrigeren GDR, die nicht analysiert wurden. Das Kernkraftwerk Fukushima Daiichi befindet sich am südöstlichen Ende der Landmasse an der Küste (Power Plant).

Da eine eindeutige Unterscheidung von Rasen und landwirtschaftlich genutzten Flächen anhand der Satellitenbilder nicht möglich war und die Deposition vor Beginn der Wachstumsperiode im März stattgefunden hat, wurden diese Gebiete in der Landnutzungsform „Rasen“ zusammengefasst. Dementsprechend wurden auch Asphalt und Schotter in der Landnutzungsform „Schotter“ zusammengefasst. Für die Wälder wurde die Landnutzungsform „Mischwald“ angenommen. Da eine Unterscheidung zwischen Wohn- und Industriegebieten ebenfalls nicht eindeutig durchgeführt werden konnte, wurden diese Gebiete unter der Landnutzungsform „Gebäude“ gruppiert.

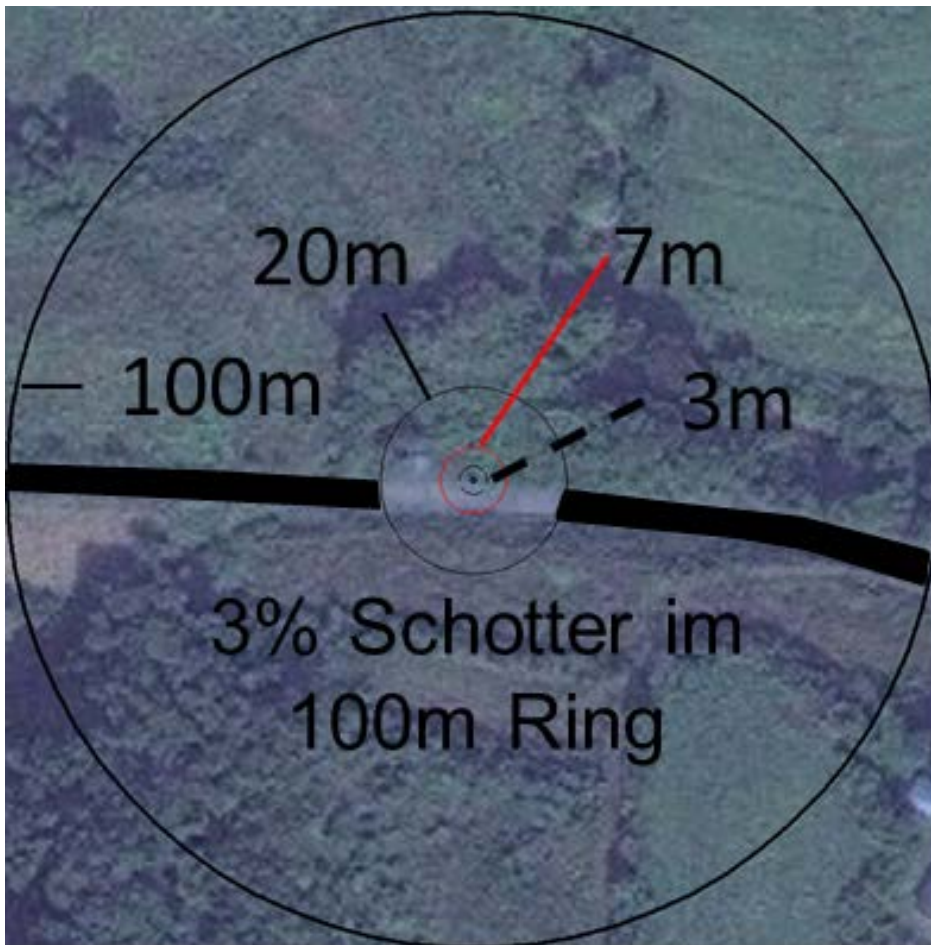


Abbildung 2.1.4: Satellitenbild eines ausgewählten Messortes mit Ringelementen von 0-3 m, 3-7 m, 7-20 m und 20-100 m. In diesem Beispiel ist die Straße im 20-100 m Ringelement schwarz markiert. Der Oberflächenanteil des „Schotter“ Landnutzungstyps ist in diesem Falle 3% der Gesamtfläche.

Aufgrund eines Personalwechsels wurden partielle Umgebungsfaktoren für ^{134}Cs und ^{137}Cs für diese Auswertung neu berechnet (**Tabelle 2.1.9-2.1.16**). Da die partiellen Umgebungsfaktoren für ^{134}Cs und ^{137}Cs nur unwesentlich voneinander abweichen wurde angenommen, dass das Endergebnis durch die Verwendung von nur einem Satz an Umgebungsfaktoren nur unwesentlich verfälscht wird. Aus diesem Grund wurden für die vorliegende Auswertung die partiellen Umgebungsfaktoren für ^{137}Cs verwendet (**Tabelle 2.1.9-2.1.12**).

2.1.3 Ergebnisse

Um die Konsistenz der Auswertung zu überprüfen, wurde die mittlere Umgebungsfaktoren aus den 170 Netzpunkten auf der ATKIS Karte von Moosach berechnet. Diese mittleren Umgebungsfaktoren wurden anschließend mit den direkt aus dem Durchschnitt der örtlichen Wichtung der Flächenanteile der Gesamtfläche berechneten Umgebungsfaktoren verglichen (**Tabelle 2.1.1**). Dabei zeigt sich eine gute Übereinstimmung dieser beiden Berechnungsweisen (**Tabelle 2.1.3**).

Tabelle 2.1.3: Mittlerer Umgebungsfaktor der Umgebung um Moosach für verschiedene Depositionstypen als Mittelwert (Standardabweichung) von 170 Gitternetzpunkten und örtlicher Wichtung mit Landnutzungsanteilen aus **Tabelle 2.1.1**.

Depositionsart	Mittlerer Umgebungsfaktor vom	
	Mittel der Gitternetzpunkte	Örtlichen Wichtung
Trocken, Winter (w)	3,96 (2,41)	3,93
Trocken, Frühling/Herbst (s/a)	3,19 (1,89)	3,18
Trocken, Sommer (s)	2,88 (1,60)	2,86
Nass (wet)	1,03 (0,20)	1,05

Aus den 170 Einzelwerten der Netzpunkte wurden anschließend Konturkarten für trockene Deposition von ^{137}Cs im Winter (**Abbildung 2.1.5**), trockene Deposition im Sommer (**Abbildung 2.1.6**) und jahreszeitunabhängige nasse Deposition (**Abbildung 2.1.7**) berechnet.

Für trockene Deposition im Winter wurden hohe Umgebungsfaktoren >6 für die südlichen stark bewaldeten Gebiete berechnet. Die zentralen und nördlichen Gebiete sind überwiegend von Rasen, Wohngebieten und Industriegebieten bedeckt und haben dementsprechend einen Umgebungsfaktor um 1. Im südwestlichen Gebiet kommt es zu einem starken Abfall des Umgebungsfaktors von 6 im Wald zu 0 in einer offenen Wasserfläche (**Abbildung 2.1.5**).

Trockene Deposition im Sommer führt zu einer heterogeneren Karte, da die landnutzungsform-spezifischen Umgebungsfaktoren für die Deposition im Sommer eine größere Varianz zeigen, als für die Deposition im Winter (**Abbildung 2.1.6, Tabelle 2.1.6**). Aufgrund der größeren Unterschiede der Blattflächenindices erreichen die Umgebungsfaktoren für bewaldete Flächen im Sommer in diesem Beispiel lediglich Maximalwerte um 4. Für jahreszeitunabhängige nasse Deposition wurden für einen Großteil der betrachteten Fläche Umgebungsfaktoren um 1 berechnet. Eine Ausnahme hierzu sind Gebiete mit einem hohen Anteil von Wohn- und Industriegebieten mit Umgebungsfaktoren um 0,8, sowie die offene Wasserfläche im Süden (**Abbildung 2.1.7**).

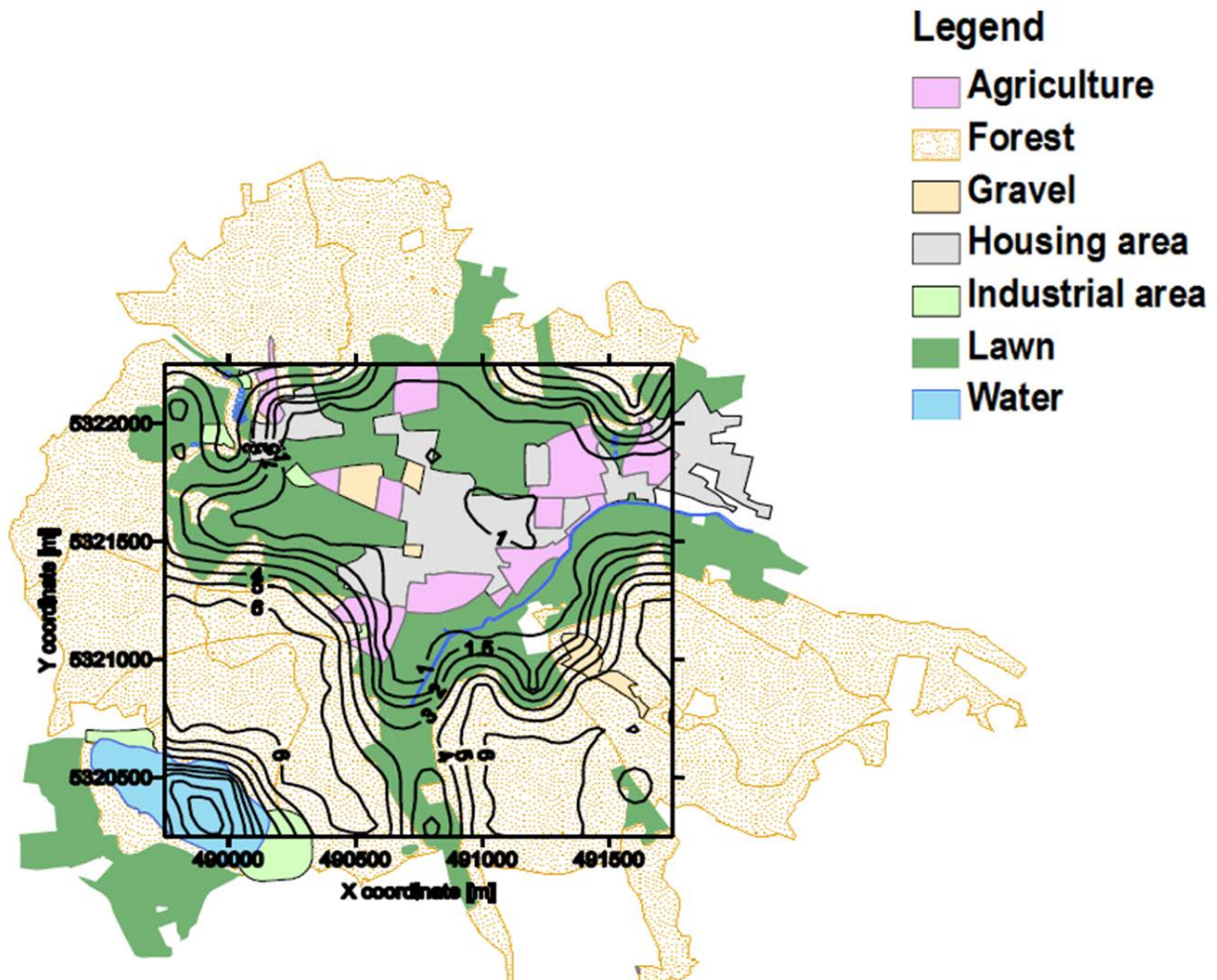


Abbildung 2.1.5: Konturdarstellung der berechneten Umgebungsfaktoren nahe des Dorfes Moosach für trockene Deposition von ^{137}Cs im Winter. Die Umgebungsfaktoren reichen von 0 bis über 6.

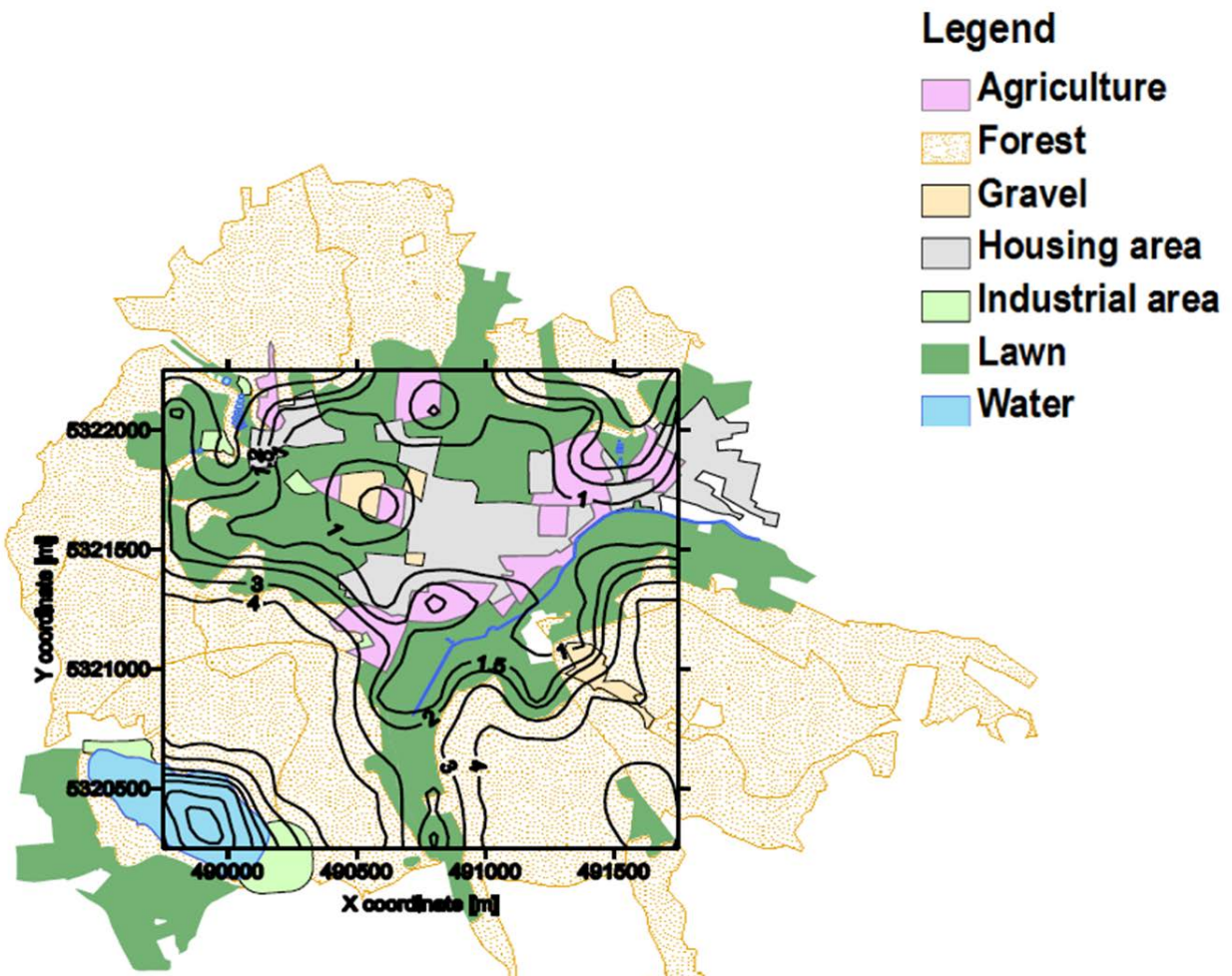


Abbildung 2.1.6: Konturdarstellung der berechneten Umgebungsfaktoren nahe des Dorfes Moosach für trockene Deposition von ^{137}Cs im Sommer. Die Umgebungsfaktoren reichen von 0 bis 4.

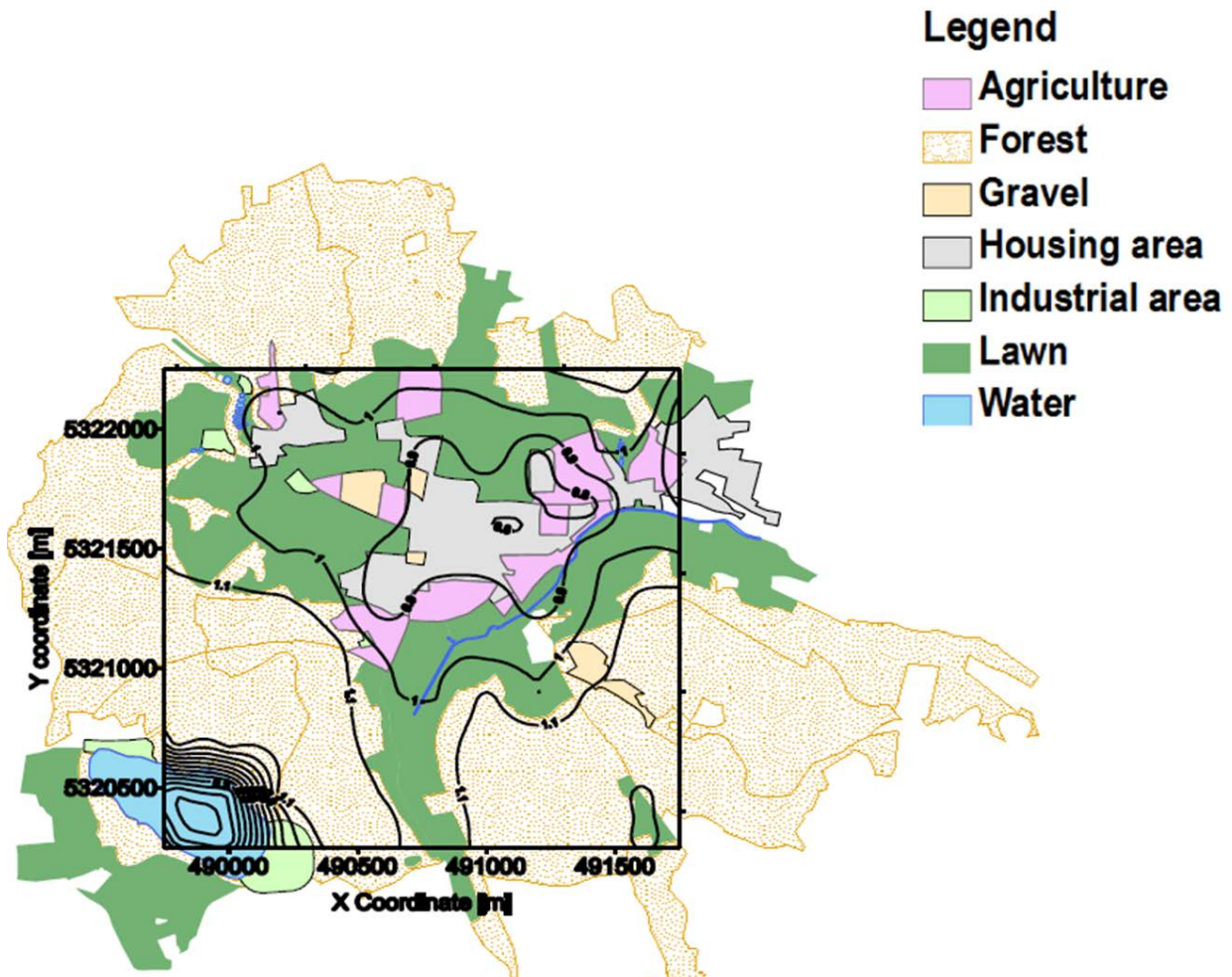


Abbildung 2.1.7: Konturdarstellung der berechneten Umgebungsfaktoren nahe des Dorfes Moosach für jahreszeitunabhängige nasse Deposition von ¹³⁷Cs. Die Umgebungsfaktoren reichen von 0 bis 1,1.

Aus einem MEXT Datensatz von GDR und Bodenkontamination in der Umgebung des Fukushima Daiichi Kernkraftwerkes im Sommer 2011 wurden 94 Messorte mit einer GDR von 5 $\mu\text{Gy/h}$ oder größer ausgewählt um $f(d, \vec{r})_{emp}$ und $f(d, \vec{r})_{the}$ für diese Messorte zu berechnen. Vier weitere Messorte mit $GDR \geq 5 \mu\text{Gy/h}$ wurden nicht in die Auswertung übernommen, da diese Messorte in den in der ArcGIS Datenbank vorhandenen Satellitenaufnahmen mit Wolken bedeckt waren. Um die Aussagekraft des Umgebungsfaktorkonzeptes zu demonstrieren, wurden die $f(d, \vec{r})_{emp}$ und $f(d, \vec{r})_{the}$ dieser Messorte für verschiedene Depositionsarten miteinander verglichen (**Abbildung 2.1.8-2.1.10**).

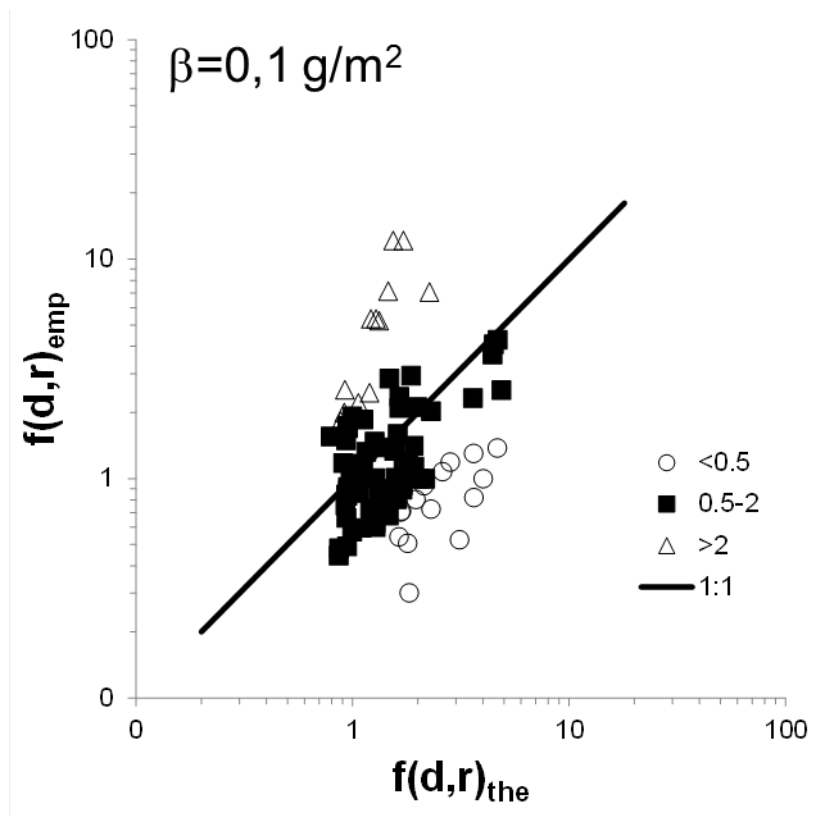


Abbildung 2.1.8: Vergleich der $f(d, \bar{r})_{emp}$ für trockene Deposition ($\beta=0,1 \text{ g/m}^2$) und dem $f(d, \bar{r})_{the}$ für trockene Deposition im Frühling und Herbst. Die weißen Kreise zeigen die Messorte an denen das Verhältnis von $f(d, \bar{r})_{emp}/f(d, \bar{r})_{the}$ kleiner als 0,5 ist. Die schwarzen Dreiecke zeigen die Messorte, an denen das Verhältnis von $f(d, \bar{r})_{emp}/f(d, \bar{r})_{the}$ zwischen 0,5 und 2 liegt. Die weißen Dreiecke zeigen die Messorte an denen das Verhältnis von $f(d, \bar{r})_{emp}/f(d, \bar{r})_{the}$ größer als 2 ist.

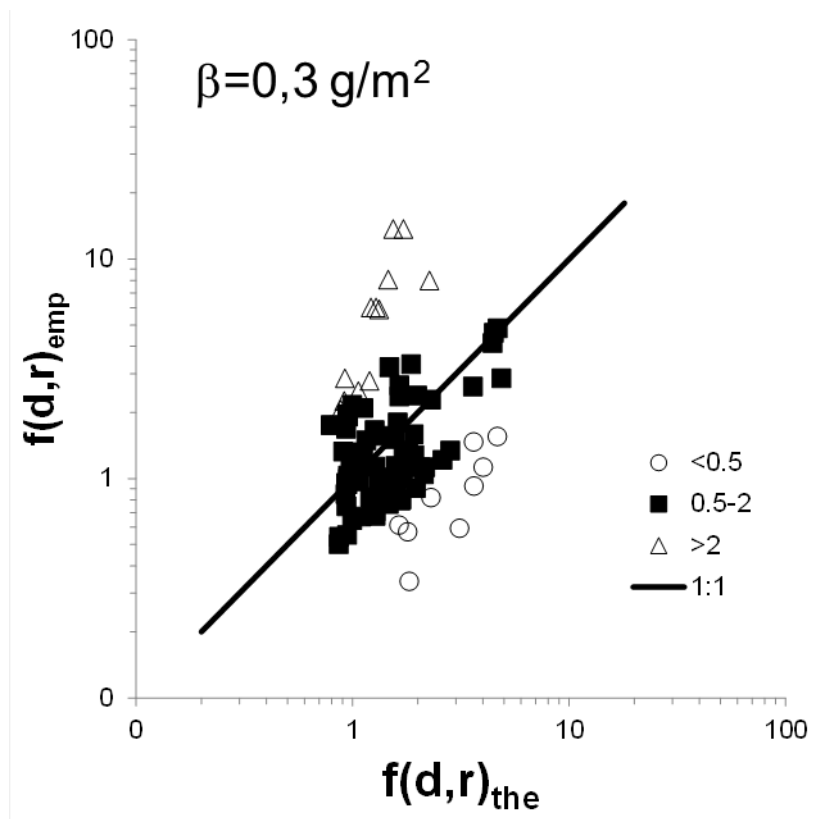


Abbildung 2.1.9: Vergleich der $f(d, \vec{r})_{emp}$ für gemischte Deposition ($\beta=0,3 \text{ g/m}^2$) und dem $f(d, \vec{r})_{the}$ für trockene Deposition im Frühling und Herbst. Die weißen Kreise zeigen die Messorte an denen das Verhältnis von $f(d, \vec{r})_{emp}/f(d, \vec{r})_{the}$ kleiner als 0,5 ist. Die schwarzen Dreiecke zeigen die Messorte, an denen das Verhältnis von $f(d, \vec{r})_{emp}/f(d, \vec{r})_{the}$ zwischen 0,5 und 2 liegt. Die weißen Dreiecke zeigen die Messorte an denen das Verhältnis von $f(d, \vec{r})_{emp}/f(d, \vec{r})_{the}$ größer als 2 ist.

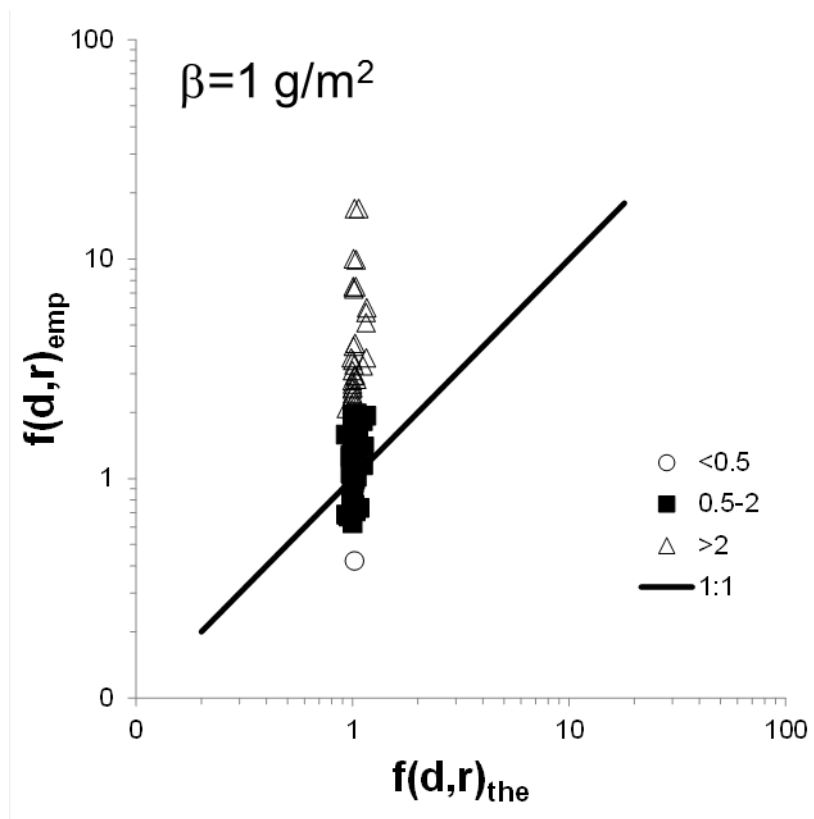


Abbildung 2.1.10: Vergleich der $f(d, \bar{r})_{emp}$ für nasse Deposition ($\beta=1 \text{ g/m}^2$) und dem $f(d, \bar{r})_{the}$ für nasse Deposition in allen Jahreszeiten. Die weißen Kreise zeigen die Messorte an denen das Verhältnis von $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ kleiner als 0,5 ist. Die schwarzen Dreiecke zeigen die Messorte, an denen das Verhältnis von $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ zwischen 0,5 und 2 liegt. Die weißen Dreiecke zeigen die Messorte an denen das Verhältnis von $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ größer als 2 ist.

Tabelle 2.1.4: Anzahl der Messorte mit bestimmten Verhältnissen der $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ für unterschiedliche Depositionsarten.

Depositionsart	$f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$		
	<0,5	0,5-2	>2
Trocken $\beta=0,1 \text{ g/m}^2$	15	65	13
Gemischt $\beta=0,3 \text{ g/m}^2$	9	69	16
Nass $\beta=1 \text{ g/m}^2$	1	62	31

Zum Vergleich wurden die $f(d, \bar{r})_{emp}$ und $f(d, \bar{r})_{the}$ an allen Messorten miteinander verglichen. Dazu wurde die Verhältnisse $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ berechnet und in drei Kategorien aufgeteilt (**Tabelle 2.1.4**). In der ersten Kategorie sind alle Messorte zusammengefasst, bei denen das Verhältnis zwischen 0,5 und 2 liegt, das heißt an denen die

theoretischen und empirisch berechneten Umgebungsfaktoren lediglich um den Faktor 2 voneinander abweichen. In dieser Kategorie sind für trockene Deposition 65, für gemischte Deposition 69 und für nasse Deposition 62 von 94 Messorten eingruppiert. Diese Daten zeigen, dass die theoretischen und empirischen Umgebungsfaktoren für den großen Teil der Messorte gut miteinander übereinstimmen. Die Übereinstimmung zeigt allerdings kein geographisch erkennbares Muster für die Messorte (**Abbildung 2.1.11**).

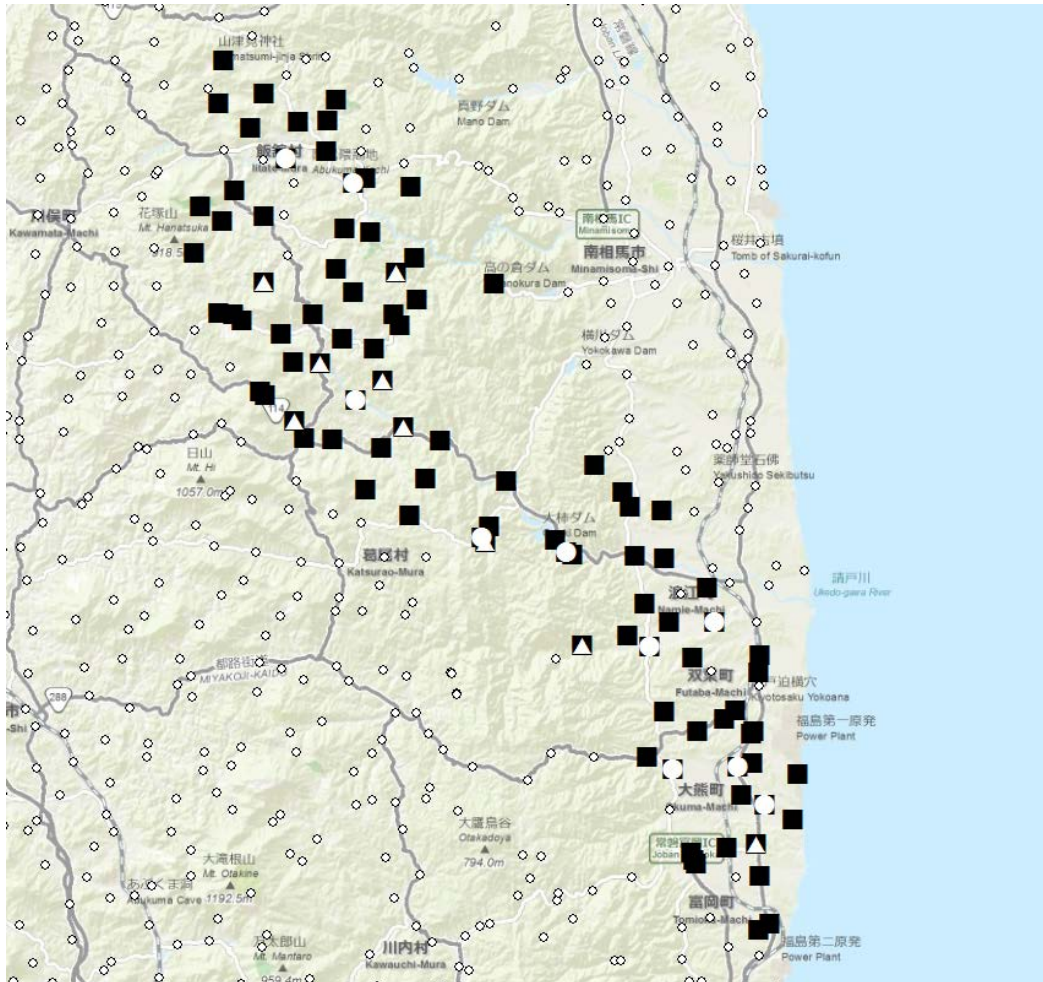


Abbildung 2.1.11: Geographische Verteilung der Verhältnisse $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ für gemischte Deposition. Die weißen Kreise in den schwarzen Quadraten markieren die Messorte an denen $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ kleiner als 0,5 ist. Die weißen Dreiecke in den schwarzen Quadraten zeigen die Messorte mit einem Verhältnis $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ größer als 2. An mit schwarzen Quadraten markierten Messorten liegt das Verhältnis $f(d, \bar{r})_{emp} / f(d, \bar{r})_{the}$ zwischen 0,5 und 2.

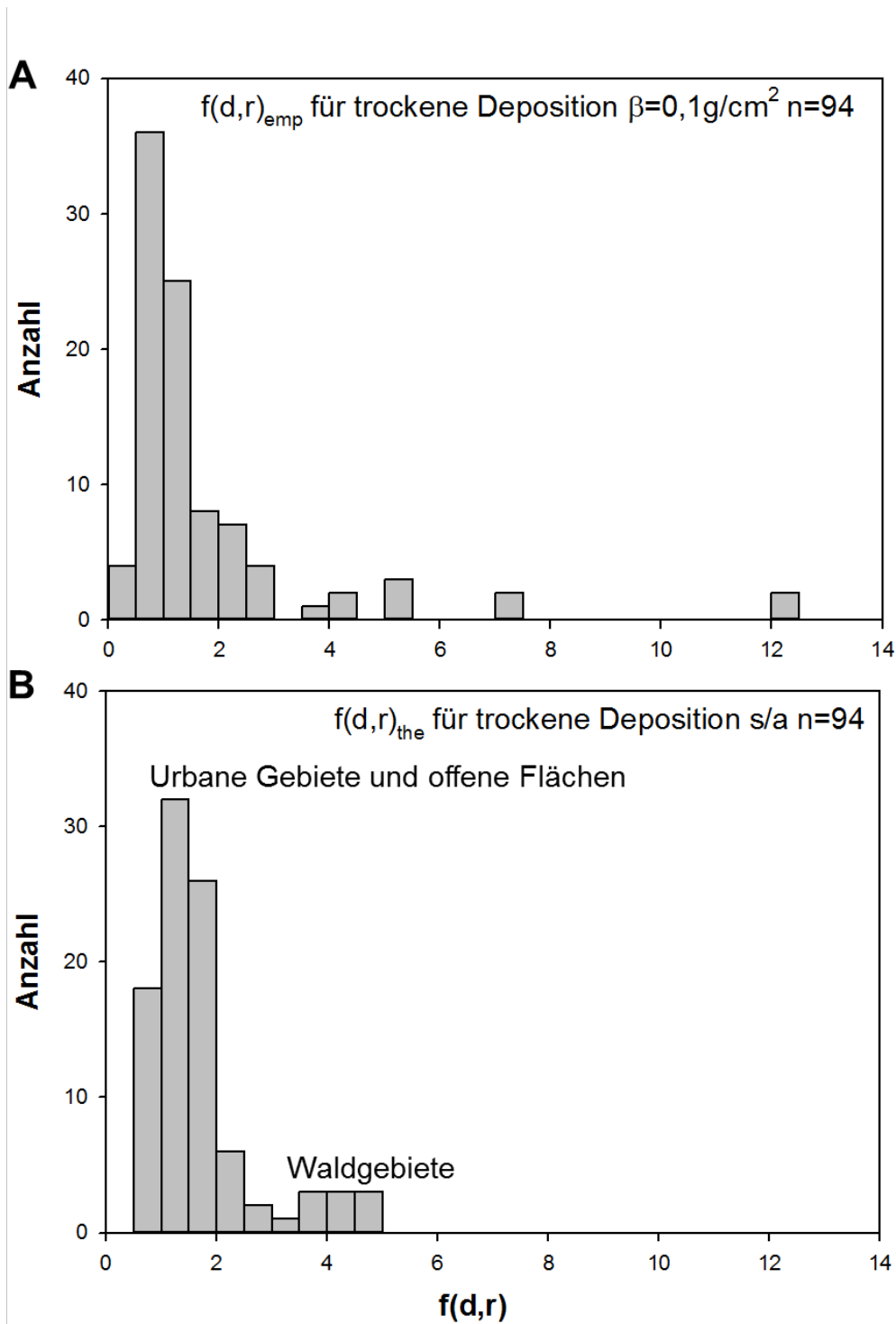


Abbildung 2.1.12: Histogramm der Verteilung von A) $f(d, \bar{r})_{emp}$ für trockene Deposition mit $\beta=0,1 \text{ g/m}^2$ und B) $f(d, \bar{r})_{the}$ für trockene Deposition im Frühling und Herbst.

Für ein $\beta=0,1 \text{ g/m}^2$ und trockene Deposition im Frühling/Herbst war das Verhältnis $f(d, \bar{r})_{emp}/f(d, \bar{r})_{the}$ in zehn Fällen größer als 15. In 14 dieser 15 Fälle hatten die Messorte hohe Anteile an Wald als Landnutzungsform. Eine Betrachtung von Satellitenbildern aus dem März 2011 hat ergeben, dass ein hoher Anteil der Bäume in diesen Waldgebieten während dem geschätzten Depositionszeitraum blattlos waren. Aus diesem Grund war die Deposition in

diesen Gebieten anders, als für bewaldete Gebiete berechnet, wodurch es zu einer Überschätzung des $f(d, \vec{r})_{the}$ in diesen Gebieten gekommen sein kann.

In den 13 Fällen, wo der $f(d, \vec{r})_{emp}$ um einen Faktor von 2 größer ist als der $f(d, \vec{r})_{the}$, sind 10 der Messorte in bewohnten Gebieten mit einer großen Anzahl an Häusern. An diesen Stellen kommt es möglicherweise zu schwer zu quantifizierenden Abschirmeffekten durch die Häuser, oder es kam zwischen Deposition und Messung zu Dekontaminierungsmaßnahmen, welche die Radionuklidverteilung verändert haben.

Das durchschnittliche Verhältnis $f(d, \vec{r})_{emp} / f(d, \vec{r})_{the}$ für alle 94 betrachteten Messorte war 1,17 ($\sigma=1,30$) für $\beta=0,1 \text{ g/m}^2$ und trockene Deposition im Frühling/Herbst, 1,32 ($\sigma=1,47$) für $\beta=0,3 \text{ g/m}^2$ und trockene Deposition im Frühling/Herbst und 2,39 ($\sigma=2,72$) für $\beta=1 \text{ g/m}^2$ und jahreszeitunabhängige nasse Deposition. Wenn eine trockene oder gemischte Deposition im Nahbereich um den Reaktor angenommen wird (Terada et al., 2012), zeigen diese Daten eine sehr gute Übereinstimmung zwischen $f(d, \vec{r})_{emp}$ und $f(d, \vec{r})_{the}$, was die Berechnungsmethode und das Umgebungsfaktorenkonzept bestätigt. Mit einem Faktor von größer 2 ist das durchschnittliche Verhältnis im Falle einer nassen Deposition zwar größer, aber immer noch im akzeptablen Bereich.

Die Werte für $f(d, \vec{r})_{emp}$ und $f(d, \vec{r})_{the}$ zeigen insgesamt eine Lognormalverteilung (**Abbildung 2.1.12**). Im Falle der $f(d, \vec{r})_{the}$ kann eine Gruppe von bewaldeten Messorten mit Umgebungsfaktoren um 4 von urbanen und landwirtschaftlichen Gebieten mit Umgebungsfaktoren um 1 unterschieden werden.

2.1.4 Diskussion

Die hier vorgestellte automatische Methode zur Berechnung von Umgebungsfaktoren aus digitalen Karten ermöglicht eine schnelle und reproduzierbare Korrektur von großen Mengen an GDR Messungen. Dadurch können genauere Kontaminationskarten erstellt werden, da Fluktuationen in dem verwendeten Datensatz reduziert werden. Zusätzlich können entsprechende Karten mit höherer Auflösung erstellt werden, wobei die Kontamination auf einer linearen, anstelle einer logarithmischen Skala dargestellt werden kann.

Die Erstellung der automatischen Routine hat allerdings auch einige Schwachstellen aufgezeigt. Die hier vorgestellten Methoden berücksichtigen lediglich zweidimensionale Effekte auf die Berechnung der Umgebungsfaktoren. Reale Umgebungen beinhalten hingegen dreidimensionale Objekte wie die Landschaftsform, Bäume oder Gebäude. Vor allem in Innenstädten mit hohen und massiven Gebäuden beeinflussen Abschirmungseffekte die GDR. Diese Abschirmungseffekte sind bis jetzt in der Berechnung der partiellen Umgebungsfaktoren noch nicht mit berücksichtigt. Außerdem können die Landnutzungsformen nur innerhalb der Grenzen der Auflösung, Genauigkeit und Aktualität der verwendeten Karte berechnet werden. Objekte wie einzelne Bäume, kleine Gebäude oder größere Pfützen nach Regenfällen können die GDR Messung beeinflussen, sind aber in der

Regel nicht auf ATKIS Karten verzeichnet. Außerdem sind Straßen in den ATKIS Karten als Linienobjekte erfasst, was deren Berechnung mit der jetzigen automatischen Routine verhindert. Die genannten Einschränkungen können dazu führen, dass die tatsächliche Varianz der Umgebungsfaktoren größer ist, als in der automatischen Berechnung gezeigt. Um die Genauigkeit weiter zu verbessern, wäre es nötig, genaueres Kartenmaterial mit höherer Auflösung und Informationen über Gebäudehöhen und Straßenbreiten zu verwenden. Zusätzlich kann es nach Katastrophen, wie dem Tohoku Erdbeben und anschließenden Tsunami in Japan 2011 zu ausgeprägten Veränderungen der Landnutzung und sogar der Landschaft kommen. Zusätzlich kann es zu jahreszeitlichen Veränderungen in der Landschaft kommen, die auf den ATKIS Karten nicht verzeichnet sind.

Als alternative Auswertemethode wurde eine manuelle Auswertung von Satellitendaten von Messorten in der Fukushima Präfektur im Rahmen des Projektes durchgeführt. Da diese Auswertemethode sowohl eine höhere Auflösung von Landschaftsformen als eine ATKIS Karte ermöglicht, als auch einen Vergleich mit aktuellen Satellitendaten zulässt, können die Umgebungsfaktoren zuverlässig berechnet werden. Diese Zuverlässigkeit konnte durch einen Vergleich von empirischen aus GDR und Kontaminationsdaten berechneten Umgebungsfaktoren, und aus Satellitendaten berechneten theoretischen Umgebungsfaktoren im Falle von Messorten in der Fukushima Präfektur demonstriert werden. Eine Einschränkung für diese Methode ist, dass Landnutzungsformen teilweise nicht genau unterschieden werden können. Dazu zählen zum Beispiel Industrieflächen und Wohngebiete, Rasen und landwirtschaftliche Fläche, Schotter und Asphalt oder Laub- und Nadelwald. Außerdem ist die manuelle Auswertung der Satellitendaten im Vergleich zu der automatischen Auswertung weitaus zeitaufwendiger.

Im Falle einer trockenen Deposition zeigen die Karten in **Abbildung 2.1.3** und **2.1.4**, dass die Gesamtdosis für eine Population, welche etwa der der Air Kerma Rate von ^{137}Cs entspricht (Eckerman and Ryman, 1993), in kleineren ländlichen Dörfern höher ist, als in städtischen Wohngebieten, wenn landwirtschaftliche Flächen und Wälder mit berücksichtigt werden. Ein um das 3 bis 4 fache höhere Dosis kann hier nach **Tabelle 2.1.3** angenommen werden. Die genaue Auswertung der Einflüsse der Umgebungsfaktoren auf die absorbierte Dosis kann bei der Entscheidung für oder gegen eine Evakuierung eines Gebietes relevant sein. Zum Beispiel empfiehlt die deutsche Strahlenschutzkommission 30 mSv absorbierte Dosis im Monat als Grenzwert für eine vorübergehende Evakuierung und 100 mSv für eine länger andauernde Evakuierung (Genkel and Schnadt, 2010). Um unnötige Evakuierungen zu vermeiden ist also eine genaue und schnelle GDR Kartierung nach radiologischen Zwischenfällen wichtig.

2.1.5 Anhang

Partielle Umgebungsfaktoren sind für trockene Deposition im Sommer, im Frühling/Herbst und im Sommer, sowie für jahreszeitunabhängige nasse Deposition angegeben. Diese Parameter sind entsprechend der von Gering entwickelten Methodik berechnet worden (Gering, 2005). **Tabelle 2.1.5-2.1.8** zeigen Werte für ^{137}Cs . Aufgrund eines Personalwechsels wurden die Werte für ^{137}Cs zusätzlich zu den Werten für ^{134}Cs noch einmal berechnet. Aufgrund von Unterschieden in der Interpolation weichen manche der neu berechneten Werte in den **Tabellen 2.1.9-2.1.16** von den Werten der zuerst berechneten Interpolation in **Tabelle 2.1.5-2.1.8** ab.

Tabelle 2.1.5: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von trockener Deposition im Winter ($d = w$) nach erster Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,28	0,18	0,19	0,34	0,99
Wohngebiet	0,28	0,28	0,18	0,25	0,99
Nadelwald	2,99	1,92	1,70	2,67	9,28
Laubwald	0,95	0,61	0,54	0,85	2,95
Mischwald	1,97	1,27	1,12	1,76	6,12
Schotter	0,28	0,28	0,18	0,25	0,99
Rasen	0,28	0,18	0,19	0,35	1,00
Industriegebiet	0,12	0,11	0,11	0,20	0,53
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.6: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von trockener Deposition im Frühling und Herbst ($d = s/a$) nach erster Interpolation.

f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	$\sum_r f_{ri}$
0,36	0,23	0,25	0,44	Landwirtschaftlich	1,28
0,20	0,20	0,13	0,18	Wohngebiet	0,71
1,96	1,26	1,33	1,75	Nadelwald	6,26
1,12	0,72	0,76	1,00	Laubwald	3,60
1,54	0,99	1,05	1,38	Mischwald	4,96
0,20	0,20	0,13	0,18	Schotter	0,71
0,28	0,18	0,19	0,35	Rasen	1,00
0,08	0,04	0,08	0,14	Industriegebiet	0,36
0,00	0,00	0,00	0,00	Wasser	0,00

Tabelle 2.1.7: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von trockener Deposition im Sommer ($d = s$) nach erster Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,70	0,45	0,48	0,85	2,48
Wohngebiet	0,14	0,14	0,09	0,13	0,50
Nadelwald	1,40	0,90	0,81	1,25	4,36
Laubwald	1,40	0,90	0,81	1,25	4,36
Mischwald	1,40	0,90	0,81	1,25	4,36
Schotter	0,14	0,14	0,09	0,13	0,50
Rasen	0,28	0,18	0,19	0,35	1,00
Industriegebiet	0,06	0,05	0,06	0,10	0,27
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.8: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von jahreszeitunabhängiger Deposition ($d = \text{wet}$) nach erster Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Wohngebiet	0,23	0,16	0,16	0,29	0,94
Nadelwald	0,37	0,21	0,22	0,36	1,16
Laubwald	0,37	0,21	0,22	0,36	1,16
Mischwald	0,37	0,21	0,22	0,36	1,16
Schotter	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Rasen	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Industriegebiet	0,20	0,13	0,14	0,24	0,71
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.9: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von trockener Deposition im Winter ($d = w$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,27	0,18	0,19	0,35	0,99
Wohngebiet	0,27	0,18	0,19	0,35	0,99
Nadelwald	2,52	1,68	1,76	3,31	9,28
Laubwald	0,80	0,53	0,56	1,05	2,95
Mischwald	1,66	1,11	1,16	2,19	6,12
Schotter	0,27	0,18	0,19	0,35	0,99
Rasen	0,27	0,18	0,19	0,35	1,00
Industriegebiet	0,14	0,10	0,10	0,19	0,53
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.10: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von trockener Deposition im Frühling und Herbst ($d = s/a$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,35	0,23	0,24	0,46	1,28
Wohngebiet	0,19	0,13	0,13	0,25	0,71
Nadelwald	1,70	1,13	1,19	2,24	6,26
Laubwald	0,98	0,65	0,68	1,29	3,60
Mischwald	1,35	0,90	0,94	1,77	4,96
Schotter	0,20	0,13	0,14	0,26	0,71
Rasen	0,27	0,18	0,19	0,36	1,00
Industriegebiet	0,10	0,07	0,07	0,13	0,36
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.11: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von trockener Deposition im Sommer ($d = s$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,67	0,45	0,47	0,89	2,48
Wohngebiet	0,14	0,09	0,09	0,18	0,50
Nadelwald	1,19	0,79	0,83	1,56	4,36
Laubwald	1,19	0,79	0,83	1,56	4,36
Mischwald	1,19	0,79	0,83	1,56	4,36
Schotter	0,14	0,09	0,09	0,18	0,50
Rasen	0,27	0,18	0,19	0,36	1,00
Industriegebiet	0,07	0,05	0,05	0,10	0,27
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.12: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{137}Cs im Falle von jahreszeitunabhängiger Deposition ($d = wet$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Wohngebiet	0,35	0,20	0,17	0,22	0,94
Nadelwald	0,43	0,25	0,22	0,27	1,16
Laubwald	0,43	0,25	0,22	0,27	1,16
Mischwald	0,43	0,25	0,22	0,27	1,16
Schotter	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Rasen	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Industriegebiet	0,26	0,15	0,13	0,16	0,71
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.13: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{134}Cs im Falle von trockener Deposition im Winter ($d = w$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,27	0,18	0,19	0,34	0,99
Wohngebiet	0,27	0,18	0,19	0,35	0,99
Nadelwald	2,54	1,66	1,77	3,32	9,28
Laubwald	0,81	0,53	0,56	1,05	2,95
Mischwald	1,67	1,09	1,17	2,19	6,12
Schotter	0,27	0,18	0,19	0,35	0,99
Rasen	0,27	0,18	0,19	0,36	1,00
Industriegebiet	0,14	0,09	0,10	0,19	0,53
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.14: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{134}Cs im Falle von trockener Deposition im Frühling und Herbst ($d = s/a$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,35	0,23	0,24	0,46	1,28
Wohngebiet	0,19	0,13	0,14	0,25	0,71
Nadelwald	1,71	1,12	1,19	2,24	6,26
Laubwald	0,98	0,64	0,69	1,29	3,60
Mischwald	1,36	0,88	0,95	1,77	4,96
Schotter	0,20	0,13	0,14	0,26	0,71
Rasen	0,27	0,18	0,19	0,36	1,00
Industriegebiet	0,10	0,06	0,07	0,13	0,36
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.15: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{134}Cs im Falle von trockener Deposition im Sommer ($d = s$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,68	0,44	0,47	0,89	2,48
Wohngebiet	0,14	0,09	0,10	0,18	0,50
Nadelwald	1,19	0,78	0,83	1,56	4,36
Laubwald	1,19	0,78	0,83	1,56	4,36
Mischwald	1,19	0,78	0,83	1,56	4,36
Schotter	0,14	0,09	0,10	0,18	0,50
Rasen	0,27	0,18	0,19	0,36	1,00
Industriegebiet	0,07	0,05	0,05	0,10	0,27
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

Tabelle 2.1.16: Partielle Umgebungsfaktoren $f_{ri}(d)$ in den Ringzonen $r = 1-4$ für ^{134}Cs im Falle von jahreszeitunabhängiger Deposition ($d = \text{wet}$) nach zweiter Interpolation.

Umgebungsfaktor für Landnutzungstyp i	f_{1i}	f_{2i}	f_{3i}	f_{4i}	$\sum_r f_{ri}$
Landwirtschaftlich	0,37	0,21	0,19	0,23	1,00
Wohngebiet	0,35	0,20	0,17	0,22	0,94
Nadelwald	0,43	0,25	0,21	0,27	1,16
Laubwald	0,43	0,25	0,21	0,27	1,16
Mischwald	0,43	0,25	0,21	0,27	1,16
Schotter	0,37	0,21	0,18	0,23	1,00
Rasen	0,37	0,21	0,18	0,23	1,00
Industriegebiet	0,26	0,15	0,13	0,16	0,71
Wasser	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00

2.1.6 Referenzen

- Andersson, K. (2009). *Radioactivity in the Environment* (Elsevier Science).
- Andersson, K., Roed, J., and Fogh, C. (2002). Weathering of radiocaesium contamination on urban streets, walls and roofs. *Journal of Environmental Radioactivity* 62, 49-60.
- ATKIS-Wiki (2012). Amtliches Topographisch-Kartographisches Informationssystem.
- ATKIS (2009). release no. R2009 V1.0, Gauss-Krüger Zone 4.0 (Bayerische Vermessungsverwaltung).
- Bleher, M., and Stölker, U. (2003). The impact of ambient dose rate measurement network and precipitation radar system for detection of environmental radioactivity released by accident. In: 12. Fachgespräch Überwachung der Umweltradioaktivität (Bonn, Germany).
- de Cort, M., de Vries, G., Breitenbach, L., and Dubois, G. (1998). EURDEP: A System for Radiological Data Exchange in Europe. In: *Proceedings of the Sixth Topical Meeting on Emergency Preparedness and Response* (American Nuclear Society, San Francisco, California, USA).
- Eckerman, K., and Ryman, J. (1993). External exposure to radionuclides in air, water, and soil. U.S. Environmental Protection Agency, Washington, D.C., Federal Guidance Report no. 12, EPA-402-R-93-081.
- Genkel, S., and Schnadt, H. (2010). Übersicht der Maßnahmen zur Verringerung der Strahlenexposition nach Ereignissen mit nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen (Maßnahmekatalog). Vol. 60 of *Berichte der Strahlenschutzkommission (SSK) des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit*.
- Gering, F. (2005). Data assimilation methods for improving the prognoses of radionuclide deposition from radioecological models with measurements. Ph.D. thesis (Leopold-Franzens Universität Innsbruck, Austria.).
- Heuvelink, G., Jiang, Z., Bruin, S., and CJW Twenhöfel (2010). Optimization of mobile radioactivity monitoring networks. *International Journal of Geographical Information Science* 24, 365-382.
- Hopmeier, M., Abrahams, J., and Carr, Z. (2010). Some considerations for mass casualty management in radiation emergencies. *Health Physics* 98, 790-794.
- ICRU (1994). *Gamma-ray spectrometry in the environment*. International Commission on Radiation Units and Measurements, Bethesda, MD, ICRU Report No. 53.
- INES (2012). *The International Nuclear and Radiological Event Scale*, International Atomic Energy Agency, Information Series, Division of Public Information, IAEA publication no. 08 24941/E.
- Jacob, P., Meckbach, R., Müller, H., and Meimberg, K. (1990). Abnahme der abgelagerten künstlichen Radioaktivität in städtischer Umgebung. GSF-Bericht 17/90, Neuherberg, Germany, GSF-Institut für Strahlenschutz.
- JRODOS (2012). *Realtime Online Decision Support System for Nuclear Emergency Management*.
- Kaiser, J. (2012). Empirical risk analysis of severe reactor accidents in nuclear power plants after Fukushima. *Science and Technology of Nuclear Installations Article ID 384987*.
- Kaiser, J., and Pröhl, G. (2007). Harnessing monitoring measurements in urban environments for decision making after nuclear accidents. *Kerntechnik* 72, 218-221.
- Katata, G., Ota, M., Terada, H., Chino, M., and Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part I: Source term estimation and local-scale atmospheric dispersion in early phase of the accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 109, 103-113.

- Kinoshita, N., Sueki, K., Sasa, K., Kitagawa, J., Ikarashi, S., T Nishimura, Wong, Y., Honda, K., Takahashi, T., Sato, M., *et al.* (2011). Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108, 19526-19529.
- Lelieveld, J., Kunkel, D., and Lawrence, M. (2012). Global risk of radioactive fallout after major nuclear reactor accidents. *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, 4245-4258.
- Meckbach, R., and Jacob, P. (1988). Gamma exposures due to radionuclides deposited in urban environments. part II: Location factors for different deposition patterns. *Radiation Protection Dosimetry* 25, 181-190.
- Meckbach, R., Jacob, P., and Paretzke, H. (1988). Gamma exposures due to radionuclides deposited in urban environments. part I: Kerma rates from contaminated urban surfaces. *Radiation Protection Dosimetry* 25, 167-179.
- MEXT (2012). Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology - Japan, Monitoring information of environmental radioactivity level.
- Moosach-Wiki (2012). Moosach (Landkreis Ebersberg in Bayern).
- Paasikallio, A., Rantavaara, A., and Sippola, J. (1994). The transfer of cesium-137 and strontium-90 from soil to food crops after the Chernobyl accident. *The Science of the Total Environment* 155, 109-124.
- Pebesma, E., Cornford, D., Dubois, G., Heuvelink, G., Hristopulos, D., Pilz, J., Stöhlker, U., Morin, G., and Skøien, J. (2011). INTAMAP: The design and implementation of an interoperable automated interpolation web service. *Computer and Geosciences* 37, 343-352.
- Safecast (2012). Global sensor network for collecting and sharing radiation measurements to empower people with data about their environments.
- Schimmack, W., Bunzl, K., and Bachhuber, H. (1987). Variability of the sorption of Cs, Zn, Sr, Co, Cd, Ce, Ru, Tc and I at trace concentrations by a forest soil along a transect. *Environmental International* 13, 427-436.
- Schimmack, W., and Schultz, W. (2006). Migration of fallout radiocesium in a grassland soil from 1986 to 2001, Part I: Activity depth profiles of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs. *Science of the Total Environment* 368, 853-862.
- Terada, H., Katata, G., Chino, M., and Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *Journal of Environmental Radioactivity* 112, 141-154.
- Thiessen, W., Andersson, K., Batandjieva, B., Cheng, J., WT Hwang, Kaiser, J., Kamboj, S., Steiner, M., Tomas, J., Trifunovic, D., *et al.* (2009). Modelling the long-term consequences of a hypothetical dispersal of radioactivity in an urban area including remediation alternatives. *Journal of Environmental Radioactivity* 100, 445-455.
- Thompson, I. (2000). Technical recommendations on measurements of external environmental gamma radiation doses - A report of EURADOS Working Group 12 Environmental Radiation Monitoring. *Radiation Protection Dosimetry* 92, 71-76.
- Thompson, I., Bøtter-Jensen, L., Deme, S., Pernicka, F., and Saez-Vergara, J. (1983). Principles of environmental monitoring related to the handling of radioactive materials. *Annals of the ICRP* 11-13.
- Twenhöfel, C., Beynen, C.d.H.v., Lunenburg, A.v., Slagt, G., Tax, R., Westerlaak, P.v., and Aldenkamp, F. (2005). Operation of the Dutch 3rd generation national radioactivity monitoring network. In: Dubois, G. (Ed.), Automatic mapping algorithms for routine and emergency monitoring data, Report on the Spatial Interpolation Comparison (SIC2004)

exercise. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, pp. 19–31, Report EUR 21595 EN.

Urso, L., Astrup, P., Helle, K., Raskob, W., Rojas-Palma, C., and Kaiser, J. (2013). Improving evaluation criteria for monitoring networks of weak radioactive plumes after nuclear emergencies. *Environmental Modelling & Software* 38, 108-116.

Yasunari, T., Stohl, A., Hayano, R., Burkhardt, J., Eckhardt, S., and Yasunari, T. (2011). Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108, 19530–19534.

Zähringer, M., and Sempau, J. (1997). Calibration factors for dose rate probes in environmental monitoring networks obtained from monte-carlo simulations. *BfS-IAR-Berichte* 2/97, 2–83.

2.2 Arbeitspaket 1.3: Radioökologie bei Schnee

Kerstin Hürkamp, Felix Bernauer, Stefanie Tafelmeier, Jochen Tschiersch, Institut für Strahlenschutz

2.2.1 Einleitung und Übersicht

Bisher konzentrierten sich radioökologischen Studien auf Untersuchungen in der Vegetationsperiode, um die direkte Kontamination von Pflanzen und Böden nach Radionuklidfreisetzungen zu quantifizieren. Radioökologische Prozesse, die mit Schnee verbunden sind, wurden bisher selten untersucht und viele Probleme sind nicht geklärt. In vielfacher Hinsicht sind aber auch der Transport und das Verhalten von Radionukliden in der Winterperiode von Relevanz:

- Wintergetreide und mehrjährige Pflanzen können direkt kontaminiert werden;
- bei der Schneeschmelze kann kontaminiertes Schmelzwasser Böden, Gewässer, Klärsysteme und ggf. sogar Trinkwasserreservoirs kontaminieren.
- Die Verlängerung der Vegetationsperiode durch die Klimaänderung erhöht darüber hinaus die Wahrscheinlichkeit einer direkten Kontamination des Bewuchses durch sporadische Wintereinbrüche.
- Mit dem Klimawandel einhergehende Verschiebungen der Schneedeckenperioden, zeitlich veränderte Schmelzwasserabflüsse und Extremereignisse führen zu einem veränderten Abfluss von radionuklidhaltigen Schmelzwässern.

Zudem spielen Parameter basierend auf Schnee in europäischen radioökologischen Ausbreitungsmodellen (z.B. RODOS, Symbiose) bisher keine Rolle. Nach dem Unfall im Kernkraftwerk von Fukushima Dai-ichi 2011 in Japan hat sich aber gezeigt, dass die Regionen, in denen es nach dem Unfall geschneit hat, heute die am stärksten kontaminierten Böden aufweisen. Jedoch existieren starke Unterschiede zwischen beobachteter und vorhergesagter nasser Deposition (Morino et al. 2011, Yasunari et al. 2011), die möglicherweise auf die fehlende Berücksichtigung von Schnee als Niederschlagsart in den Modellen zurückzuführen ist. Unter Berücksichtigung, dass sich die Effizienz des Auswaschprozesses von Radioaktivität aus der Luft für Schnee gegenüber Regen stark unterscheidet und die Schneedecke als Speicher für radioaktive Stoffe fungiert und damit deren Freisetzung nach der Schneeschmelze verzögern kann, ist es wichtig, Schnee-Parameter für die Implementierung in diese Modelle bereitzustellen.

2.2.2 Stand der Forschung

2.2.2.1 Deposition von aerosolgebundenen Radionukliden

Bei den Depositionsprozessen von aerosolgebundenen Stoffen werden die nasse und die trockene Deposition unterschieden. Bei der besonders effizienten nassen Deposition werden gelöste und ungelöste Stoffe (z.B. Radionuklide) durch Niederschläge wie Regen, Schnee oder Graupel ausgewaschen. Diese Auswaschung (Selbstreinigung der Atmosphäre) kann

innerhalb von Wolken (Rainout) oder unterhalb der Wolkenbasis (Washout) erfolgen. Die Effektivität dieses Vorgangs, bestimmt durch den Rainout- bzw. Washout-Koeffizienten, hängt von den Eigenschaften der ausgewaschenen Substanzen (Löslichkeit, Partikelgröße) und den Niederschlagscharakteristika (Niederschlagsintensität, Tropfenspektrum) ab. Der Washout- oder auch Scavenging-Koeffizient Λ genannt, beschreibt den Transferprozess eines Stoffes auf den Boden über seine Konzentration c im Aerosol. Der Washout-Prozess durch Niederschläge kann als Zerfall erster Ordnung dargestellt werden und errechnet sich aus der Konzentrationsabnahme aus aufeinander folgenden Messungen der partikelgrößenfraktionierten Aerosole (Laakso et al. 2003, Kyrö et al. 2009, Paramonov et al. 2011).

$$\frac{\partial c(d_p, t)}{\partial t} = -\Lambda(d_p)c(d_p, t) \quad \xrightarrow{\text{Integration}} \quad \Lambda(d_p) = -\frac{1}{t_1 - t_0} \ln \left(\frac{c(d_p, t_1)}{c(d_p, t_0)} \right)$$

Die Aerosolpartikelkonzentration $c(d_p, t)$ ist eine Funktion der Aerosolpartikelgröße d_p und der Zeit t .

Wenn mehr als zwei aufeinanderfolgende Messungen der Partikelkonzentration vorliegen, kann der Scavenging-Koeffizient auch durch Umstellung der obigen Gleichung berechnet werden,

$$\ln(c(d_p, t)) = -\Lambda(d_p)t + \ln(c(d_p, 0))$$

mit $\Lambda(d_p)$ als Steigung eines linearen Fit an den Logarithmus der Aerosolpartikelkonzentration. Die Methode des linearen Fit hat den Vorteil, Effekte instrumentellen Rauschens zu minimieren (Volken und Schumann 1993, Kyrö et al. 2009).

Die Frage ist, wie groß die Effizienz eines fallenden Hydrometeors ist, ein Aerosolpartikel einzufangen. Dies ist abhängig von mikrophysikalischen Mechanismen der Impaktion, molekularen Diffusion und phoretischen Effekten (s. **Abb. 2.2.1a**). Diese wiederum hängen von der Aerosolpartikelgröße ab. Die Diffusion ist der wichtigste Auswasch-Prozess für die kleinsten Partikel, bei den großen Partikeln dominiert die Impaktion. Dazwischen liegt theoretisch ein Minimum der genannten Prozesse, hier dominiert die Phorese (s. **Abb. 2.2.1b**). Die Mechanismen werden durch starke Luftverwirbelung noch verstärkt.

Bisherige Studien zu Washout von Partikeln konzentrieren sich auf die Untersuchung von Regenereignissen und den Zusammenhang des Auswasch-Prozesses mit der Partikelgröße (z.B. Frank und Tschiersch 1992, Volken und Schumann 1993, Sparmacher et al. 1993, Laakso et al. 2003). Experimentelle Arbeiten, die die Tropfengröße der Hydrometeore mit berücksichtigen sind z.B. Tschiersch et al. (1995) und Baechmann et al. (1996). Die Untersuchungen über den Einfluss von Schnee sind rar, obwohl das Schnee-Scavenging häufig als effizientester Prozess der nassen Deposition beschrieben wird. In Deutschland mangelt es in vielen Gebieten an ausreichend Schneeniederschlag für solche Studien. Dennoch existieren

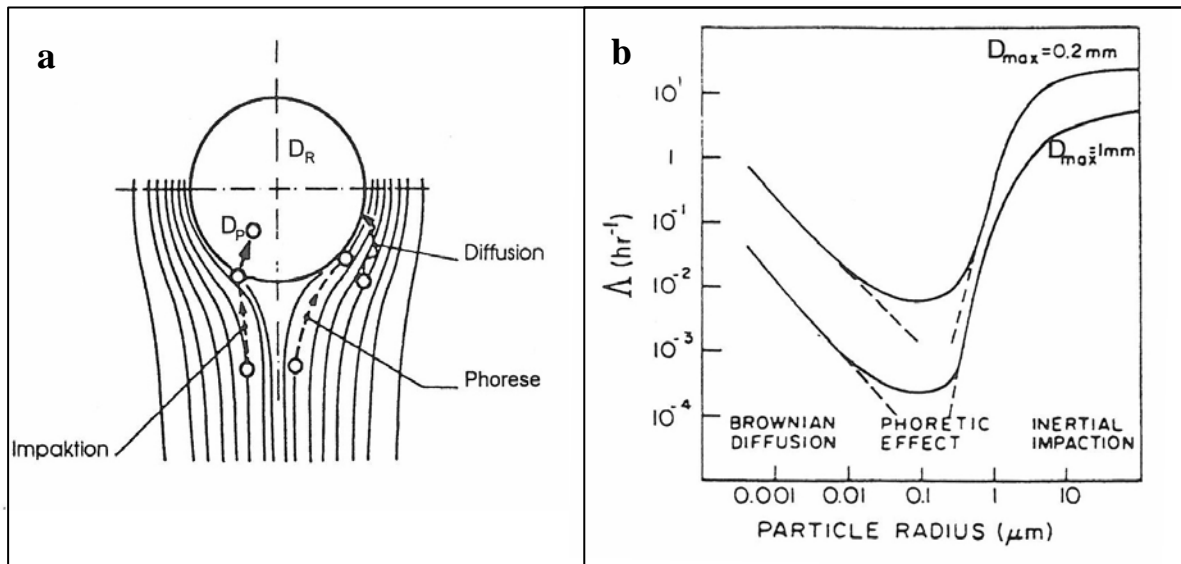


Abb. 2.2.1: (a) Auswasch-Mechanismen der Impaktion, Diffusion und Phoresis (aus Tschiersch et al. 2000) und (b) theoretische Abhängigkeit des Scavenging-Koeffizient von Partikelgröße bei zwei verschiedenen Regentropfengrößenverteilungen (aus Pruppacher und Klett 1980).

einzelne Arbeiten aus Darmstadt und München (Ebert et al. 1998, Tschiersch et al. 2000). Allerdings ist bisher der Einfluss der makro- und mikroskopischen Schneeparameter wenig untersucht (Kyrö et al. 2009, Paramonov et al. 2011).

Zur Parametrisierung der Washout-Effizienz Λ wird bisher in Radionuklidenausbreitungsmodellen (z.B. RODOS) einzig der Parameter der Niederschlagsintensität herangezogen.

$$\Lambda = A \left(\frac{I}{I_0} \right)^B$$

mit I = Niederschlagsintensität, I_0 = Normalisierungsfaktor = 1 und B als Konstante, die abhängig vom deponierten Material ist. B für Aerosole = 0,8. A ist eine Konstante, abhängig von der Aerosolpartikelgröße und liegt zwischen $1,0 \cdot 10^{-4}$ und $4,0 \cdot 10^{-4}$. Eine Parametrisierung mit schneephysikalischen Parametern steht noch aus.

2.2.2.2 Charakterisierung von Niederschlagsereignissen

Um die nasse Deposition mit Schnee genau zu quantifizieren und zu erarbeiten, welche makro- und mikroskopischen Schneeparameter einen besonderen Einfluss auf die Effizienz der Schneeflocken in Bezug auf das Auswaschen von Radionukliden aus der Atmosphäre haben, ist eine Charakterisierung der Niederschlagsereignisse notwendig.

Eine herausfordernde Aufgabe für viele Bereiche der Atmosphären-Forschung ist dabei die Klassifizierung der Niederschlagsereignisse bezüglich ihrer dominierenden Niederschlagsform. Die Parametrisierung der Auswascheffizienz von partikelgebundenen Radionukliden und atmosphärischen Stoffen allgemein (Sportisse 2007, Kyrö et al. 2009, Paramonov et al. 2011) benötigt ebenfalls eine detaillierte Charakterisierung und Klassifizierung der Events. Die große Variabilität der Strukturen und Formen von festen Hydrometeoren macht eine Klassifizierung sehr komplex. Als Grundlage dafür werden meist

Formen, Größen und Geschwindigkeits-Parameter herangezogen. Barthazy und Schefold (2006) nutzen dafür einen Hydrometeor-Geschwindigkeits- und Formen-Detektor. Sogenannte PARSIVEL (PARTicle SIZE VELOCITY) Distrometer (Löffler und Joss 2000) liefern Größen- und Fallgeschwindigkeitsinformationen zuverlässig für Regen. Diese Methode hat aber ihre Defizite für die Charakterisierung von Schnee (Battaglia et al. 2010). 2D-Video-Distrometer (2DVD) haben den Vorteil, präzise Größen-, Form- und Geschwindigkeitsinformationen auch für feste Niederschläge bereit zu stellen, weil sie zwei Kamerabilder von jedem detektierten Hydrometeor aus verschiedenen Aufnahmewinkeln speichern (Hanesch 1999; Brandes et al. 2007, Huang et al. 2010, Zhang et al. 2011, Grazioli et al. 2014, Gavrilo et al. 2015). Diese Methode wurde auch in der vorliegenden Studie angewendet und ersetzt zeitaufwändige und datenmengenlimitierte Beobachtungen durch einen Beobachter vor Ort.

Zur Prozessierung der 2DVD-Daten für Schnee hat das vom Hersteller Joanneum-Research mitgelieferte Software-Programm einige Schwächen, die detailliert von Bernauer et al. (2015a) beschrieben und ausgemerzt wurden. Mit dem neuen Algorithmus, der auch in dieser Studie angewendet wurde, ist eine unabhängige und universal anwendbare Klassifikation für Schnee möglich, die auf einfachen Randbedingungen für Form- und Geschwindigkeitsparameter basiert (s. **Kap. 2.2.3.3**). Andere Klassifizierungsmethoden wie die von Grazioli et al. (2014) und Gavrilo et al. (2015) angewandten, haben den Nachteil, nicht universal anwendbar zu sein, da sie auf einen individuellen Trainingsdatensatz zurückgreifen.

2.2.2.3 Transport von Radionukliden in der Schneedecke

Nach der Deposition der Radionuklide mit und auf Schnee erfolgt eine Anreicherung in der Schneedecke durch partielle Schmelzprozesse und Sublimation. In den Höhenlagen der Alpen führen die rezenten klimatischen Bedingungen dazu, dass über die Wintermonate Radionuklide kontinuierlich in der Schneedecke akkumuliert werden und erst bei der Schneeschmelze im Frühjahr rasch bis zeitlich punktuell in das Schmelzwasser abgegeben werden. Der Transport von den Nukliden innerhalb der Schneedecke ist neben den klimatischen Gegebenheiten maßgeblich von der Textur des Schnees abhängig. Arbeiten zum Radionuklidtransport in der Schneedecke sind eher selten. Einige Autoren konzentrierten sich auf den Ionentransport durch Schnee (Davis et al. 1995, Cragin et al. 1996). Da sich die chemischen Eigenschaften der untersuchten Ionen von denen der Radionuklide unterscheiden, sind diese Arbeiten aber nur bedingt auf den Transport zumeist partikelgebundener radioaktiver Stoffe im Schnee übertragbar.

Von besonderem Interesse war bei den meisten Arbeiten das Auswaschverhalten der Ionen bei der Schneeschmelze. Es wurden die Fraktionierung und bevorzugte Auswaschung von bestimmten Ionen mit dem Schmelzwasser untersucht (Herrmann und Stichler 1981, Davis et al. 1995, Cragin et al. 1996). Davis et al. (1995) konnten dabei mehr als 70 % der in der Schneedecke homogen verteilten Ionen in den ersten 20 % des Schmelzwassers nachweisen. Auf ähnliche Werte kommen auch Johannessen und Hendriksen (1978), Johannes et al. (1981), Cadle et al. (1984) und Bales et al. (1989).

Weiterhin zeigten die Experimente, dass Schnee größerer Dichte das Auswaschen ebenso fördert wie eine langsamere Schmelzrate. Herrmann und Stichler (1981) simulierten einen Tagesverlauf der Temperatur und untersuchten dabei die Ionenkonzentration im Schmelzwasser. Sie konnten eine Abnahme der Konzentration in den ersten Tagen nachweisen. Die Annahme einer ionenspezifischen Auswaschung (präferentielle Elution) wurde durch Laborversuche bestätigt. Dabei zeigten vor allem divalente Ionen eine höhere Auswaschfähigkeit als univalente (Tsiouris et al. 1985, Brimblecombe et al. 1986, Cragin et al. 1996).

Die Migration von Stoffen im Schnee wird mit Konvektions-Dispersions-Modellen beschrieben, welche bereits in der Bodenphysik Verwendung finden. Colbeck (1977) übertrug diese Theorie auf Schnee, um die Bewegung von Partikeln – wie Farbtracer oder Salze – im Schmelzwasser zu berechnen. Der Beitrag der hydrodynamischen Dispersion setzt sich dabei aus der molekularen Diffusion, mechanischen Dispersion und chemischen Reaktionen zusammen. Die molekulare Diffusion wird durch Konzentrationsgradienten in der Schneedecke verursacht. Die mechanische Dispersion unterliegt Unterschieden in den Geschwindigkeiten in einer Pore bzw. zwischen Poren; entsprechend groß ist der Einfluss der Porengeometrie. Der konvektive Transport beschreibt die Bewegung gelöster Partikel mit der flüssigen Phase und dominiert (Colbeck 1977).

Anhand von Freilandexperimenten beobachteten Vakulovskii et al. (2007) das temperaturabhängige Migrationsverhalten von Sr-90 und Cs-137 im Schnee und stellten fest, dass ein Großteil der Nuklide im Boden fixiert ist. Auch Tveten (1990) führte Freilandexperimente zur Untersuchung vom Radionuklidverbleib in urbanen Schneedecken auf Dächern durch. Es wurde nachgewiesen, dass während einer natürlichen Tauphase bis zu 90% der Aktivität von Cs-134 vom Dachbaumaterial absorbiert werden können.

Laborexperimente mit Schneesäulen im Rahmen dieses Projektes sollten Aufschluss geben über die Freisetzung deponierter Radionuklide in der Schneedecke unter simulierten Bedingungen, wie sie auf der Zugspitze herrschen. Fehlende Böden, die als Puffer für die Nuklide dienen können, führen dazu, dass ein Großteil der Fracht direkt ins Oberflächenwasser abgegeben wird.

2.2.3 Methoden

2.2.3.1 Schneeprobenahme und Probenvorbereitung für die Gammaskopimetrie

Die Probenahme von Schnee erfolgte auf den Messterrassen der Umweltforschungsstation Schneefernerhaus (UFS) auf der Zugspitze (2.650 m ü. NN). Für die Bestimmung der nassen Deposition mit Schnee wurden 13 cm hohe Kunststoffwannen mit einer Fläche von 0,96 m² auf der Terrasse im 7. OG der UFS dauerhaft installiert. Während der Schneefallereignisse wurden die Wannan je nach Niederschlagsintensität in Abständen von minimal 2 h, möglichst parallel zur Probenahme der Gesamtaerosole beprobt. Dabei sollte das Probenvolumen mindestens 3-5 l Schnee-Wasser-Äquivalent (SWE) betragen, um ausreichend hohe

Radionuklidkonzentrationen für die Aktivitätsbestimmung der natürlichen Nuklide Be-7 und Pb-210, möglichst auch Cs-137 mittels Gammaskopie zu beinhalten.

Der Schnee wurde in Fässern ins Labor auf die UFS gebracht und geschmolzen. Prinzipiell werden die Proben danach mit HNO₃ angesäuert, um die Bildung von Algen und das Anhaften der Radionuklide an den Gefäßwänden zu unterbinden. Auf eine Ansäuerung musste auf der UFS verzichtet werden, da das Umweltbundesamt dort Spurengase (u.a. NO_x) misst und die Messergebnisse durch die Benutzung von Säuren verfälscht würden. Für den Verzicht auf das Ansäuern wurde daher eine allgemeine Unsicherheit der Messergebnisse von 10 % angenommen.

Zur Aufkonzentrierung der geringen Aktivitäten an Be-7, Pb-210 und Cs-137 in den Proben und zur Überführung der Proben in kalibrierte Messgeometrien für die Gammaskopie wurden die Proben mit einem Rotationsverdampfer auf etwa 150 ml eingedampft und über Membranfilter (0,45 µm) filtriert, um Feststoffe von Flüssigkeit zu trennen. Das Filtrat wurde in 250 ml-Schraubdeckeldosen überführt und auf eine kalibrierte Füllhöhe (etwa 230 ml) mit deionisiertem Wasser aufgefüllt. Die Dosen sind als Messgeometrie für die Gammaskopie ebenso effizienzkalibriert wie die Membranfilter mit den Schwebstoffen, die vor der Messung im Exsikkator getrocknet werden. Filter und Dosen wurden separat in Plastikbeutel verpackt, um eine Kontamination des Gammadetektors auszuschließen.

Der Schnee zum Befüllen der Schneesäulen für die Tracerexperimente im Labor am Helmholtz Zentrum München (s. **Kap. 2.2.3.7**) wurde auf den UFS-Terrassen im 4. oder 5. OG genommen und in Plastiksäcken in Styroporboxen nach München transportiert. Eine massive Änderung der Schneetextur auf Grund von Metamorphoseprozessen während der Fahrt nach München konnte so weitgehend verhindert werden. Bis zum Beginn der Experimente wurde der Schnee bei -20°C in Tiefkühltruhen gelagert.

2.2.3.2 Schneecharakterisierung mit dem 2D-Video-Distrometer

Für die Charakterisierung der Schnee- bzw. Niederschlagsereignisse allgemein wurde im Rahmen des Projektes ein 2D-Video-Distrometer (2DVD, Joanneum Research, Graz) angeschafft, das seit Ende November 2012 kontinuierlich auf der Messterrasse im 4. OG der UFS im Betrieb ist und Parameter über Schneeflockenformen und -größen sowie Fallgeschwindigkeiten liefert. In Kombination mit einer Niederschlagswaage (Pluvio², Ott), die den gesamten Niederschlag erfasst, der auch durch den sensitiven Bereich des Distrometers fällt, kann auch die Niederschlagsintensität abgeleitet werden (**Abb. 2.2.2a**).

Das 2DVD besteht im Wesentlichen aus zwei im 90°-Winkel zueinander und um 6 mm höhenversetzt angeordneten Linienscan-Kameras, die die Schattenbilder der Hydrometeore erfassen, die durch den 10 x 10 cm großen sensitiven Bereich (**Abb. 2.2.2c**) fallen, der von beiden Kameras abgedeckt wird (**Abb. 2.2.2b**). Detaillierte Beschreibungen zur Funktionsweise des Gerätes können bei Kruger und Krajewski (2002) sowie bei Bernauer et al. (2015a) nachgelesen werden.

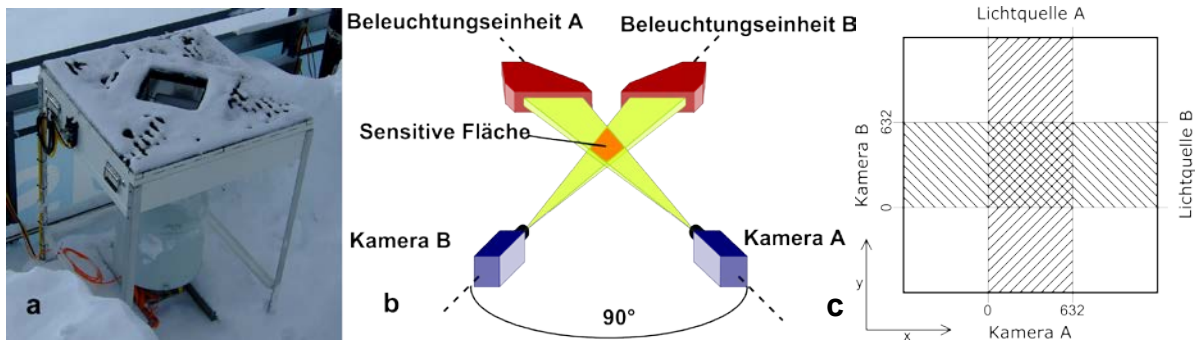


Abb. 2.2.2: (a) Blick auf das 2D-Video-Distrometer (2DVD) mit darunter installierter Niederschlagswaage (Pluvio²), (b) schematischer Aufbau des Strahlengangs im 2DVD und (c) schematische Skizze der sensitiven Fläche des 2DVD von oben.

Probleme bei der Datenauswertung gibt es bei der Erfassung ein und desselben Hydrometeors durch beide Kameras, beim sogenannten Matching. Im Gegensatz zu Regen ist die Form von Schnee sehr viel komplexer. Die gleiche Flocke ist aus zwei verschiedenen Richtungen nicht immer eindeutig zuordenbar, was zu vielen Artefakten im Datensatz führte. Bei Regentropfen kann die Zuordnung leicht über die Fallgeschwindigkeit erfolgen (Gunn und Kinzer 1949, Atlas et al., 1973). Bei Schnee hängt die Fallgeschwindigkeit stark von Größe, Form und Bereifungsgrad ab (Locatelli und Hobbs 1974, Barthazy und Schefold 2006). Für die Programmierung eines neuen Algorithmus zur Auswertung von Schnee wurden einfache Randbedingungen (nach Hanesch 1999 und Huang et al. 2010) definiert, nach denen das Matching abläuft. Kriterien und Tests der neuen Software wurden in Bernauer et al. (2015a) publiziert.

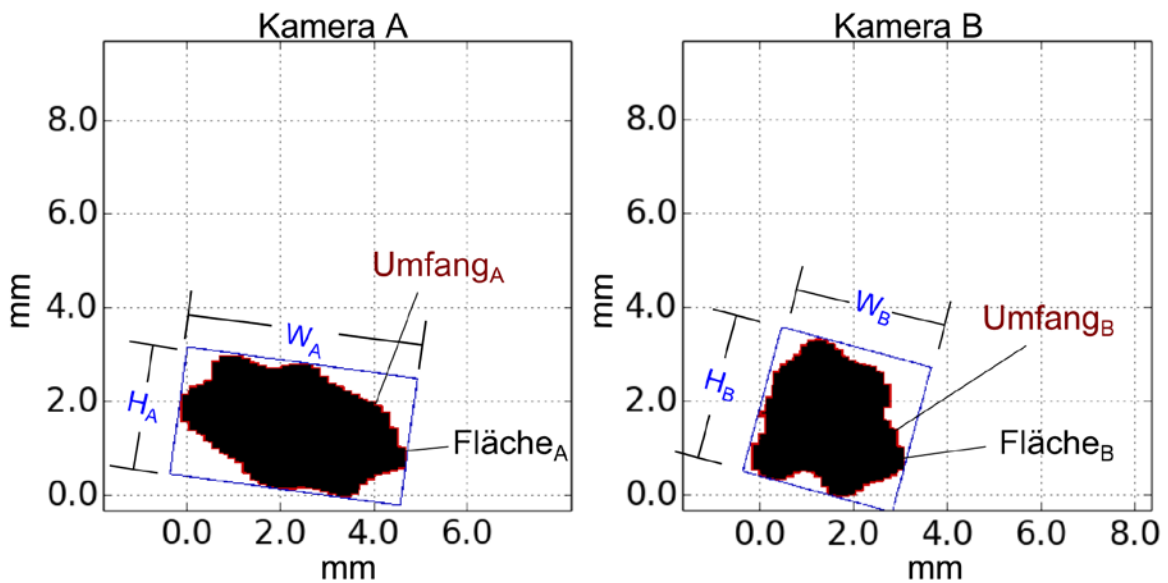


Abb. 2.2.3: Definition von Breite W , Höhe H , Umfang P und Fläche A der Hydrometeore, wie sie vom 2D-Video-Distrometer aufgezeichnet werden.

Als Resultat des Matching liegt ein Paar von Hydrometeor-Bildern vor, aus denen Breite W , Höhe H , Umfang P und Fläche A jeder Flocke berechnet werden können (**Abb. 2.2.3**). Daraus kann wiederum ein Datensatz von Parametern berechnet werden, der auch von Grazioli et al. (2014) schon auf Schneeklassifizierung angewendet wurde:

Elongation E : $E = \frac{\max(W,H)}{\min(W,H)}$

Die Elongation beschreibt den Quotienten aus Breite und Höhe. Je gestreckter ein Hydrometeor ist, umso größer ist E . Nadeln haben hohe Elongationen, Regen und kugelförmige Meteore oder Dendriten haben Elongationen nahe 1.

Krümmung R : $R = \frac{4A}{\pi (\max(W,H))^2}$

Die Krümmung beschreibt, wie gut der Hydrometeor einen ihn umgebenden Kreis ausfüllt. Nadeln und Dendriten haben eine kleine Krümmung, Regen und Kügelchen haben eine Krümmung von etwa 1.

Formfaktor S : $S = \frac{4\pi A}{P^2}$

Der Formfaktor setzt die Fläche eines Partikels in Relation zu seinem Umfang. Ein ideal kreisförmiger Partikel hat den Formfaktor 1. Je niedriger S ist, desto komplexer ist die Oberfläche des Hydrometeors. Flocken oder Dendriten haben einen kleinen Formfaktor, der Formfaktor von Regen oder kugelförmigen Eiskristallen ist nahe 1.

Aus jeweils beiden Kamerabildern des 2DVD lassen sich weitere Parameter ableiten:

Die **Maximale Dimension D** (mm) ist der maximale Wert von Breite oder Höhe, der von beiden Kameras gesehen wird.

Das **Volumen V** (mm³) eines Hydrometeors berechnet sich wie folgt: Jeder Linienscan zerlegt den Hydrometeor in Scheiben. Das Volumen jeder Scheibe ist definiert über die Fläche einer Ellipse mit der Länge der schattierten Linie in jeder Kamera und der ihrer Höhe. Die Summe dieser Volumina ergibt V .

Der **Äquivalentdurchmesser D_{eqd}** (mm) ist der Durchmesser eines Kreises mit identischem Volumen wie das des Hydrometeors.

Die **vertikale Fallgeschwindigkeit $v(D)$** (m s⁻¹) ist die exakte Distanz der Lage des Hydrometeors (x,y) in der sensitiven Zone des 2DVD geteilt durch das Zeitintervall zwischen der ersten Detektion in Kamera A zum ersten Erreichen der Kamera B.

Das 2DVD wurde mit Hilfe von Stahlkugeln und Styroporschneeflocken auf diese Parameterbestimmung hin kalibriert. Die Ergebnisse der Validierung sind in Bernauer et al. (2015a) beschrieben.

Zur Charakterisierung der Niederschlagsereignisse dienten weiterhin meteorologische Standardparameter, die am Schneefernerhaus und am Zugspitz-Gipfel vom Deutschen Wetterdienst (DWD) gemessen und den Wissenschaftlern zur Verfügung gestellt werden.

2.2.3.3 Klassifizierung der Niederschlagsereignisse

Die Klassifizierung der Niederschlagsereignisse war notwendig für die Berechnung der Auswascheffizienzen von aerosolgebundenen Stoffen aus der Atmosphäre in Abhängigkeit der Niederschlagsart. Um auszuschließen, dass Aerosole aus verschiedenen Luftmassen für die Berechnung herangezogen wurden und große Konzentrationsunterschiede verursachen, wurden schon im Voraus bestimmte Niederschlagsereignisse mit sich stark ändernden klimatischen Bedingungen aus der Auswertung ausgeschlossen. Die Bedingungen für stabile meteorologische Bedingungen sind (übernommen aus Kyrö et al. (2009), Nešpor et al. (2000) und ähnlich denen in Laakso et al. (2003) und Paramonov et al. (2011)):

- Temperaturunterschiede müssen im Bereich von $\pm 3^{\circ}\text{C}$ liegen,
- Änderungen der relativen Luftfeuchte dürfen nicht größer sein als $\pm 5\%$,
- Windgeschwindigkeitsänderungen von mehr als $\pm 3\text{ m s}^{-1}$ führen zum Ausschluss, ebenso absolute Windgeschwindigkeiten von $> 5\text{ m s}^{-1}$,
- Luftdruckunterschiede von mehr als $\pm 5\text{ hPa}$ werden nicht akzeptiert,
- Windrichtungsänderungen sollten kleiner als 50° sein.

Nach Anwendung dieser Kriterien wurden alle stabilen Ereignisse mit einer Dauer von 2 h und mindestens $0,2\text{ mm h}^{-1}$ Niederschlagsintensität zusammengetragen. Für diese 2 h-Ereignisse wurden die meteorologischen und Schneeparameter aus **Kap. 2.2.3.2** für jeweils 1 min-Intervalle berechnet und gemittelt.

Für die Bestimmung der Niederschlagsrate aus den mikroskopischen Parametern, die mit dem 2DVD gemessen wurden war es notwendig, die Wassermenge zu bestimmen, die in jeder Schneeflocke enthalten war. Dafür wurde die Schneedichte nach Brandes et al. (2007) bestimmt als Quotient aus Massezuwachs in einer bestimmten Zeitspanne und der Summe aller Schneeflockenvolumina gemessen mit dem 2DVD in der gleichen Zeit. Die Dichte der Flocken ist abhängig von ihrer Größe (Fabry und Szyrmer 1999, Heymsfield et al. 2004, Brandes et al. 2007) und wird ausgedrückt als $\delta s(D) = 0,178D^{0,922}$ (Brandes et al. 2007). Die Dichte hängt außerdem vom Bereifungsgrad der Flocken ab. Durch Messung des Flockenvolumens und simultan der Masse des Schnees kann der dominierende Grad der Bereifung abgeleitet werden. Für die Ableitung des Äquivalent-Wassergehalts der Flocken einerseits und des Bereifungsgrads andererseits wurde eine Niederschlagswaage (Ott Pluvio²) unterhalb des sensitiven Bereichs des Distrometers installiert. Sie misst den Anstieg der Masse, verursacht durch ein bestimmtes Volumen an Schnee, der durch das 2DVD fällt.

Die Klassifizierung der Schneeereignisse erfolgte auf Basis der Fallgeschwindigkeit und der Oberflächenstruktur der Hydrometeore, hauptsächlich bestimmt über den Bereifungsgrad und die Kristallform.

Bereifungsgrad

Vor-Ort-Observationen zeigten klar drei verschiedene Klassen von Bereifung: leicht, moderat und stark mit jeweils $< 25\%$, $\sim 50\%$ und $\geq 100\%$ Bereifung bzw. der Beobachtung von nur wenigen Reiftröpfchen, der Bedeckung der halben oder gesamten Oberfläche der Kristalle (Barthazy und Schefold 2006).

Ein Parameter der den Bereifungsgrad in 2DVD-Messungen reflektiert ist die vertikale Fallgeschwindigkeit. Unbereifte und leicht bereifte Kristalle haben keine erhöhten Fallgeschwindigkeiten bei zunehmender Größe, weil der Reibungswiderstand den Massezuwachs dominiert. Bereifung erzeugt eine glattere Oberfläche, senkt den Reibungswiderstand und erhöht die Masse. Der Fit-Parameter β , der den Bereifungsgrad reflektiert, ergibt sich aus dem Größen-Geschwindigkeits-Verhältnis $v(D)$, das einem Gesetz

$$v(D) = \alpha D^\beta$$

folgt, mit α und β abhängig von der Oberflächenstruktur der Hydrometeore (Locatelli und Hobbs 1974, Barthazy und Schefold 2006). α und β ergeben sich aus der Fit-Methode der kleinsten Quadrate an obige Gleichung in entsprechender Größen-Geschwindigkeits-Verteilung. Ein kleines β heißt große Krümmung und kleine Geschwindigkeit, auch für große Hydrometeore. Ein großes β bedeutet schwache Krümmung und ein Anstieg der Fallgeschwindigkeit mit der Größe. Beispiele und Belege für die Bestimmung des Bereifungsgrads sind in Bernauer et al. (2015b) publiziert.

Kristallart

Die beobachteten Schneeereignisse wurden in drei Klassen des dominierenden Kristalltyps eingeordnet: komplexe Kristalle c als unregelmäßige Kristalle oder Aggregate von Einzelkristallen, kugelförmige Kristalle p, z.B. Eiskörner, Graupel oder Griesel mit meist starker Bereifung und Einzelkristalle s wie Plättchen, Nadeln oder Dendriten. Diese drei Klassen reflektieren natürlich nicht das gesamte natürliche Spektrum, allerdings repräsentieren sie die limitierten Möglichkeiten der Unterscheidung in den Bilderpaaren, die vom 2D-Video-Distrometer ausgegeben werden. Je nachdem wie die Hydrometeore zur Kamera orientiert sind, sind im Schattenbild des 2DVD längliche oder runde Formen erkennbar. Zudem ist die Auflösung der Kameras limitiert, um filigrane Strukturen verlässlich zu erkennen. Daher fand eine Beschränkung auf diese drei groben Klassen statt. Es war möglich, eine Unterscheidung anhand der Schneeparameter Krümmung und Formfaktor in den 2DVD-Bildern vorzunehmen (**Abb. 2.2.4**). Einzelkristalle sind eher gestreckt und haben eine geringe Krümmung. Kugelförmige Kristalle haben eine regelmäßige Form und

hauptsächlich konvexe Strukturen und komplexe Kristalle sind unregelmäßig und haben mittlere Krümmungen und Formfaktoren.

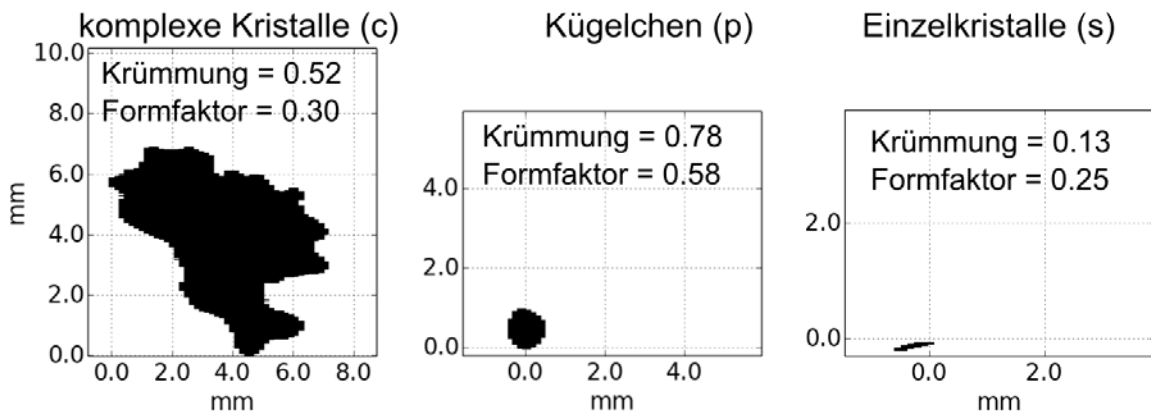


Abb. 2.2.4: Beispiele von 2D-Video-Distrometer-Bildern der drei definierten Kristallarten.

Klassifizierungsmethode

Die berechneten 1 min-Intervalle aus den gesamten Schneereignissen wurden dann in Bezug auf ihren dominierenden Bereifungsgrad und Kristalltyp klassifiziert auf Grundlage des fit-Parameters β und der mittleren Werte für Krümmung R und Formfaktor S , die zusammen in ein Diagramm geplottet wurden (Abb. 2.2.5). Werden Fit-Parameter gegen R und S aufgetragen, so erscheinen Ereignisse mit unterschiedlicher Bereifung und Kristallart in unterschiedlichen Bereichen des Diagramms. Ein Datensatz von 33 auf der Zugspitze in situ beobachteten Schneereignissen diente als Grundlage für die Diagramme. Andererseits wurde jedes 2DVD-Bild der Ereignisse im gleichen Zeitintervall von zwei unabhängigen Beobachtern visuell ausgewertet, um die dominierende Kristallart zu bestimmen. Beide Auswertungen stimmten gut überein (vgl. Bernauer et al. 2015b).

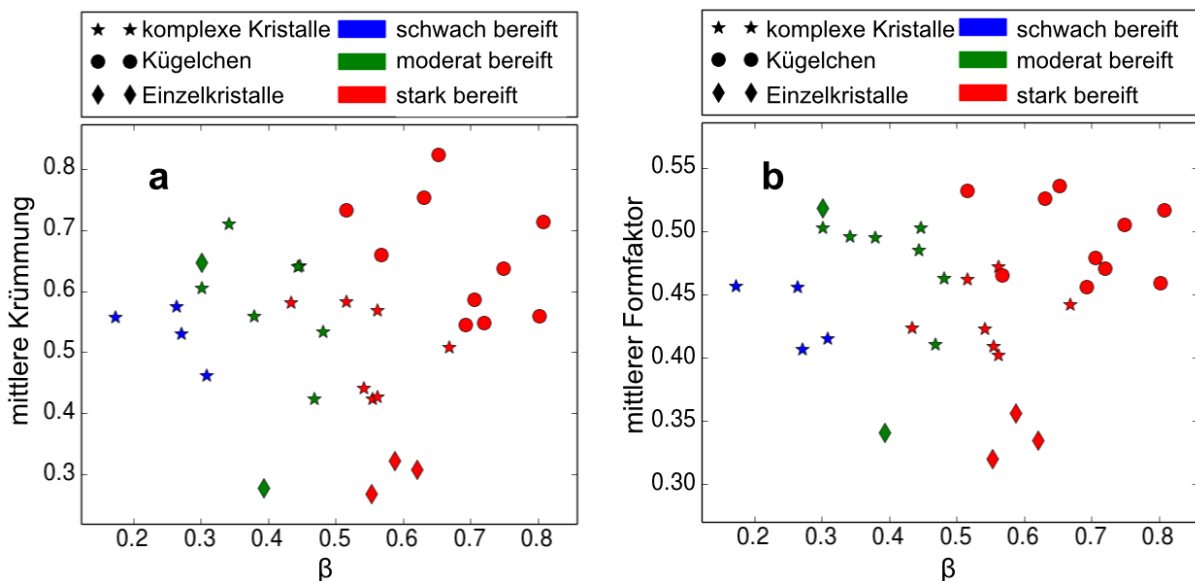


Abb. 2.2.5: (a) β -R- und (b) β -S-Plot für 33 präzise beobachtete und manuell klassifizierte 1 min-Intervalle von Schneereignissen. Verschiedene Bereifungsgrade und Kristallarten erscheinen in unterschiedlichen Regionen des Diagramms.

Aus den Diagrammen (**Abb. 2.2.5**) lassen sich Regionen definieren, über deren Begrenzungen sich die Klassifizierung der Ereignisse ableiten lässt (**Tab. 2.2.1**).

Tab. 2.2.1: Randbedingungen für die Schneereignis-Klassifizierung.

Kristallart (t)	Einzelkristalle (s)	Kugelförmige Kristalle (p)	Komplexe Kristalle (c)
	$S \leq 0,35$ $R \leq 0,4$	$S \geq 0,35$ $R \geq 0,4$ $\beta > 0,5$	$0,35 < S < 0,45$ $0,4 < R < 0,55$
Bereifung (r)	leicht (1) $\beta < 0,3$	moderat (2) $0,3 \leq \beta < 0,5$	stark (3) $\beta > 0,5$

Diese Begrenzungen wurden in die Programmierung des neuen Schnee-Algorithmus für die Auswerte-Software des 2DVD integriert. Als Output liefert sie ein Datenpaar für Kristallart und Bereifung (t, r) für jedes Minutenintervall des Niederschlagsereignisses, z.B. c3 für ein Ereignis mit komplexen Kristallen, die stark bereift sind. Intervalle, in denen mindestens ein Parameter außerhalb dieser Begrenzungen liegt, werden als „nicht klassifiziert“ ausgegeben.

2.2.3.4 Sammlung von Gesamtaerosol-Proben

Um die Aktivitäts-Auswasch-Effizienz zu bestimmen, ist die Aktivitätsbestimmung der aerosolgebundenen Radionuklide in der bodennahen Luft heranzuziehen. In dieser Studie wurden die Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide Be-7, Pb-210 und Cs-137 in Gesamtaerosolproben gemessen, die mit einem Hochvolumen-Sammler (ASS1000, Fischer PTI, 700-1100 m³ h⁻¹ Luftvolumenstrom) auf der Messterrasse im 4. OG des Schneefernerhauses gesammelt wurden. Die Probenahme erfolgte weitgehend parallel zu der Sammlung der Schneeproben in Abständen von mindestens 2 h nach Einsetzen des Schneefallereignisses. Vorab wurde nach Möglichkeit mindestens eine langzeitigere Probe der atmosphärischen Aerosole vor Einsetzen des Niederschlagsereignisses gesammelt. Die Aerosole wurden auf einem Polypropylenfilter (Typ G-3) deponiert und nach der Beprobung in eine gammaspektrometrisch messbare und kalibrierte Geometrie gepresst.

2.2.3.5 Partikelgrößenfraktionierte Sammlung von Aerosolen

Zur Berechnung der partikelgrößenabhängigen Scavenging-Koeffizienten wurde die Größenverteilung der Aerosolpartikel in aufeinanderfolgenden Zeitintervallen mit einem Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS, Modell 3080, TSI) in Kombination mit einem Condensation Particle Counter (CPC, Modell 3772, TSI) gemessen. Die Daten wurden vom Umweltbundesamt (Dr. Ludwig Ries) zur Verfügung gestellt, die das Gerät kontinuierlich für Messungen im Rahmen des Monitoring-Programms „Global Atmosphere Watch“ der UN-WMO (United Nations –World Meteorological Organization) an der Umweltforschungstation

Schneefernerhaus (UFS) im Einsatz haben. Die Messwerte wurden über 10-12 min gemittelt für ein Größenspektrum von 10-510 nm in 36 Größenklassen unterteilt, bestimmt. Das Gesamtaerosol-Einlasssystem wurde auf 20°C beheizt.

Zusätzlich kam ein elektrischer Niederdruck-Impaktor (Electric Low Pressure Impactor ELPI+, Dekati) zum Einsatz, der in 14 Größenstufen Aerosole im Bereich von 6 nm bis 10 µm aerodynamischen Durchmessers erfasst und auch sammelt. Die minimal detektierbare Partikelkonzentration variiert von 0,1 cm³ für die größte Größenklasse bis 100 cm³ für die kleinste. Der Volumenstrom beträgt 0,6 m³ h⁻¹.

Die partikelgrößenfraktionierten Aerosolproben wurden für jede Größenklasse separat auf runden Aluminiumfolien mit 25 mm Durchmesser abgeschieden. Etwa alle drei bis vier Wochen wurden die Aluminiumfolien gewechselt, um genügend Material zur gammastrahlungsmessung zu erhalten. Zur Probenaufbereitung wurden die Aluminiumfolien gefaltet und einzeln in PE-Röhrchen gegeben zur direkten Messung am Bohrloch-Detektor (s. **Kap. 2.2.3.8**).

Beide Aerosolspektrometer (SMPS und ELPI) waren an ein Einlasssystem für die Gesamtluft angeschlossen, das auf 20°C beheizt wurde, um Zufrieren bzw. Kondensationsprozesse zu vermeiden.

2.2.3.6 Berechnung von Scavenging-Koeffizienten

Um zuverlässig sagen zu können, dass sich die Aerosolpartikelkonzentration auf Grund von Luftmassenwechseln während eines Niederschlagsereignisses nicht geändert hat, wurden in **Kap. 2.2.3.3** bereits einige Randbedingungen für meteorologische Parameter festgelegt. Diese Einschränkungen zusammen mit der Tatsache, dass bei der Sammlung der Aerosole die Ansaugleitung auf 20°C beheizt wird, stellen für die Berechnung zuverlässiger Scavenging-Koeffizienten auch sicher, dass die Effekte wie Nukleation, Koagulation, Kondensation und hygroskopisches Wachstum eine untergeordnete Rolle spielen.

Weiterhin wird davon ausgegangen, dass Washout der dominierende Prozess für die Aerosolpartikelabnahme während eines Niederschlagsereignisses ist. Nichtsdestotrotz wurden auch ansteigende Aerosolpartikelkonzentrationen in den SMPS-Messungen festgestellt, die vermutlich v.a. auf Unsicherheiten der instrumentellen Analytik zurückzuführen sind. Aber auch störende Prozesse wie Nukleation und Koagulation können nicht ganz ausgeschlossen werden. Daher werden die Daten eliminiert, die einen Anstieg der Aerosolkonzentration während eines Messintervalls innerhalb der Unsicherheitsgrenzen der Messung zeigen, das zur Berechnung der Scavenging-Koeffizienten herangezogen wird (**Abb. 2.2.6**). Die relative instrumentelle Unsicherheit der Messung der Aerosolpartikelkonzentration wird im Monitoring-Programm „Global Atmosphere Watch“ (WMO/GAW 2003) mit 5 % angegeben.

Zur Berechnung der Scavenging-Koeffizienten wird die Methode des linearen Fit angewendet (s. **Kap. 2.2.2.1**). Für jede Aerosolgrößenklasse wird ein Fit nach der Methode der kleinsten Quadrate an den Logarithmus von drei aufeinanderfolgenden Messungen der

Aerosolkonzentrationen innerhalb eines Niederschlagsereignisses gelegt. Abhängig vom Messintervall des SMPS von 10-12 min repräsentiert so jeder Scavenging-Koeffizient einen Mittelwert über 34-40 min. Das mittlere Intervall wurde so kurz wie möglich gehalten, damit eine Mittelung über Änderungen im dominierenden Schneekristalltyp möglichst vermieden wird.

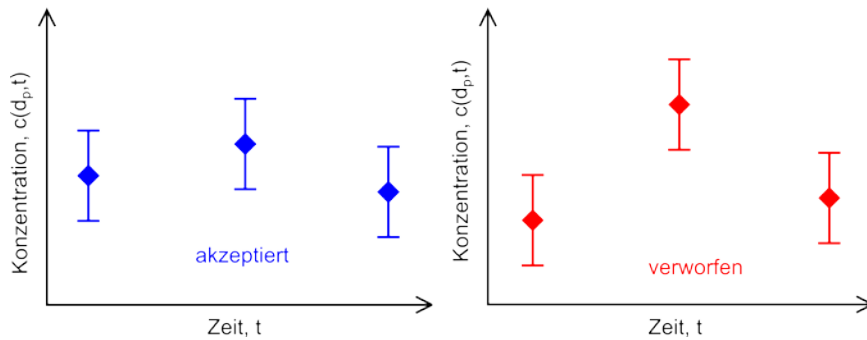


Abb. 2.2.6: Schematische Darstellung der Datenauswahl zur Berechnung der Scavenging-Koeffizienten.

2.2.3.7 Tracerexperimente mit Schneesäulen im Labor

Für die Tracerexperimente im Labor wurde der auf der Zugspitze gesammelte und in der Tiefkühltruhe bei -20°C gelagerte Schnee zerkleinert und über ein Textilsieb von 8 mm Maschenweite in mit 8 M HNO_3 vorkonditionierte 40 cm breite und höhenvariable Schneesäulen eingefüllt. Je nach Art der Experimente betrug die Füllhöhe 10-40 cm. In unterschiedlichen Abständen wurden Widerstandsthermometer (Pt100 DIN IEC 751 (EN 60751) Klasse A, TMH GmbH) zur kontinuierlichen Temperatureaufnahme in die Schneeschicht eingebracht. Nach vollständiger Füllung wurde die Schneedichte bestimmt und eine radioaktive Tracerlösung mit Sr-85 und Cs-134, basierend auf geschmolzenem Schnee als Trägerlösung, in bekannter Konzentration mit Hilfe einer 8fach-Pipette gleichmäßig in 1 cm Abständen ($5 \mu\text{l}$ pro Depositionspunkt) aufgetragen. Die vorbereitenden Arbeiten fanden in einer geöffneten Gefriertruhe (Kühltemperatur -30°C) statt (**Abb. 2.2.7**).

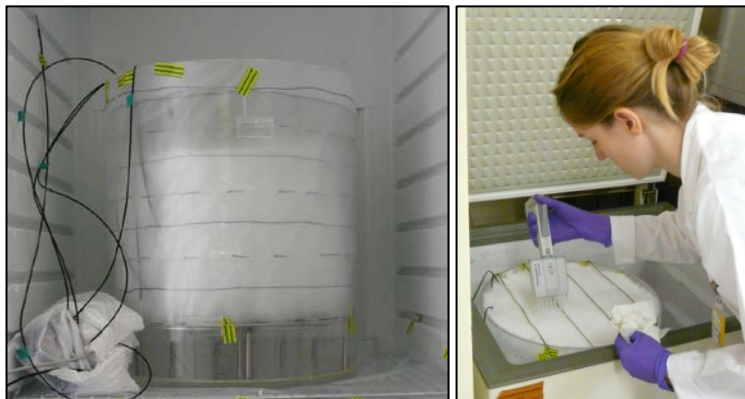


Abb. 2.2.7: Tracerexperimente mit Schneesäulen. Links: gefüllte Schneesäule im Kühlschrank. Rechts: Auftrag der radioaktiven Tracerlösung mittels Pipette.

Die eigentlichen Experimente wurden in einem modifizierten Gefrierschrank (Liebherr GGv 5860 V2a) bei unterschiedlicher Temperatureinstellung je nach Art des Experimentes durchgeführt. Während der Versuche wurde das abtropfende Schmelzwasser in Bechergläsern aufgefangen, wenn notwendig weiter eingedampft und in Schraubdeckeldosen zur gammaspektrometrischen Messung überführt. Die Probenahme erfolgte je nach Experiment in unterschiedlichen Zeitabständen (s. **Kap. 2.2.4.6**). Am Ende der Versuche wurden die verbleibenden Schneekerne mit Plastikschaufeln schichtweise zerlegt, geschmolzen, ebenfalls eingedampft und zur Messung vorbereitet.

Weitere Details zur Experimentdurchführung können in der Masterarbeit Tafelmeier (2013) nachgelesen werden.

2.2.3.8 Aktivitätsbestimmung mittels Gammaspektrometrie

Die Aktivitätsbestimmung der Radionuklide erfolgte gammaspektrometrisch mittels Reinst-Germanium-Detektoren. Ein Detektor mit einer zusätzlichen Abschirmung gegen kosmische Hintergrundstrahlung stand am Schneefernerhaus zur Verfügung. Es handelte sich um einen Low-Level-Detektor (Canberra BE5030, 43 % rel. Effizienz, Auflösung 1,78 keV (FWHM) bei 1,33 MeV) mit über der Bleiburg angebrachten Plastiksintillatoren, die in der Lage sind, die Counts der Untergrundstrahlung um den Faktor 2,2 gegenüber einer Messung ohne aktive Abschirmung herabsetzen. Dieser Detektor wurde durchgehend für die Aktivitätsbestimmung der Schneeproben verwendet.

Da die Gammaspektrometrie aber auch zur Bestimmung von Be-7, Pb-210, Cs-137, Sr-85 und Cs-134 in weiteren Schneeproben sowie den Gesamt- und partikelfraktionierten Aerosolproben zum Einsatz kam und die Messzeiten auf Grund der geringen Aktivitäten in den Proben entsprechend lang sind, wurden weitere 14 Detektoren im Labor des Helmholtz Zentrums in Neuherberg eingesetzt. Darunter waren auch zwei Bohrlochdetektoren für die Bestimmung der Aktivitäten in den partikelgrößenfraktionierten Aerosolproben. Alle Detektoren unterschiedlichen Typs und Polarität waren Reinst-Germanium-Detektoren mit relativen Effizienzen zwischen 26,3 % und 90,5 % und Energieauflösungen (FWHM) von 1,75 bis 2,03 keV für Co-60 (1332,5 keV). Es wurde ein Messbereich von 20-2000 keV ausgewertet, in dem die Vollenergie-Peaks der Nuklide von Interesse liegen (Be-7 bei 477,6 keV, Pb-210 bei 46,5 keV, Cs-137 bei 661,7 keV, Sr-85 bei 514,0 keV und Cs-134 bei 563,2 keV, 569,2 keV, 604,7 keV, 795,8 keV und 801,9 keV). Die Ergebnisse der Aktivitätsbestimmungen von Pb-210 wurden korrigiert für die Selbstabsorption und den Untergrund. Auf die Summationskorrektur, die für Cs-134 auf Grund seines komplexen Zerfallsschemas durchzuführen wäre, wurde verzichtet, da lediglich die relativen Anteile der gemessenen Aktivitäten von Interesse waren.

Effizienzkalibrationen wurden mit einem Multinuklidstandard (Eckert & Ziegler, QCYA58EK, zusätzlich angereichert mit einem Pb-210-Referenzstandard) ausgeführt. Zusätzlich erfolgten monatliche Richtigkeit-, Reproduzierbarkeit- und Energiekalibrierungsmessungen mit Punktquellen von Am-241, Cs-137 und Co-60 und die Teilnahme an internationalen Ringversuchen zur Qualitätssicherung.

2.2.4 Ergebnisse und Diskussion

2.2.4.1 Deposition von Radionukliden mit Schnee

Für die Bestimmung der nassen Deposition von Be-7, Pb-210 und Cs-137 mit Schnee auf der Zugspitze wurden insgesamt 44 Schneeproben zwischen Januar 2012 und Juni 2014 gesammelt und gammaspektrometrisch gemessen. Die ermittelten Aktivitäten sind in **Tab. 2.2.2** dargestellt. Bei den angegebenen Unsicherheiten handelt es sich um die Unsicherheiten der berechneten Standardpeakfläche im Gammaspektrum.

Tab. 2.2.2: Deponierte Aktivitäten von Be-7, Pb-210 und Cs-137 in Schneeproben auf der Zugspitze.

	Be-7 (Bq m ⁻²)	Be-7 (Bq l ⁻¹)	Pb-210 (Bq m ⁻²)	Pb-210 (Bq l ⁻¹)	Cs-137 (Bq m ⁻²)	Cs-137 (Bq l ⁻¹)
Anzahl n	34	38	35	39	22	24
Minimum	4,47E-02 ± 1,92E-02	2,57E-02 ± 1,10E-02	3,96E-02 ± 1,50E-02	4,66E-03 ± 4,54E-03	6,65E-04 ± 3,18E-04	5,21E-06 ± 1,86E-06
Maximum	2,54E+01 ± 1,25E+01	1,11E+01 ± 5,47E+00	2,58E+00 ± 1,25E+00	2,33E+00 ± 3,68E-01	3,55E-02 ± 8,56E-03	1,57E-02 ± 6,21E-03
Mittelwert	3,84E+00 ± 6,19E-01	8,90E-01 ± 1,90E-01	5,34E-01 ± 1,72E-01	1,96E-01 ± 4,64E-02	1,35E-02 ± 3,29E-03	3,01E-03 ± 6,94E-04
Standard- abweichung	4,94E+00 ± 2,12E+00	1,84E+00 ± 8,80E-01	6,12E-01 ± 3,60E-01	4,14E-01 ± 1,05E-01	9,46E-03 ± 2,25E-03	3,89E-03 ± 1,21E-03

Im Vergleich liegt Be-7 > Pb-210 > Cs-137 in den Proben vor. Die Anzahl der Messwerte reicht noch nicht aus, um mögliche jahreszeitliche Schwankungen der Aktivitäten der Einzelnuklide feststellen zu können. Dennoch zeigt die Darstellung in **Abb. 2.2.8** jahreszeitliche Unterschiede für Pb-210 und Cs-137, die jeweils in den winterlichen Schneeproben gegenüber den Frühjahrs- und Herbstproben angereichert sind.

In Abhängigkeit der Niederschlagsintensität zeigt sich, dass die Aktivitäten aller drei Radionuklide mit zunehmender Schneefallrate abnehmen (**Abb. 2.2.9**). Das ist v.a. damit zu erklären, dass die hohen Intensitäten meist erst während eines Schneefallereignisses einsetzen, nachdem der erste Schneefall bereits die Hauptmenge der Radioaktivität aus der Atmosphäre ausgewaschen hat.

Dies konnte mit der Sammlung von sequentiellen Proben eines langzeitigen Schneefallereignisses belegt werden. In 2014 wurden vier Dauerschneefall-Ereignisse in Abständen von jeweils 2 h beprobt, die die Abnahme der Radionuklidkonzentrationen in der Luft durch Washout belegt haben. Ein Beispiel für ein solches Ereignis vom 14.01.2014 zeigt **Abb. 2.2.10**. Die Schneefallrate war relativ konstant ab ca. 11:00 MEZ bis nach Mitternacht. Die höchsten Aktivitätskonzentrationen von Be-7, Pb-210 und Cs-137 waren bereits in der ersten Probe nach einsetzendem Schneefall enthalten und nahmen mit der Zeit ab, weil durch

den Dauerschneefall die atmosphärischen Konzentrationen nach und nach ausgewaschen wurden und keine Nachlieferung erfolgte.

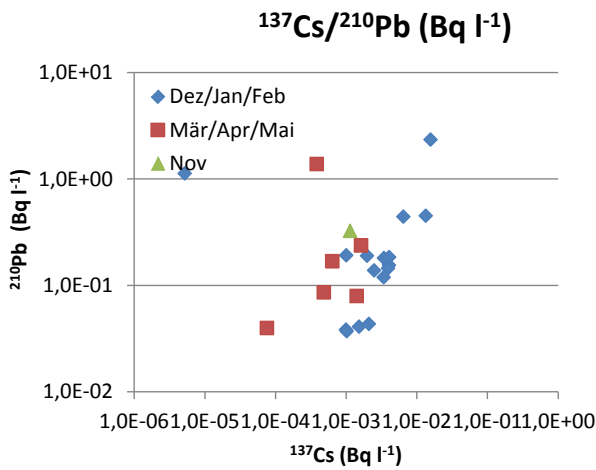
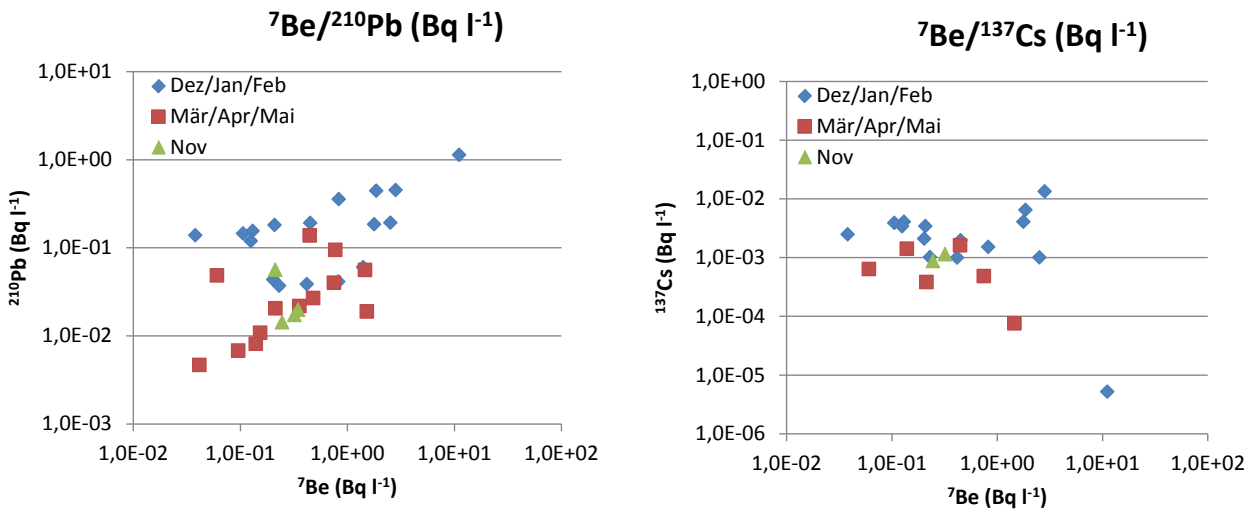


Abb. 2.2.8: Aktivitäten von Be-7, Pb-210 und Cs-137 in den Schnee-Depositionsproben auf der Zugspitze von 01/2012 bis 06/2014.

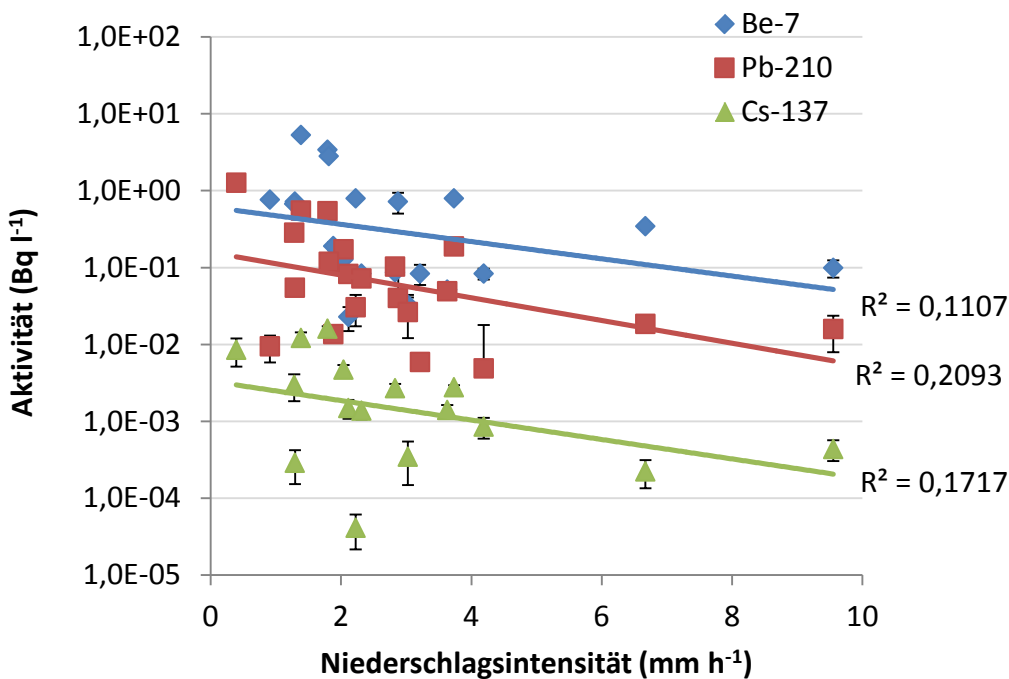


Abb. 2.2.9: Abhängigkeit der Aktivitätskonzentration in den Schnee-Depositionsproben von der Niederschlagsintensität.

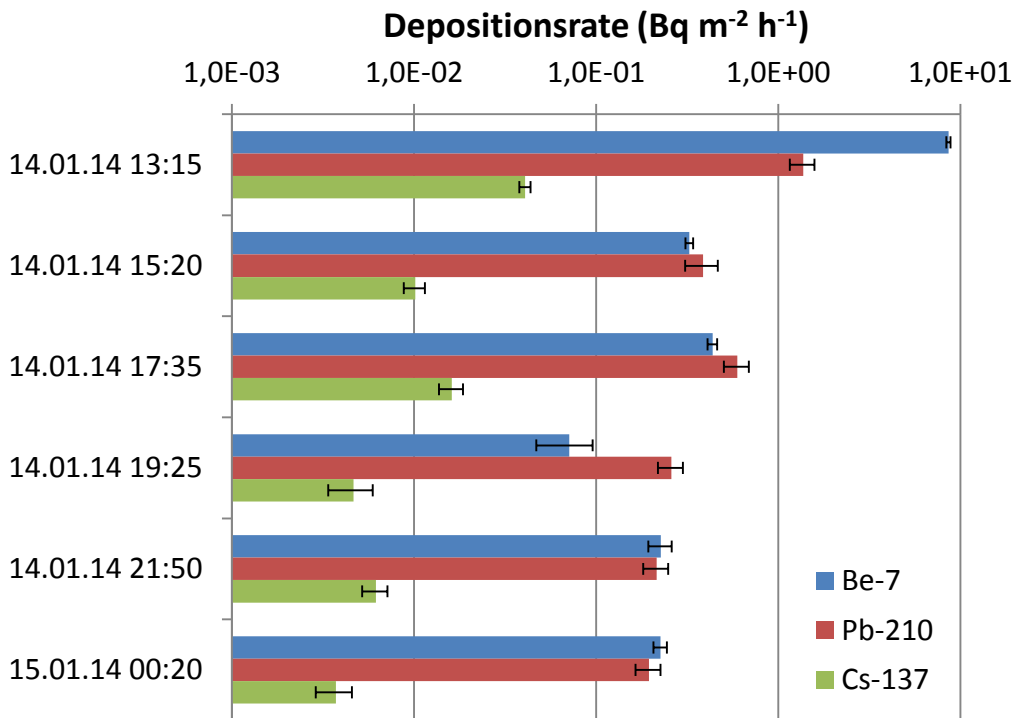


Abb. 2.2.10: Depositionsraten von Be-7, Pb-210 und Cs-137 in sequentiellen Schneeproben eines Dauerschneefallereignisses vom 14.01.2014 auf der Zugspitze.

2.2.4.2 Niederschlagscharakterisierung und –klassifizierung

Die Niederschlagscharakterisierung erfolgte auf der Datenbasis des 2D-Video-Distrometers (2DVD). Das Gerät wurde mittels Stahlkugeln und Styropor-Flockenmodellen kalibriert und Korrekturfaktoren für Tropfen- und Flockenparameter in den Auswertalgorithmus integriert, so dass die Funktionstüchtigkeit auch für den Einsatz bei der Auswertung von Schneeereignissen nun sichergestellt werden kann. Details dazu können den Arbeiten Bernauer (2015) und Bernauer et al. (2015a) entnommen werden.

Die Klassifizierungsmethode (s. **Kap. 2.2.3.3**) wurde für 33 Schneefallereignisse auf der Zugspitze validiert, elf Fälle für jede Kristallformklasse. Zwei unabhängige Beobachter haben die vom 2DVD produzierten Flockenbilder ausgewertet und subjektiv klassifiziert. Für komplexe Kristalle und Aggregate bestand bei acht Fällen eine Übereinstimmung mit der automatischen Klassifizierung. Für kugelförmige Kristalle wurde eine Übereinstimmung in zehn Fällen gefunden, bei Einzelkristallen in allen Fällen. Damit ergibt sich eine Gesamtunsicherheit von 12 % für eine falsche Klassifizierung.

Für drei reale Fälle wird beispielhaft im Folgenden das Ergebnis der automatischen Klassifizierung gezeigt: Am 14.03.2013 zwischen 17:21 und 21:21 UTC wurde der Schnee kontinuierlich als „kugelförmige Kristalle“ klassifiziert mit Ausnahme einer kurzen Periode um 20:00 UTC, die als „komplexe Kristalle“ eingestuft wurde (**Abb. 2.2.11**). Bis 19:51 UTC betrug die Niederschlagsrate weniger als 1 mm h⁻¹ und stieg bis zum Ende des Ereignisses auf

2,5 mm h⁻¹ an. Die mittlere Krümmung der Partikel blieb zwischen 0,6 bis 0,8, was bereits auf eine erhöhte Anzahl an gerundeten Partikeln hindeutet. Die maximale Dimension lag unterhalb von 5 mm, im Mittel bei 1,5 mm. Die Temperaturen lagen bei etwa -20°C. Die mittlere Schneedichte wurde mit 0,05-0,4 g cm⁻³ bestimmt. Diese Werte stimmen mit den Charakteristika für kugelförmige Schneekristalle in Locatelli und Hobbs (1974) überein, was ein weiterer Beleg für die Verifikation der 2DVD-Ergebnisse ist.

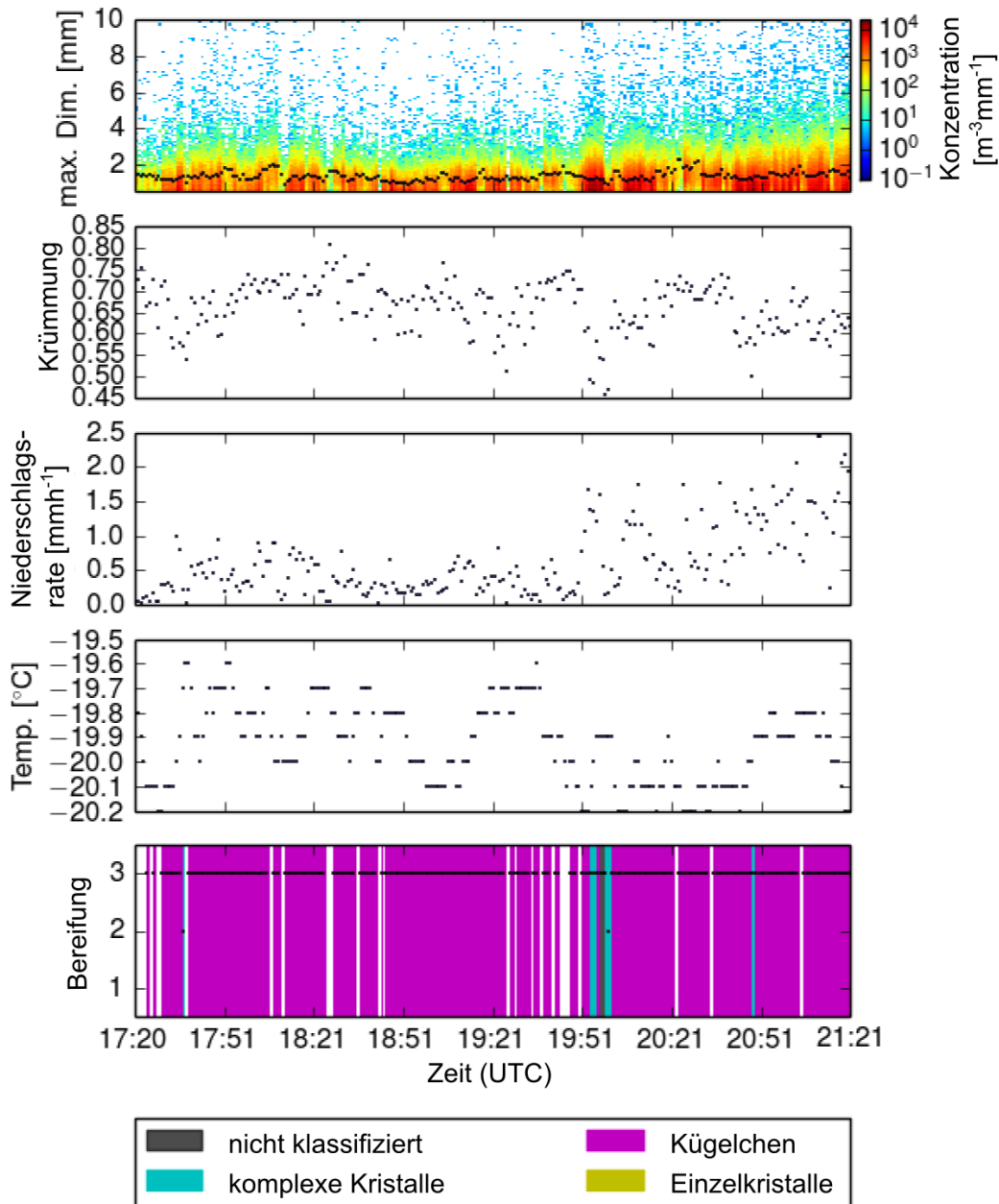


Abb. 2.2.11: Ereignischarakterisierung vom 14.03.2014, 17:21-21:21 UTC. Daten zur Temperatur wurden vom Deutschen Wetterdienst (DWD) zur Verfügung gestellt.

Am 25.03.2013 begann es zwischen 19:50 und 21:50 UTC mit einer ersten Schneefallperiode mit komplexen Kristallen, gefolgt von Einzelkristallen ab 19:57 bis 20:31 UTC (**Abb. 2.2.12**). Ab 20:32 bis 21:02 UTC ist die Situation instabiler, aber eine Überzahl an komplexen Kristallen wurde detektiert. Ab 21:03 UTC dominierten wieder Einzelkristalle. Die

Niederschlagsrate lag zwischen 0,5-2,5 mm h⁻¹. Der Bereifungsgrad variierte zwischen moderat und stark. Die Krümmung blieb unter einem Wert von 0,6, in der Phase mit den Einzelkristallen sogar unter 0,3. Perioden mit komplexen Kristallen gingen einher mit großen maximalen Dimensionen der Hydrometeore von im Mittel 4 mm, wohingegen die Einzelkristalle eher Größen von im Mittel 1,5 mm aufwiesen. Die Temperaturen erreichten ein Maximum von -6,2°C in einer Phase mit komplexen Kristallen im Schnee und ein Minimum von -8,0°C in einer Phase mit Einzelkristallen. Höhere Temperaturen führen in der Regel dazu, dass Kristalle eher zusammenkleben. Die mittlere Schneedichte wurde mit 0,02 g cm⁻³ bestimmt. Geringe Dichte und größere Kristallgrößen für komplexe Kristalle gegenüber Einzelkristallen sprechen ebenfalls für eine korrekte Klassifizierung.

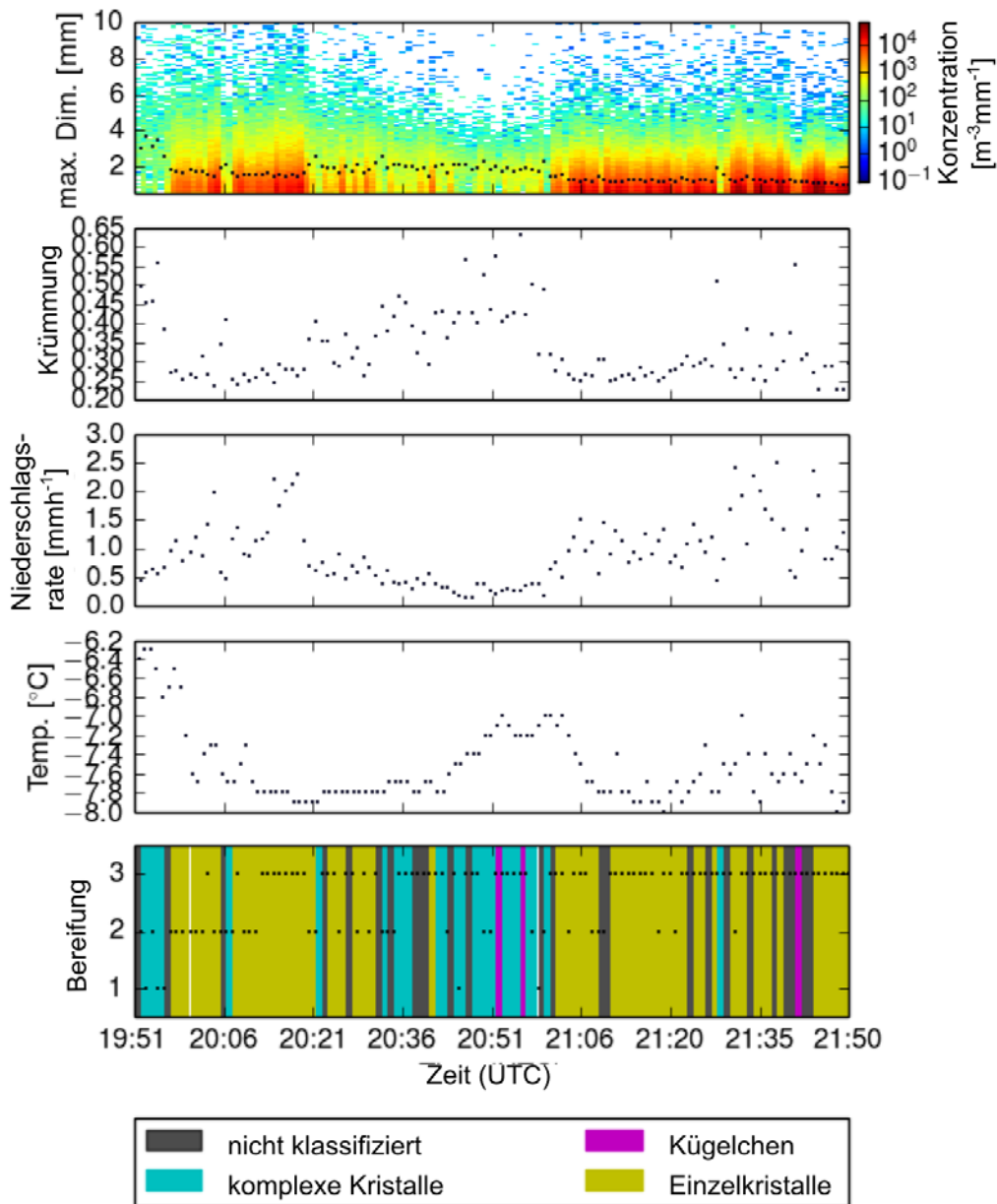


Abb. 2.2.12: Ereignischarakterisierung vom 25.03.2014, 19:50-21:50 UTC. Daten zur Temperatur wurden vom Deutschen Wetterdienst (DWD) zur Verfügung gestellt.

Eine sehr stabile Klassifikation wurde am 11.06.2013, 18:01-22:00 UTC beobachtet (**Abb. 2.2.13**). Das gesamte Ereignis wurde als „komplexe Kristalle“ klassifiziert. Die Niederschlagsintensität war moderat am Anfang und im Folgenden leicht. Der Bereifungsgrad war durchgehend leicht. Die Krümmung lag durchgängig bei etwa 0,6. Hin und wieder wurden Hydrometeore > 6 mm bei Temperaturen um die 0°C beobachtet. Die mittlere Dichte betrug $0,1 \text{ g cm}^{-3}$. Die Temperaturen sprechen eindeutig für das Vorhandensein von komplexen Kristallen und Aggregaten, die bei Temperaturen um den Gefrierpunkt zu Aggregaten zusammenwachsen und einen hohen Wasseranteil haben. Die hohe Dichte unterstreicht das Klassifizierungsergebnis.

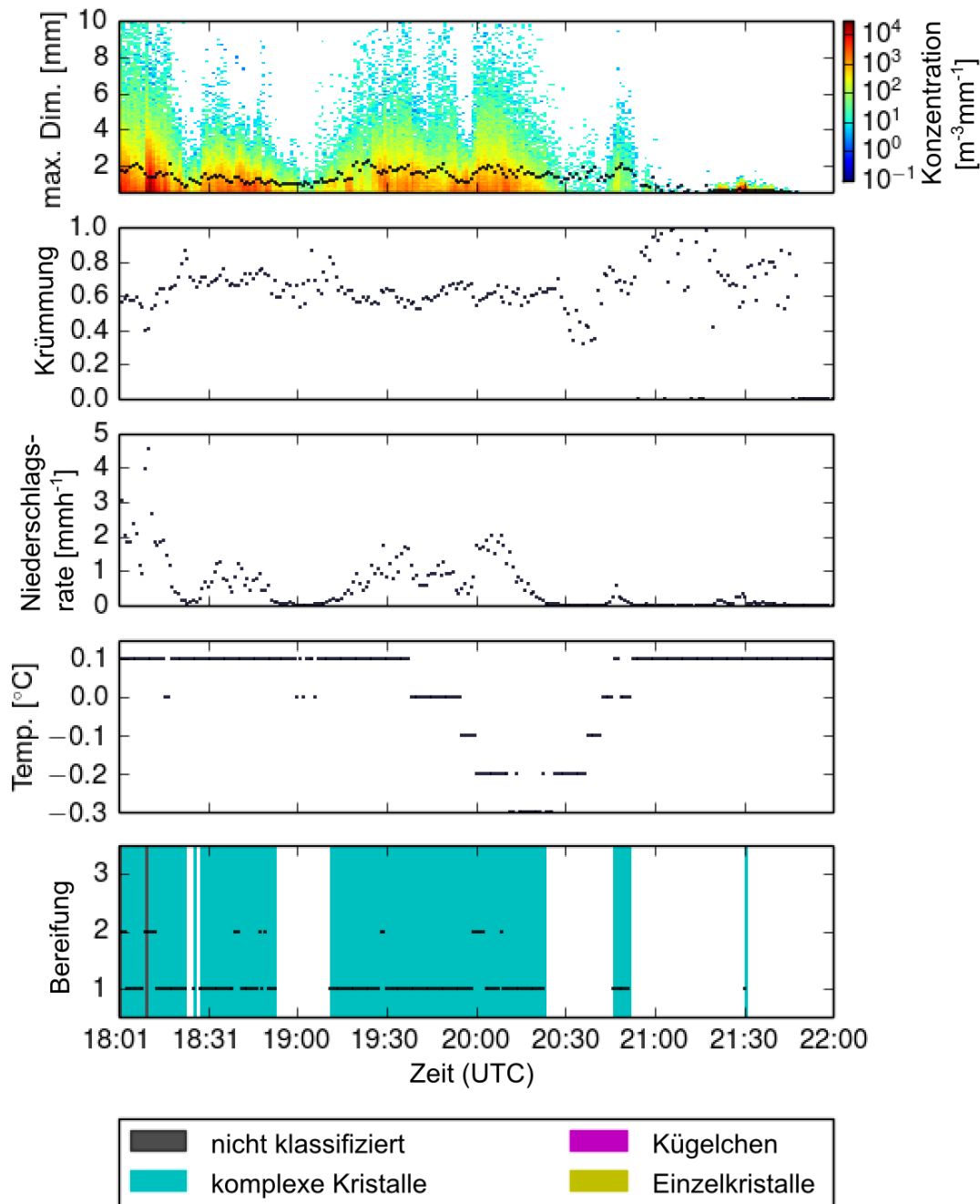


Abb. 2.2.13: Ereignischarakterisierung vom 11.06.2014, 18:01-22:00 UTC. Daten zur Temperatur wurden vom Deutschen Wetterdienst (DWD) zur Verfügung gestellt.

Die Tatsache, dass nur 29 von 468 Ereignissen insgesamt (6 %) als „nicht klassifizierbar“ aussortiert wurden, beweist, dass der Algorithmus für die meisten Fälle fester Niederschläge hervorragend einsetzbar ist.

Als Ergebnis der Klassifikation liegt letztlich ein umfangreicher Datensatz zur Parametrisierung der Washout-Koeffizienten vor. Aus 4800 h aufgezeichneten Niederschlags passierten 580 h (12 %) die Kriterien der meteorologischen Stabilitätskontrolle. Der verbleibende Datensatz besteht aus 25.670 min (74 %) Schnee-, 6.730 min (19 %) Schneeregen- und 2.280 min (7 %) Regenereignissen (**Abb. 2.2.14**). In 90 % der Fälle war die Niederschlagsintensität unter $2,0 \text{ mm h}^{-1}$. 49 % aller Schneefallereignisse hatten stark bereifte Kristalle vorzuweisen. Die dominierende Kristallart war zu 71 % komplexe Kristalle und Aggregate, 16 % kugelförmige Kristalle und 4 % Einzelkristalle.

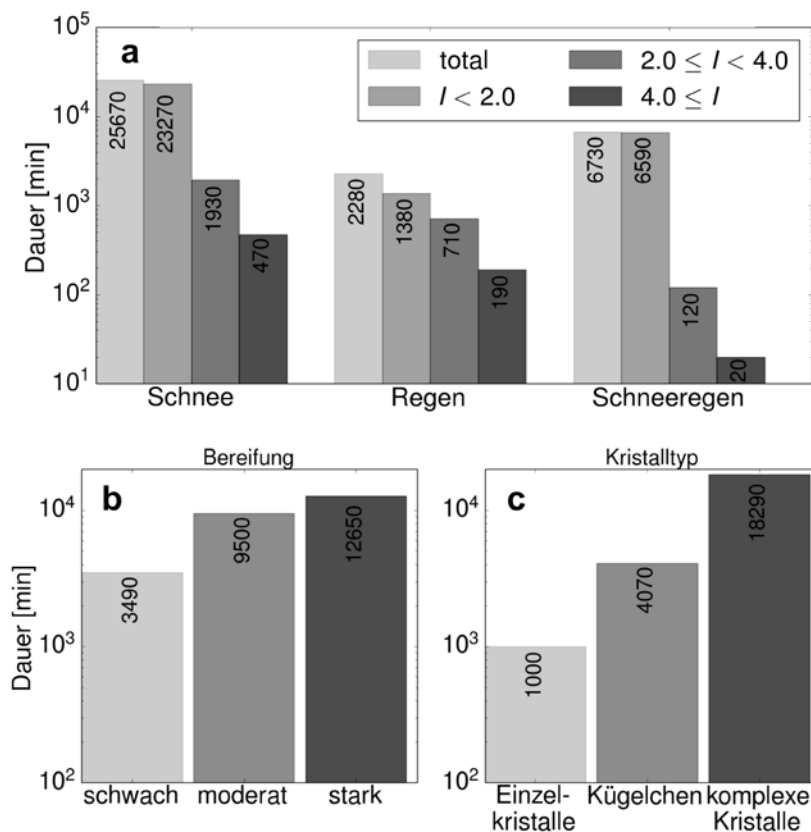


Abb. 2.2.14: Zusammenschau aller klassifizierten 1 min-Niederschlagsintervalle.

2.2.4.3 Scavenging-Koeffizienten und Parametrisierung

Für Perioden, in denen ausschließlich der Niederschlag für das Auswaschen der Aerosolpartikel aus der Atmosphäre verantwortlich ist, d.h. wenn über einen Zeitraum von 30 min eine stetige Abnahme der Aerosolkonzentrationen innerhalb der Unsicherheitsgrenzen der Messung zu verzeichnen war, wurden Scavenging- oder Washout-Koeffizienten berechnet. Für Schnee-, Schneeregen- und Regenereignisse getrennt sind die berechneten Koeffizienten in **Abb. 2.2.15** dargestellt.

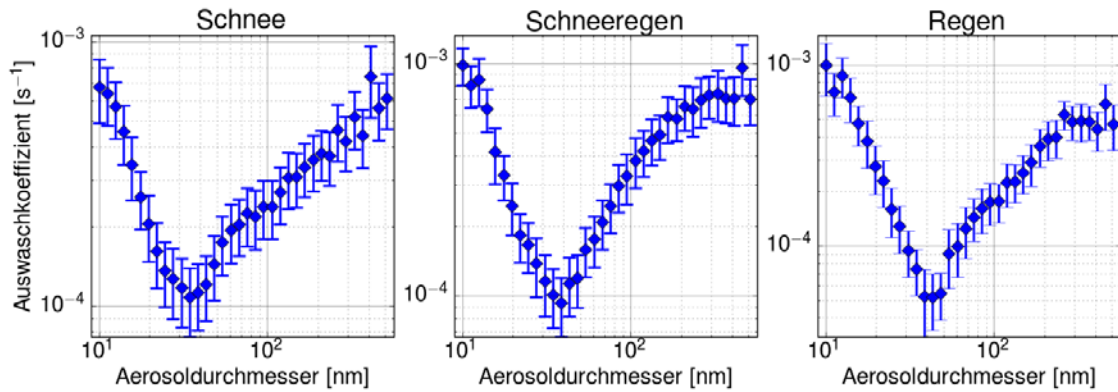


Abb. 2.2.15: Mittlere Scavenging-Koeffizienten für Schnee-, Schneeregen- und Regenereignisse. Die Fehlerbalken stehen für die mittleren Messunsicherheiten für jede einzelne Partikelgrößenklasse.

Für einen besseren Vergleich sind in **Abb. 2.2.16** alle Scavenging-Koeffizienten in ein Diagramm geplottet und logarithmisch dargestellt.

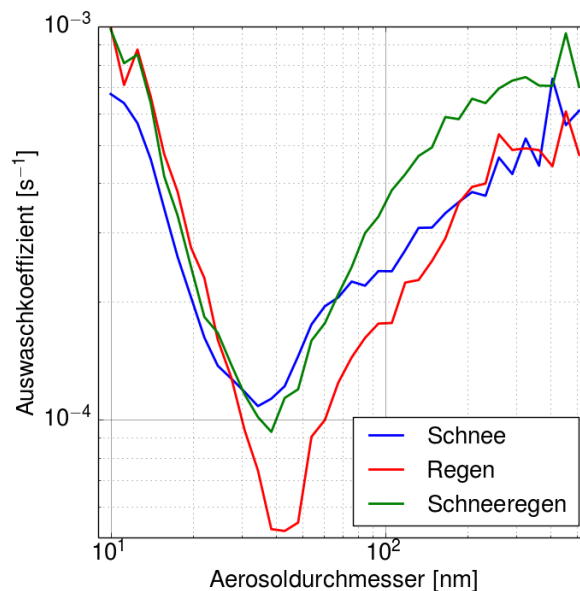


Abb. 2.2.16: Mittlere Scavenging-Koeffizienten für Schnee-, Schneeregen- und Regenereignisse. Unsicherheiten können der **Abb. 2.2.15** entnommen werden.

Die Scavenging-Koeffizienten zeigen eine klare Abhängigkeit vom Aerosolpartikeldurchmesser und variieren in der Größenordnung von $1-1,5$. Für Schneereignisse liegen sie zwischen $(1,0 \pm 0,3) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ und $(7,0 \pm 2,0) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ mit mittleren Werten über alle Partikelgrößen von $(3,3 \pm 0,8) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Die höchsten Koeffizienten wurden für die kleinsten Partikelgrößen um die 10 nm und für die größten Größen zwischen 400-500 nm berechnet. Zwischen 30-50 nm liegt eine Zone mit den geringsten Scavenging-Koeffizienten, die sogenannte „Greenfield Gap“. Der höchste mittlere Scavenging-Koeffizient insgesamt wurde für Schneeregenereignisse mit $(4,5 \pm 1,0) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ bestimmt. Sie variieren zwischen $(9,0 \pm 2,0) \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (30-50 nm) und $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Regenereignisse haben mittlere Washout-Koeffizienten von $(3,2 \pm 0,8) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Ein tiefes Minimum mit $(5,0 \pm 1,0) \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ kann für

Partikelgrößen von 40-50 nm beobachtet werden. Maxima von bis zu $(1,0 \pm 0,3) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ liegen für die kleinsten Partikeldurchmesser von 10 nm vor.

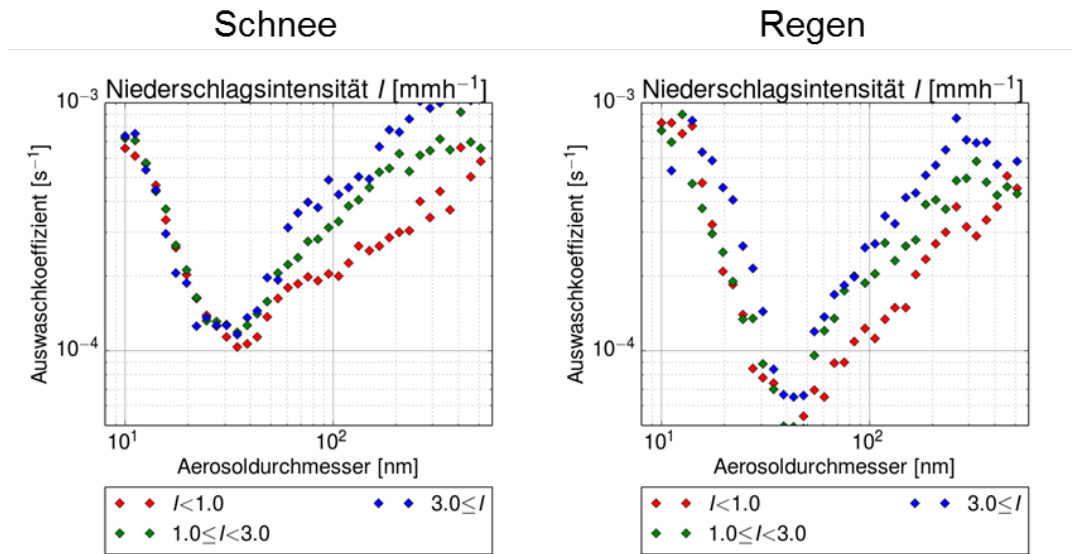


Abb. 2.2.17: Mittlere Scavenging-Koeffizienten für Schnee- und Regenereignisse in Abhängigkeit der Niederschlagsintensität.

Die berechneten mittleren Scavenging-Koeffizienten für Schnee liegen im Bereich der Werte, die auch in der Literatur zu finden sind (Graedel und Franey 1974, Schumann et al. 1988, Volken und Schumann 1993, Chate und Pranesha 2004). In den Studien von Laakso et al. (2003), Kyrö et al. (2009) und Paramonov et al. (2011) in Finnland wurden kleinere Scavenging-Koeffizienten mit $2,0 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ bis $5,0 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ berechnet. Der Unterschied in diesen Arbeiten ist, dass alle Messwerte zur Analyse herangezogen wurden, auch solche, die einen Anstieg der atmosphärischen Partikelkonzentration zu Grunde legen.

Für alle drei Niederschlagsarten kann ein klares Minimum der Scavenging-Koeffizienten bei einer Partikelgröße zwischen 30-60 nm festgestellt werden. Die Greenfield Gap wird in der Literatur mit Werten zwischen 10 nm bis $2 \mu\text{m}$ angegeben (zusammenfassend in Sportisse 2007). Nach Pruppacher und Klett (1978) können phoretische Effekte bei relativ hohen Luftfeuchten dafür verantwortlich sein, dass sich die Greenfield Gap zu niedrigeren Partikelgrößen hin verschiebt. Die Messungen innerhalb dieses Projektes wurden ausschließlich bei relativen Luftfeuchten über 70 % durchgeführt. Auch die Tatsache, dass auf der Zugspitze unbekannte Prozesse verantwortlich sind für die Produktion von Partikeln bis $0,15 \mu\text{m}$ (Nukleations- und Aitken-Partikel), kann zu einer effizienten Reproduktion von Teilchen zwischen 30-60 nm führen und damit den Auswaschprozess in dieser Größenklasse weniger effizient werden lassen.

Die größten Unterschiede im Scavenging-Verhalten zwischen den drei Hydrometeoren können für Aerosolpartikel $> 30 \text{ nm}$ beobachtet werden. Das Minimum der Scavenging-Koeffizienten ist am ausgeprägtesten für Regen. Schnee hat durch seine größere Oberfläche eine höhere Effizienz für Diffusionsprozesse und daher ein weniger deutliches Minimum als Regen und in der Größenklasse 30-60 nm die höchsten Scavenging-Koeffizienten. Für größere Partikel sind die Schneeregenereignisse am effizientesten. Das kann zurückgeführt

werden auf die komplexe Oberfläche zusammen mit hohen Fallgeschwindigkeiten und hohen Wassergehalten der Flocken. Die Prozesse der Interzeption und Impaktion werden besonders effizient und sind bedeutend für die Auswaschung größerer Aerosolpartikel, u.a. der Radionuklide.

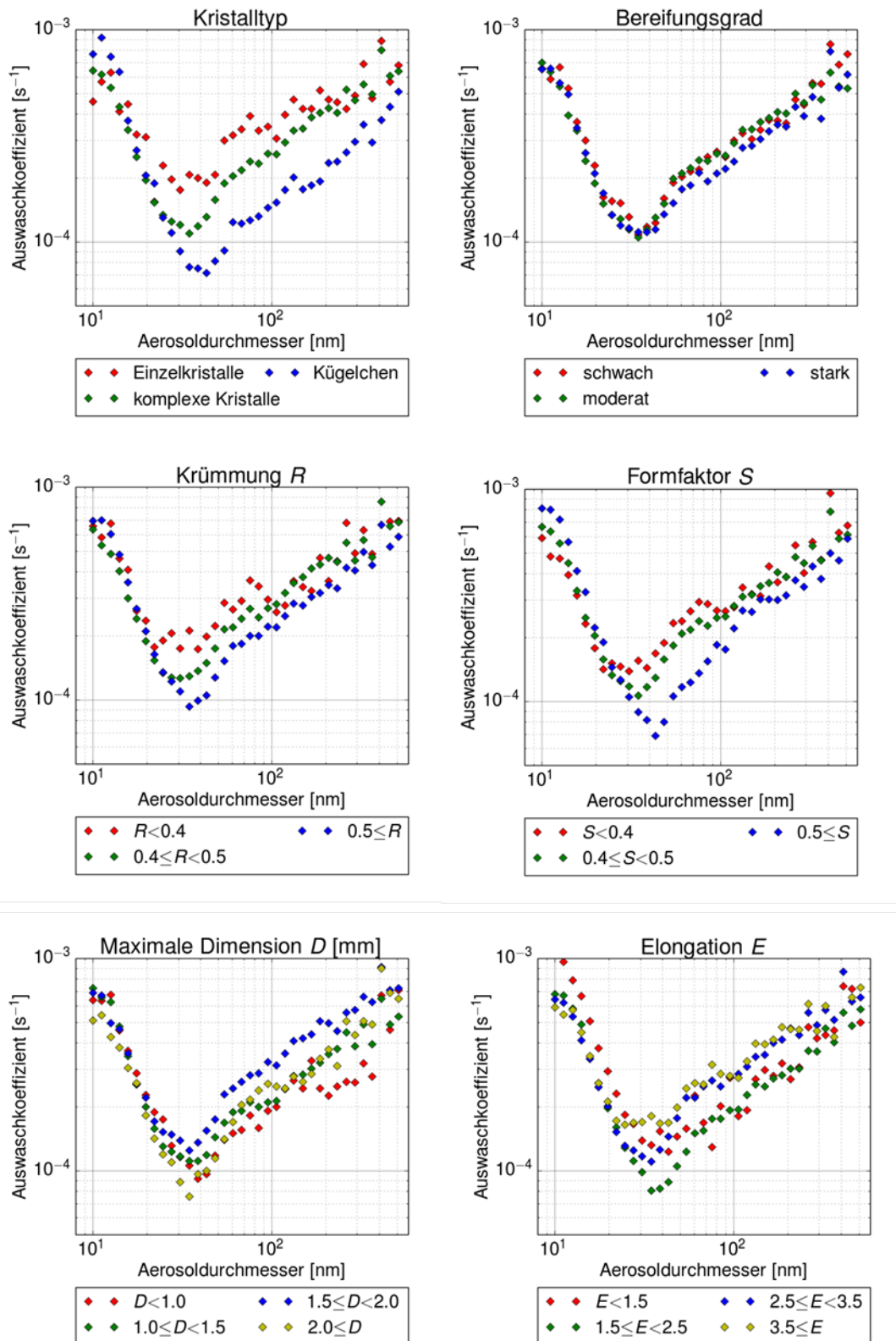


Abb. 2.2.18: Mittlere Scavenging-Koeffizienten für Schneereignisse in Abhängigkeit des Kristalltyps, des Bereifungsgrads und verschiedener mikrophysikalischer Parameter.

Neben der Partikelgrößenabhängigkeit besteht auch eine starke Abhängigkeit der Scavenging-Koeffizienten von der Niederschlagsintensität I (**Abb. 2.2.17**). Sowohl bei Regen als auch bei Schnee geht mit einem Anstieg der Niederschlagsrate auch eine Erhöhung der Scavenging-Koeffizienten einher. Diese Tendenz ist bei Regen stärker ausgeprägt für Partikelgrößen > 60 nm und < 30 nm. Eine Parametrisierung mit dem Potenzgesetz $\Lambda = A \left(\frac{I}{I_0}\right)^B$ (**Kap. 2.2.2.1**) mit den berechneten mittleren Scavenging-Koeffizienten für die Intervalle $I < 2,0$ mm h⁻¹, $2,0$ mm h⁻¹ $< I < 4,0$ mm h⁻¹ und $4,0$ mm h⁻¹ $< I$ ergibt für $A = (2,9 \pm 0,005) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹ und für $B = 0,25 \pm 0,001$.

Eine klare Tendenz zu höheren Washout-Koeffizienten mit höheren Schneefallraten zeigt sich erst bei einer Rate von $> 3-4$ mm h⁻¹ und für Aerosolpartikel > 50 nm. Eine Parametrisierung mit dem Potenzgesetz mit den berechneten mittleren Scavenging-Koeffizienten für die Intervalle $I < 2,0$ mm h⁻¹, $2,0$ mm h⁻¹ $< I < 4,0$ mm h⁻¹, $4,0$ mm h⁻¹ $< I < 6,0$ mm h⁻¹, $6,0$ mm h⁻¹ $< I < 8,0$ mm h⁻¹ und $8,0$ mm h⁻¹ $< I$ ergibt für $A = (3,4 \pm 0,4) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹ und für $B = 0,17 \pm 0,02$.

Weitere Abhängigkeiten des Washout-Koeffizienten von mikrophysikalischen Parametern, von der Kristallart und vom Bereifungsgrad zeigt **Abb. 2.2.18**. Der Bereifungsgrad scheint einen geringen Einfluss zu haben. Die mittleren Scavenging-Koeffizienten für alle Bereifungsgrade über alle Partikelgrößen variieren nur zwischen $(3,5 \pm 0,9) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹ und $(3,1 \pm 0,8) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹. Bei der Kristallart sind Einzelkristallereignisse am effizientesten im Auswaschprozess, insbesondere für Partikelgrößen > 30 nm. Das ist damit zu erklären, dass Einzelkristalle stark beeinflusst sind durch kleinskalige atmosphärische Turbulenzen und dass ihre Aufenthaltszeit in der Atmosphäre länger ist als die der größeren und schwereren Kristalle auf Grund langsamerer Fallgeschwindigkeiten. In der gleichen Größenklasse haben komplexe Kristalle höhere Scavenging-Koeffizienten als kugelförmige Kristalle. Kügelchen haben gut definierte Trajektorien in der Atmosphäre, fallen schnell und haben eine kleine Oberfläche für die Aufnahme von Aerosolpartikeln. Für kleinste Aerosolpartikel um die 10 nm haben kugelförmige Kristalle eine hohe Auswasch-Effizienz. Mittlere Koeffizienten über alle Größenklassen liegen bei $(4,0 \pm 0,9) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹ für Einzelkristalle, bei $(3,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹ für komplexe Kristalle und bei $(2,6 \pm 0,7) \cdot 10^{-4}$ s⁻¹ für kugelförmige.

Für die weiteren mikrophysikalischen Parameter kann zusammenfassend festgestellt werden:

- Elongation: höhere Scavenging-Koeffizienten für Flocken mit größerer Elongation für Partikelgrößen 30-100 nm.
- Formfaktor: höhere Scavenging-Koeffizienten für Flocken mit kleineren Formfaktoren für Partikelgrößen 30-100 nm. Kleine Aerosolpartikel < 10 nm mit größeren Formfaktoren haben höhere Λ .
- Krümmung: höhere Scavenging-Koeffizienten für Flocken mit kleineren Krümmungsgraden für Partikelgrößen 30-100 nm. Für Aerosolpartikel < 30 nm ist keine klare Tendenz sichtbar.
- Maximale Dimension: kein klarer Trend über alle Partikelgrößenfraktionen sichtbar.

Werden die Scavenging-Koeffizienten als Funktion der mikrophysikalischen Parameter analysiert, so zeigt sich, dass eine komplexe Oberfläche der Hydrometeore den stärksten Einfluss hat. D.h. gestreckte Hydrometeore haben größere Koeffizienten in der gleichen Partikelgrößenfraktion als kugeligere Formen.

2.2.4.4 Aktivitäts-Scavenging-Koeffizienten

Für drei Niederschlagsereignisse wurde die Abnahme der atmosphärischen Aktivitätskonzentrationen direkt über die Messung von Aerosolfiltern nachgewiesen (s. **Kap. 2.2.3.4**). Die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Aktivitätsbestimmung sind in **Abb. 2.2.19** dargestellt. Mit Beginn des Niederschlags kann eine deutliche Abnahme der Aktivitäten von Be-7 festgestellt werden wie auch bei den Schnee-Depositionsproben in **Kap. 2.2.4.1**. Eine Abnahme der Pb-210-Konzentrationen zeigt sich nur bei zwei der Ereignisse. Die Konzentrationen von Cs-137 sind im Allgemeinen sehr gering und nur knapp oberhalb der Nachweisgrenzen der Gammaskpektrometrie.

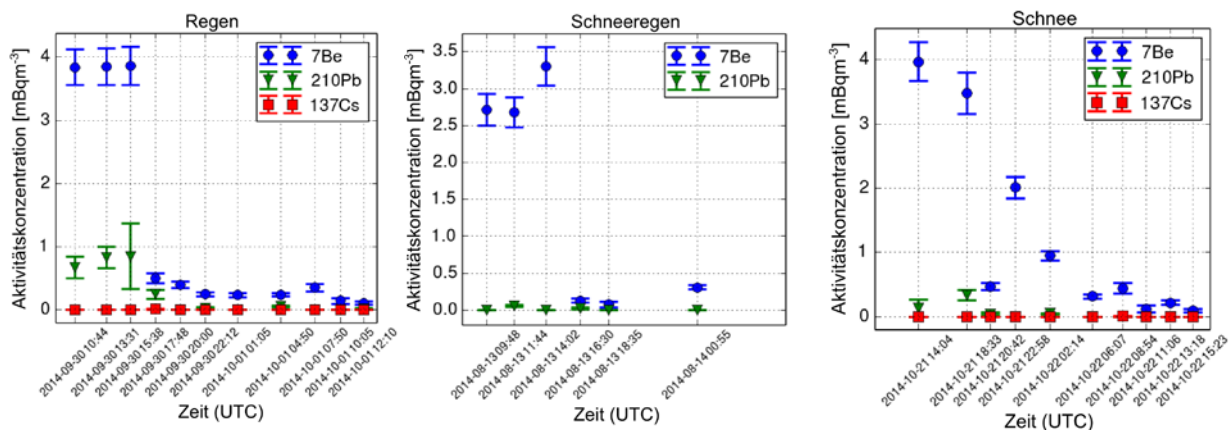


Abb. 2.2.19: Aktivitätskonzentrationen von Be-7, Pb-210 und Cs-137 in Gesamtaerosolproben von drei Niederschlagsereignissen vom 30.09.-01.10.2014, 13.-14.08.2014 und 21.-22.10.2014.

Werden die Scavenging-Koeffizienten für zwei aufeinanderfolgende Messungen der Aktivitätskonzentration nach Einsetzen des Niederschlags berechnet, so ergeben sich für das Regenereignis im September 2014 Werte von $(2,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ für Be-7 und $(1,6 \pm 0,8) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ für Pb-210. Für das Schneeereignis im Oktober 2014 beträgt der Aktivitäts-Scavenging-Koeffizient $(1,0 \pm 0,1) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ für Be-7. Die Washout-Koeffizienten berechnet aus den SMPS-Messungen für den gleichen Zeitraum für Partikelgrößen von $0,32\text{-}0,46 \text{ }\mu\text{m}$ liegen mit $(7,2 \pm 1,1) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ etwas höher. Die Unterschiede sind damit zu begründen, dass der Hochvolumen-Aerosolsammler keinen klar definierten cut-off für den Einlass von Aerosolen hat. D.h. dass auch kleine Hydrometeore und Wolkentropfchen auf den Filtern deponiert werden, auf dem eigentlich nur Aerosole gesammelt werden sollten. Dadurch wird der berechnete Scavenging-Koeffizient kleiner. Der gleiche Effekt kann beim Ereignis im September 2014 beobachtet werden, bei dem die SMPS-Messungen einen geringfügig höheren Koeffizienten von $(4,6 \pm 1,1) \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ hervorgebracht haben im Vergleich zu den

Aktivitäts-Scavenging-Koeffizienten. Insgesamt liegen die Werte aber in vergleichbaren Größenordnungen.

2.2.4.5 Radionuklide in partikelgrößenfraktionierten Aerosolen

In der freien Atmosphäre sind die Radionuklide Be-7, Pb-210 und Cs-137 meist an Aerosolpartikel bestimmter Größe gebunden. Für die Untersuchung der Auswasch-Effizienz sind solche Aktivitäts-Größen-Beziehungen von besonderer Bedeutung. Die Aerosole wurden in Perioden von 3-4 Wochen in 14 Größenklassen mit dem Kaskadenimpaktor gesammelt (s. **Kap. 2.2.3.5**). Für zwei Proben aus dem Sommer 2013 (10.07.-02.08.2013) und dem Winter 2014 (13.02.-11.03.2014) sind die Ergebnisse der gammaspektrometrischen Aktivitätsbestimmung in **Abb. 2.2.20** zusammengestellt. Für beide Probenahmeperioden kann ein Maximum der Be-7-Konzentration für einen Partikelgrößenbereich von 300-500 nm festgestellt werden. Im gleichen Bereich liegen auch schwache Maxima der Aktivitätskonzentrationen von Pb-210 und Cs-137.

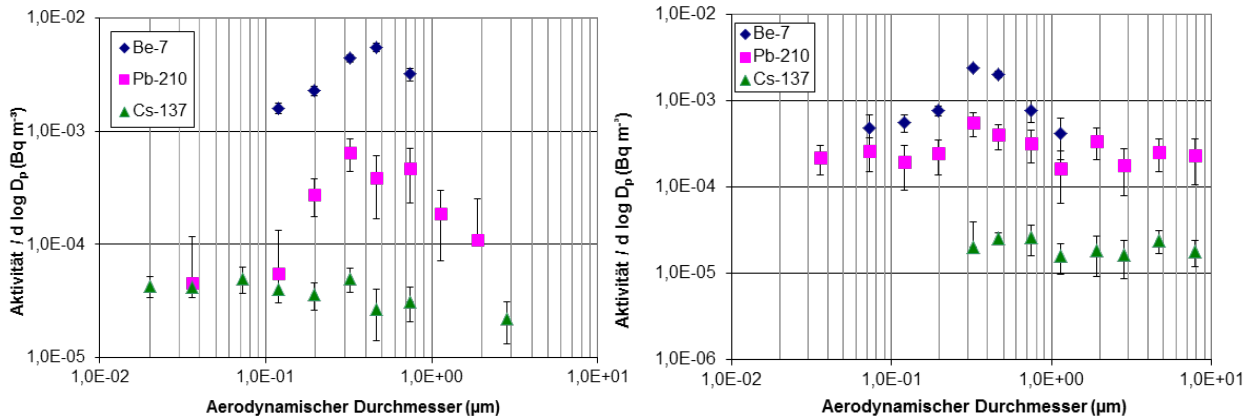


Abb. 2.2.20: Aktivitäts-Größen-Verteilung für Be-7, Pb-210 und Cs-137 in den Probenahmeperioden 10.07.-02.08.2013 (links) und 13.02.-11.03.2014 (rechts). Die Fehlerbalken markieren die Unsicherheiten der gammaspektrometrischen Aktivitätsbestimmung.

Die Werte liegen in einem ähnlichen Bereich, der auch in der Literatur zu finden ist. Winkler et al. (1998) bestimmten Mediane der Durchmesser von Be-7-Partikeln in bodennaher Luft in Süddeutschland von 0,44-0,74 µm und für Pb-210 von 0,28-0,74 µm. Ioannidou und Paatero (2014) fanden 30 % des Be-7 in einem Aerosol der Größe 0,39-0,69 µm.

In Stohl et al. (2012) wird für die Modellierung der nassen Deposition von Cs-137 ein Aerosolpartikeldurchmesser von 0,4 µm angegeben. Die Parametrisierung der Scavenging-Koeffizienten für unterschiedliche Niederschlagsintensitäten und -arten mit Hilfe des Potenzgesetzes $\Lambda = A \left(\frac{l}{l_0}\right)^B$ (**Kap. 2.2.2.1**) ergibt für die Fit-Parameter A und B in **Tab. 2.2.3** dargestellte Werte, die so auch Eingang finden können in die Radionuklidausbreitungsmodelle in Entscheidungssystemen für nukleare Notfälle.

Tab. 2.2.3: Fit-Parameter A und B für das Potenzgesetz $\Lambda = A \left(\frac{1}{I_0}\right)^B$ für unterschiedliche Arten von Niederschlagsereignissen.

Niederschlagsart	A x 10 ⁻⁴ (s ⁻¹)	B
Schnee, Einzelkristalle	4,70 ± 0,40	0,49 ± 0,05
Schnee, komplexe Kristalle	3,22 ± 0,01	0,45 ± 0,01
Schnee, kugelförmige Kristalle	2,80 ± 0,70	0,70 ± 0,08
Schneeregen	4,55 ± 0,01	0,39 ± 0,01
Regen	2,41 ± 0,03	1,38 ± 0,01

2.2.4.6 Verhalten, Migration und Freisetzung von Radionukliden in der Schneedecke

In Laborexperimenten unter definierten Bedingungen wurden Säulenexperimente mit Schnee durchgeführt, um das Verhalten, die Migration und Freisetzung von Radionukliden in der Schneedecke zu studieren.

Zwei Diffusionsexperimente wurden bei einer dauerhaften Umgebungstemperatur von -10°C durchgeführt. Die Säulen wurden bis zu einer Höhe von 10 cm mit Schnee gefüllt, der zuvor bei -20°C gelagert wurde, in beiden Experimenten aber auf Grund unterschiedlicher Körnigkeit und Wassergehalts eine unterschiedliche Dichte aufwies. Schneeschmelze fand während der Experimentdauer von je 13 d nicht statt. Am Ende des Experiments wurden die Schneekerne in 2 cm mächtige Schichten zerteilt, geschmolzen und die Aktivitäten der aufgetragenen Radionuklide Cs-134 und Sr-85 gammaspektrometrisch bestimmt. Das Ergebnis für einen der beiden Versuche ist in **Abb. 2.2.21** dargestellt, deckt sich aber mit dem Resultat des zweiten Experimentes.

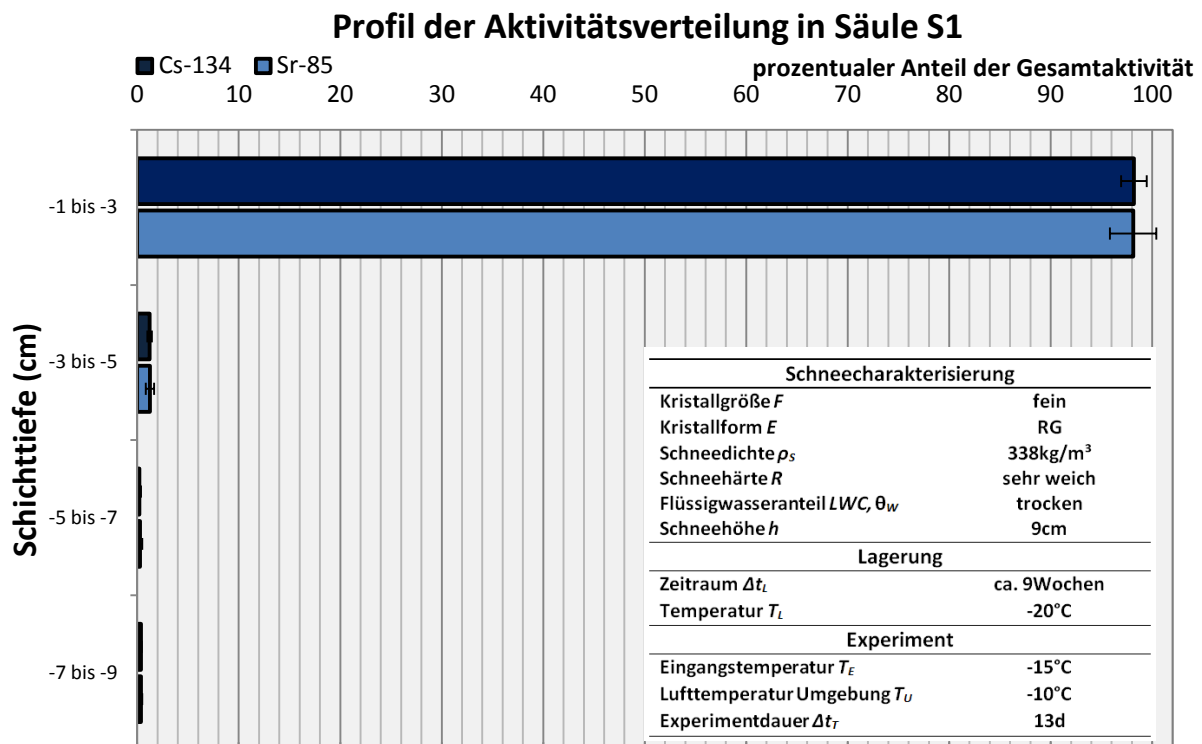


Abb. 2.2.21: Aktivitätstiefenverteilung von Cs-134 und Sr-85 in Säule S1 (Diffusionsexperiment). Die Tabellen geben Auskunft über die vorgegebenen Parameter.

In beiden Schneesäulen sind nach 13 Tagen mehr als 95% der Radionuklide in den obersten 2 cm mächtigen Schneeschicht verblieben. Eine Migration war maximal bis in die nächst tiefere Schicht festzustellen, wobei zu berücksichtigen ist, dass die Trennung der Schneeschichten aufgrund der vereisten Flächen nicht immer exakt möglich war, sodass auch ein geringer Eintrag von Radionukliden in unterliegende Schichten über Kreuzkontamination möglich ist.

In fünf weiteren Tau-Experimenten, die bei Umgebungstemperaturen von 4°C durchgeführt wurden, wurde das Migrationsverhalten in der Tauphase untersucht. Die Unterschiede in den Experimenten lagen in unterschiedlichen Schneestrukturen und -dichten, u.a. hervorgerufen durch verschiedene Lagertemperaturen im Vorfeld sowie in der Experimentdauer. Die Säulen wurden bis 30 cm Höhe befüllt und für 2-6 h 4°C ausgesetzt, danach beprobt und die Radioaktivität in den 5 cm mächtigen Schichten bestimmt. Schmelzwasser ist bei keinem der Versuche innerhalb der Experimentierzeit abgeflossen. **Abb. 2.2.22** und **Abb. 2.2.24** zeigen exemplarisch die Ergebnisse von zwei Tau-Experimenten.

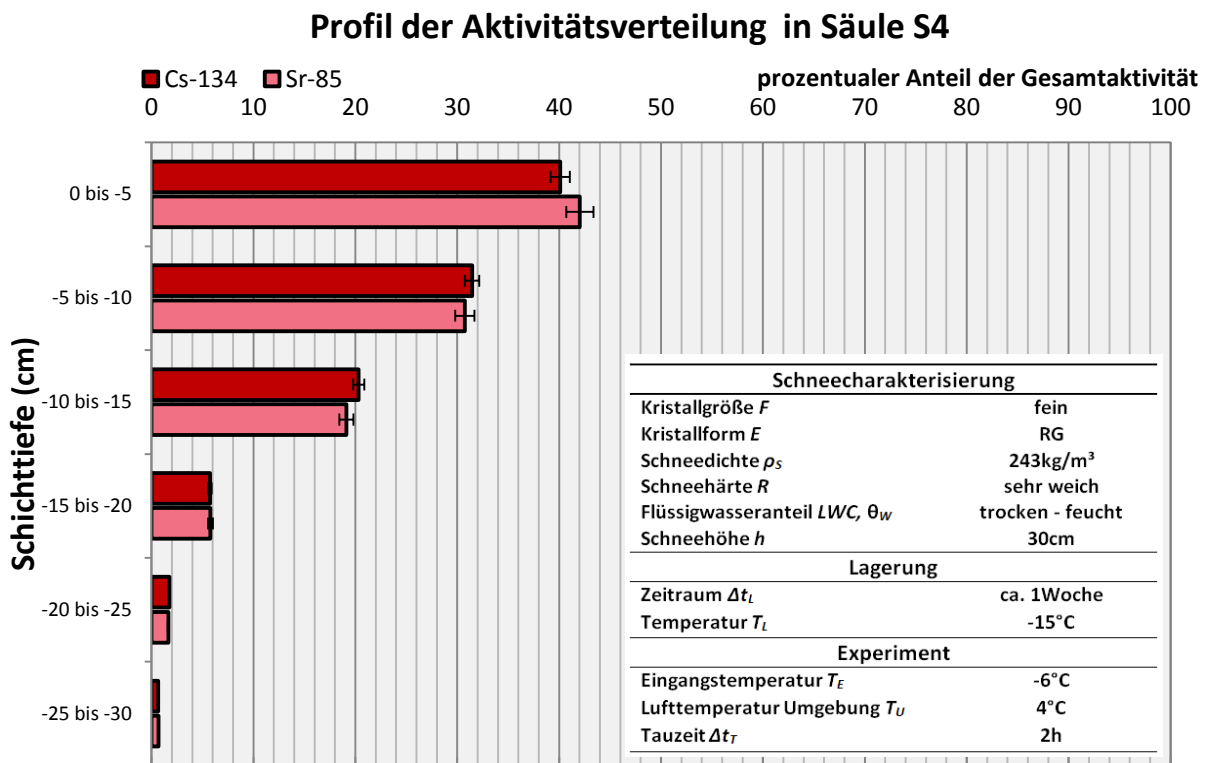


Abb. 2.2.22: Aktivitätstiefenverteilung von Cs-134 und Sr-85 in Säule S4 (Tau-Experiment). Die Tabellen geben Auskunft über die vorgegebenen Parameter.

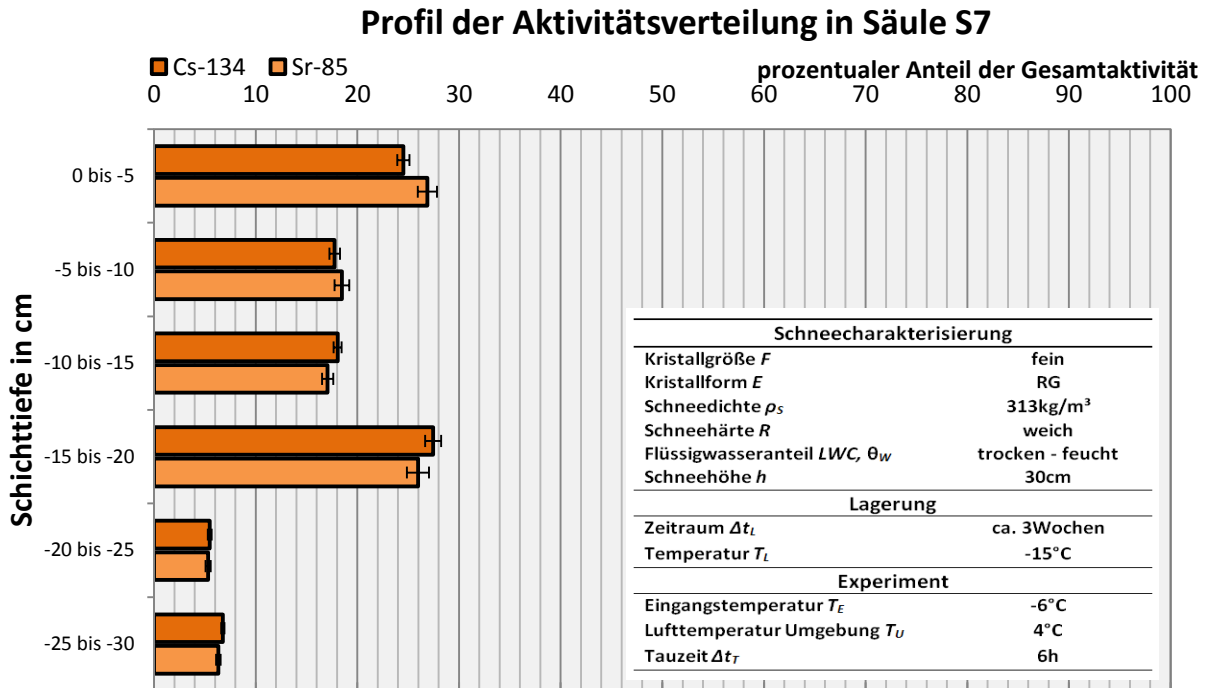


Abb. 2.2.23: Aktivitätstiefenverteilung von Cs-134 und Sr-85 in Säule S7 (Tau-Experiment). Die Tabellen geben Auskunft über die vorgegebenen Parameter.

In der Regel hing der Beginn der Migration mit der Umgebungstemperatur zusammen. Je geringer die Lager- und Eingangstemperatur zu Beginn des Versuches, umso mehr Zeit brauchte es, bis die Migration der Radionuklide in der Schneedecke eingesetzt hat, da der Transport der partikelgebundenen Radionuklide an den Flüssigwassertransport in der Säule gebunden ist.

Bei homogenen Schneesäulen (**Abb. 2.2.22**) fand eine gleichmäßige Migration in die Tiefe statt, die auch nicht nuklidspezifisch war. D.h. es gab keine signifikanten Unterschiede zwischen der Freisetzung von Cs-134 und Sr-85. Allenfalls war eine ganz leicht bevorzugte Migration für das Caesium sichtbar an den geringfügig niedrigeren Aktivitäten gegenüber Strontium in der obersten Schicht. Dieser Trend deckt sich mit Cragin et al.s (1996) Aussage, dass univalent geladene Ionen eine größere Migrationsgeschwindigkeit haben als divalente, spiegelt sich aber in den unteren Schneeschichten nicht wider.

In der Säule S7 (**Abb. 2.2.23**) hat innerhalb von 6 h eine starke Migration der Radionuklide bis in eine Tiefe von 20 cm stattgefunden. Die Radionuklidanreicherung in dieser Tiefe ist auf einen Wechsel der Schneestruktur in dieser Tiefe zurückzuführen. Die Säule wurde mit Schnee unterschiedlicher Probenahmen befüllt, der zwar die gleichen Lagerungsbedingungen hatte, aber von Natur aus eine andere Struktur aufgewiesen hat. Solche Schichtübergänge können bei der Migration von Stoffen als Barriere fungieren.

Die Versuche haben gezeigt, dass der Transport der Radionuklide stark von der Umgebungstemperatur abhängig war. Die Migrationsgeschwindigkeit ohne Taugeintritt betrug nur einen Bruchteil der Geschwindigkeit bei Vorhandensein von Schmelzwasser. Ohne mobiles Flüssigwasser, das durch das Porenvolumen sickert, ist die Bewegung der Ionen auf

molekulare Diffusion und mechanische Dispersion limitiert. Anders verhält sich der Transport der Radionuklide in nassem Schnee. Dabei werden die Radionuklide mit dem mobilen Wasser im Schnee bewegt (Konvektion). Im Rahmen der Tau-Experimente wurden Geschwindigkeiten ermittelt, die bis zu 640mal höher waren als bei einem Temperaturregime unter dem Gefrierpunkt. Der Beitrag durch hydrodynamische Dispersion, welche die Verteilung der Nuklide in Schnee ohne dominierenden Schmelzwasserfluss beschreibt, ist bei Eintreten von Schneeschmelze vernachlässigbar klein (s. auch Colbeck 1977).

In Tag-Nacht-Rhythmus-Experimenten sollten quasi-natürliche Bedingungen vergleichbar denen auf der Zugspitze simuliert werden. Die Schneesäule wurde bei unterschiedlichen Temperaturen exponiert, die einem Tagesgang eines typischen Frühjahrstages auf der Zugspitze entsprechen. Nachts wurden die Temperaturen auf -2°C abgesenkt, morgens um 8 Uhr und abends um 18 Uhr wurde jeweils für 1,5 h eine Temperatur von 0°C eingestellt, tagsüber 4°C . Nach drei Monaten und der vollständigen Schmelze des Schneekerns wurde das Experiment beendet. Der grobkörnige gerundete Schnee hatte eine Dichte von 426 kg m^{-3} , war feucht und wurde vorab zwölf Wochen bei -30°C gelagert.

Die Auswertung der Daten erfolgte bis zum 24. Zyklus, da danach die Konzentrationen der freigesetzten Radionuklide unterhalb der Nachweisgrenzen der gammaspektrometrischen Bestimmung lagen. Das abfließende Schmelzwasser wurde aufgefangen und in variierenden Zeitabständen von zu Beginn der Schmelzwasserbildung 30 min bis einmal täglich zum Ende des Versuches beprobt. Die Ergebnisse zum Schmelzwasserabfluss und der Aktivitätsbestimmung zeigt **Abb. 2.2.24**.

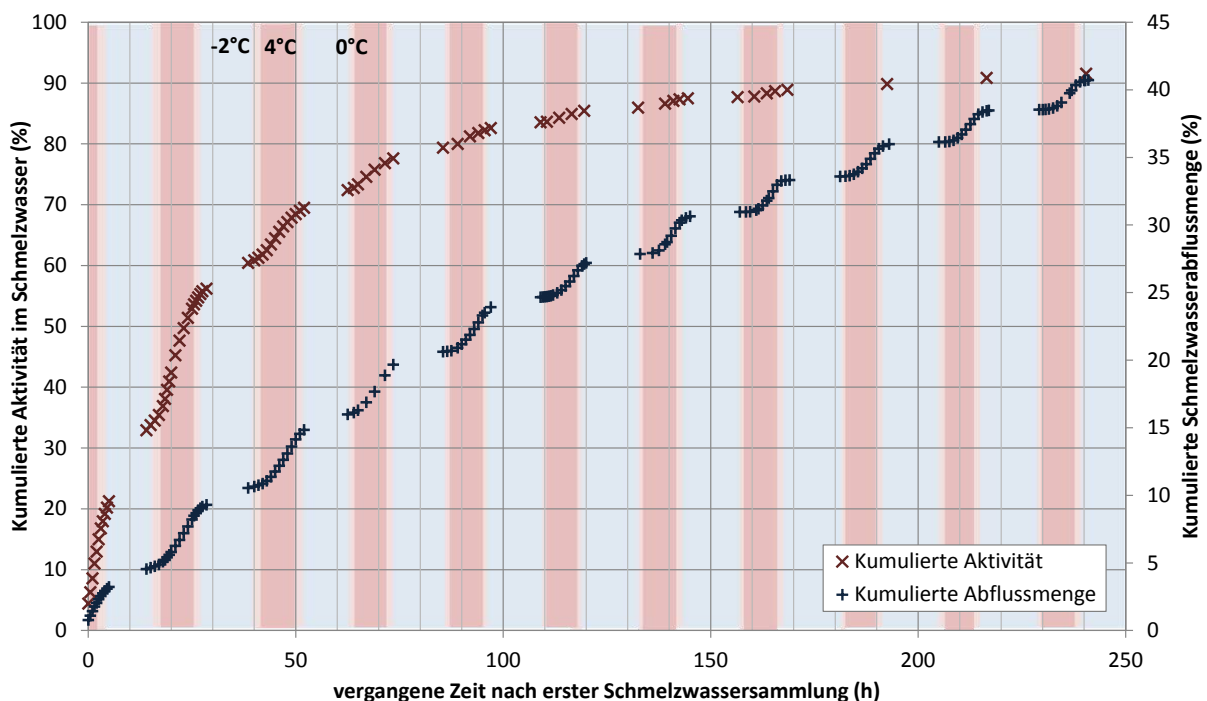


Abb. 2.2.24: Kumulierte Aktivitätsverteilung von Cs-134 und Sr-85 sowie Schmelzwasserabflussmengen bis 250 h nach beginnendem Schmelzwasserabfluss in den Tag-Nacht-Rhythmus-Experimenten.

Der erste Schmelzwasserablauf an der Basis der Schneesäule startete 32 h nach Experimentbeginn. Am Morgen des 12. Tages begann der bis dahin stabil mit durchschnittlich $-0,2^{\circ}\text{C}$ temperierte Schnee auf die Temperaturumstellung zu reagieren und der oberste Thermofühler (-5 cm Tiefe) zeigte Temperaturen bis $0,4^{\circ}\text{C}$ an. Die Schmelzrate nahm mit zunehmender Versuchsdauer ab und das Tagesmaximum hatte sich bis zum letzten Messtag mehr als halbiert. Zudem sank die Rate ab dem 9. Zyklus über Nacht auf Null. Die spezifische Aktivität sank innerhalb von acht Tagen auf Werte kleiner $0,02 \text{ Bq g}^{-1}$ und die Schmelzmenge pro Tag nahm innerhalb der ersten 14 Tage von 1,9 l auf 0,4 l ab und war am 26. Tag bei 0,3 l angelangt. Die Schmelzwasserprobenahme wurde der geringeren Schmelzrate angepasst. Von einer minimal halbstündigen Probenahme wurde auf ein Tages-Intervall verlängert, um eine ausreichende Aktivität in den Proben für die gammaspektrometrische Bestimmung zu erhalten. **Abb. 2.2.24** zeigt die exponentielle Zunahme der abgeflossenen Radionuklidkonzentrationen bis zu einem Plateau bei ca. 92 % der Aktivität mit einer schwachen Steigung bis zum Ende des Versuchs. 95 % beider Radionuklide wurden bis zum 26. Tag aus der Säule mit dem Schmelzwasser transportiert. Bereits nach dem 6. Tag beinhaltete die Schneesäule nur noch weniger als 20 % der Anfangsaktivität.

Das Abtropfen der Schmelze begann, nachdem sich an der Schneesäulenbasis eine ausreichend gesättigte Schneeschicht gebildet hatte, und damit das Gewicht des Flüssigwassers hoch genug war, um nicht mehr im Porenvolumen gehalten werden zu können. Ein Zusammenhang zwischen der Schneestruktur bzw. Dichte liegt somit nahe und konnte bestätigt werden. Eine Schneestruktur mit kleinen Schneekörnern und kleinen Porenzwischenräumen und hoher Dichte hält das Wasser länger über Kapillarkräfte zurück.

Zusammengefasst kann festgestellt werden, dass mit steigendem mobilem Flüssigwasseranteil – also bei hohen Umgebungs- und Schneetemperaturen – sowie geringen Schneedichten die Migrationsgeschwindigkeit von an der Oberfläche aufgetragenen Radionukliden steigt. Generell kann gefolgert werden, dass mit den ersten 20 % des Schmelzwassers bereits 80 % der insgesamt deponierten Radionuklide freigesetzt werden. Diese Werte finden Bestätigung in vorangegangenen Studien aus der Literatur, in denen die Migration von nichtradioaktiven Stoffen (zumeist Kationen und Anionen) in Schneesäulen untersucht wurden (z.B. Johannessen und Hendriksen 1978, Johannes et al. 1981, Cadle et al. 1984, Bales et al. 1989). Das lässt darauf schließen, dass die Aussagen über die Mobilität von Radionukliden im Schnee evtl. auch übertragbar sind auf den Transport anderer Stoffe im Schnee (z.B. Schwermetalle, Nährstoffe), was aber noch zu beweisen ist.

2.2.5 Referenzen

- Atlas, D., Shrivastava, R., Sekhon, R., 1973. Doppler radar characteristics of precipitation at vertical incidence. *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 2, 135.
- Baechmann, K., Ebert, P., Haag, I., Prokop, T., 1996. The chemical content of raindrops as a function of drop radius - I. Field measurements at the cloud base and below the cloud. *Atmospheric Environment*, 30, 1019-1025.
- Bales, R.C., Davis, R.E., Stanley, D.A., 1989. Ion elution through shallow homogeneous snow. *Water resources Research*, 25, 1869-1877.

- Barthazy, E. und Schefold, R., 2006. Fall velocity of snowflakes of different riming degree and crystal types. *Atmospheric Research*, 82, 391-398.
- Battaglia, A., Rustmeier, E., Tokay, A., Blahak, U., Simmer, C., 2010. PARSIVEL Snow Observations: A Critical Assessment. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 27, 333-344.
- Bernauer, F., 2015. Atmospheric washout of radioactive aerosol for different types of precipitation events. Dissertation am Helmholtz Zentrum München.
- Bernauer, F., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015a. On the potential of 2D-Video Disdrometer technique to measure micro physical parameters of solid precipitation. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 8, 3087-3120.
- Bernauer, F., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015b. Snow event classification with a 2D-Video Disdrometer - a decision tree approach. *Atmospheric Research*, *submitted*.
- Brandes, E.A., Ikeda, K., Zhang, G., Schönhuber, M., Rasmussen, R.M., 1986. A Statistical and Physical Description of Hydrometeor Distributions in Colorado Snowstorms Using a Video Disdrometer. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46, 634-650.
- Brimblecombe, P., Tranter, M., Tsiouris, S., Davis, T.D., Vincent, C.E., 1986. The chemical evolution of snow and meltwater. International Association of Hydrological Sciences, IAHS Press, Wallingford, 283-295.
- Cadle, S.H., Dasch, J.M., Grossnickle, N.E., 1984. Northern Michigan snowpack – a study of acid stability and release. *Atmospheric Environment*, 18, 807-816.
- Chate, D.M. und Pranesha, T.S., 2004. Field studies of scavenging of aerosols by rain events. *Aerosol Science*, 35, 695-706.
- Colbeck, S.C., 1977. Trace movement through snow. International Association of Hydrological Sciences, Adlard & Son Ltd, Bartholomew Press, Dorking, 255-262.
- Cragin, J.H., Hewitt, A.D., Colbeck, S.C., 1996. Grain-scale mechanisms influencing the elution of ions from snow. *Atmospheric Environment*, 30, 119-127.
- Davis, R.E., Petersen, C.E., Bales, R.C., 1995. Ion flux through a shallow snowpack: effects of initial conditions and melt sequences. International Association of Hydrological Sciences, IAHS Press, Wallingford, 115-126.
- Ebert, P., Kibler, M., Mainka, A., Tenberken, B., Bächmann, K., Frank, G., Tschiersch, J., 1998. A field study of particle scavenging by raindrops of different sizes using monodisperse trace aerosol. *Journal of Aerosol Science*, 29, 173-186.
- Fabry, F. und Szyrmer, W., 1999. Modeling of the Melting Layer. Part II: Electromagnetic. *Journal of Atmospheric Sciences*, 56, 3593-3600.
- Frank, G. und Tschiersch, J., 1992. Parametrisation of below cloud scavenging at low precipitation intensities by using a fluorescent tracer method. *Journal of Aerosol Science*, 23, S885-S888.
- Garger, E.K., Paretzke, H.G., Tschiersch, J., 1998. Measurement of resuspended aerosol in the Chernobyl area - Part III. Size distribution and dry deposition velocity of radioactive particles during anthropogenic enhanced resuspension. *Radiation and Environmental Biophysics*, 37, 201-208.
- Gavrilov, S., Kubo, M., Tran, V.A., Ngo, D.L., Nguyen, N.G., Nguyen, L.A.T., Lumbanraja, F.R., Phan, D., Satou, K., 2015. Feature Analysis and Classification of Particle Data from Two-Dimensional Video Disdrometer. *Advances in Remote Sensing*, 4, 1-14.
- Graedel, T.E. und Franey, J.P., 1974. Field measurements of submicron aerosol washout by snow. *Geophysical Research Letters*, 2, 325-328.

- Grazioli, J., Tuia, D., Monhart, S., Schneebeli, M., Raupach, T., Berne, A., 2014. Hydrometeor classification from two-dimensional video disdrometer data. *Journal of Atmospheric Measurement Technique*, 7, 2869-2882.
- Gunn, R. und Kinzer, G.D., 1949. The terminal velocity of fall for water droplets in stagnant air. *Journal of Meteorology*, 6, 243-248.
- Hanesch, M., 1999. Fall Velocity and Shape of Snow Flakes. Ph.D. thesis, Swiss Federal Institute of Technology, Zürich.
- Herrmann, A. und Stichler, W., 1981. Isotope Input into Runoff Systems from Melting Snow Covers. *Nordic Hydrology*, 12, 309-318.
- Heymsfield, A., Bansemer, A., Schmitt, C., 2004. Effective ice particle densities derived from aircraft data. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 61, 982-1003.
- Huang, G.J., Bringi, V.N., Cifelli, R., Hudak, D., Petersen, W.A., 2010. A methodology to derive radar reflectivity-liquid equivalent snow rate relations using C-band radar and a 2D Video Disdrometer. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 27, 637-651, 2010.
- Ioannidou, A. und Paatero, J., 2014. Activity size distribution and residence time of ⁷Be aerosols in the Arctic atmosphere. *Atmospheric Environment*, 88, 99-106.
- Johannes, A.H., Galloway, J.N., Troutman, D.E., 1981. Snowpack storage and ion release. In: *Integrated Lake-Watershed Study*. EPRI report, EA-125, 6-1.
- Johannessen, M. und Henriksen, A., 1978. Chemistry of snow meltwater: changes in concentration during melting. *Water Resources Research* 14, 615-619.
- Kruger, A. und Krajewski, W.F., 2002. Two-Dimensional Video Disdrometer: A Description. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 19, 602-617.
- Kyrö, E.-M., Grönholm, T., Vuollekoski, H., Virkkula, A., Kulmala, M., Laakso, L., 2009. Snow scavenging of ultrafine particles: field measurements and parameterization. *Boreal Environment Research*, 6095, 527-538.
- Laakso, L., Grönholm, T., Rannik, U., Kosmale, M., Fiedler, V., Vehkamäki, H., Kulmala, M., 2003. Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements. *Atmospheric Environment*, 37, 3605-3613.
- Locatelli, J.D. und Hobbs, P.V., 1974. Fall speeds and masses of solid precipitation particles. *Journal of Geophysical Research*, 79, 2185-2197.
- Löffler-Mang, M. und Joss, J., 2000. An optical disdrometer for measuring size and velocity of hydrometeors. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 17, 130-139.
- Morino, Y., Ohara, T., Nishizawa, M., 2011. Atmospheric Behavior, Deposition, and Budget of Radioactive Materials from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in March 2011. *Geophysical Research Letters*, 38, L00G11.
- Nešpor, V., Krajewski, W.F., Kruger, A., 2000. Wind-Induced Error of Raindrop Size Distribution Measurement Using a Two-Dimensional Video Disdrometer. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 17, 1483-1492.
- Paramonov, M., Grönholm, T., Virkkula, A., 2011. Below-cloud scavenging of aerosol particles by snow at an urban site in Finland. *Boreal Environment Research*, 16, 304-320.
- Pruppacher, H.R. und Klett, J.D., 1978. *Microphysics of Clouds and Precipitation*. D. Reidel Publ. Co., Dordrecht, Holland.
- Schumann, T., Zinder, B., Waldvogel, A., 1988. Aerosol and hydrometeor concentrations and their chemical composition during winter precipitation along a mountain slope - I. Temporal evolution of the aerosol, microphysical and meteorological conditions. *Atmospheric Environment*, 22, 1443-1459.

- Sparmacher, H., Fuebler, K., Bonka, H., 1993. Below-cloud scavenging of aerosol particles: particle-bound radionuclides – experimental. *Atmospheric Environment*, 27A, 605-618.
- Sportisse, B., 2007. A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment*, 41, 2683-2698.
- Stohl, A., Seibert, P., Wotawa, G., Arnold, D., Burkhardt, J.F., Eckhardt, S., Tapia, C., Vargas, A., and Yasunari, T.J., 2012. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 2313-2343.
- Tafelmeier, S., 2013. Abgelagerte Radionuklide im Schnee: Migration und Verbleib. Masterarbeit am Helmholtz Zentrum München.
- Tschiersch, J., Trautner, F., Frank, G., 1995. Deposition of atmospheric aerosol by rain and fog. In: *Deposition of radionuclides, their subsequent relocation in the environment and resulting implications*. Report European Commission EUR 16604 EN, Directorate General Science, Research and Development, 3-11.
- Tschiersch, J., Busch, B., Lange Fogh, C., 1997. Measurements of concentration, size distribution and hygroscopicity of Munich winter aerosol. *Journal of Aerosol Science*, 28, S209-S210.
- Tschiersch, J., Frank, G., Winkler, R., 2000. Scavenging of aerosol-fixed radionuclides with rain and snow. Tech. Rep. BMU-2001-564, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.
- Tschiersch, J., 2001. Snow deposition of a trace aerosol. *Journal of Aerosol Science*, 32, S195-S196.
- Tsiouris, S., Vincent, C.E., Davis, T.D., Brimblecombe, P., 1985. The elution of ions through field and laboratory snowpacks. *Annals of Glaciology*, 7, 196-201.
- Tveten, U., 1990. Environmental consequences of releases from nuclear accidents. Graphic Systems AB, Malmö, 60 ff.
- Vakulovskii, S.M., Novitskii, M.A., Mazurin, N.F., Tertyshnik, E.G., Khachaturova, L.M., 2007. Preliminary Results of Modeling Studies on Washout of Stable and Radioactive Analogs of ^{90}Sr and ^{137}Cs from Snow-Covered Areas. *Russian Meteorology and Hydrology*, 8, 508-513.
- Volken, M. und Schumann, T., 1993. A Critical Review of Below-Cloud Aerosol Scavenging Results on Mt. Rigi. *Water, Air and Soil Pollution*, 68, 15-28.
- Winkler, R., Dietl, F., Frank, G., Tschiersch, J., 1998. Temporal variation of ^7Be and ^{210}Pb size distributions in ambient aerosol. *Atmospheric Environment*, 32, 983-991.
- WMO/GAW, 2003. WMO/GAW aerosol measurement procedures guidelines and recommendations. Tech. Rep. 153, World Meteorological Organization Global Atmosphere Watch.
- Yasunari, T.J., Stohl, A., Hayano, R.S., Burkhardt, J.F., Eckhardt, S., Yasunari, T., 2011. Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 108, 19530-19534.
- Zhang, G., Luchs, S., Ryzhkov, A., Xue, M., 2011. Winter Precipitation Microphysics Characterized by Polarimetric Radar and Video Disdrometer Observations in Central Oklahoma. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 50, 1558-1570.

2.3 Arbeitspaket 3.1: Verbesserte Abschätzung der internen Dosis nach Inkorporation natürlicher Radionuklide aus Böden mit Hilfe von Modellstudien mit Heilerde

Vera Höllriegl, Stephan Träber, Abteilung für Medizinische Strahlenforschung und Diagnostik (AMSD)

2.3.1 Einleitung und Übersicht

Das Element Uran ist ein natürlich vorkommendes radioaktives Material (NORM) und ubiquitär im Boden in einer Konzentration von etwa 3 mg/kg vorhanden. Uran umfasst die Radioisotope ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U mit Molanteilen von 0,0054%, 0,72% und 99,27% (WHO 2001, Bleise 2003). In einigen Bereichen ist die Urankonzentration in Böden technologisch erhöht (TENORM) (Jovanovic 2012, Schnug 2013). Nuklearunfälle, wie der Chernobyl-Unfall in 1986 oder das Fukushima Daiichi-Ereignis in 2011 können für eine Anreicherung von Uran in Böden eine Rolle spielen. Folglich könnte eine Bodeningestion zu einer gewissen Erhöhung der internen Dosis im Menschen führen. Die Abschätzung der internen Strahlenbelastung nach Aufnahme hochbelasteter Böden ist daher in dieser Arbeit von besonderem Interesse.

Die interne Dosis wird unter Verwendung des aktuellen biokinetischen Kompartiment-Modells der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP) abgeschätzt (ICRP 1995). Das Modell beschreibt dabei die Aufnahme, Verteilung und Speicherung von Uran in Geweben/Organen und die Ausscheidung von Uran aus dem menschlichen Körper. Zu einer realistischeren Dosisbestimmung müssen vor allem die absorbierten Bruchteile der inkorporierten Radionuklide bekannt sein, also die Anteile der inkorporierten Verbindungen (z. B. Uranverbindungen in kontaminierten Böden aus dem Uranbergbau), die tatsächlich die Magen-Darmwand passieren und in den systemischen Teil des Körpers gelangen. Ein wichtiger Parameter in diesem Modell ist der sogenannte f_1 -Wert, der die Bioverfügbarkeit von Uran quantifiziert und den Anteil an Uran bezeichnet, der aus dem Verdauungstrakt in den Blutkreislauf resorbiert wird. Der f_1 -Wert war vor allem für lösliches Uran aus Trinkwasser ermittelt worden und nicht für die Uranaufnahme aus Böden (ICRP 1995).

Seit dem neu eingeführten Modell des Human Alimentary Tract-Modells (HAT-Modell, ICRP 100) wird dieser f_1 -Faktor künftig als f_A -Faktor bezeichnet.

2.3.2 Methoden und Material

2.3.2.1 Bodenproben

In der vorliegenden Studie wurde die Heilerde "Luvos®Heilerde ultrafein" (Luvos Gerade GmbH & Co, Friedrichsdorf, Deutschland) als Modell für den Löslichkeitstest und der Humanstudie ausgewählt. Der wichtigste Aspekt ist hier, dass es sich um ein medizinisches Produkt handelt und für die Ingestion durch den Menschen geeignet ist. Die Heilerde kann in

ausreichenden Mengen und ohne Rezept erworben werden. Das Material ist ultrafein ($<1 \mu\text{m}$), homogen und gewährt damit eine konstante Qualität während der gesamten Studie.

Eine uranhaltige Bodenprobe stammte aus dem Untersuchungsgebiet um den ehemaligen Tagebau Lichtenberg südlich von Ronneburg (Laugungshalde Gessenwiese und Gauernhalde) und wurde uns von Frau Katja Nebelung aus Jena (A.P. 2.2) zur Verfügung gestellt.

Eine weitere Bodenprobe (Dresden E1, schluffige Tailings) wurde im Rahmen einer Studie „Kompatibilität der strahlenschutz-rechtlichen Berechnungsvorschriften, Dosiskoeffizienten für die Ingestion von Boden“ von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) zur Verfügung gestellt und stammte aus Coschütz/Gittersee (Halde A).

Beim phosphathaltigen Dünger handelte es sich um das Produkt COMPO Blaukorn® NovaTec.

2.3.2.2 Bestimmung von ^{238}U in Magen-Darmsaft, Boden/Düngerprobe sowie in Urin mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS)

Für die Analyse des ^{238}U in den synthetischen Magen-Darmflüssigkeiten wurde das ICP-SF-MS-Gerät Element 1 (Thermo, Bremen, Deutschland) in niedriger Auflösung verwendet. Die Proben wurden dabei 1:2 mit verdünnter Salpetersäure (5% Endkonzentration) verdünnt. Die Heilerdeprobe wurde nach dem Mikrowellen-Aufschluss ebenfalls 1:2 mit verdünnter Salpetersäure (1% Endkonzentration) verdünnt. Zur Korrektur der Matrixinterferenzen wurde ein interner Standard (1 g/l ^{193}Ir , Endkonzentration) zu jeder Probe hinzugefügt. Für jede Probe wurden drei Wiederholungen gemessen. Der Probentransport zum Zerstäuber wurde mittels einer peristaltischen Pumpe bei einer Fließgeschwindigkeit von 0,5 ml/min realisiert. Die Probeneinführung in das ICP-MS erfolgte mittels eines Meinhard-Zerstäubers. Das Uran wurde bei $m/z = 238$ gemessen. RF-Leistung betrug 1200 W; das Verneblergas (Ar) wurde täglich optimiert und in der Regel auf 0,8 l/min eingestellt. Plasmagas: Ar, 15 l/min. Hilfgas: 0,8 l/min. Das Gerät wurde mit einer 7-Punkt-Kalibrierung zwischen Blindwert (Blank) und 2000 ng/l kalibriert. Nach zehn Messungen wurden regelmäßig drei Blindbestimmungen und eine Kontrollbestimmung mittels eines zertifizierten Standards durchgeführt. Die Nachweisgrenze, berechnet als $\text{Blank} + 3x \text{SD}$ (Standardabweichung) betrug 1,5 ng/l; die Bestimmungsgrenze (LOQ), berechnet als $\text{Blank} + 10x \text{SD}$ betrug 4,5 ng/l.

Die zwei kontaminierten Böden aus den Uranabbau-Gebieten und der uranhaltige Dünger wurden entsprechend behandelt.

Die Bestimmung der ^{238}U -Konzentration im Urin erfolgte nach DIN EN ISO 17294-2 mit der induktiv gekoppelten Plasma-Massenspektrometrie (ICP-MS Element 2, von Thermo Scientific) in Zusammenarbeit mit dem Labor in Dresden/Rossendorf (VKTA) (DIN Water Quality 2005). Die Kalibrierung und Datenauswertung wurde durch Anwendung des Standardadditionsverfahrens durchgeführt. Dafür wurden sechs Aliquote einer Urinprobe mit 1,5% Salpetersäure in einem Verhältnis von 1:10 verdünnt. In fünf Verdünnungsansätzen wurde Uran in Konzentrationen von 0,005 - 0,025 g/l zugesetzt. Die daraus resultierende Eichkurve wurde mit dem Referenzmaterial „Seronorm-Spurenelemente-Urin“ überprüft.

Anschließend wurden die Proben mit 1,5% Salpetersäure in einem Verhältnis von 1:10 verdünnt und mehrmals gemessen. Als interner Standard wurde ^{103}Rh verwendet.

2.3.2.3 Gesamtgehalt von Uran in Heilerde bzw. uranhaltigen Böden/Düngemittel

Um den Gesamtgehalt von Uran in der verwendeten Heilerde zu bestimmen, wurden 139,2 mg Heilerde mit 5 ml HNO_3 (65%), 1 ml HCl (30%) und 1 ml HF (40%) versetzt. Für die anderen uranhaltigen Bodenproben wurde jeweils 250 g Erde, 1,5 ml HNO_3 , 4,5 ml HCl und 1 ml HF verwendet. Es folgte ein Mikrowellenaufschluss in einem Multiwave 3000 (Anton Paar, Österreich) mit folgenden Parametern: Aufheizen für 15 min bis zu 1400 W, Halten für 30 Minuten bei 1400 W, Abkühlen für 15 min. Nach anschließender Zugabe von 6 ml H_3BO_3 , das die freigesetzten Fluoride in der Lösung neutralisiert, wurde die Probe in der Mikrowelle weiter aufgeschlossen: Aufheizen 5 min bis zu 900 W, Halten für 15 min und Abkühlen für 15 min. Danach wurde die Lösung bei 4 °C bis zur Messung von ^{238}U mit ICP-MS aufbewahrt. Für die Analyse des Phosphatdüngers wurden 118,1 mg mit 1,0 ml HNO_3 vermischt und bei 160 °C unter Druck über Nacht erhitzt.

2.3.2.4 *In vivo* pH-Metrie des Magens

Im Rahmen einer *in vivo* Humanstudie (s.u.) wurde während einer Heilerde-Ingestion von einem freiwilligen Probanden der Verlauf des Magen-pH mit Hilfe einer Standard-Magen-pH-Metrie bestimmt. Damit konnte überprüft werden, inwieweit der angegebene pH-Wert des Löslichkeitstests DIN 19738 (d.h. pH 2) mit dem realen (*in vivo*) Magen-pH übereinstimmt und realistische Werte für die Löslichkeit von Uran aus der Heilerde liefert. Zu diesem Zweck wurde einem 29-jährigen männlichen Probanden nüchtern eine pH-Glas-Sonde (F8/IR BLUE LINE, SMT Simtec GmbH, Schweiz) über Nase, Rachen und Speiseröhre in den Magen eingeführt. Dieser Test wurde unter Aufsicht in der medizinischen Klinik rechts der Isar, TU München, Deutschland durchgeführt. Die Sonde war während des gesamten Versuchs an einen tragbaren Recorder angeschlossen (DL 70, Standard Instruments GmbH, Deutschland). Das Setup behinderte den Probanden nicht beim Essen und Trinken oder sonstigen Bewegungen. Eine Stunde nach der Einführung der Sonde wurden 20 g Heilerde in 400 ml Wasser (MilliQ) aufgeschlänmt und zügig getrunken. Die Magen-pH-Daten wurden während des gesamten Experiments aufgezeichnet und als variabel "physiologisch" betrachtet.

2.3.2.5 *In vitro* Löslichkeitstest - Bestimmung von DF

Um die Löslichkeit (DF) von Uran im Verdauungstrakt zu bestimmen, wurde ein *in vitro* Test, basierend auf dem Löslichkeitstest der deutschen DIN 19738 durchgeführt (DIN Soil Quality 2000). Der Testansatz enthielt künstliche Magen- und Darmflüssigkeiten (siehe **Tabelle 2.3.1**). Die angegebenen Inkubationszeiten, Temperaturen und pH-Werte wurden

entsprechend nach DIN 19738 durchgeführt; teilweise wurden die pH-Werte entsprechend den pH-Metrie-Ergebnissen angepasst.

Die *in vitro* Löslichkeitsexperimente wurden durch Inkubation von 2 g Heilerde (bzw. 2 g Boden/Düngerproben) in 100 ml künstlichem Magensaft nach 2 Stunden bei einem pH-Wert von $1,0 \pm 0,2$, bei pH $2,0 \pm 0,2$ oder dem variablen "physiologischen" pH Zustand entsprechend den pH-Metrie-Daten durchgeführt. Der pH-Status wurde mit HCl (10%) eingestellt und kontrolliert. Die Suspension wurde bei $37 \text{ °C} \pm 1 \text{ °C}$ gehalten und bei etwa 500 rpm gerührt, um eine Sedimentation zu vermeiden. Danach wurden 100 ml künstlicher Darmsaft zugegeben und der pH auf $7,5 \pm 0,2$ durch Zugabe von NaHCO_3 und HCl eingestellt. Die Suspension wurde für weitere 6 Stunden bei $37 \text{ °C} \pm 1 \text{ °C}$ gerührt. Nach insgesamt 8 Stunden wurden 50 ml-Fraktionen entnommen und bei 5000 rpm (Hettich Universal-32R) zentrifugiert. Drei Aliquote von je 10 ml wurden entnommen. Von diesen Proben wurden zwei Aliquote weiter bei $0,45 \text{ }\mu\text{m}$ oder $0,2 \text{ }\mu\text{m}$ (Sterilfilter, Millipore) filtriert. Eine vierte Probe wurde direkt aus der Suspension entnommen und bei $0,2 \text{ }\mu\text{m}$, ohne Zentrifugation, filtriert. Die Proben wurden bei 4 °C bis zur Messung des ^{238}U gespeichert. Für jede Bodenprobe wurde die Extraktion dreifach durchgeführt. Für die Blindwert-Messungen der Lösungen wurde die Inkubation ohne Zugabe von Boden durchgeführt. Da davon ausgegangen wird, dass die Resorption von Uran aus dem Magen-Darmtrakt in den systemischen Kreislauf hauptsächlich im Dünndarm erfolgt (Dublineau 2005), wurde zur Quantifizierung des löslichen ^{238}U das gesamte Inkubationsgemisch (Magen- und Darmsaft) nach 8 Stunden verwendet.

Tabelle 2.3.1 Bestandteile der Testlösungen (g/Liter) nach der DIN 19738 Methode

	Magensaft	Darmsaft
NaCl	2,9	-
KCl	0,7	0,3
KH_2PO_4	0,7	-
NaH_2PO_4	-	-
$\text{CaCl}_2 \times 2 \text{ H}_2\text{O}$	-	0,5
$\text{MgCl}_2 \times 6 \text{ H}_2\text{O}$	-	0,2
NaHCO_3	-	1
Pepsin	1	-
Mucin	3	-
Trypsin	-	0,3
Pankreatin	-	9
Galle	-	9
Harnstoff	-	0,3
End-pH	2,0	7,5

2.3.2.6 *In vivo* Humanstudie - Bestimmung von f_A

Die Humanstudie wurde an gesunden Probanden nach den Grundsätzen der Deklaration von Helsinki nach Genehmigung der zuständigen Ethikaufsichtsgremien (Technischen Universität München, Deutschland, Ethikkommission) und mit der schriftlichen Zustimmung der Probanden durchgeführt.

Zehn gesunde Probanden ohne chronische Erkrankungen (6 Frauen, 4 Männer) im Alter von 22 - 55 Jahren nahmen an der Studie teil (siehe **Tabelle 2.3.2**). Die Studie erfolgte zwischen 2011 und 2013.

Tabelle 2.3.2 Einige Daten der freiwilligen Probanden

	Geschlecht	Alter (Jahre)	Gewicht (kg)	Größe (cm)
1	männlich	27	81	186
1	männlich	29	83	186
1	männlich	30	83	186
2	männlich	23	68	178
3	weiblich	26	64	168
4	weiblich	55	59	166
5	weiblich	55	85	168
6	weiblich	27	66	170
7	weiblich	31	64	165
8	weiblich	50	65	178
9	männlich	27	100	184
10	männlich	24	87	183

Bei 9 Probanden wurde der Versuch nur einmal durchgeführt. Ein männlicher Freiwilliger nahm drei Mal an der Studie teil. Diese drei Untersuchungen wurden durchgeführt, um mögliche individuelle Variationen festzustellen. Nur die gemittelten Ergebnisse dieser drei Untersuchungen wurden für die weiteren Berechnungen verwendet. Damit war jeder Freiwillige gleichermaßen in der aktuellen Studie vertreten.

Alle Probanden sammelten ihre kompletten 24-Stunden-Urine über drei Tage *vor* (Tag 1, Tag 2, Tag 3) und drei Tage *nach* (Tag 4, Tag 5, Tag 6) einer einmaligen oralen Aufnahme von 20 g Heilerde (entsprechend etwa $48,6 \mu\text{g } ^{238}\text{U}$), die in 400 ml Wasser (MilliQ) aufgeschlämmt worden war. Die Heilerde-Ingestion wurde morgens nach etwa 10 Stunden nächtlichen Fastens gestartet. Nach 2,5 Stunden war für die Probanden ein Standard-Frühstück (Brötchen,

Marmelade und Tee, Wasser oder Kaffee) vorgesehen. Anschließend war es den Probanden erlaubt zu Essen und zu Trinken ad libitum. Das Gesamtgewicht aller 24-h-Urinproben wurde aufgezeichnet. Teilproben von je 20 ml wurden mit Salpetersäure (5%) versetzt und bei -20 °C bis zur Analyse eingefroren.

Die täglichen Urinvolumina wurden durch Division der Urinmengen durch den Urinspezifischen Dichtefaktor von $1,020 \pm 0,015$ g/ml berechnet (ICRP 1975).

Um die Bioverfügbarkeit (f_A) von ^{238}U nach Heilerde-Ingestion für die Probanden zu bestimmen, wurde das aktuelle biokinetische Modell für Uran der ICRP und die Messdaten der Urinausscheidung verwendet (ICRP 1995). Hierbei wurde die tägliche Gesamtausscheidung von ^{238}U durch Multiplikation der Konzentrationen von Uran in den 24-h-Urinproben mit den entsprechenden Urinvolumina berechnet. Die Uranausscheidung nach der Heilerde-Ingestion wurde für die Dauer von 3 Tagen *nach* der Ingestion abgeschätzt und die Gesamtausscheidung von Uran *vor* der Heilerde-Ingestion davon abgezogen. Nach dem gegenwärtigen biokinetischen Modell der ICRP für Uran beträgt die systemische Ausscheidung von resorbiertem Uran 3 Tage nach einer Ingestion 68,5% (Li 2005). Um den Gesamtgehalt (100%) des aus der Heilerde resorbierten Urans zu bestimmen, wurden die Ausscheidungsdaten mit dem Faktor 100/68,5 multipliziert. Der f_A Wert wurde aus dem Verhältnis des gesamten absorbierten ^{238}U zu dem aus der Heilerde (von 20 g) aufgenommenen Urans berechnet.

2.3.2.7 Experimentelles Design und Berechnung des Faktors f_A^{sol}

Der Faktor f_A^{sol} setzt die Löslichkeit (DF) und die Bioverfügbarkeit (f_A) miteinander in Verbindung. Dies ist in Abbildung 2.3.1 dargestellt. Er wird als der Anteil des aus dem Boden gelösten Urans definiert, der aus dem Verdauungstrakt in den Blutkreislauf resorbiert wird.

Folgende Beziehung besteht:
$$f_A^{\text{sol}} = f_A / \text{DF} \quad (2.3.1)$$

Zur Bestimmung dieses Faktors f_A^{sol} werden somit die Werte von DF und f_A benötigt, die in dieser Arbeit nach entsprechender Durchführung eines Löslichkeitstests und einer Humanstudie unter Verwendung desselben Bodens (Heilerde) bestimmt wurden.

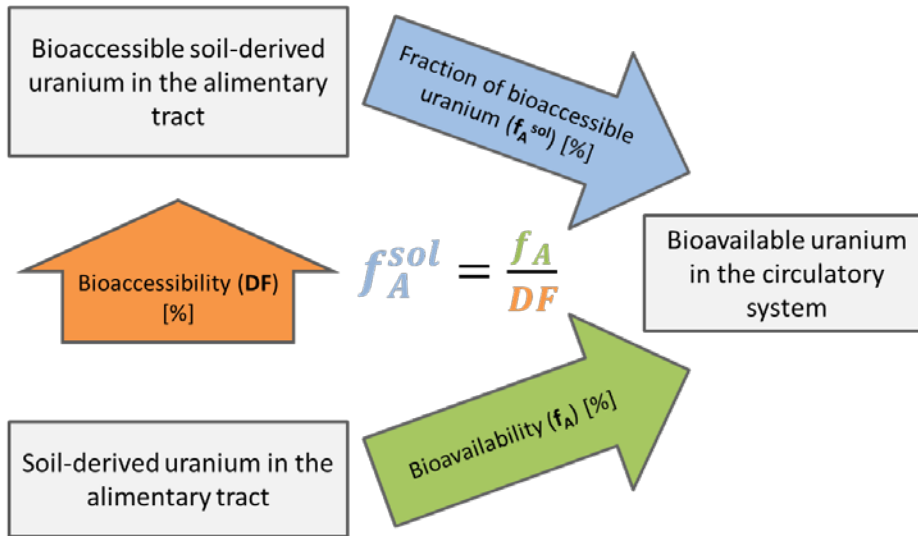


Abb. 2.3.1 Schema über den Zusammenhang von Bioverfügbarkeit (f_A), Löslichkeit (DF) und Faktor f_A^{sol} (Abbildung siehe Träber 2014)

2.3.2.8 Biokinetische Modellierung

Um die Biokinetik von ^{238}U aus ingestiertem Boden zu modellieren, wurden das systemische Modell für Uran (ICRP 1995) und das menschliche Verdauungstrakt-Modell (HATM) (ICRP 2006) miteinander gekoppelt. Diese zwei Modelle sind durch die Verdauungstrakt-Transferrate, die in dieser Studie für zwei Böden und einem Phosphat-Dünger quantifiziert worden ist, miteinander verbunden. Für die interne Dosisabschätzung von ^{238}U müssen auch die radiologisch relevanten Tochternuklide ^{234}Th , ^{234}Pa und $^{234\text{m}}\text{Pa}$ berücksichtigt werden (ICRP 1983). Daher wurden ebenfalls, wie für das Uran, die systemischen Modelle von Thorium, Protactinium und (meta)-Protactinium, die von der ICRP veröffentlicht sind, mit dem menschlichen Verdauungstrakt-Modell (HATM) gekoppelt. Somit wurde jedes systemische Modell eines Tochternuklids mit einem menschlichen Verdauungstrakt-Modell (HAT-Modell) verbunden. Die entsprechenden Verdauungstrakt-Transferraten dieser Tochternuklide wurden von der ICRP (ICRP 1995) übernommen. Die daraus resultierenden vier Ingestionsmodelle sind gemäß der Uran-Zerfallsreihen durch ihre entsprechenden Zerfallskonstanten (ICRP 2008) miteinander verbunden.

Allerdings sind biokinetische Modelle verschiedener Radionuklide voneinander unabhängig, und ihre Transferraten und vor allem ihre Kompartiment-Strukturen sind nicht unbedingt identisch. Für die korrekte Verknüpfung biokinetischer Modelle mit unterschiedlichen Kompartimenten, wie das biokinetische Modell von Uran und das biokinetische Modell von Thorium als entsprechendes Tochternuklid, werden von der ICRP (ICRP 1995) zwei Lösungsansätze vorgeschlagen. Beim ersten Ansatz wird die Biokinetik eines Radionuklids einer Zerfallskette anhand der biokinetischen Daten der ICRP (ICRP 1995) berechnet. Danach erst erhalten die notwendigen, (noch) nicht-vorhandenen Kompartimente, die Quellregionen

repräsentieren, jeweils einen Anteil der nuklearen Zerfälle aus den Massenanteilen der sogenannten „other tissue“-Kompartiment. Diese „other“-Gewebe repräsentieren alle systemischen Gewebe, die nicht explizit in einem Biokinetikmodell spezifiziert sind.

In dieser Arbeit wurde jedoch der zweite Ansatz verwendet, da diese alternative Methode auch für die bevorstehende ICRP Publikation "Beruflich bedingte Inkorporation von Radionukliden, Part 1" verwendet wird. Bei diesem Ansatz werden vor der eigentlichen biokinetischen Modellierung die biokinetischen Modelle eines Radionuklids einer Zerfallskette um ihre notwendigen, (noch) nicht-vorhandenen Kompartimente bzw. Transferraten erweitert. In der aktuellen Arbeit wurde somit das biokinetische Modell von Uran um die Kompartimente *Keimdrüsen, kortikales und trabekuläres Knochenmark* erweitert, um dem biokinetischen Modell von Thorium zu entsprechen. Die Strukturen und die Transferraten des Protactinium- und dem (meta)-Protactinium-Modell wurden dem biokinetischen Modell von Thorium (ICRP 1995) zugeordnet.

Als Beispiel wurde bei der Anwendung der alternativen Methode auf das Uran-Modell die Transferrate, die vom Kompartiment *Blut* zum neu geschaffenen Kompartiment *kortikales Knochenmark* führt, aus dem Massenanteil der entsprechenden Transferrate des „other tissue“-Kompartiments berechnet (ICRP 1975). Die Transferrate vom *Blut*-Kompartiment zum „other tissue“-Kompartiment wurde entsprechend reduziert. Allerdings enthält das Uran-Modell drei *Weichgewebe*-Kompartimente mit unterschiedlichen Transferraten. Folgerichtig wurden drei neue *kortikale Knochenmarks*-Kompartimente in das Uran-Modell integriert. Als Teil einer Zerfallsreihe wurden diese über ihre Zerfallskonstante mit dem *kortikalen Knochenmarks*-Kompartiment des Thoriums verbunden. Letztendlich sind neun zusätzliche Kompartimente in das Uran-Modell integriert worden.

Neben den Transferraten des systemischen Modells wurden die Transferraten des HAT-Modells für die "Gesamtnahrung" entsprechend der ICRP (ICRP 2006) für Männer und Frauen angepasst, das in zwei geschlechtsspezifische biokinetische Modelle für ^{238}U führte. Darüber hinaus wurden die geschlechtsspezifischen biokinetischen Modelle für ^{234}U und ^{235}U mit ihren Tochternukliden erstellt. Dabei ist das radiologisch relevante Tochternuklid von ^{235}U das ^{231}Th , während ^{234}U keine radiologisch relevanten Tochternuklide mit maßgeblichen dosimetrischen Beiträgen (ICRP 1979) besitzt.

Durch diese sechs Modelle wurde die geschlechtsspezifische Biokinetik der drei natürlich vorkommenden Isotope von Uran (^{234}U , ^{235}U , ^{238}U) und deren Tochternuklide durch ein System erster Ordnung linearer Differentialgleichungen beschrieben, die numerisch durch die Verwendung der kommerziell erhältlichen Software VSV II (Barrett 1998) gelöst wurden. Für die Abschätzung der internen Dosis bei Erwachsenen wurde die integrierte Aktivität des aufgenommenen Urans und seiner Tochternuklide in allen Kompartimenten über die Zeitdauer von 50 Jahren berechnet.

2.3.2.9 Berechnung der effektiven Folgedosis

Die äquivalente Folgedosis (H_T) und die effektive Folgedosis (E) wurden basierend auf die Zeit-integrierte Aktivität \bar{A} in den sogenannten Quellregionen (\mathcal{R}_S) und strahlungsgewichteten S-Faktoren S_w sowie entsprechenden Gewebewichtungsfaktoren w_T berechnet (ICRP 1989; Bolch et al. 2009).

Für die interne Dosisberechnung in dieser Arbeit wurden nur Erwachsene betrachtet, da der in dieser Arbeit eingeführte f_A^{sol} ausschließlich für Erwachsene (Träber 2014) bestimmt worden war.

Die äquivalente Folgedosis ($H_{T,sex}$) für Männer und Frauen wurde durch Gleichung (2.3.2) als die Summe aus einem Radionuklid und dessen Tochternuklide (N) berechnet:

$$H_{T,sex} = \sum_N \sum_{r_5} \bar{A}(r_5, T_{50}, sex, N) S_W(r_T \leftarrow r_5, sex, N) \quad (2.3.2)$$

wobei $\bar{A}(r_5, T_{50}, sex, N)$ die kumulierte Aktivität (\bar{A}) eines Radionuklids bzw. Tochternuklids (N) in einer Quellregion (r_5) über die Zeitdauer von 50 Jahren (T_{50}) ist, und die geschlechtsspezifisch (sex) ist; (\bar{A}) ist durch das oben beschriebene biokinetische Modell berechnet worden.

$S_W(r_T \leftarrow r_5, sex, N)$ ist der strahlungsgewichtete S-Faktor, der für ein Radionuklid oder Tochternuklid für beide Geschlechter (sex) durch Gleichung (2.3.3) berechnet wird:

$$S_W(r_T \leftarrow r_5, sex, N) = \sum_R w_R S(r_T \leftarrow r_5, E_R, sex, N) \quad (2.3.3)$$

wobei (w_R) der Strahlungswichtungsfaktor ist, und $S(r_T \leftarrow r_5, E_R, sex, N)$ die spezifische Energie eines Strahlungstyp R (E_R), die in einem Zielorgan (r_T) absorbiert und die aus einer Quellregion (r_5) pro Kernumwandlung eines Radionuklids oder emittierten Tochternuklids (N) emittiert wird.

Der Faktor S_W wird als die Summe aller Strahlungstypen pro Kernumwandlung eines Radionuklids oder seiner Tochternuklide (N) unter Verwendung des SEECAL Programms (Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA) bestimmt. Da S_W für einige wenige Organe wie die Prostata nicht verfügbar ist, wurde in der vorliegenden Arbeit die "Splitting-Regel" bei der Betrachtung von Restgewebe („reminder tissue“), wie nach ICRP 60 empfohlen, angewendet (ICRP 1991). Entsprechend wurden die geeigneten Strahlungswichtungsfaktoren (w_R) und Gewebewichtungsfaktoren (w_T) der ICRP Publikation 60 (ICRP 1991) entnommen.

Die geschlechtsabhängige, effektive Folgedosis $E(sex)$ wurde durch Summierung der Produkte aller äquivalenten Zielorganfolgedosen ($H_{T,sex}$) und ihrer entsprechenden Gewebewichtungsfaktoren (w_T) durch Gleichung (2.3.4) ermittelt:

$$E(sex) = \sum_T w_T H_{T,sex} \quad (2.3.4)$$

Schließlich wurde die effektive Folgedosis (E) durch Gleichung (2.3.5) durch Mittelung der effektiven Dosis bei Männern und Frauen bestimmt (ICRP 2007):

$$E = \sum_T w_T \left(\frac{H_{T,male} + H_{T,female}}{2} \right) \quad (2.3.5)$$

2.3.2.10 Berechnung der Ingestionsdosis

Bei der Berechnung der effektiven Folgedosis (E) (siehe **2.3.2.9**) wurden die probenspezifischen effektiven Ingestionsdosen durch Anpassung der entsprechenden probenspezifischen Verdauungstrakt-Transferraten an die biokinetischen Modelle und durch Annahme einer einmaligen Aufnahme von jeweils 1 Bq ^{234}U , ^{235}U oder ^{238}U abgeschätzt. Auf der Grundlage der probenspezifischen Ingestionsdosis-Koeffizienten wurde die effektive Folgedosis für verschiedene Ingestions-Szenarien durch Gleichung (2.3.6) berechnet (Simon 1998).

$$D_{\text{soil}} = \sum_i C_{\text{soil},i} \times I_{\text{soil}} \times ED \times DC_i \quad (2.3.6)$$

D_{soil} effektive Folgedosis aus dem Boden stammender Radionuklide (Sv)

$C_{\text{soil},i}$ mittlere spezifische Aktivität des Radionuklids i im Boden (Bq/g)

I_{soil} durchschnittliche tägliche Ingestion von Boden während der Expositionsdauer (g/Tag)

ED Expositionsdauer (Tag)

DC_i Ingestionsdosis-Koeffizient des Radionuklids i (Sv/Bq)

2.3.3 Ergebnisse und Diskussion

2.3.3.1 Gehalt von ^{238}U in den Boden/Düngerproben

Die Konzentration des natürlich vorkommenden Radionuklides ^{238}U betrug in der Heilerde etwa 2,43 mg/kg (Höllriegl 2010). Die ^{238}U -Gehalte in den Bodenproben und dem Dünger betragen für die Probe Gauern 523 ± 9 mg/kg, für Dresden-E1 456 ± 3 mg/kg und für den Blaukorn-Dünger $23,3 \pm 0,5$ mg/kg.

2.3.3.2 Ergebnisse der pH-Metrie

In Übereinstimmung mit den physiologischen Bedingungen des Verdauungstraktes, empfiehlt das Verfahren des Löslichkeitstests DIN 19738 eine sequentielle Inkubation des Bodens in künstlicher Magen-Darmflüssigkeit von 2 Stunden bei einem pH-Wert von 2 und einem pH-Wert von 7,5 innerhalb der folgenden 6 Stunden. Eine Charakteristik der Heilerde beim Menschen ist seine Fähigkeit, Magensäure nach dessen Einnahme zu binden; dies führt zu einer Verschiebung des pH-Wertes des Magensaftes von sauer zu neutral. Um nachzuvollziehen, inwieweit die Heilerde nach Ingestion tatsächlich die Magensäure neutralisieren kann, wurde eine Standard-Magen-pH-Metrie bei einem Freiwilligen während der Ingestion von Heilerde durchgeführt. Diese Ergebnisse wurden anschließend auf den Löslichkeitstest DIN 19738 übertragen, um realistischere Daten über die Löslichkeit von Uran im Magenmilieu abzuleiten. Der Magen-pH-Status wurde für die ersten zwei Stunden nach Heilerde-Ingestion (**Abbildung 2.3.2**) aufgezeichnet.

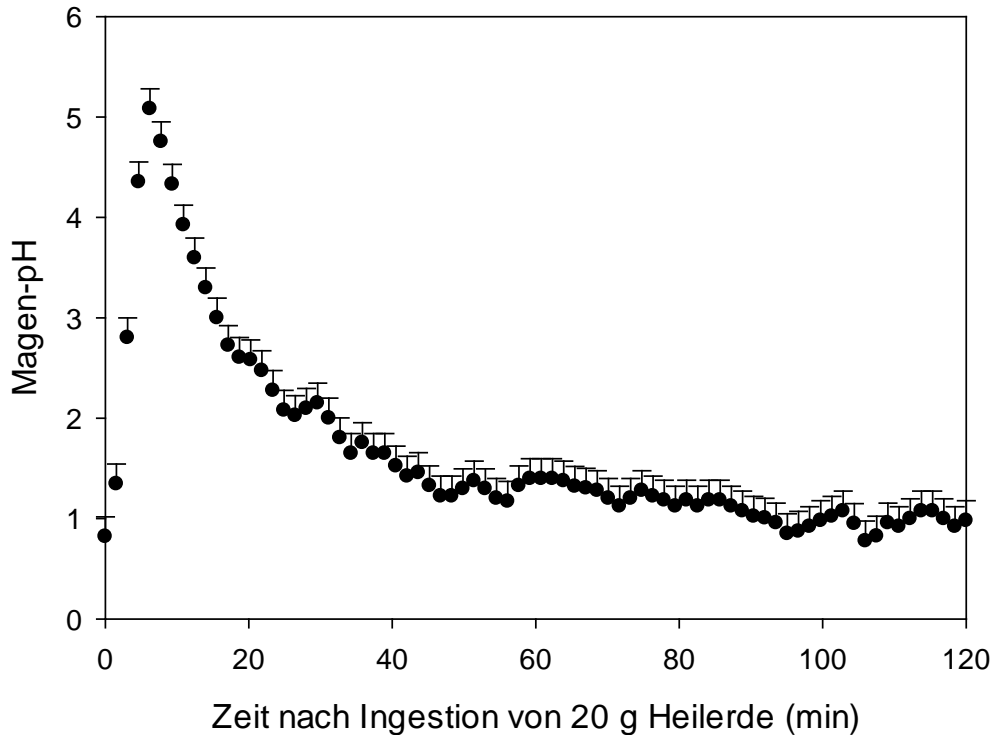


Abb. 2.3.2 Verlauf des *in vivo* Magen-pH über 2 Stunden nach dem Verzehr von Heilerde (20 g) eines Probanden (angegeben sind Mittelwert und Unsicherheit).

Nach nächtlichem Fasten betrug der pH-Wert des Probanden etwa $1,0 \pm 0,2$. Nach der Ingestion von Heilerde war ein rascher Anstieg des Magen-pH-Wertes bis auf pH 5,1 innerhalb von 6 min erkennbar, gefolgt von einem langsamen Rückgang des pH-Wertes. Etwa 30 min nach der Heilerde-Ingestion lag der Magen-pH-Wert bei 2,0 und sank weiter bis etwa pH 1,0 innerhalb der nächsten 60 Minuten. Für die restlichen 30 min, blieb der Magen-pH bei etwa $1,0 \pm 0,2$. Diese Daten entsprechen im Mittel einem Magen-pH-Wert von 1,6 (arithmetischer Mittelwert) bzw. 1,3 (Median); d.h. während der Versuchsdauer bewegte sich der Magen-pH in einem Bereich von pH 1 und pH 2. Diese Information wurde für den Löslichkeitstest ausgenutzt, indem neben dem empfohlenen stabilen pH von 2 (Simulation der Magenphase) noch zwei weitere alternative Magen-pH-Werte verwendet wurden, während alle anderen Parameter des *in vitro* Löslichkeitstests beibehalten wurden; d.h. die eine Alternative war die konstante Einstellung des Magen-pH-Wertes auf pH 1; die andere Alternative bestand in der variablen Einstellung des pH-Wertes nach dem Verlauf des Magen-pH-Wertes während des pH-Metrie-Experimentes. Dieses pH-Muster stellte die reale „physiologische“ Magen-pH-Situation in Bezug auf die Ingestion von Heilerde dar.

2.3.3.3 *In vitro* Löslichkeitstest und Bestimmung von DF

Die Ergebnisse der Löslichkeitstests mit den verschiedenen Magen-pH-Werten sind in **Abbildung 2.3.3** dargestellt.

Die angegebenen Löslichkeitswerte beziehen sich auf die Gesamtmenge von Uran von $2,59 \text{ mg/kg} \pm 0,08 \text{ mg/kg}$ (Mittelwert \pm SD). Bei Verwendung eines durchweg stabilen Magen-pH-

Werts von pH 2 waren $7,6\% \pm 0,5\%$ (Mittelwert \pm SD) ^{238}U aus dem Boden in der synthetischen Magen-Darmflüssigkeit nach Zentrifugation löslich. Eine zusätzliche Filtration (bei $0,45\ \mu\text{m}$ und $0,2\ \mu\text{m}$) veränderten die Löslichkeitswerte kaum. Ebenso zeigte sich keine Veränderung der Messergebnisse bei dem variablen "physiologischen" Magen-pH-Status entsprechend den Ergebnissen der Magen-pH-Metrie, auch unabhängig davon, ob weitere Filtrationsschritte oder nicht angewendet wurden. Dazu hatte im Vergleich ein stabiler Magen-pH-Wert von pH 1 ebenso keinen nennenswerten Einfluss auf die Löslichkeit von Uran aus der Heilerde. Die Löslichkeit der nicht zentrifugierten, aber gefilterten Proben wiesen auch keine offensichtlichen Unterschiede auf.

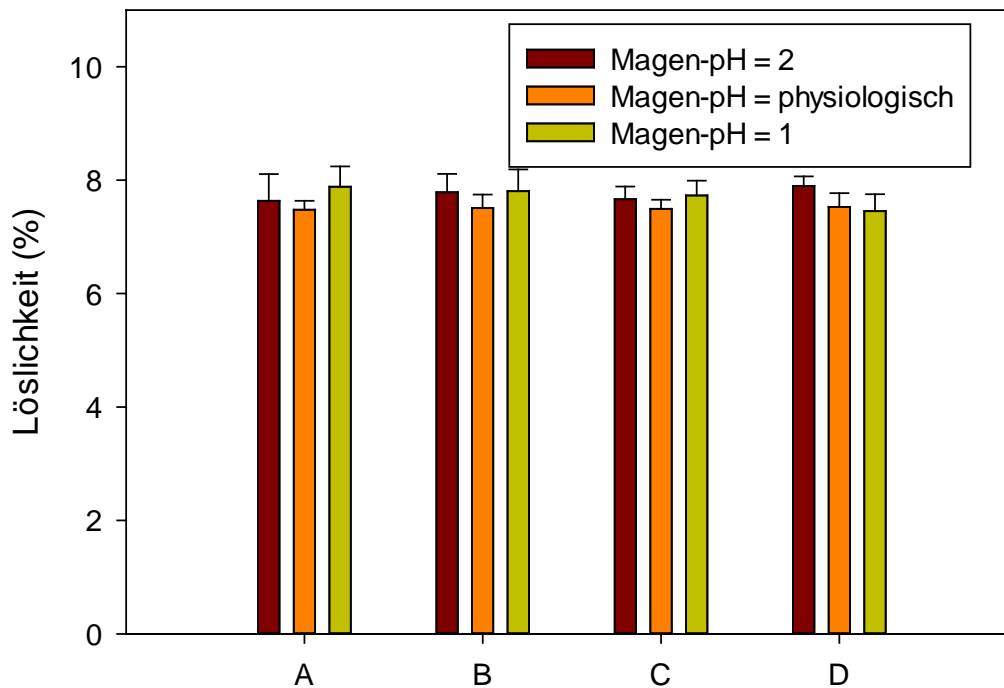


Abb. 2.3.3 Löslichkeit von ^{238}U aus Heilerde in einer synthetischen gastrointestinalen Flüssigkeit (Mittelwert \pm Standardabweichung, $n=3$). Vor der Messung mit ICP-MS wurden die Proben (A) zentrifugiert, (B) zentrifugiert und filtriert bei $0,45\ \mu\text{m}$, (C) zentrifugiert und filtriert bei $0,2\ \mu\text{m}$ oder (D) nicht zentrifugiert, aber filtriert bei $0,2\ \mu\text{m}$.

Die Ergebnisse zeigen hiermit eindeutig, dass es keine wesentlichen Änderungen der Löslichkeit von Uran weder bei den unterschiedlichen Magen-pH-Werten (im Bereich von pH 1 und 2) noch zwischen gefilterten oder ungefilterten Proben gab. Bei allen weiteren Tests zur Löslichkeit von Uran aus Böden wurde der stabile Magen-pH von 2 beibehalten, sowie der Zentrifugationsschritt und die Filtration bei $0,2\ \mu\text{m}$.

Als Endergebnis wurde ein Löslichkeitswert (DF) von $7,7\% \pm 0,2\%$ (Mittelwert \pm SD) ermittelt.

2.3.3.4 Humanstudie - Bestimmung von f_A

Die Probanden, die an der Studie teilgenommen haben, erhielten einmalig eine Menge von 20 g Heilerde, die einer Menge von $51,8 \pm 1,6 \mu\text{g } ^{238}\text{U}$ (Mittelwert \pm SD) entspricht. Die tägliche Urinausscheidung von ^{238}U ist in Abbildung 2.3.4 dargestellt. Die Ergebnisse wurden zur Bestimmung der spezifischen Bioverfügbarkeit (f_A) von ^{238}U aus der Heilerde verwendet. Vor der Ingestion der Heilerde betrug die mittlere tägliche Ausscheidung von Uran über 3 Tage 11,4 - 12,7 ng (Medianwerte). Dieses Ergebnis zeigte eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen einer Studie von 113 deutschen Freiwilligen (3 - 92 Jahre), bei der eine tägliche Uranausscheidung von 14,4 ng (Median) messbar war (Oeh 2007).

Die mittlere Ausscheidung von ^{238}U nach der Ingestion von Heilerde erhöhte sich am Tag 4 um etwa 6,4 ng ^{238}U (im Vergleich zu Tag 3). Im Laufe der nächsten zwei Tage (Tag 5, Tag 6) sank die tägliche ^{238}U -Ausscheidung wieder auf Blindwert-Niveau ab. Eine erhöhte interindividuelle Variabilität ist deutlich erkennbar.

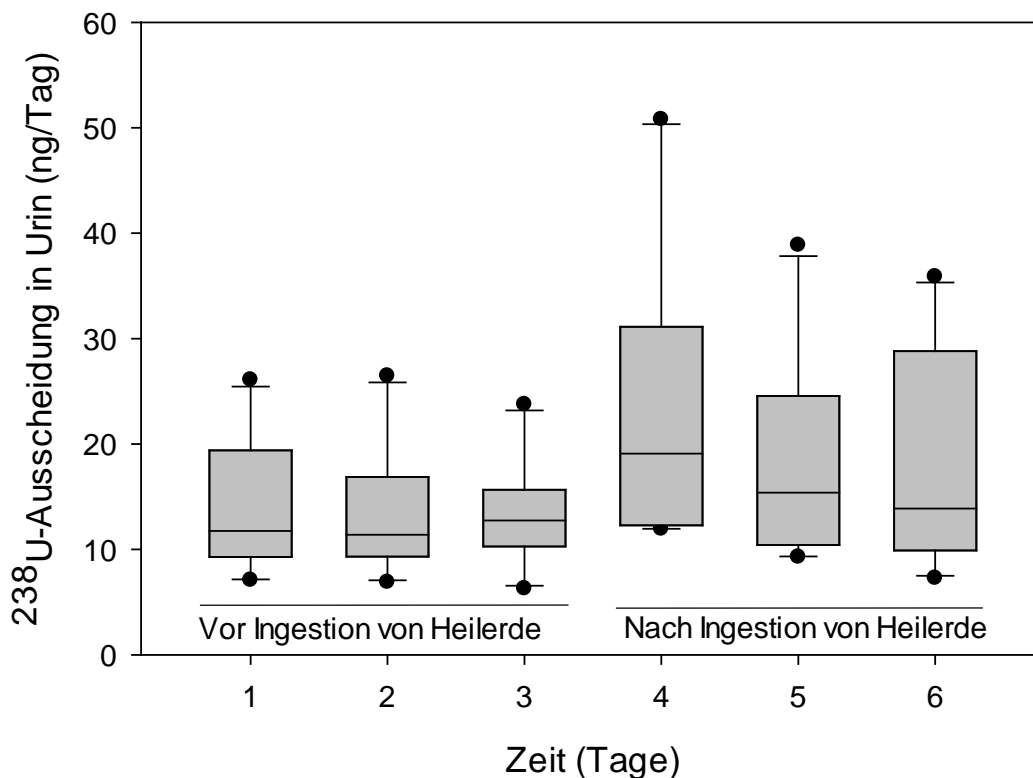


Abb. 2.3.4 Boxplot-Darstellung: tägliche Urinausscheidung von ^{238}U bei 10 Probanden. Nach 3 Tagen erhielten alle Probanden (am Tag 4) jeweils 20 g Heilerde, entsprechend $51,8 \mu\text{g } ^{238}\text{U}$.

Um die Bioverfügbarkeit (f_A) von ^{238}U aus der Heilerde für jeden der zehn Probanden zu bestimmen, wurde das biokinetische Modell der ICRP angewendet. Eine negative Bioverfügbarkeit von -0.01% wurde für einen Probanden aufgrund eines relativ hohen Blindwertes am Tag 1 ermittelt und daher nicht in weitere Berechnungen einbezogen. Die Ergebnisse der restlichen neun Freiwilligen sind in **Abbildung 2.3.5** (obere Abbildung) dargestellt. Entsprechend früherer Veröffentlichungen über die tägliche Ausscheidung von

Uran (Li 2005) wurde eine Log-Normalverteilung angenommen. Daher sind die f_A -Werte in einem Wahrscheinlichkeits-(*probability*)-Diagramm (**Abbildung 2.3.5**, untere Grafik) dargestellt. Das geometrische Mittel (GM) sowie die geometrische Standardabweichung (GSD) der Bioverfügbarkeit betragen 0,04% bzw. 2,9, mit 95% Konfidenzintervall von 0,0049% bis 0,34%.

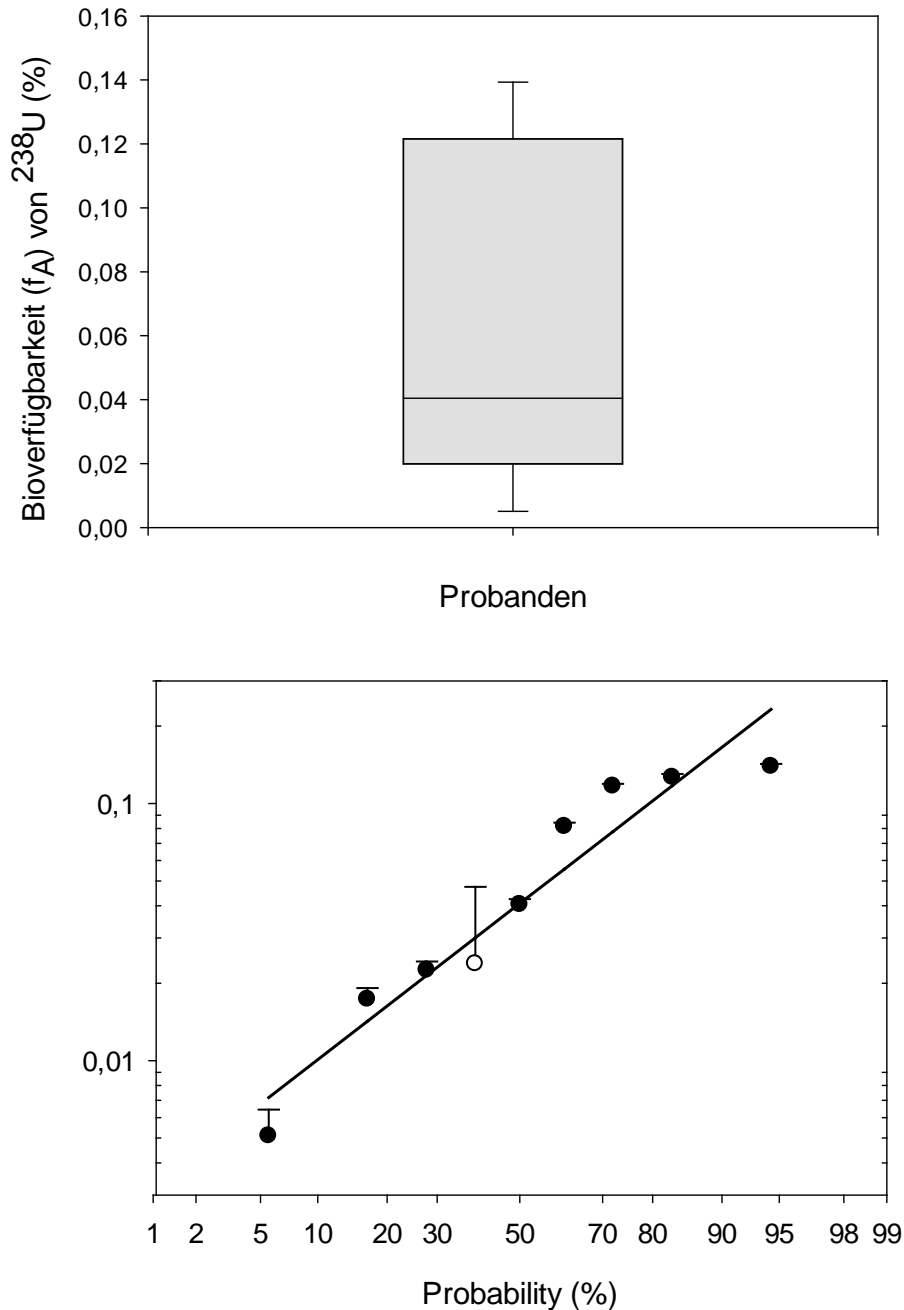


Abb. 2.3.5 Bioverfügbarkeit (f_A) von ^{238}U , experimentell ermittelt durch eine Humanstudie nach Ingestion von 20 g Heilerde ($n=9$); dargestellt als Boxplot-Darstellung (oben) und als *probability*-Plot (unten): gemittelte experimentelle Daten mit Standard-Unsicherheit (schwarze Punkte), ein Proband (weißer Punkt) und gefittete Kurve (schwarze Linie).

Wie bereits erwähnt, nahm ein männlicher Proband drei Mal an der Humanstudie teil, um mögliche individuelle Schwankungen sichtbar zu machen. Diese Untersuchungen fanden in einem Abstand von mindestens 2 Monate statt, um Interferenzen zu vermeiden. Die täglichen Ausscheidungen von ^{238}U über 3 Tage vor der Heilerde-Ingestion betragen dabei 4,3 ng/Tag, 8,1 ng/Tag und 9,1 ng/Tag (Median-Werte); die Ergebnisse der Bioverfügbarkeit (f_A) erzielten entsprechend Werte von 0,024%, 0,004% bzw. 0,044%. Trotz dieser geringen Datenmenge wird die intraindividuelle Variation des f_A von etwa einer Größenordnung deutlich, die von dem Urin- ^{238}U Status vor der Ingestion der Heilerde als unabhängig betrachtet werden kann. Dies deutet auf eine allgemeine Intra-Variabilität bei der Aufnahme von Uran durch den Verdauungstrakt hin.

2.3.3.5 Bestimmung des f_A^{sol} -Faktors

In der vorliegenden Studie wurden die Löslichkeit und die entsprechende Bioverfügbarkeit für ^{238}U aus der Heilerde in einer Humanstudie bestimmt. Die Löslichkeit und die Bioverfügbarkeit betragen $7,7\% \pm 0,2\%$ (Mittelwert \pm Standardabweichung) bzw. 0,04% (GM) mit einer GSD von 2,9. Durch Einsetzen dieser Ergebnisse in Gleichung 1 wurde ein f_A^{sol} von 0,53% (GM) mit einem Bereich von 0,06% (2,5. Perzentil) und 4,43% (97,5. Perzentil) ermittelt. Der angegebene Bereich über drei Größenordnungen des f_A^{sol} bedeutet eine relativ hohe interindividuelle Variabilität.

Der in der vorliegenden Studie eingeführte Faktor f_A^{sol} wurde mit in der Literatur vorhandenen Werten von f_1 verglichen. Dies ist möglich und sinnvoll, da beide Faktoren (f_A^{sol} und f_1) für lösliches Uran stehen, das aus dem Verdauungstrakt in den Blutkreislauf resorbiert werden kann. Die **Tabelle 2.3.3** gibt einen Überblick über die verschiedenen f_1 -Werte aus unterschiedlichen früheren Bioverfügbarkeitsstudien im Vergleich zu dem aktuellen Wert (f_A^{sol}) dieser Studie. Drei Studien befassten sich mit einer akuten Uran-Kontamination; hier wurden Bioverfügbarkeitswerte von 0% bis 5% ermittelt. Drei weitere Studien mit chronischer Aufnahme von löslichem Uran zeigten ähnliche Bioverfügbarkeitswerte im Bereich von 0,02% bis 7%. Die Ergebnisse bedeuten, dass es keine großen Unterschiede zwischen dem Faktor f_A^{sol} in der vorliegenden Studie und den angegebenen Bioverfügbarkeitswerten anderer Studien gibt, egal, wie niedrig oder hoch die Konzentration von Uran war, oder ob eine akute oder chronische Kontamination vorlag. Damit ist der f_A^{sol} Wert weder von der Menge des aufgenommenen Urans noch von der Expositionszeit abhängig und somit auch für Böden mit sehr hohen Urangelhalten anwendbar.

Tabelle 2.3.3 Zusammenfassung der aus der Literatur bekannten f_1 -Werte für lösliches Uran im Vergleich zu den f_A^{sol} -Daten der gegenwärtigen Studie

	Aufnahme von Uran	f_A^{sol} (gegenwärtige Studie) oder f_1 für lösliche Uranverbindungen (andere Studien)
gegenwärtige Studie	4 μg^a	0.06% - 4.43% ^c
Karpas et. al. 1998	100 μg^a	0.14% - 1.56%
Harduin et. al. 1994	162 μg^a	0.5% - 5% ^d
Wrenn et. al. 1989	~270 μg^a	0% - 3.5% ^d
Harduin et. al. 1994	81 $\mu\text{g}/\text{Tag}^b$	0.3% - 2% ^d
Limson Zamora et. al. 2003	0.37 to 573 $\mu\text{g}/\text{Tag}^b$	0.1% - 6.3%
Karpas et. al. 2005	10 - 2,775 $\mu\text{g}/\text{Tag}^b$	0.02% - 7%

^aAkute Ingestion von Uran an einem Tag. ^bChronische Ingestion von Uran, mindesten über 15 Tage. ^cBereich für f_A^{sol} mit einem Konfidenzintervall von 95%. ^dAngezeigte Bereiche basieren auf den Interpretationen von Leggett und Harrison (Leggett and Harrison 1995).

2.3.3.6 *In vitro* Löslichkeitsversuche und rechnerische Bestimmung von f_A nach Ingestion von hochkontaminierten, uranhaltigen Böden/Dünger

Auf Grundlage des in der vorliegenden Arbeit berechneten f_A^{sol} ist es möglich, für den Menschen realistischere Werte für die Bioverfügbarkeit von Uran aus anderen Böden (als der Heilerde) zu erhalten. Dafür wird nur der Löslichkeitstest DIN 19738 benötigt, um für einen bestimmten Boden, den entsprechenden DF-Wert zu gewinnen. Der entsprechende Wert der Bioverfügbarkeit kann dann direkt durch die Anwendung der Gleichung 2.3.1 (s.o.) errechnet werden, ohne die Notwendigkeit, zusätzliche Studien am Menschen durchzuführen. Die daraus resultierende Bioverfügbarkeit f_A kann in dem biokinetischen Kompartiment-Modell von Uran verwendet werden, um eine Verbesserung der internen Dosisabschätzung nach Bodenaufnahme zu erreichen.

Die beiden Bodenproben aus den Uranabbaugebieten und der uranhaltige Dünger wurden, wie in 2.3.2.5 beschrieben, dem Löslichkeitstest unterzogen. **Abbildung 2.3.6** zeigt die Ergebnisse dieser Löslichkeitsexperimente. Die berechneten DF-Werte lagen für die Fertilizer-Probe bei 24%, für die Probe Dresddn-E1 bei 33%, und die Gauern-Probe zeigte mit 53% die höchste Löslichkeit. Im Vergleich dazu lag die Löslichkeit der Heilerde bei 7,7%.

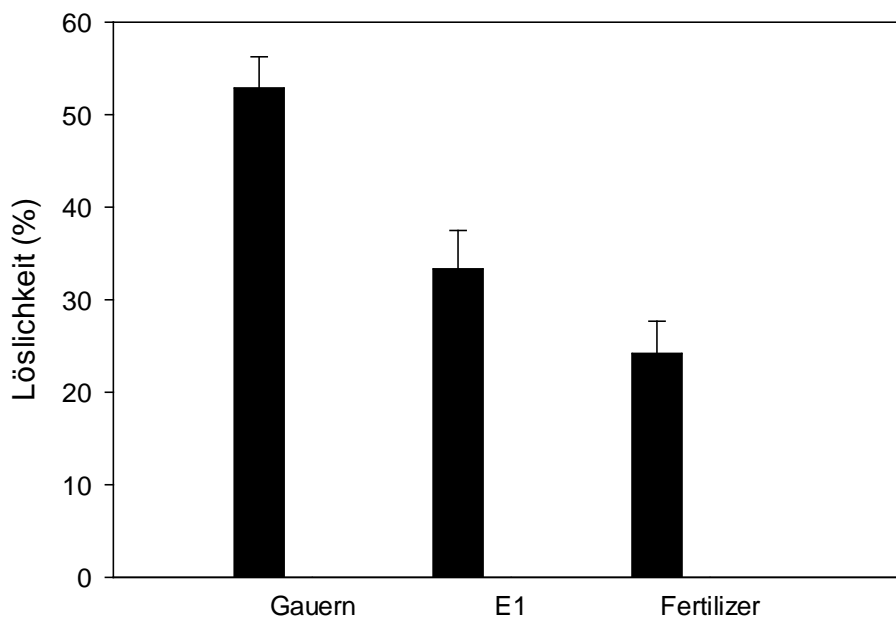


Abb. 2.3.6 Löslichkeit (DF) von ²³⁸U aus den Bodenproben Gauern und E1, und dem Phosphatdünger (Fertilizer) in synthetischem Magen-Darmsaft (Mittelwert ± SD, n=3).

Aus den berechneten DF-Werten und dem zuvor ermittelten f_A^{sol} -Wert wurde die theoretische Bioverfügbarkeit (f_A) für die Böden bzw. Dünger nach Gleichung (2.3.1) ermittelt (**Tabelle 2.3.4**). Die Daten zeigen Bioverfügbarkeiten zwischen 0,13% und 0,28% (geometrisches Mittel, GM); die 2,5. bzw. 97,5. Perzentile sind ebenfalls angegeben, um das Konfidenzintervall von 95% abzudecken. Die berechneten Bioverfügbarkeiten ähneln den ICRP-Daten, die eine Bioverfügbarkeit von 0,2% für relativ unlösliches Uran angeben (ICRP 2006).

Tabelle 2.3.4 Proben-spezifische Bioverfügbarkeit (f_A) für ²³⁸U

	GM (%) ^A	P _{2,5} (%) ^B	P _{97,5} (%) ^C
Gauern	0.28	0.03	2.34
Dresden-E1	0.18	0.02	1.48
Fertilizer	0.13	0.01	1.07

^AGeometrisches Mittel, ^B2,5. Perzentile, ^C97,5. Perzentile

2.3.3.7 Berechnung der effektiven Folgedosis

Das jährliche Expositionsrisiko wurde mittels Gleichung (2.3.6) für alle drei Proben (Böden und Dünger) für ein theoretisches Ingestionsszenario von täglich 10 mg über ein Jahr ermittelt. Neben der täglichen Einnahmemenge I_{soil} und der Expositionsdauer der Ingestion ED waren die probenspezifischen Ingestionsdosis-Koeffizienten DC_i von ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U notwendig. Unter Verwendung der errechneten Bioverfügbarkeitsdaten (**Tabelle 2.3.4**) und dem jeweiligen biokinetischen Modell der ICRP (ICRP 1997) wurden die probenspezifischen Verdauungstrakt-Transferraten (**Tabelle 2.3.5**) berechnet und für das verwendete biokinetische Modell angewendet. Die resultierenden probenspezifischen effektiven Ingestionsdosis-Koeffizienten DC_i sind in **Tabelle 2.3.6** aufgeführt. Die Daten über die spezifischen Aktivitäten $C_{soil,i}$ von ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U der drei Bodenproben sind in **Tabelle 2.3.7** aufgeführt. Die spezifischen Aktivitäten von ^{238}U in den Bodenproben basieren auf eigene Messungen in dieser Arbeit, während die entsprechenden spezifischen Aktivitäten von ^{234}U und ^{235}U auf Literaturdaten basieren (Berglund und Wieser 2011).

Tabelle 2.3.5 Probenspezifische Verdauungstrakt-Transferraten

	GM (d ⁻¹) ^A	P _{2,5} (d ⁻¹) ^B	P _{97,5} (d ⁻¹) ^C
Gauern	1.69×10 ⁻²	1.90×10 ⁻³	1.44×10 ⁻¹
Dresden-E1	1.06×10 ⁻²	1.20×10 ⁻³	8.99×10 ⁻²
Fertilizer	7.70×10 ⁻³	8.70×10 ⁻⁴	6.49×10 ⁻²

^AGeometrisches Mittel, ^B2,5. Perzentile, ^C97,5. Perzentile

Tabelle 2.3.6 Probenspezifische effektive Ingestionsdosis-Koeffizienten

	GM (Sv/Bq) ^A	P _{2,5} (Sv/Bq) ^B	P _{97,5} (Sv/Bq) ^C
Gauern			
²³⁴ U	1.21×10 ⁻⁸	6.30×10 ⁻⁹	6.02×10 ⁻⁸
²³⁵ U	1.15×10 ⁻⁸	6.18×10 ⁻⁹	5.61×10 ⁻⁸
²³⁸ U	1.09×10 ⁻⁸	5.73×10 ⁻⁹	5.41×10 ⁻⁸
Dresden-E1			
²³⁴ U	9.68×10 ⁻⁹	6.03×10 ⁻⁹	4.00×10 ⁻⁸
²³⁵ U	9.31×10 ⁻⁹	5.93×10 ⁻⁹	3.74×10 ⁻⁸
²³⁸ U	8.76×10 ⁻⁹	5.48×10 ⁻⁹	3.60×10 ⁻⁸
Fertilizer			
²³⁴ U	8.55×10 ⁻⁹	5.90×10 ⁻⁹	3.05×10 ⁻⁸
²³⁵ U	8.26×10 ⁻⁹	5.81×10 ⁻⁹	2.86×10 ⁻⁸
²³⁸ U	7.74×10 ⁻⁹	5.37×10 ⁻⁹	2.75×10 ⁻⁸

^AGeometrisches Mittel, ^B2,5. Perzentile, ^C97,5. Perzentile

Tabelle 2.3.7 Probenspezifische Aktivitäten von ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U

	^{234}U (Bq/g)	^{235}U (Bq/g)	^{238}U (Bq/g)
Gauern	6.93	3.21×10^{-1}	6.88
Dresden-E1	5.72	2.65×10^{-1}	5.67
Fertilizer	2.92×10^{-1}	1.35×10^{-2}	2.90×10^{-1}

^AGeometrisches Mittel, ^B2,5. Perzentile, ^C97,5. Perzentile

Die Summe der probenspezifischen jährlichen effektiven Folgedosen der Isotope ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U und ihre radiologisch relevanten Tochternuklide sind in **Tabelle 2.3.8** aufgelistet.

Tabelle 2.3.8 Probenspezifische effektive Folgedosis (tägliche Ingestion von 10 mg über 1 Jahr)

	GM (Sv) ^A	P _{2,5} (Sv) ^B	P _{97,5} (Sv) ^C
Gauern			
^{234}U	3.06×10^{-7}	1.59×10^{-7}	1.52×10^{-6}
^{235}U	1.35×10^{-8}	7.24×10^{-9}	6.57×10^{-8}
^{238}U	2.74×10^{-7}	1.44×10^{-7}	1.36×10^{-6}
Σ	5.94×10^{-7}	3.11×10^{-7}	2.95×10^{-6}
Dresden-E1			
^{234}U	2.02×10^{-7}	1.26×10^{-7}	8.34×10^{-7}
^{235}U	8.99×10^{-9}	5.73×10^{-9}	3.61×10^{-8}
^{238}U	1.81×10^{-7}	1.14×10^{-7}	7.45×10^{-7}
Σ	3.92×10^{-7}	2.45×10^{-7}	1.62×10^{-6}
Fertilizer			
^{234}U	9.12×10^{-9}	6.29×10^{-9}	3.25×10^{-8}
^{235}U	4.08×10^{-10}	2.87×10^{-6}	1.41×10^{-9}
^{238}U	8.20×10^{-9}	5.68×10^{-9}	2.91×10^{-8}
Σ	1.77×10^{-8}	1.23×10^{-8}	6.30×10^{-8}

^AGeometrisches Mittel, ^B2,5. Perzentile, ^C97,5. Perzentile

Σ ist die Summe der probenspezifischen effektiven Folgedosis der Isotope ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U und ihrer radiologisch relevanten Tochternuklide

Die Bodenprobe "Gauern" hatte mit 553 mg/kg die höchste Gesamtkonzentration von Uran und auch die höchste Bioverfügbarkeit von Uran (53%); sie zeigte ebenso die höchste

jährliche effektive Folgedosis von 6×10^{-7} Sv (GM), mit einem Bereich von $3,11 \times 10^{-7}$ Sv (2,5. Perzentil) bis $2,93 \times 10^{-6}$ Sv (97,5. Perzentil).

Diese Ergebnisse sind den effektiven Folgedosen für natürliches Uran aus Lebensmitteln und Trinkwasser mit 0,5 μ Sv pro Jahr für Erwachsene sehr ähnlich (UNSCEAR 2000). Eine tägliche Ingestion von 10 mg „Gauern“-Probe würde eine tägliche Aufnahme von 5,57 μ g Uran bedeuten. Dieser Wert entspricht etwa der täglichen Aufnahme von 1,25 μ g Uran durch Lebensmittel und Trinkwasser. Des Weiteren ist zu erwähnen, dass die effektive Folgedosis von etwa 3,0 μ Sv (97,5. Perzentil) bei dem in dieser Arbeit beschriebenen Ingestionsszenario um etwa drei Größenordnungen kleiner ist als die durchschnittliche jährliche natürliche Untergrund-Effektivdosis von 2,4 mSv (UNSCEAR 2008).

2.3.3.8 Validierung der Dosisberechnung

Die hier berechneten Koeffizienten der effektiven Folgedosis für die Ingestion der natürlich vorkommenden Isotope ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U und ihrer radiologisch relevanten Tochternuklide wurden mit den effektiven Folgedosis-Koeffizienten der ICRP (ICRP 1995) verglichen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 9 aufgeführt. Sie basieren auf einer beispielhaften Aufnahme von 1 Bq ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U und einem f_1 -Faktor für Uran von 2% (ICRP 1995). Die Unterschiede beider Herangehensweisen zur Dosisberechnung der Zerfallsprodukte sollten sich laut ICRP um weniger als 5% (ICRP 1995a) voneinander unterscheiden. Die in dieser Arbeit berechneten Dosen für die drei Uran-Isotope ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U waren nicht mehr als 4% höher als die Dosen der ICRP. Dementsprechend ist die hier in der Arbeit angewandte Methode der Dosisberechnung mit der ICRP-Methode übereinstimmend.

Tabelle 2.3.9 Effektive Folgedosis-Koeffizienten (für Ingestion)

	ICRP 69 (Sv/Bq)	Eigene Methode (Sv/Bq)
^{234}U	5.0×10^{-8}	5.2×10^{-8}
^{235}U	4.7×10^{-8}	4.9×10^{-8}
^{238}U	4.5×10^{-8}	4.7×10^{-8}

2.3.4 Schlussfolgerung

Basierend auf den experimentellen Daten dieser Arbeit und unserer Annahme einer täglichen Aufnahme von je 10 mg hochkontaminierter Bodenproben oder Dünger, kann angenommen werden, dass weder die untersuchten Uranbergbauböden noch der uranhaltige Dünger ein wesentliches Strahlenrisiko für die Bevölkerung darstellt.

Im Rahmen der Humanstudie wurden lediglich erwachsene Probanden im Alter von 22-55 Jahren für die Abschätzung von f_A bzw. f_A^{sol} betrachtet. Daher ist davon auszugehen, dass der abgeleitete Faktor f_A^{sol} nicht direkt auf Kinder übertragbar ist, da Kinder im Vergleich zu

Erwachsenen eine zwei- bis zehnfach erhöhte Boden-Ingestionsrate besitzen (Stanek 1997, Stanek 2012; UNSCEAR 2013).

Die ICRP (1995) berichtet zudem von erhöhten effektiven Folgedosis-Koeffizienten für Uran für Kinder (1,5 - 2,7-fache Erhöhung im Vergleich zu Erwachsene). Dieser Anstieg basiert auf einer angenommenen Bioverfügbarkeit von Uran von 2% für Erwachsene und für Kinder. Darüber hinaus kann nach neuesten Daten auch von einer 2,4-fachen Erhöhung der Bioverfügbarkeit von Uran bei Kindern zwischen dem 1. und 7. Lebensjahr ausgegangen werden (Chen 2011). Somit kann eine erhöhte effektive Dosis von ein bis zwei Größenordnungen bei Kindern angenommen werden.

2.3.5 Referenzen

Abrahams, P. W., Soils: their implications to human health. *Sci. Total Environ.* 2002, 291, (1-3), 1-32.

Berglund M, Wieser ME (2011) Isotopic compositions of the elements 2009 (IUPAC Technical Report). *Pure Appl Chem* 83 (2):397-410

Bleise, A.; Danesi, P. R.; Burkart, W., Properties, use and health effects of depleted uranium (DU): a general overview. *J. Environ. Radioact.* 2003, 64, (2-3), 93-112.

Bolch, W.E., Eckerman, K.F., Sgouros, Thomas, S.R. (2009). MIRDO Pamphlet No. 5146 21: A generalized schema for radiopharmaceutical dosimetry - Standardization 5147 of Nomenclature. *J Nucl Med* 50, 477-484

Chen, J.; Lariviere, D.; Timmins, R.; Verdecchia, K., Estimation of uranium GI absorption fractions for children and adults. *Radiat. Prot. Dosimetry* 2011, 144, (1-4), 379-83.

DIN, Water quality - Application of inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) - Part 2: Determination of 62 elements (ISO 17294-2:2003); German version EN ISO 17294-2:2004. In 2005-02; Vol. DIN EN ISO 17294-2:2005-02.

DIN, Soil Quality - Absorption availability of organic and inorganic pollutants from contaminated soil material. DIN E 19738. In Deutsches Institut für Normung, Berlin, Germany, 2000; Vol. DIN E 19738.

Harduin, J. C.; Royer, P.; Piechowski, J., Uptake and urinary excretion of uranium after oral administration in man. *Radiat. Prot. Dosimetry* 1994, 53, (1-4), 245-248.

Höllriegel V, Li WB, Leopold K, Gerstmann U, Oeh U (2010) Solubility of uranium and thorium from a healing earth in synthetic gut fluids: a case study for use in dose assessments. *Sci. Total Environ.* 408 (23):5794-5800.

ICRP (1979) Limits for intakes of radionuclides by workers. Part 1. ICRP Publication 30 (Supplement to Part 1). International Commission on Radiological Protection, Oxford, UK

ICRP (1983) Radionuclide transformations: Energy and intensity of emissions. ICRP Publication 38. International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, UK

ICRP (1989) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 1. Publication 56. International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford

ICRP (1991) 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60. International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, UK

- ICRP (1995) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 3: Ingestion dose coefficients. Publication 69. International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, UK
- ICRP (1997) Individual monitoring for internal exposure of workers. ICRP Publication 78. International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford, UK
- ICRP (2006) Human alimentary tract model for radiological protection. ICRP Publication 100. International Commission on Radiological Protection, Elsevier, Oxford, UK
- ICRP (2007) The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. International Commission on Radiological Protection, Elsevier, Oxford, UK
- ICRP (2008) Nuclear decay data for dosimetric calculations. ICRP Publication 107. International Commission on Radiological Protection, Elsevier, Oxford, UK
- Jovanovic, S. V.; Pan, P.; Wong, L., Bioaccessibility of uranium in soil samples from Port Hope, Ontario, Canada. *Environ. Sci. Technol.* 2012, 46, (16), 9012-8.
- Karpas, Z.; Lorber, A.; Elish, E.; Kol, R.; Roiz, Y.; Marko, R.; Katorza, E.; Halicz, L.; Riondato, J.; Vanhaecke, F.; Moens, L., Uptake of ingested uranium after low "acute intake". *Health Phys.* 1998, 74, (3), 337-45.
- Karpas, Z.; Paz-Tal, O.; Lorber, A.; Salonen, L.; Komulainen, H.; Auvinen, A.; Saha, H.; Kurttio, P., Urine, hair, and nails as indicators for ingestion of uranium in drinking water. *Health Phys.* 2005, 88, (3), 229-42.
- Li, W. B.; Roth, P.; Wahl, W.; Oeh, U.; Höllriegl, V.; Paretzke, H. G., Biokinetic modeling of uranium in man after injection and ingestion. *Rad. Environ. Biophysics* 2005, 44, (1), 29-40.
- Limson Zamora, M.; Zielinski, J. M.; Meyerhof, D.; Moodie, G.; Falcomer, R.; Tracy, B., Uranium gastrointestinal absorption: the f₁ factor in humans. *Radiat. Prot. Dosimetry* 2003, 105, (1-4), 55-60.
- Leggett RW, Harrison JD (1995) Fractional absorption of ingested uranium in humans. *Health Phys* 68:484-498
- Oeh, U.; Priest, N. D.; Roth, P.; Ragnarsdottir, K. V.; Li, W. B.; Höllriegl, V.; Thirlwall, M. F.; Michalke, B.; Giussani, A.; Schramel, P.; Paretzke, H. G., Measurements of daily urinary uranium excretion in German peacekeeping personnel and residents of the Kosovo region to assess potential intakes of depleted uranium (DU). *Sci. Total Environ.* 2007, 381, (1-3), 77-87.
- Simon SL (1998) Soil ingestion by humans: a review of history, data, and etiology with application to risk assessment of radioactively contaminated soil. *Health Phys.* 74 (6):647-672.
- Schnug E, Lottermoser BG (2013) Fertilizer-derived uranium and its threat to human health. *Environ. Sci. Technol.* 47 (6):2433-2434.
- Sing, D.; Sing, C. F., Impact of direct soil exposures from airborne dust and geophagy on human health. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 2010, 7, (3), 1205-23.
- Stanek, E. J., 3rd; Calabrese, E. J.; Barnes, R.; Pekow, P., Soil ingestion in adults--results of a second pilot study. *Ecotox. Environ. Safety* 1997, 36, (3), 249-57.
- Stanek, E. J. 3rd.; Calabrese, E. J.; Xu, B., Meta-analysis of mass-balance studies of soil ingestion in children. *Risk Anal.* 2012, 32, (3), 433-47.
- Träber, S., Höllriegl, V., Li, W.B., Czelik, U., Rühm, W., Oeh, U, Michalke, B. Estimating the absorption of soil-derived uranium in humans. *Environ. Sci. Technol.*, 48, 14721-14727.
- UNSCEAR (2000) Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York

UNSCEAR (2008) Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York

UNSCEAR (2013) Sources, effects and risks of ionizing radiation, Annex B - Effects of radiation exposure of children. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York

WHO Depleted uranium: Sources, exposure and health effects; The World Health Organisation: Geneva, Switzerland, 2001.

Wrenn, M. E.; Singh, N. P.; Ruth, H.; Rallison, M. L.; Burleigh, D. P., Gastrointestinal absorption of soluble uranium from drinking water by man. *Radiat. Prot. Dosimetry* 1989, 26, (1-4), 119-122.

2.4 Arbeitspaket 3.3: Probandenspezifische Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers

P. Nogueira, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz

2.4.1 Introduction

Accidental or occupational exposures to radionuclides can result in the internal contamination of workers and members of the public. In such cases the accurate estimation of the internal contamination is fundamental for occupational legal issues, and in case of large incorporation activity, for determination of the proper medical treatment procedure which will depend on the type of radionuclide incorporated (Cohen, Spitz et al. 1977). For gamma emitting radionuclides the direct *in-vivo* measurement using gamma detectors is the most typical method used, as it allows a rapid determination the radionuclide incorporated. However, since direct measurements are dependent on the measurement geometry, the estimation of any incorporated activity by *in-vivo* methods is dependent on the calibration of the detection system with an anatomical phantom containing a known activity of the radionuclide of interest, so that it simulates the characteristics of an individual (Carinou, Koukouliou et al. 2007).

Due to the morphological variability among individuals, it is necessary to conduct several calibration procedures to better estimate the incorporated activity (Kramer, Burns et al. 2002). These procedures are expensive not only because they require the use of several phantoms, but also because they are a time-consuming processes (Carinou, Koukouliou et al. 2007). These disadvantages make computational methods like Monte Carlo methods very attractive for modelling such systems. Furthermore, the use of Monte Carlo simulations in the calibration of detection systems has already been proven to be a powerful tool, with the advantage of being less expensive, as well as time-saving (Kramer, Burns et al. 2002, Gualdrini, Daffara et al. 2005, Moraleda, Gómez-Ros et al. 2005, Kramer and Hauck 2006). The use of Monte Carlo simulations should not preclude the use of physical calibrations: they are suitable for studying the parameters and better understanding the behaviour of the detection system, as well as extrapolating results to different geometries when the appropriate phantoms are not available (Genicot, Koukouliou et al. 2008).

In this work a dedicated counting system (partial body counter (PBC)) that is available at the Helmholtz Zentrum München (HMGU) and that is dedicated to the detection of radionuclides accumulated in the human skeleton such as ^{210}Pb , ^{241}Am and ^{226}Ra emitting low-energy photons; was experimentally calibrated using three physical phantoms of the human head. These calibrations were validated by comparing with several international reference laboratories in the frame of an international intercomparison promoted by the European Radiation Dosimetry Group (EURADOS). In addition using Monte Carlo methods the PBC detection system was simulated and using voxel models from the physical phantoms in the comparison used, the experimental measurements could be reproduced. Finally a realistic anthropomorphic voxel model based on the CT scan of a real human head was implemented in the Monte Carlo simulations and modified so that the impact in the PBC detection efficiency could be studied for individual body parameters such as the scalp thickness and skull size. As a result of these efforts, “individual-specific” calibration factors were obtained, which improve the accuracy on the quantification of the incorporated activity and corresponding internal dose for a particular patient. The individual calibrated of the HMGU

PBC was applied for two real contaminated cases involving the accidental incorporation of ^{241}Am .

2.4.2 Materials and Methods

2.4.2.1 Description of Partial Body Counter used

The partial body counter at HMGU is composed of four high purity germanium detectors mounted independently in four supporting that provide highly flexible measurement geometries, see **Figure 2.4.1**. The design of all detectors was optimized for the measurement of low gamma energies: the detectors' crystal dimensions are characterized by a big diameter and a small thickness which reduces the detection efficiency for high energies and also reduces the background contribution resulting from the Compton scattering from ^{40}K that is naturally present in the human body. Also the construction materials used have a low radioisotope content, and in addition all detectors have an especially long necktube (connection between the dewar and the end cap), in order to reduce the background contribution from the dewar and preamplifier materials.



Figure 2.4.1: Partial body counter germanium detectors in skull measurement geometry configuration, on the right detector 2, on the left detector 3, in the middle detector 4, on the top detector 6.

2.4.2.1.1 Counting chamber

The counting chamber walls and roof are composed of a graded shielding with 140 mm old steel, 4 mm lead and 2 mm copper. This provides not only the reduction of external natural background, but the graded set of materials also reduces the fluorescent x-ray escape peaks that can be produced from photoelectric absorption of gamma rays by the shielding (Gilmore 2008). The entrance to this chamber is labyrinth shaped and composed of 140 mm old steel

walls and roof. The chamber dimensions are 3 m × 1.5 m × 2.1 m. It is located in a room 8 m below the surface of the Earth, in order to reduce the natural cosmic ray background.

Additional precautions are taken in order to avoid the contamination of the room by ^{137}Cs from the Chernobyl fallout and a set of filters is used in the ventilation system to reduce the presence of radon in the air.

2.4.2.2 Calibration phantoms

2.4.2.2.1 USTUR case 102

The United States Transuranium and Uranium Registries (USTUR, U.S.A) case 102 phantom (**Figure 2.4.2**) represents a whole body phantom with movable parts, containing a human skeleton with a natural metabolic ^{241}Am activity incorporation in the bone matrix. The skeleton belonged to a doctoral student who was accidentally exposed by internal ^{241}Am contamination between 1952 and 1954, possibly during the handling of an unsealed ^{241}Am source (no information concerning the chemical compound available). The contamination was only found in 1958 at the occasion of a urinary excretion measurement. It is believed that the primary contamination was through a wound in his left hand, based on postmortem analyses. The total ^{241}Am uptake was between 7400 Bq and 40700 Bq, depending on the models and calibration factors used. No chelation therapy was applied to reduce the ^{241}Am activity incorporated (Breitenstein, Newton et al. 1985).

In 1979 case 102 became the first whole-body donation to the USTUR (Breitenstein, Newton et al. 1985). The cause of death was a metastatic malignant melanoma which involved all the soft tissues and organs (Breitenstein, Newton et al. 1985).

Gamma spectrometry revealed a symmetrical distribution between the left and right side of the body, and using a method developed by Cohen, Spitz et al. (1977) to estimate the total ^{241}Am skeleton content from *in-vivo* measurements in the head, good agreement between the gamma measurements and radiochemistry results, 3700 Bq and 4406.7 Bq, respectively, was found (Breitenstein, Newton et al. 1985, Palmer, Spitz et al. 1985).

In summary the USTUR case 102 human skull phantom consists of ^{241}Am contaminated skull bones on the right side, which was completed with non-contaminated skull bones on the left side. The total skull was filled and covered with tissue-equivalent material (Hickman and Cohen 1988). A recent re-evaluation of the activity content indicates that this skull phantom contains $287.2 \text{ Bq} \pm 3.7 \text{ Bq}$ of ^{241}Am at the reference date 2012-1-1 (Tolmachev 2012).

2.4.2.2.2 BfS Phantom

The BfS phantom (**Figure 2.4.2**) is a skull phantom with human bone artificially contaminated with ^{241}Am . It was produced by the New York Medical Center, for the Federal Office of Radiation Protection (BfS, Germany).

The inside of the phantom is filled with small spheroids of soft-tissue-equivalent wax and the outside is covered with a layer of soft-tissue-equivalent wax with a constant thickness that corresponds to the average thickness of soft tissue covering the human skull of an average person (Laurer 1993). The activity was artificially put on the bone surfaces as follows: small rectangular pieces of absorbent paper filter were impregnated, via calibrated syringe, with a known amount of ^{241}Am solution (Laurer 1993). These activated filter papers were distributed in the bone surface as following: 3000 Bq on the outside bone surface and 2400 in the inside

bone surface, resulting in a total activity of $5400 \text{ Bq} \pm 113.4 \text{ Bq}$ at the reference date 1993 March 1 (Laurer 1993).

2.4.2.2.3 CSR Phantom

The CSR skull phantom (**Figure 2.4.2**) is a completely artificial phantom that represents the top of a human head. This phantom is the product of a collaboration between the National Radiation Protection Institute (NRPI, Czech Republic) and the Slovak Medical University Bratislava (SZU, Slovak Republic). The bone is made of gauze and gypsum and the soft tissue of elastic polyurethane GAFORM E45. It contains $981.4 \text{ Bq} \pm 9.8 \text{ Bq}$ of ^{241}Am at the reference date 2012-1-1, that was implanted in the gauze and gypsum in the form of drops, distributed in 418 nodes of a square net, 228 drops outside and 192 drops inside (Fojtik 2011, Vrba, Malátová et al. 2013).

Due to the geometry and shape of this phantom, only one position corresponding to the top centre of the phantom was defined for measurement.



Figure 2.4.2: Head phantoms used for the HMGU PBC calibration: USTUR case 102 phantom, CSR phantom and BFS phantom, from left to right.

2.4.2.3 Monte Carlo Simulations

In Partial Body Counting, the estimation of any incorporated activity is intrinsically dependent on the calibration of the detection system with an anatomical phantom containing a known activity of the radionuclide of interest, so that it simulates the characteristics of an individual who has been internally contaminated with that radionuclide. The availability of the proper phantom and calibration source represents one of the main limitations of this method. Additionally due to the morphological variability among individuals, it is necessary to conduct several calibration procedures to better estimate the incorporated activity (Kramer, Burns et al. 2002). These procedures are expensive not only because they require the use of several phantoms, but also because they represent a time-consuming processes (Carinou, Koukoulidou et al. 2007). These disadvantages make computational methods like Monte Carlo very attractive for modelling such systems.

The Monte Carlo method is a popular tool since it allows solving complex problems, through the use of pseudo-random numbers. There are several reports on the application of this method in the human history; however the official birthday was only in 1949 with the publication of a paper titled “The Monte Carlo Method” by Metropolis and Ulam (Metropolis and Ulam 1949, Dimov 2000).

In this work the Monte Carlo codes MCNPX and GEANT4 were used. Both codes are significantly different in their philosophy, advantages and disadvantages.

All Monte Carlo calculations were performed using an Intel(R) Core (TM) i3 CPU. However, the MCNPX calculations were performed in a Microsoft Windows XP operating system and the GEANT4 calculations were performed in a GNU/Linux UBUNTO operating system. No variance reduction method was used, so in order to reduce the relative statistical uncertainty to levels below 1%, it was in general necessary to simulate 10^8 particles histories. In MCNPX this calculation required 130 min and 210 min of CPU time for the simulation of a point source and a voxel phantom respectively. In contrast for the GEANT4 this calculation required 60 min and 420 min of CPU time for the simulation of a point source and for the simulation of a Voxel phantom, respectively.

2.4.2.3.1 Detector model – definition and validation

The detector 3 modelling included all main structures and materials that compose the detector, except for the electronic components of the detector. The nominal dimensions of the different components were provided by the manufacturer. The germanium crystal has a 25 mm radius and 10 mm length. The front and side contacts (dead layers) (0.5 μm thickness) and the back contact (0.5 mm thickness and 12 mm radius) were also simulated. The bevel with 2.5 mm radius in the front edge of the crystal has also been implemented. The crystal is placed inside a aluminium cup and enclosed by an aluminium end cap with 35 mm radius, 1.5 mm thickness and a 25 mm radius entrance with a 1.1 mm thick carbon fiber window positioned at 5 mm distance from the crystal front dead layer.

Discrepancies between the computational and measurement results are usual, and typically arise from the lack of accurate knowledge of the real dimensions of the detector. The main sources of bias are the dead layer thickness which increases with time due to lithium diffusion, and depends on storage conditions (Laborie, Le Petit et al. 2000), the crystal to window distance, the crystal length, the crystal radius, and back contact thickness (Helmer, Hardy et al. 2003, Hurtado, García-León et al. 2004, Jurado Vargas and Guerra 2006).

Another factor that can generate discrepancies is the non-alignment of the crystal in relation with the detector end-cap, as can be seen in Johnston (1985). The easiest method to verify this alignment is through X-ray photographs from to different directions (Debertin and Helmer 1988).

As can be seen in **Figure 2.4.4**, detector 3 crystal is aligned with the end-cap, which was confirmed by an additional X-ray photograph taken from a different direction (not showed here). In this image it can also be observed that there are several additional structures in the detector crystal cup that are not represented in the manufactures sheet, besides this few additional information can be deduced concerning such as the fact that the distance between the crystal and the window should be smaller than reported by the manufacturer, see **Figure 2.4.3** and **Figure 2.4.4**.

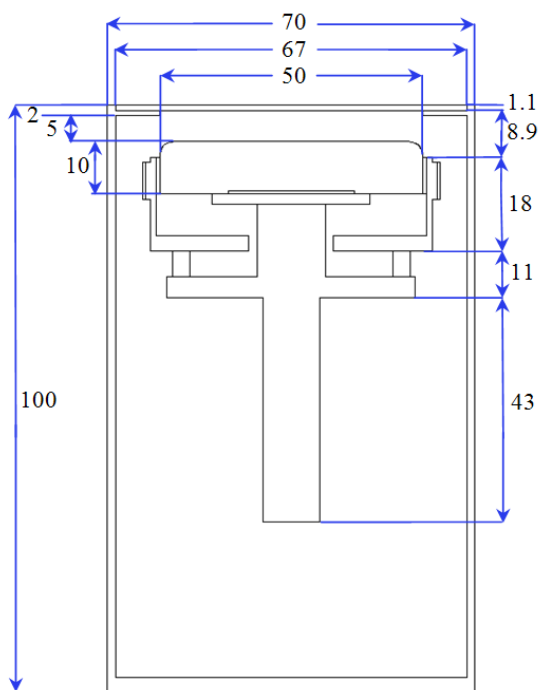


Figure 2.4.3: Cross section view of detector 3 geometry implemented in MCNPX and Geant4 as provided by the manufacture. Dimensions are mm.

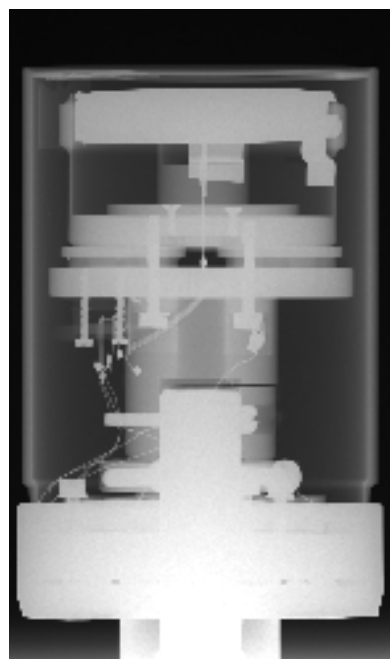


Figure 2.4.4: HMGU Detector 3 radiography with focus in the front of the end cap; generated with 70 kV, 32 mAs exposure.

For the optimization of the geometry used in the MCNPX and GEANT4 simulations, measurements at different distances were performed using point sources of the following radionuclides: ^{241}Am , ^{210}Pb , ^{109}Cd , see **Table 2.4.1**. The sources were positioned in a centre position relative to the detector end cap window and measured at 1 cm and 5 cm distance. These measurement conditions were reproduced in the computational set-up and both results were respectively compared. In a first stage all calculations were performed with MCNPX, then after the conclusion of the optimization process GEANT4 was used.

In order to estimate the accuracy of the results, uncertainty propagation using the Monte Carlo uncertainty and counting statistics uncertainty was performed. Note that no positioning uncertainty was taken in account for the Gaussian uncertainty propagation.

Table 2.4.1: Calibration point sources radionuclide's energies, activities and emission rate in gammas per second.

Radionuclide	Energy (keV)	Activity (Bq)	Uncertainty (Bq)	Emission rate (gps)	Uncertainty (gps)
^{241}Am	26.34	4919	53	113.618	4.1
^{210}Pb	46.54	3603	36	153.137	2.1
^{241}Am	59.54	4919	53	1766.731	20.8
^{109}Cd	88.03	158	2	5.849	0.2

In **Figure 2.4.5**, the relative deviations between the full energy peak efficiency obtained by experimental measurements and by MCNPX simulation are shown. For the nominal dimensions the MCNPX results are were general 5% to 13% lower than the measurements

results except for the 26.34 keV efficiency, were an excellent agreement with a relative deviation below 2% between simulation and measurement was obtained.

Except for the 26.34 keV efficiencies, these results indicate the distance between the crystal and window should be smaller (see also **Figure 2.4.4** and **Figure 2.4.3**). The possibility of modifying the dead layer thickness was excluded at this point, since the nominal value of the dead layer is only approximately 0.5 μm .

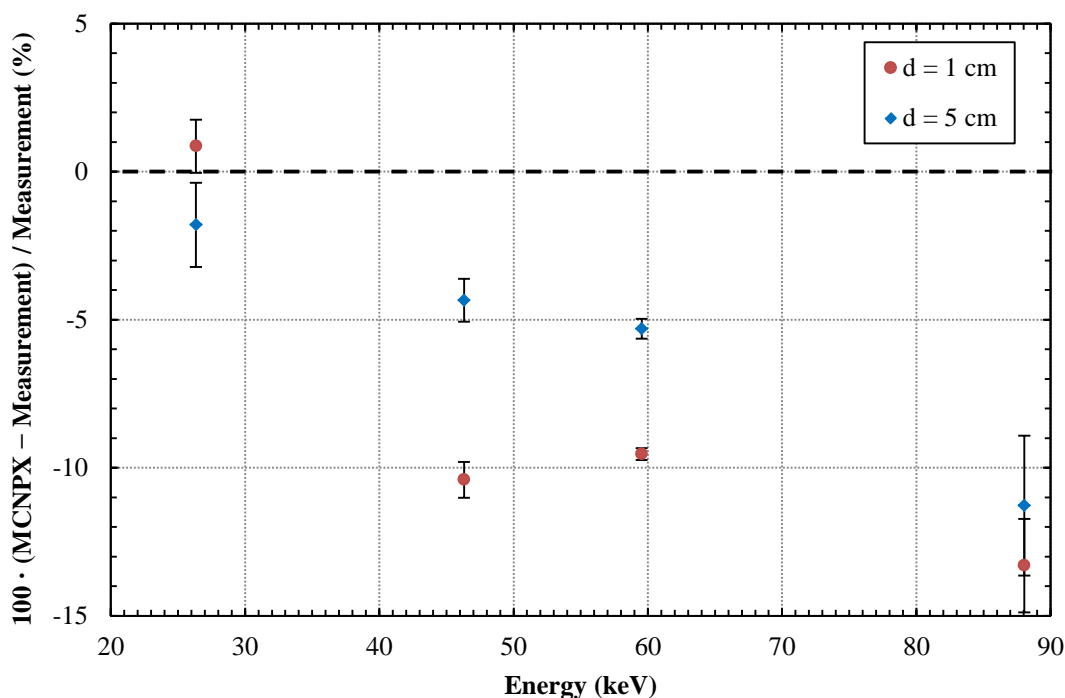


Figure 2.4.5: Relative deviation between measurements at 1 cm and 5 cm distance, and MCNPX calculation the full energy peak efficiency using the detector 3 nominal dimensions provided by the manufacturer (see also **Figure 2.4.4**). Error bars represent one sigma uncertainties.

For the optimization of the crystal-to-window distance, simulations were performed where this parameter was progressively reduced and at each step the results were compared with the measurement results. Through this method it was found that the distance of 3 mm, was optimal, for 59.54 keV the most relevant energy used in this work, and that the relative difference between simulated and measured efficiency for this energy is below the one-sigma uncertainty.

When this distance of 3 mm between crystal and detector window was used in the simulations, the relative deviation between simulations and measurements has improved (**Figure 2.4.6**) with a relative deviation below 2% for the efficiency at 46.53 keV and 59.54 keV, while at 89.03 keV the relative deviation as also improved and is now 3% and 6% for 1 cm and 5 cm distance respectively. However, both results have approximately 2.5% uncertainty only from the statistics. For the 26.34 keV efficiency the relative deviation is now 12% and 4% for 1 cm and 5 cm distance, respectively. This deviation is greater than in the nominal dimensions model and possibly indicates that the crystal dead layer parameter needs some minor optimization. However, taking into account the uncertainty of the measurements

at low-energies such as 26.34 keV, it was decided not to perform an optimization of the crystal dead layer.

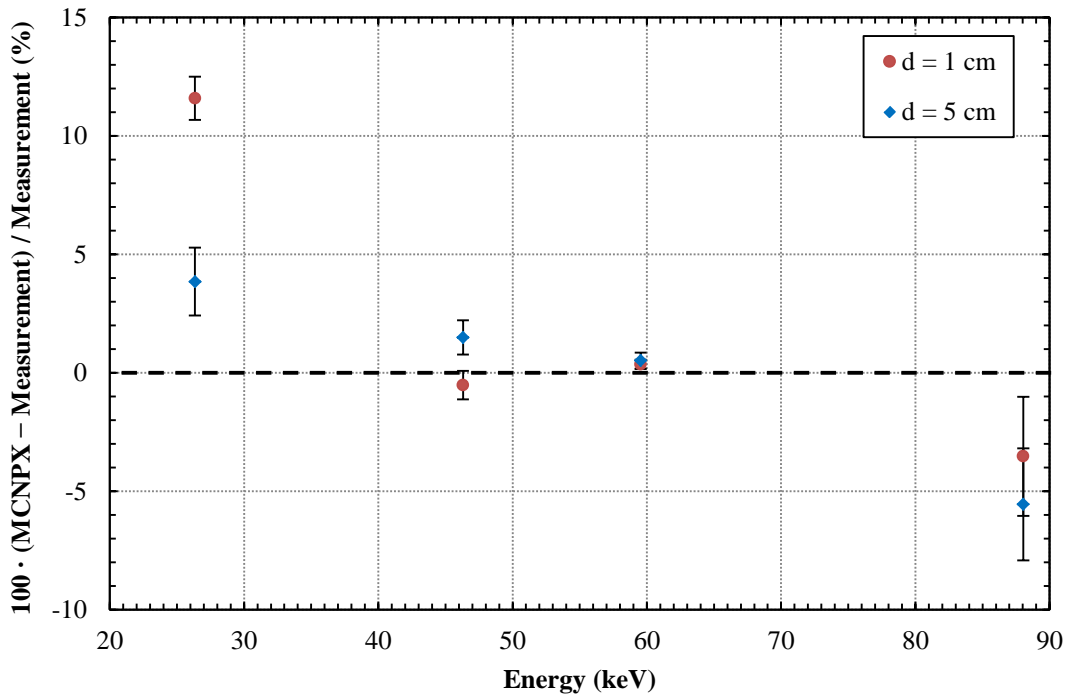


Figure 2.4.6: Relative deviation between measurements at 1 cm and 5 cm distance, and MCNPX calculation the full energy peak efficiency using the detector 3 optimized crystal to window distance. Error bars represent one sigma uncertainties.

2.4.2.4 Anthropomorphic Computational Phantoms

The difficulties associated with the development and construction of new and more realistic physical phantoms for efficiency calibration of detection systems, resulted in the development and exponential expansion of the use of anthropomorphic computational models. These models together with Monte Carlo methods allow to perfectly reproduce the calibration factors obtained by experimental methods with the advantage of being cost and time saving. Additionally, some of these models – due to their great detail – are closer to the human anatomy than the physical phantoms and consequently they allow an increasingly accurate calibration. They have also the advantage to be flexible in terms of their dimensions and composition; this allows the user to adjust the phantom to individual characteristics such as body size and mass and thus to increase the accuracy of the quantification of the incorporated activity.

In the present work two voxel phantoms were used: the USTUR case 102 skull voxel phantom developed by Vrba (2010a) and the Max-06 voxel phantom developed by Kramer, Khoury et al. (2006).

2.4.3 Person-specific parameters and detection efficiency

2.4.3.1 Activity distribution

The activity distribution in the bone is assumed – in agreement with the general practice for radiation protection purposes – as homogeneous despite of studies that reveal that differences in the distribution exist due to bone remodeling, calcification and bone resorption (Hickman and Cohen 1988).

The influence of two aspects on the detection efficiency were studied: the first was the ^{241}Am distribution in the bone surface of the case 102 skull that was measured by Hickman and Cohen (1988) which provides a better picture of the activity distribution compared to the radiochemical data. The second aspect was the ^{241}Am distribution in the cortical bone and trabecular bone as a function of time that was studied based on the ICRP biokinetic model for ^{241}Am modeling and on the Max-06 phantom to take advantage of the high anatomical accuracy on the skeleton definition.

2.4.3.1.1 Case 102 activity distribution pattern

The USTUR case 102 skull phantom is a unique phantom as it is based on a real human case with an accidental natural ^{241}Am contamination of the bone matrix. As the exposure occurred 25 years before the death of the donor, it can be assumed that bone remodeling has happened since the skull bones have 1.8% mean turnover per year (ICRP-23 1975).

During the construction of the skull phantom extensive measurements were performed to the bone surface, using a small shielded NaI(Tl) detector, so that only the bone surface in direct contact with the detector would be measured (Hickman and Cohen 1988). These measurements allowed Hickman and Cohen to create a map of the counts per minute equivalent to the activity distribution pattern in the skull bone surface, see **Figure 2.4.7**. To study the influence of this activity distribution pattern in the detection efficiency a computational set-up was developed in the present work using Monte Carlo methods, the voxel phantom of the USTUR phantom (Vrba 2010a) and the real activity distribution pattern of the USTUR phantom.

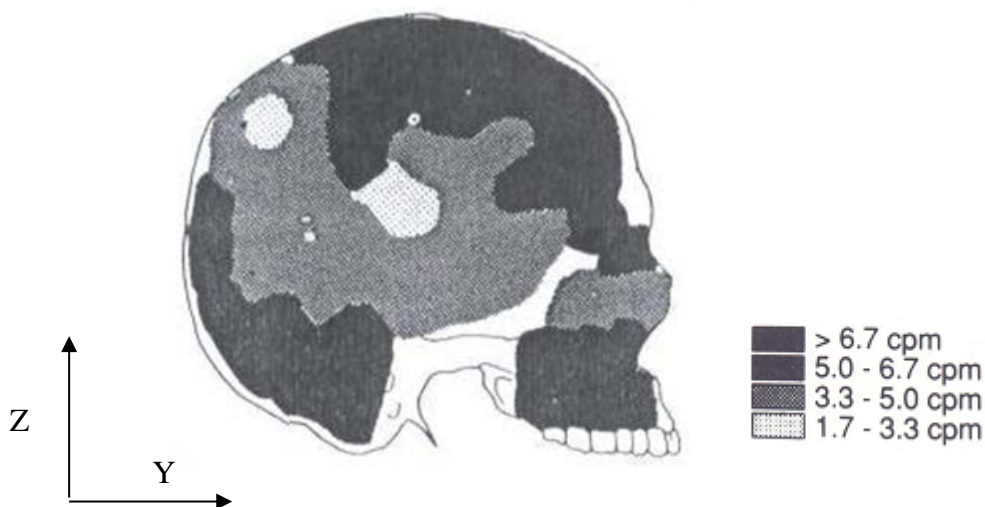


Figure 2.4.7: Lateral activity distribution pattern measured in the skull of USTUR case 102 (Hickman and Cohen 1988).

To implement the activity pattern in the Monte Carlo simulations, **Figure 2.4.7** was digitalized with a standard office scanner and the number of pixels was adjusted to the voxel phantom number of voxels in the YZ plane. In the original figure four activity concentration intervals were defined. However, because it was not possible to distinguish more than three regions, only three regions were painted over the original image. This new image was then converted in a two dimensions matrix in which the values correspond to the image colours. A C++ algorithm was then developed to use this matrix, in order to assign the source voxels in three different regions based on their coordinates in the YZ plane.

Finally, to simulate the different concentrations of ^{241}Am the Monte Carlo source probability was modified so that voxels from regions with more ^{241}Am concentration are more probable to be the origin of a gamma emission.

2.4.3.1.1.1. Results

To determine the counting geometries for which the assumption of a homogeneous activity distribution in the skull bones can provide a correct value, the following hypothesis was formulated. With the increase of the distance between detector and phantom, the phantom surface area measured increases, resulting in a smaller influence of the activity distribution pattern in the detection efficiency.

Simulations were performed both for the homogeneous activity distribution and for the activity distribution determined by Hickman and Cohen (1988), in both cases detector 3 was simulated at different distances from the voxel phantom surface. Comparing the efficiencies obtained at 59.54 keV in terms of the relative deviation from each other, as expected the deviation progressively decreases with increasing distance. For 0 mm distance the relative deviation is approximately 9%, while for 150 mm is approximately 3.6%, and at 600 mm it is only 1.7%, see **Figure 2.4.8**. Another effect of the distance increase is the decrease of detection efficiency due to the change in solid angle, which amounted to a decrease of approximately 1% per mm in the detection efficiency. Since in partial body counting generally very low activities are to be measured, the ideal positioning is not always viable and a compromise needs to be found between distance and the activity distribution influence.

As the activity distribution in the bone surface is generally an unknown parameter, its influence is usually taken into account in the measurement uncertainty budget. Guidelines as the European project IDEAS (Doerfel and Karlsruhe 2006) suggest a typical uncertainty of 5% for the variation of activity distribution. The present results obtained suggest that for skull measurements this uncertainty is higher for short distance measurements and reach about 9% close to the surface. However, note that this influence will also depend on the number of detectors used or positions measured and that the average or sum of the measurements result will reduce the influence of the activity distribution on counting efficiency influence.

2.4.3.1.2 Cortical bone and Trabecular bone activity distribution

Skull bones are generally composed of two types of bone: the compact or cortical bone and the trabecular bone which is the osseous tissue part from the spongiosa (“trabecular bone and its supported soft tissue”) (ICRP-70 1995). Cortical bone shows only few pores and is generally found on the external surface of the bones. In contrast, the trabecular bone is found in the inside of the bone. Its structure is porous and delineates spaces that are filled with hemopoietic tissues that produce the red blood cells (Shipman, Walker et al. 1985).

In terms of mass the cortical bone represents 95% of the bone of the skull, while the trabecular bone only represents 5% (Johnson 1964). Despite this the trabecular bone and its supported soft tissue represents a big part of the bone volume. For example, in the Max 06 head phantom used in this work, from the total number of voxels representing the skull bone 45% are attributed to spongiosa.

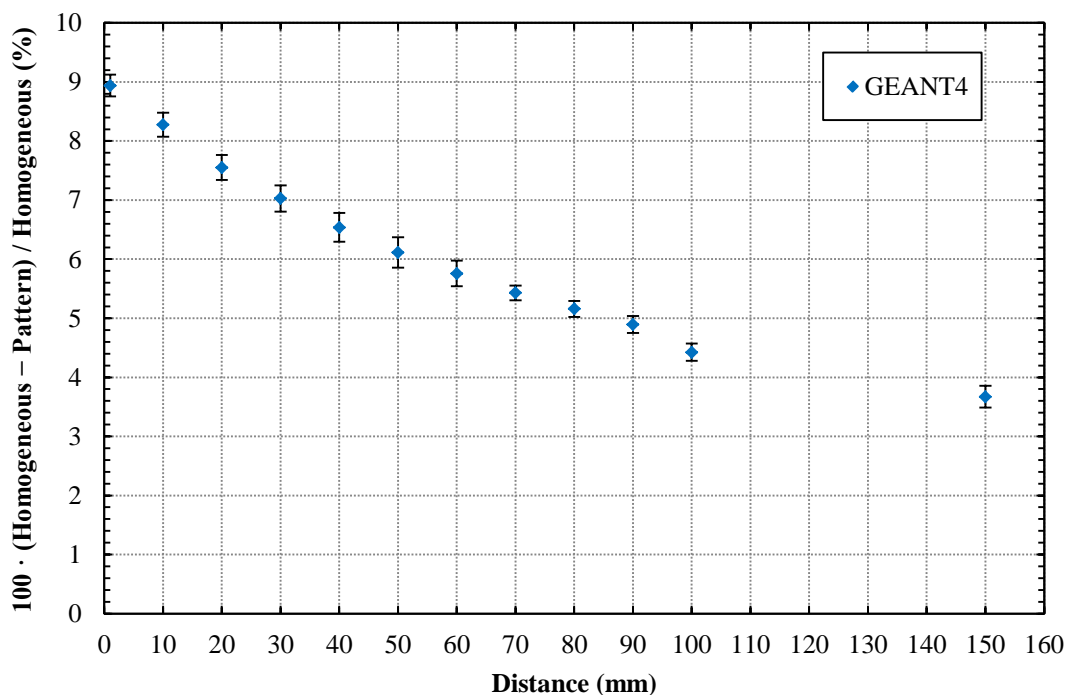


Figure 2.4.8: Relative deviation (%) between detector 3 efficiency at 59.5 keV calculated for a homogeneous activity distribution and USTUR case 102 activity distribution. One-sigma uncertainty calculated from the Monte Carlo statistical uncertainty is displayed.

The activity retention is also different in cortical and trabecular bones. Biokinetic modelling using the actual ICRP model (Noßke 2013) shows that in the first years after an internal contamination the cortical and trabecular bones have approximately the same activity content. Three year after the contamination the values start to differ and at approximately six years the activity in the cortical bone is twice as high as the activity in the trabecular bone. These values were calculated for the ingestion of one Becquerel of ^{241}Am , however, in the case of an inhalation of ^{241}Am a similar behaviour is expected (Noßke 2013).

2.4.3.1.2.1. Results

To study the influence on the detector efficiency of a different activity of ^{241}Am in the cortical and trabecular bone, the Max-06 head phantom was used, due to two reasons: first Kramer and Hauck (2006) have prepared this phantom for skeletal dosimetry with the segmentation of the cortical bone, spongiosa, cartilage and medullar yellow bone marrow based on the original CT data, anatomical images and cryosection images from the Visible Human Project; second according to Vrba (2010a), for the USTUR case 102 voxel phantom the “anatomical accuracy” between the cortical and trabecular bone distinction is limited.

In this context, the use of voxel phantoms represents a disadvantage since, due to the limited voxel size resolution, an independent representation of the trabecular bone structure and the supported soft tissue is not possible. Therefore in this study the spongiosa voxels were considered made of trabecular bone. Two simulations were performed, one where the cortical bone and the spongiosa are equally contaminated, the other where only the cortical bone is contaminated. The head of the Max-06 phantom consists of 306796 voxels representing the cortical bone and 252475 voxels representing the spongiosa; as previously mentioned this means that the spongiosa is 45% of the voxels representing the bone.

To simulate in GEANT4 and MCNPX the same activity content in the cortical bone and trabecular bone types, it is necessary that both bones have the same number of voxels. Since the number of voxels of different bone is similar no correction was necessary to be introduced in order to simulate the same activity concentration in both bones.

As an approach to phantoms that are only contaminated in the outside and in the inside bone surface, such as the BfS phantom, a simulation was performed where only the cortical bone is contaminated. The initial results show that having only the cortical bone as source results in a 28% higher efficiency for detector 3 at 59.54 keV, see **Table 2.4.2**.

Table 2.4.2: GEANT4 simulation of detector full energy peak efficiency, for Max-06 phantom with different activities in the cortical bone and spongiosa.

Energy (keV)	Full energy peak efficiency			
	Cortical Bone	Uncertainty	Cortical and Trabecular Bone	Uncertainty
59.54	2.709E-3	1.354E-5	2.121E-3	1.687E-5

To study the impact on the detection efficiency due to the variation of the ratio between the cortical and trabecular bone contamination in function of time, simulations were performed where the probability of a gamma emission in the cortical bone was increased and the probability of emission of a gamma in the trabecular bone was maintained in the same ratio between Trabecular and Cortical bone activity that was previously calculated. This approach allowed the simulation of the variation of the activity variation in the cortical and trabecular bone in function of the time.

In **Figure 2.4.9** the ratio between the results obtained in function of time and the results obtained when the ^{241}Am is only present in the cortical bone are shown. The results reveal that the difference between the simulations where only the cortical bone is contaminated and the cortical and trabecular bone are both contaminated decreases with the decrease of the activity in the trabecular bone, however, even after 18000 days (50 years) there is still a 4% difference between the results. From these results can be conclude that contamination of only the cortical bone will provided a reasonably good approach with a relative difference below 10% after 6000 days.

The results shown in **Figure 2.4.9** are the correction factors to correct the BfS efficiency for skull measurements where both cortical bone and trabecular bone are contaminated

The USTUR case 102 donor was internally contaminated with ^{241}Am approximately 25 years before his death, taking account the ratio between cortical bone and trabecular bone activity biokinetic values and the results obtained for the respective simulation one can conclude that even after 25 years (9000 days) of bone remodelling the ^{241}Am activity present in the

trabecular bone will still influence the detection efficiency. Since the approach that the activity is only in the cortical bone is not fully correct, correction factors were calculated for this phantom by dividing the detection efficiency results obtained in function of time by the detection efficiency obtained for the ratio between cortical and trabecular activity at 9000 days after ingestion, see **Figure 2.4.10**.

Has an example of the application of the cortical bone trabecular bone activity distribution correction factor (in the present work called K1): if a measured individual is measured 9000 days after the internal contamination the correction factor can be calculated by replacing in the respective phantom equation the X by the number of days after the contamination (for BfS and Max-06 phantom see **Figure 2.4.9** and USTUR case 102 see **Figure 2.4.10**), for this example it would be a correction factor of 0.948 for the Max-06 and BfS phantom and a correction factor of 1 for the USTUR case 102.

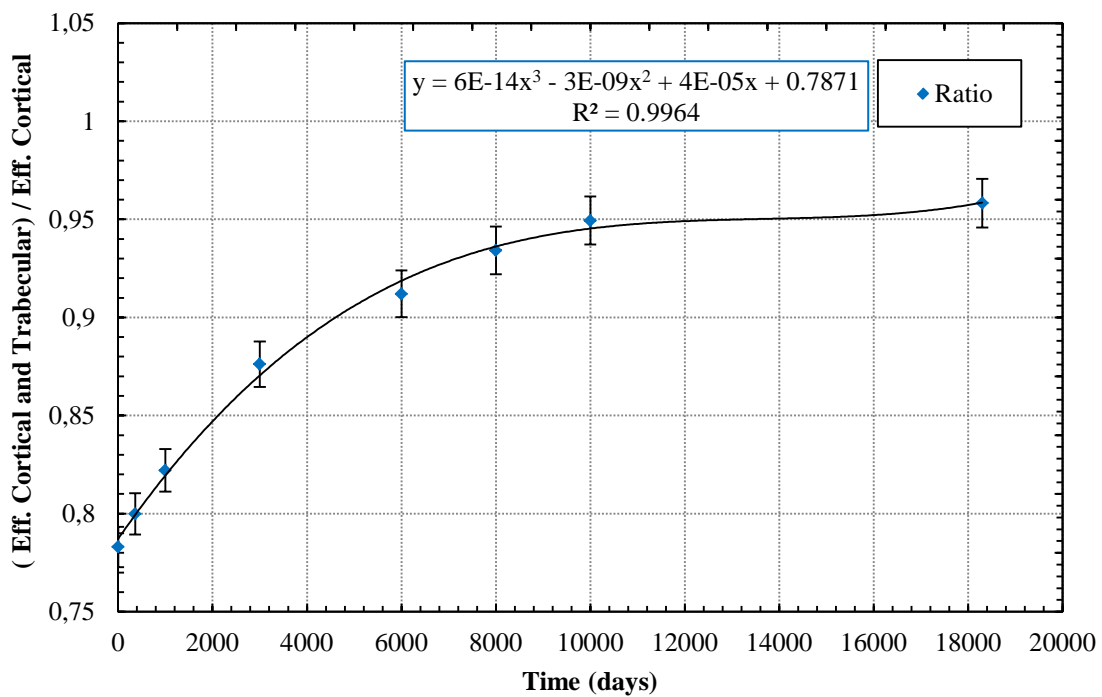


Figure 2.4.9: K1 correction factors for BfS phantom and Max-06 phantom. Detector 3 efficiency for variation of ratio for cortical bone and trabecular bone together in function of time divided by the detector efficiency when only cortical bone is contaminated.

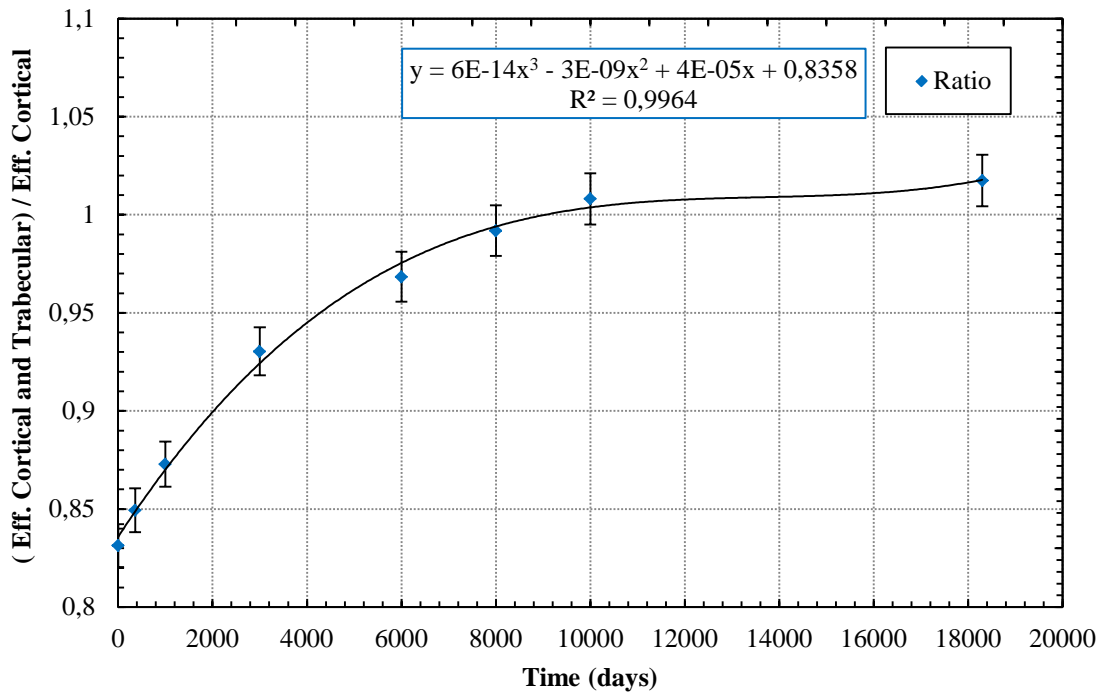


Figure 2.4.10: K1 correction factors for USTUR case 102 phantom. Detector 3 efficiency for variation of ratio for cortical bone and trabecular bone together in function of divided by the detector efficiency for the ratio cortical trabecular after 9000 days.

2.4.3.2 Scalp thickness

The unknown variation of overlaying soft tissue over the monitored target is one main sources of the uncertainty in *in-vivo* counting. To take into account this issue phantoms such as the Lawrence Livermore torso phantom include various layer of overlaying soft tissue with different thickness (Griffith, Anderson et al. 1978). Skull measurements have the advantage that the scalp thickness has a rather small variability. This was shown by very old different studies conducted between 1883 and 1898, where the tissue thickness over the forehead trichion and forehead middle was measured: the average results from each of the different studies varied between 3.02 mm and 4.3 mm (Shipman, Walker et al. 1985). However, no values are given on the variability within each of the study groups. A more recent study also confirms the relatively small variability of the scalp thickness for individuals from the Southern Urals, were values between 3.5 mm to 6.0 mm of individual scalp thickness were found (König, Wahl et al. 1998). However, no values were found relatively to the variation of the thickness of soft tissue covering the human skull depending on the position e.g. forehead, top of the head and side of the head.

To determine the influence of this parameter on the detection efficiency the Max-06 head phantom was used, since this phantom is based on human CT data and thus represents a realistic description of scalp thickness variation over the skull surface.

2.4.3.2.1 MAX-06 head phantom modification

Using the image processing program ImageJ version 1.44p the Max-06 phantom scalp thickness was progressively increased by the addition of a layer of voxels to the outer surface of the voxel model traverse plane. Since the increase of the scalp thickness is due to the

increase of adipose tissue, this material was attributed to the new layer of voxels. Although this is not anatomically correct, for internal contamination purposes this approach was considered reasonable. By the addition of voxel layers the original scalp thickness value of the Max-06 phantom of 3.6 mm (measured on the top of the head near the forehead trichion) was increased in steps of 1.2 mm to the extreme value of 10.8 mm.

2.4.3.2.2 Results

Two different scenarios were considered: in the first the scalp thickness increases and the detector is always positioned at 1 cm distance to the skin surface. This will result in the decrease of the efficiency due to two effects, the increase of the scalp thickness and the increase of the distance between the bone and the detector. To determine the impact of the two effects independently, a second scenario was set where the scalp thickness increases, while the detector remains at the same position which was simulated for the Max-06 phantom with the 3.6 mm original scalp thickness, so that the distance to the bone is constant, see **Figure 2.4.11**.

For the interval from 3.6 mm to 6.0 mm, that is approximately what was measured in the individuals from the Southern Urals (König, Wahl et al. 1998), the results for the constant distance show that there is a reduction of 10% in the detection efficiency. From this approximately 7% is due to the increase of the scalp thickness. Thus the increase of the distance has an impact of 3% in the interval from 3.6 mm to 6.0 mm or approximately 1% per mm. This value confirms what was observed previously in the activity distribution calculations using the USTUR voxel phantom.

Comparing the results for the worst case scenario of a thickness 10.8 mm with the original Max-06 phantom thickness value 3.6 mm, for the constant distance between the detector and the phantom there is a reduction of 25% in the detection efficiency.

Using the Beer-Lambert law and the 60 keV mass absorption coefficient of adipose tissue (Hubbell and Seltzer 2004), with a density and composition based on ICRU-44 (1989), the theoretical reduction of the number of detected counts and respective detection efficiency due to the increase of adipose thickness was calculated. In **Figure 2.4.11**, one can see that this calculation underestimates the reduction of the detection efficiency. Compared with the simulation results for the constant position, for an additional thickness of 3.6 mm and 7.2 mm there is a relative deviation of 3% and 8%, respectively.

The reason of this deviation between the Monte Carlo and the theoretical calculation is a prerequisite of the Beer-Lambert law — the radiation consists of parallel rays crossing the same thickness. In the experimental and simulated case, however, the 59.54 keV photons will not travel in parallel rays or perpendicularly to the contaminated bone surface, and thus they will cross thicknesses superior to the one considered by the Beer-Lambert law. Consequently this results in a higher reduction of the detection efficiency.

As previously mentioned for the constant distance simulation, there is an additional contribution to the efficiency reduction due to the increase of distance between the source and detector. Thus the relative deviation between the Beer-Lambert law results is higher compared to the previous case, approximately 6% and 17%, for additional 3.6 mm and 7.2 mm thickness, respectively.

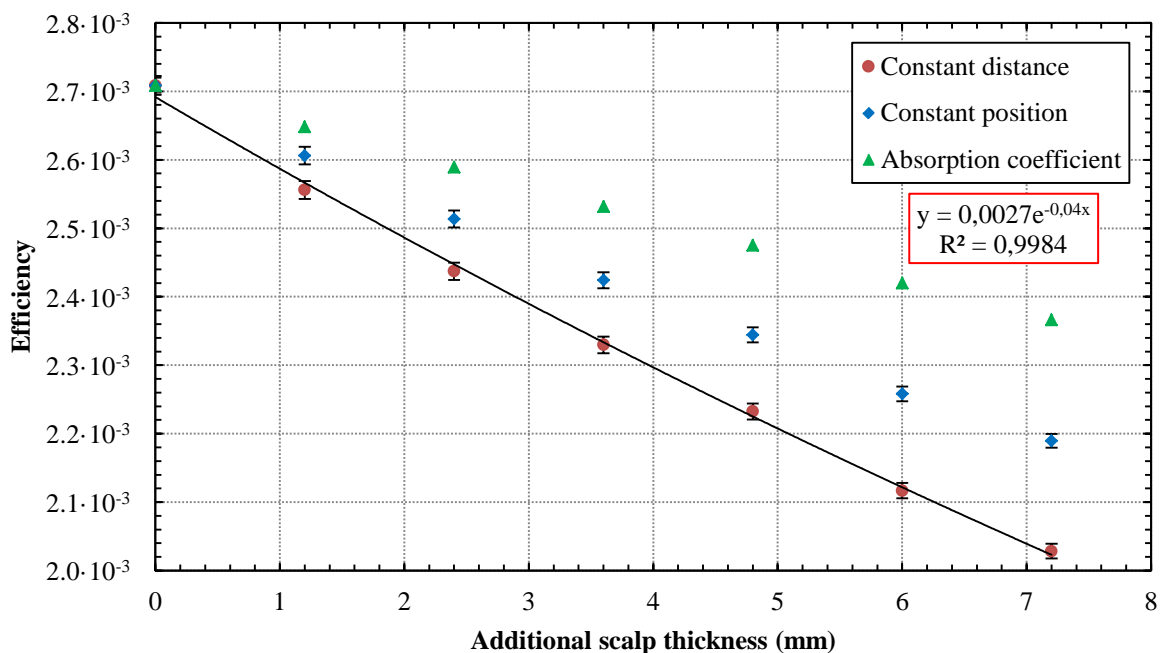


Figure 2.4.11: Detector 3 full energy peak efficiency at 59.54 keV obtained for different thicknesses of the Max-06 scalp. The detector is positioned perpendicular to the side surface of the phantom for two different cases: 1) in red — the distance between the phantom surface and the detector is constant; 2) in blue — the detector position is fixed. Additionally in green — are shown calculations based on the Beer-Lambert law for the mass attenuation of adipose.

To calculate correction factors for scalp thickness on the side of the head, top of the head, and forehead, the necessary data on the scalp thickness from the phantoms was determined based on Max-06 phantom and the USTUR and BfS voxel phantoms developed by Vrba (2010a), see **Table 2.4.3**.

Table 2.4.3: Max-06, USTUR and BfS phantoms scalp thickness based on voxel models dimensions over the skull bone at three different measurement positions typically used by the HMGU PBC.

Phantom	Thickness (mm)		
	Max-06	USTUR	BfS
Head right side	16.800	17.082	5.469
Head Forehead	7.200	16.133	7.031
Head top	3.600	2.500	6.000

In **Table 2.4.3**, one can see that for the Max-06 and USTUR phantom there is significant variability of the scalp thickness depending on the position. The variability of the USTUR phantom is due to the fact that during the construction of the USTUR case 102 tissue equivalent spacers were placed on the outside surface of the skull, in order to provide a realistic variation of the thickness of soft tissue covering the human skull (Hickman and Cohen 1988). In contrast, as can be observed from the small variation between the scalp

thicknesses at the different positions, the BfS phantom scalp was constructed with a layer of soft-tissue-equivalent wax with a constant thickness that corresponds to the average thickness of soft tissue covering the human skull of an average person (Laurer 1993). Such features influence the correction values necessary to apply depending on the measurement position. In ideal measurement conditions the distance between the detector and the head surface remains the same independently of the scalp thickness. Thus the values obtained from the constant distance simulations (see **Figure 2.4.12**) were used to determine correction factors for the scalp thickness for the side of the head, top of the head and forehead, see **Figure 2.4.12**, **Figure 2.4.13**, and **Figure 2.4.14**.

For the application of the scalp thickness correction factor (in the present work called K2) it is necessary to determine the scalp thickness in the measurement position of the measured individual. Having this value the respective position correction factor can then be determined. Has an example if a measured individual was a forehead thickness of 5 mm, in the **Figure 2.4.12** which corresponds to the forehead thickness correction factors one can find the correction factor that should be used for the phantom to correct for the efficiency at the forehead measurement position. In this case it would be 1.077 for the Max-06, 1.561 for the USTUR case 102, and 1.071 for the BfS phantom.

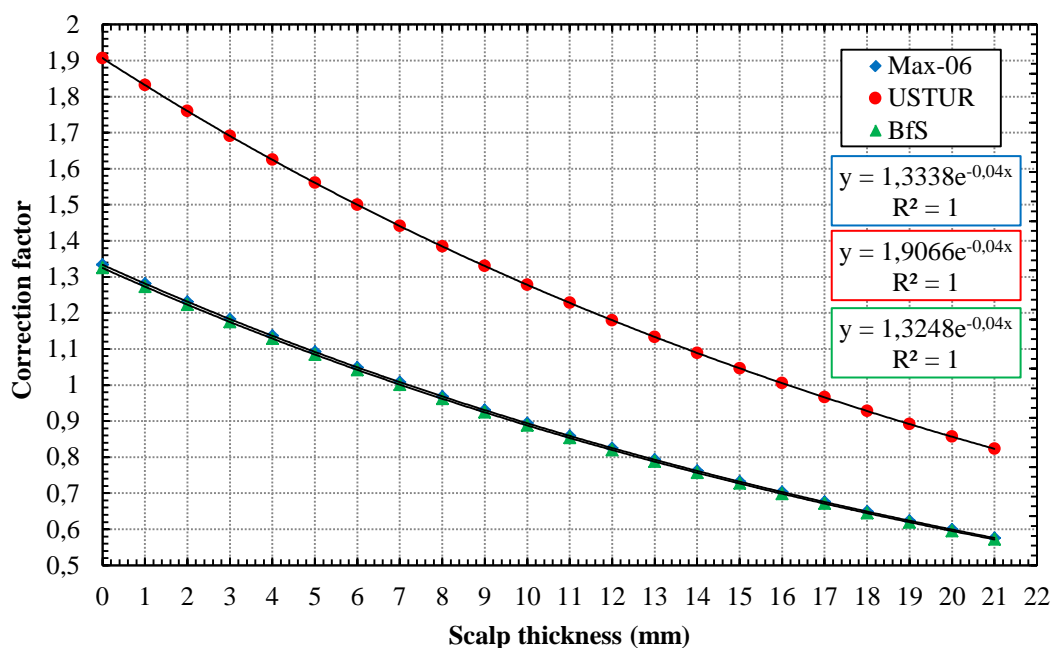


Figure 2.4.12: Max-06, USTUR case 102 and BfS phantoms K2 correction factors for scalp thickness for the detector 3 positioned at the forehead.

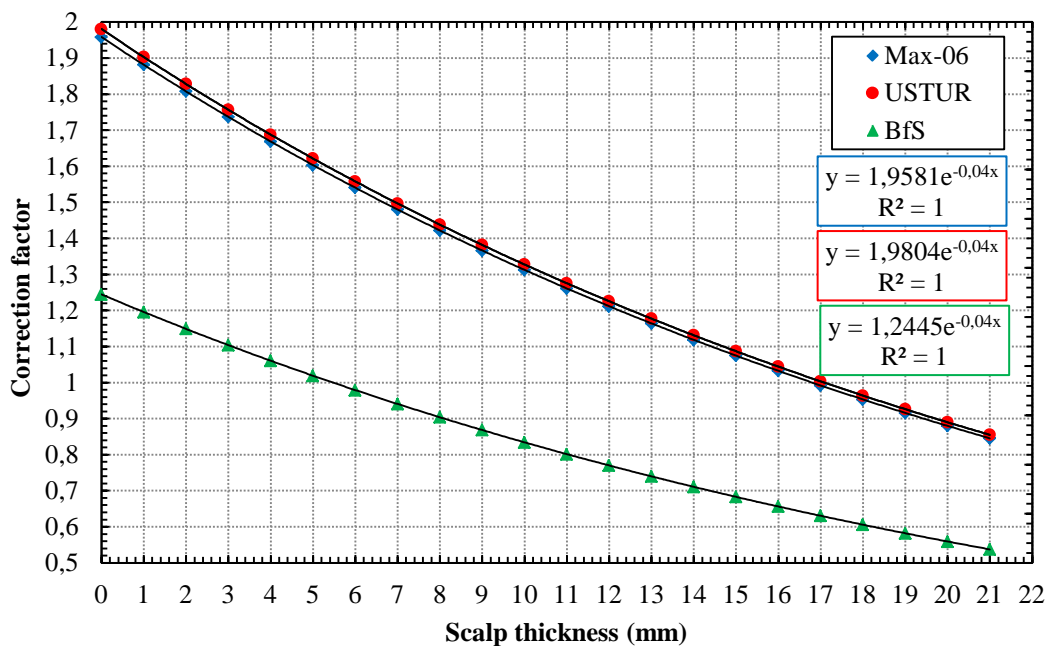


Figure 2.4.13: Max-06, USTUR case 102 and BfS phantoms K2 correction factors for scalp thickness for the detector 3 positioned at the right side of the head.

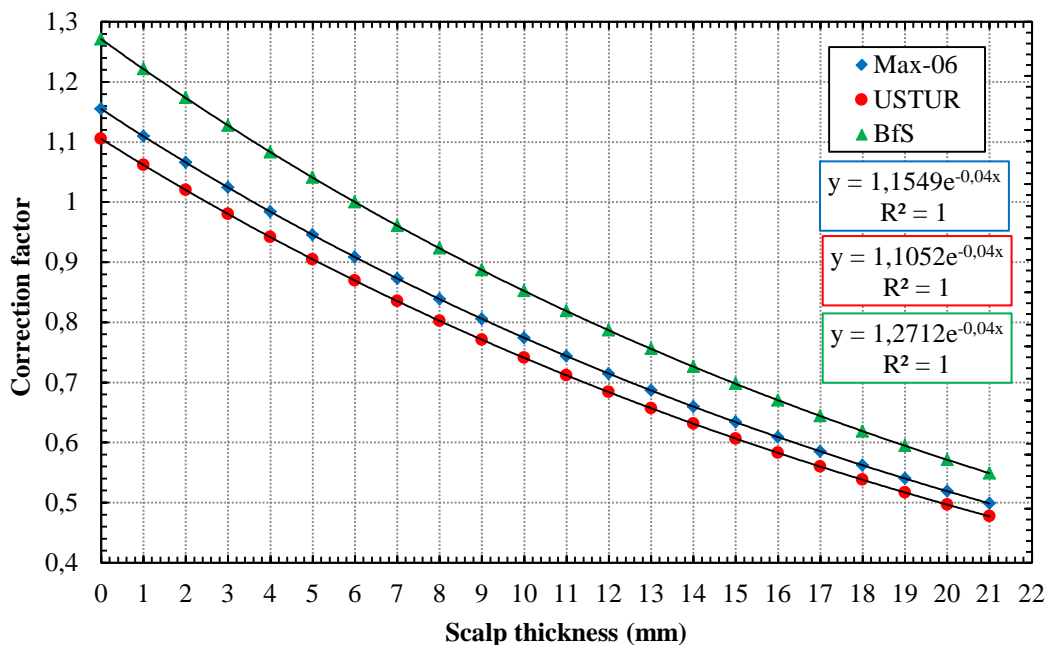


Figure 2.4.14: Max-06, USTUR case 102 and BfS phantoms K2 correction factors for scalp thickness for the detector 3 positioned at the top of the head.

2.4.3.3 Size and shape Influence

The dependence of the efficiency on size and shape is one of the main sources of uncertainty, due to the morphological variability between individuals. To improve the activity estimation after an incorporation it is necessary to use a calibration phantom that is most similar to the measured individual in terms of size and shape, or to interpolate by using different sized

phantoms, such as the LLNL torso phantom (Griffith, Anderson et al. 1978) that has difference chest walls thickness available, or the St Petersburg phantom (Kovtun, Firsanov et al. 2000) that can be mounted in different configurations to represent different body masses and sizes. Unfortunately, the number of skull phantoms available world-wide is very limited and those which are available are not flexible as the other previously mentioned phantoms. Alternatively, it is possible to improve the estimation by the use of a mathematical correction, e.g. the relation between the detection efficiency and the solid angle between the detector and the measured individual.

In terms of size the skull is considered to show a relatively small variability between individuals when compared to other regions of the human body used to detect incorporated bone seeking radionuclides. In this chapter the influence of the size and shape of the head on the detection efficiency is described using Monte Carlo simulations and the voxel phantom Max-06 head.

2.4.3.3.1 Size impact on detection efficiency

One of the first estimations of impact of the skull size on the estimation of ^{241}Am from *in-vivo* measurements using Monte Carlo methods was done by Malátová and Foltánová (2000). Before, Monte Carlo calculations using voxel and mathematical phantoms (Hunt, Malátová et al. 1999, Malátová, Foltánová et al. 1999) demonstrated the detection efficiency to depend on skull size. Malátová and Foltánová (2000) used Monte Carlo results and measurements of the NRPI phantom, Case 102 head phantom and UCKSKULL 94 head phantom, to estimate the standard deviation of a activity estimation associated to the phantom size used for calibration (32% in relative units) of the NRPI detection system. However, this uncertainty could be reduced by the use of a phantom more similar in terms of dimensions to the measured individual head.

Malátová, Becková et al. (2004) have quantified critical parameters that defined the dependence of the detection efficiency on the skull size. For this they have measured the detection efficiency using 4 phantoms and measured 3 parameters to characterise these head phantoms: 1) the head perimeter, 2) the half perimeter from the top of one ear to the other one, 3) and the half perimeter from the centre of the forehead to the joint between the skull and the neck. They used these parameters to calculate a mean radius and expressed the detection efficiency as an exponential function of this radius.

Later Vrba (2007) studied this issue by means of Monte Carlo methods and a self-developed high resolution voxel phantom, which was based on the CT images of a 38 years old woman. By changing the three voxel size dimension at the same time, he scaled this phantom from 445 mm to a 667 mm head perimeter, and calculated the detection efficiency as a function of the head mean radius as previously done by Malátová, Becková et al. (2004). During this study he also analyzed the impact of the phantoms' filling with soft tissue which was sometimes incomplete. Vrba concluded the following: the detection efficiency depends on the head size but not to an extent suggested by the physical phantoms; the discrepancies between the physical phantoms are due to the incomplete filling and differences in the source distribution; and the use of voxel phantoms for calibration is preferable to the use of inaccurate physical phantoms (Vrba 2010c).

In the present work the mean radius was calculated from the head width, the head length and the head height from the chin to top of the head, see **Figure 2.4.15**. Using the following equation an average value was obtained for the mean radius.

$$R = \frac{X + Y + Z}{6} \quad 2.4.1$$

where R is the radius,
 X is the head width,
 Y is the head length, and
 Z is the head height from the chin to top of the head.

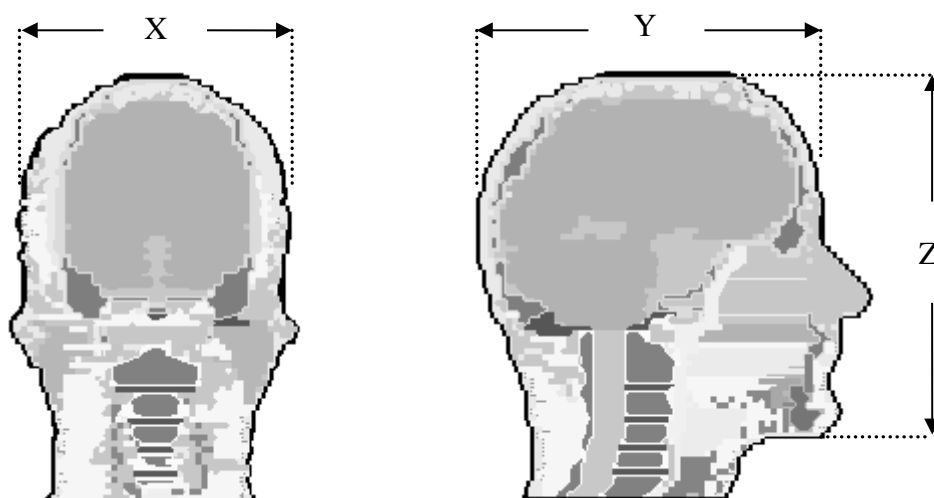


Figure 2.4.15: Max-06 head phantom transversal and sagittal cross-section view and reference dimensions used for the mean radius calculation. X – head width; Y – head length; Z – chin to top of the head.

2.4.3.3.2 Results

Based on the voxel phantoms data and experimental measurements the head width (X), the head length (Y) and the distance from chin to top of the head (Z) were determined for the USTUR case 102, BfS, Max-06 and two exposure cases to ²⁴¹Am that will be discussed in Chapter 2.4.2.4.4, see **Table 2.4.4**. Using these values the mean radius was calculated

Table 2.4.4: Skull phantoms and Case 1 and 2 dimensions: X – head width, Y – head length and Z – chin to top of the head; and mean radius calculated using the method.

Head	X (mm)	Y (mm)	Z (mm)	Mean radius (mm)
USTUR	174.8	207.7	227.5	101.7
BfS	129.5	174.0	186.1	81.8
Max-06	165.6	209.0	218.9	98.9
Case 1	166.0	191.0	234.0	98.5
Case 2	149.0	192.0	220.0	93.5

The ICRP-89 (2002) reference man is very accurately defined in terms of height, weight, body surface area, and organ mass and volume. However, no values are given for other parameters of the human anatomy such as the extremity lengths, body circumferences and the human head (Bolch, Lee et al. 2010). Additionally in ICRP-23 (1975) and ICRP-89 (2002) no values are given for the variability of these parameters. Thus, other sources of information are required, e.g. Bolch, Lee et al. (2010) have used the U.S. National Health and Nutrition Examination Survey values to define the height and weight dimensions to construct 25 male and 25 female phantoms

In the present work the values from a report on human engineering design guidelines from the U.S. Department of Defense Human Factors Engineering Technical Advisory Group (HFERAG 2000) were used as reference, to define the variations on the Max-06 phantom dimensions, see **Table 2.4.5**.

Table 2.4.5: Head mean radius calculated based on the head dimensions X – head width, Y – head length and Z – chin to top of the head, given by (HFERAG 2000)

Percentile		X (mm)	Y (mm)	Z (mm)	Mean radius (mm)
1 st	Men	139	180	212	88.5
	Women	133	172	198	83.8
5 th	Men	139	185	218	90.3
	Women	133	176	204	85.5
50 th	Men	152	197	232	96.8
	Women	144	187	218	91.5
95 th	Men	161.1	209	255	104.2
	Women	153	198	238	98.2
99 th	Men	165	213	255	105.5
	Women	157	202	238	99.5

To determine the influence of the mean head radius in the detector 3 detection efficiency the dimensions of the Max-06 head phantom voxels dimensions X, Y, and Z were modified identically, to maintain the Max-06 head shape, from the original value (1.2 mm) down to 0.989924 mm and up to 1.279865 mm, so that the mean radius would be identical to those of Cases 1 and 2, the physical phantoms and reference values, see **Table 2.4.4** and **Table 2.4.5**. The position of the detector was modified so that the distance phantom - detector remains the same independently of phantom size. The detection efficiency obtained was plotted as function of the mean head radius and as done by Malátová, Becková et al. (2004) an exponential equation was fitted to the results, see **Figure 2.4.16**.

Scaling voxel dimensions up or down has the disadvantage that together with the external dimensions of the voxel phantom the internal dimensions also change. As a consequence the scalp and the skull bone thickness will also vary with the voxel size modification; such an effect will increase or decrease the tissue absorption and result in an underestimation or overestimation of the size influence on the detection efficiency. To take the influence of scalp thickness variation into account the results were corrected using the values obtained from the calculations using different thicknesses of the Max-06 scalp maintaining the detector at the same position. No correction was used for the bone thickness variation, because according to Vrba (2007), this parameter has only a $\pm 5\%$ effect on the efficiency results.

In **Figure 2.4.16**, the results for the detector 3 efficiency as a function of the mean radius of the Max-06 head phantom as given by GEANT4, with and without correction for the underestimation and overestimation of the scalp thickness, are presented. Without thickness correction the relative deviation between the original Max06 head mean radius (98.9 mm) and the maximum (105.5 mm) and minimum (81.8 mm) is 66% and -16%, respectively; also without the correction the efficiency for the smallest mean radius (81.8 mm, BfS phantom) is approximately twice as large as that for the biggest mean radius (105.5 mm, 99th percentile men). After correcting for the scalp thickness, the relative deviation between the original Max-06 head mean diameter and the maximum and minimum mean diameters, was reduced to is 49% and -13%, respectively; and of course that difference between the smallest and biggest radius was also reduced, in this case to 71% of relative difference.

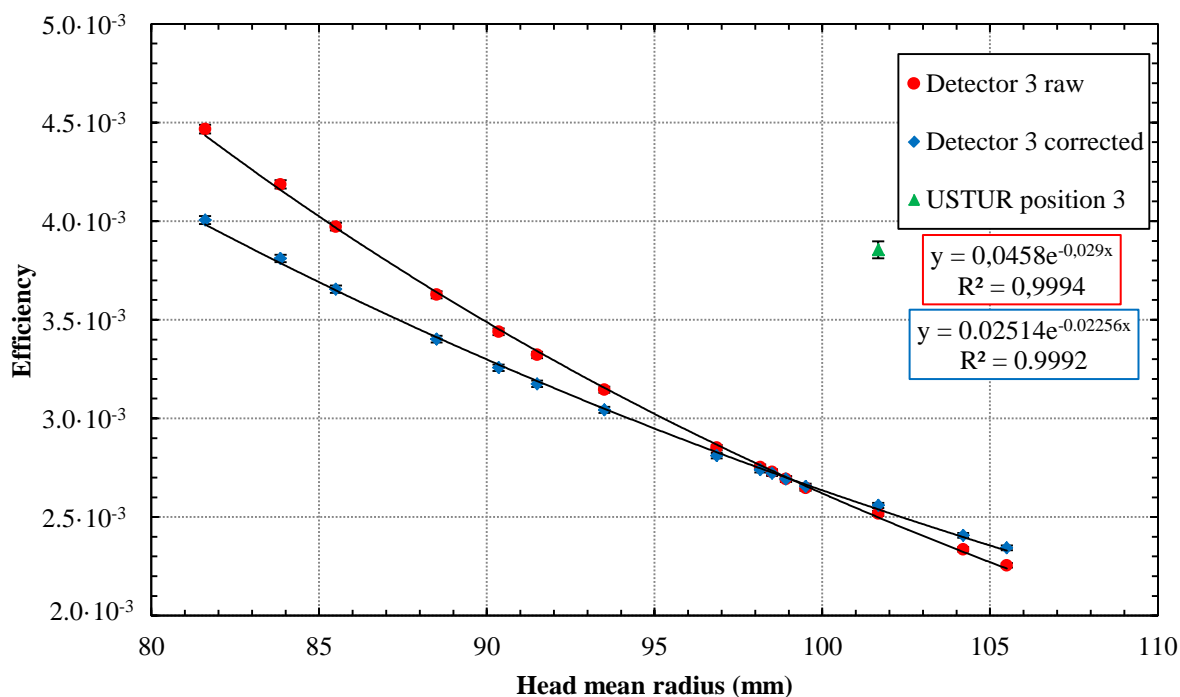


Figure 2.4.16: GEANT4 simulation of detector 3 at side position of Max-06 phantom: red symbols — full energy peak efficiency as a function of the mean radius when the voxels of Max-06 were scaled up and scaled down to reproduce the mean radius of Cases 1 and 2, the USTUR case 102 phantom, BfS phantom and reference values of the mean radius. Blue symbols — detection efficiency after correcting for variation of scalp thickness (see text). The efficiency measured for USTUR case 102 phantom position 3 is also displayed. Error bars correspond to one sigma uncertainty and are displayed except when the value is smaller than the symbol.

These results can be compared to efficiency values measured for USTUR case 102 and BfS phantoms for the situation that the Max-06 phantom has the corresponding mean radius. For the USTUR case 102 position 3 ($3.854 \times 10^{-3} \pm 5.252 \times 10^{-5}$ efficiency corrected for an activity in the complete USTUR phantom skull bone) comparing this efficiency with the Max-06 efficiency there is a relative difference of 51%, which is possibly due to the significant differences between the phantoms such as the activity distribution in the bone surface, the incomplete filling of the USTUR case 102 phantom, the differences in the phantoms shapes and the measurement geometry positioning. In contrast, for the BfS phantom position 12 ($8.212 \times 10^{-3} \pm 5.039 \times 10^{-5}$ efficiency) a 105% relative difference was found comparing this efficiency with the Max-06 efficiency. As in the previous case the phantom individual

characteristics come in to play, but the most probable reason for this large difference is the incomplete filling of the BfS phantom, due to the use of small spheroids which leave much space in between. In both cases the values observed are in agreement with the results obtained by Vrba (2007).

Using the detector 3 corrected efficiency values shown in **Figure 2.4.12**, correction factors for the mean head radius size were determined for the Max-06, the USTUR case 102 and the BfS phantom, see **Figure 2.4.17**. These correction factor were calculated by dividing the efficiency obtained for each size by the efficiency obtained for the reference phantom size, e.g. for the BfS phantom correction factors calculation, all efficiencies were divided by the efficiency obtained when the Max-06 head phantom mean radius is the same as the BfS phantom.

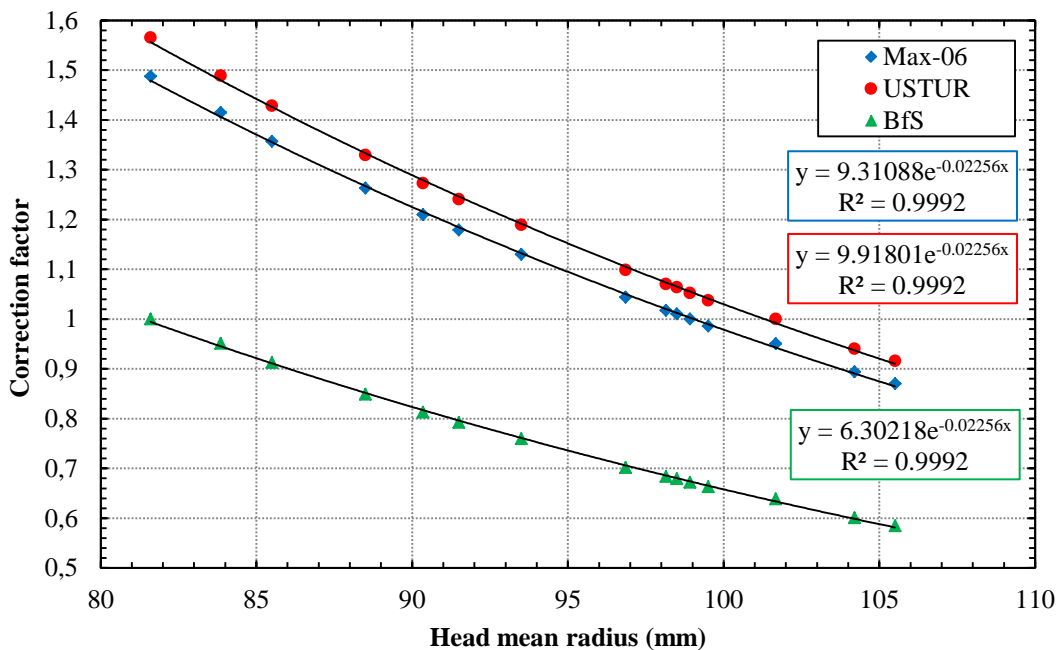


Figure 2.4.17: Max-06, USTUR case 102 and BfS phantom mean head radius size K3 correction factors.

As an example of the application of the size correction factor (in the present work called K3): first it is necessary to determine the X – head width, Y – head length and Z – chin to top of the head dimensions of the measured individual. Having these values the measured individual mean head radius can be calculated using Equation 2.4.1. The mean radius can then be used to find in **Figure 2.4.17** the correction factor for the respective phantom by using this value in the exponential equation adjusted to the respective phantom correction factors. Thus an individual with the head dimensions 148 mm (X), 193 mm (Y), and 222 mm (Z) would have a mean head radius of 93.83 mm, by applying this value in the BfS correction factor exponential equation, the result 0.788 is the correction factor to be used for this phantom.

2.4.3.3.3 Shape impact in detection efficiency

The human head shape is closely related with to respective skull shape, there are significant differences in the skull shapes between different human races: typical Negroid individuals have lower and narrow skulls, Caucasoid have narrow skulls and Mongoloid have broader skulls (Shipman, Walker et al. 1985). Even between members of the same race there are differences in the shape especially between sex: male skulls are larger and are more angular, while female skulls are smaller and more rounded. Such shape differences have been used successfully to identify the sex and the race of skeleton remains (Shipman, Walker et al. 1985).

In the present work the shape impact on the detection efficiency was analyzed for the Case 102 phantom, the BfS phantom, the Max-06 phantom, Case 1, Case 2, reference person's and some additional hypothetical shapes. However the results obtained show that the shape of the head has only a small influence on the detection efficiency, in agreement with the results obtained by Vrba (2012). Due to this reason this results will not be discuss on this report.

2.4.4 Individual specific calibration

Recently an accidental exposure occurred during the decommissioning of an old chemistry laboratory. Two individuals were internally contaminated with ^{241}Am in the form of Americium Chloride during the handling of an old ^{241}Am source. The contamination was discovered in a routine measurement of the laboratory one week later by a radiation protection control team composed by three members. Shortly after urine *in-vitro* tests confirmed the internal contamination of all five persons.

Measurements performed at the Federal Office of Radiation Protection (BfS), Germany, showed that the internal contamination of the three members of the control team was below the detection limit of the BfS partial body counter for lung counting measurements. However, for the first two individuals exposed the results showed clearly an internal contamination with ^{241}Am . These two individuals, in this work named Case 1 and Case 2, were then measured at the HMGU partial body counter (PBC) for skull geometry; the results obtained confirmed the internal contamination.

The Case 1 is a Caucasian male with 178 cm height, and 96 kg body mass, who was 67 years old at the time of exposure. This individual was the first one to handle with the contamination source, which explains the higher values obtained for this individual. The Case 2 is a Caucasian female with 164 cm height, 66 kg body mass, who was 44 years old at the time of exposure. This individual was nearby when Case 1 was exposed and also handled the contamination source. In both cases no DTPA therapy was applied. To date Case 1 and 2 were measured three times using the HMGU Partial body counter. In this chapter the results obtained are presented, and analyzed using the correction factors for the critical head parameters.

2.4.4.1 Methods

For partial body counting, estimation of the total ^{241}Am in the skeleton is done using a method developed by Cohen, Spitz et al. (1977), in which is assumed that the ^{241}Am is uniformly distributed in the mineral mass (bone and teeth), and that for example the head represents 15.7% of the mineral mass of the total skeleton, and that consequently it contains 15.7% of

the ^{241}Am deposited in the skeleton. It is also assumed that all measured counts are from gammas originated in the fraction of bone measured. Skull measurements have the advantage that it is possible to reduce the contributions of neighboring contaminated regions of the human body to the measurement signal by proper shielding (Cohen, Spitz et al. 1977).

For Case 1 and 2, dedicated shielding was prepared made of 5 mm thick lead foil and covered with isolation tape to prevent lead poisoning. It was design and constructed to isolate the head from the body.

To improve the measurement geometry, a new detector configuration set was used where the detectors were placed perpendicular to the head surface at the top of the head, side of the head and forehead. Compared with the previous configuration this configuration has the advantage that the detector positioning is easier to be reproduced and implemented in the Monte Carlo computational simulations, it has also the advantage that detector 2 and 3 can be positioned closer to the head surface.

To increase the comfort of the measured person the distance between the detector window and the head surface was increased from close contact to 1 cm. To analyse the impact of the new configuration two measurements were performed to the BPAM phantom, using the detector 3, the first measurement was at close contact using a plastic end cap protection for the carbon epoxy window; the second measurement was performed at 1 cm distance and having the plastic end cap (previously used) removed. For the first measurement it was obtained an efficiency of $5.09 \times 10^{-3} \pm 1.1 \times 10^{-4}$, while the second is $4.62 \times 10^{-3} \pm 9 \times 10^{-5}$, based on this values it can be concluded that the new geometry configuration will decrease the detection efficiency approximately 9%. Taking in account the advantage of the new configuration the efficiency lost was considered acceptable.

Other modifications were introduced between the first and the second measurement. In the first measurement detectors 3, 4 and, 6 were used together with an adjustable medical bed. Because the first measurement it was observed that detector 6 presented an unusual high background below 30 keV, possibly due to a malfunction, this detector was replaced by detector 2 in the second and third measurements. An additional modification was the replacement of the adjustable medical bed by an electric adjustable medical chair, which improved the patient's comfort and allowed an easier positioning of the patient.

Before the first measurement, the head dimensions of Case 1 and Case 2 were measured with a plastic measuring tape and a big size caliper; the scalp thickness was estimated by bending the forehead skin, measuring this bend with the caliper, the dividing the results by 2, see **Table 2.4.**

Table 2.4.6: Case 1 and 2 head dimensions and scalp thickness measured on 23 May 2013.

Head Dimensions	Case 1	Case 2
Perimeter (mm), over the forehead and back of the head	600	570
Perimeter (mm), over the top of the head and under the chin	660	640
Half perimeter, top of one ear to the other one (mm)	320	310
Half perimeter, forehead to the back of the neck (mm)	400	400
X – Head width (mm)	191	192
Y – Head length (mm)	166	149
Z – Chin to top of the head (mm)	234	220
Forehead skin thickness (mm)	4	3.5

Before and after the measurements, the natural background inside the counting chamber from the adjustable medical bed or the electric adjustable medical chair and the lead body shielding was measured overnight for 50000 s, with the detectors already in the measurement configuration. Additionally, to validate the results obtained, the detectors efficiency was controlled using a ^{241}Am point source, while the energy calibration was verified using a ^{152}Eu point source and a ^{40}K source, this was done except in the first measurement.

Concerning the Case 1 and Case 2 measurements, as previously mentioned, the detectors were positioned at 1 cm distance from the head surface. Due to the different head sizes it was necessary to adjust the detector position for each case. The measurement time was defined based on the number of counts obtained in the first measurement.



Figure 2.4.18: Case 1 first measurement at HMGU PBC using a three detectors configuration. On the left detector 4, on the right detector 3, and on the top detector 6.



Figure 2.4.19: Case 2 first measurement at HMGU PBC using a three detectors configuration. On the left detector 4, on the right detector 3, and on the top detector 6.

2.4.4.2 Results

The measurements were performed 35 days, 83 days and 151 days after the contamination date. Detector 6 is not shown because high background counts observed below 30 keV indicate that this detector had possibly a malfunction. The results of this detector were not used for further evaluation, after the first measurement and was replaced by detector 2 in the second and third measurements

The control measurements using a ^{241}Am point source at 5 cm distance (to reduce the measurement dead time and counts pile-up) protected that the detection efficiency was the same before and after the measurements, except for the measurement on 10/7/2013 using detector 4. However the discrepancy observed was due to an unintentional displacement of the source during the control measurement.

The background values inside of the counting chamber for the second and third measurement campaigns are in agreement. However, compared with the first measurement the results detector 3 and 4 are approximately 30% and 15% higher, this is possibly due to a superior radioactive content from the construction materials such as ^{137}Cs of the electric adjustable medical chair compared with the adjustable medical bed used in the 1st measurement. This is confirmed by the increase of the number of counts from the ^{137}Cs 661 keV gamma between the first and second measurement. Relatively to the radon progeny contribution to the natural background the values measured indicates that there was no significant variation in its concentration. Note that detector 2 and 6 background measurements cannot be compared due to the different crystal sizes.

The increase of background counts in the region of interest as the consequence of increasing the MDA value. The background increase due to the use of the electric adjustable medical chair was estimated to increase the MDA between 5% and 10%. Taking in account the advantages of the used of the chair, the small increase of the MDA was considered acceptable.

An additional validation of the measurements was obtained from the Case 1 and Case 2 measurement itself. The ^{40}K is a primordial radionuclide present in the human body and other living beings. The full energy peak counts from the ^{40}K gamma (1461 keV) can be easily seen in detector 4, however, not in detector 2 and 3. This is due to the detector 4 crystal higher thickness which increases this detector efficiency for higher energies. Based on the detector 4 spectrums it was estimated that the ^{40}K full energy peak count rate in the different measurements was approximately the same, and comparing the Case 1 and Case 2 average count rate per kg the results are similar, 3.4×10^{-4} (counts $\text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$) and 3.6×10^{-4} (Activity estimation).

The activity content in the skull of Case 1 and Case 2 was estimated using the BfS phantom calibration factors. The activity was calculated using BfS phantom the calibration factors as measured without any correction except for the adding of 8% to the activity estimation uncertainty, due to the unknown ^{241}Am activity distribution in the bone present in Case 1 and Case 2, and taking in account the values of the USTUR case 102 phantom real activity distribution simulation.

In **Figure 2.4.20** and **Figure 2.4.21** the measured activity in the skulls of Case 1 and Case 2 is given as a function of time: for Case 1 there is an excellent agreement between the results obtained using different detectors with all values differences below a 2 sigma uncertainty,

except for the first measurement results; for Case 2 there is also an excellent agreement between the measurements with all values differences below a 2 sigma uncertainty, the values obtained for this case are lower compared with previous possibly due to the fact it was the second to be contaminated. In both cases there is a reduction of the activity measured in function of the time.

The MDA was calculated for ^{241}Am (59.54 keV) for the same measurements conditions of Case 1 and Case 2, using the BfS phantom for calibration and the average of three non-contaminated person's measurements. For Case 1, with exception for detector 2 results, all values measured and the sums of all measurements positions are above the respective MDA. For Case 2, the all third measurement values and second measurement detector 4 and detector 2 results are below detection system MDA, which means that the activity present is not sufficiently large to generate a number of counts that we can be confident to detect taking in account a 95% confidence level (Gilmore 2008). However, because the MDA (minimum detectable activity) is not the minimum activity detectable it is possible to measure an activity below this decision limit (Gilmore 2008). In this case it is required to calculate the detection system critical limit (L_C), which determines if the observed counts are statistical significant. This decision limit can be calculated following the methods developed by Currie (1968) where it is defined for a 95% confidence level as:

$$L_c = 2.33s_b \qquad 2.4.2$$

where s_b is the standard deviation of the number of counts for repeated measurements of a blank, in the same region of the full energy peak FWHM (Currie 1968).

The L_C values calculated for the same measurements conditions of Case 2, using the average of three non-contaminated person's measurements (see **Table 2.4.8**), show that the number of net counts obtained for Case 2 second measurement using detector 4 and detector 2 are above the L_C ; for the third measurement only the detector 4 results are above the L_C , however, the sum of detectors 2, 3 and 4 spectrums is above the L_C .

Table 2.4.7: MDA and L_D were calculated for ^{241}Am (59.54 keV) using BfS skull phantom, the blank is an average of 3 persons, a 1200 s measurement time, and the three detectors measurement geometry.

BfS Phantom	Single detector						Multiple detectors configuration					
	2	Uncer.	3	Uncer.	4	Uncer.	6	Uncer.	2 - 3 - 4	Uncer.	3 - 4	Uncer.
Time 1200 s												
Efficiency	$6.53 \cdot 10^{-3}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$9.06 \cdot 10^{-3}$	$2.2 \cdot 10^{-4}$	$2.36 \cdot 10^{-2}$	$5.5 \cdot 10^{-4}$	-	-	$3.92 \cdot 10^{-2}$	$6.1 \cdot 10^{-4}$	$3.27 \cdot 10^{-2}$	$5.9 \cdot 10^{-4}$
L_D (counts)	15.48	3.16	17.58	2.29	21.21	2.21	-	-	29.45	2.29	26.33	2.14
MDA (Bq)	5.50	1.42	4.50	0.91	2.08	0.38	-	-	1.74	0.26	1.87	0.29

Table 2.4.8: MDA, L_D and L_C were calculated, for ^{241}Am (59.54 keV) using BfS case 102 skull phantom, the blank is an average of 3 persons, a 3000 s measurement time, and the three detectors measurement geometry (the calculation of L_C refers to equation 2.4.2).

BfS Phantom	Single detector						Multiple detectors configuration					
	2	Uncer.	3	Uncer.	4	Uncer.	6	Uncer.	2 - 3 - 4	Uncer.	3 - 4	Uncer.
Time 3000 s												
Efficiency	$6.53 \cdot 10^{-3}$	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$9.06 \cdot 10^{-3}$	$2.2 \cdot 10^{-4}$	$2.36 \cdot 10^{-2}$	$5.5 \cdot 10^{-4}$	-	-	$3.92 \cdot 10^{-2}$	$6.1 \cdot 10^{-4}$	$3.27 \cdot 10^{-2}$	$5.9 \cdot 10^{-4}$
L_D (counts)	22.73	4.64	26.06	3.39	31.79	3.31	-	-	44.83	3.49	39.88	3.25
MDA (Bq)	3.23	0.83	2.67	0.54	1.25	0.23	-	-	1.06	0.16	1.13	0.18
L_C (counts)	9.89	2.02	11.55	1.50	14.43	1.50	-	-	20.96	1.63	18.48	1.50

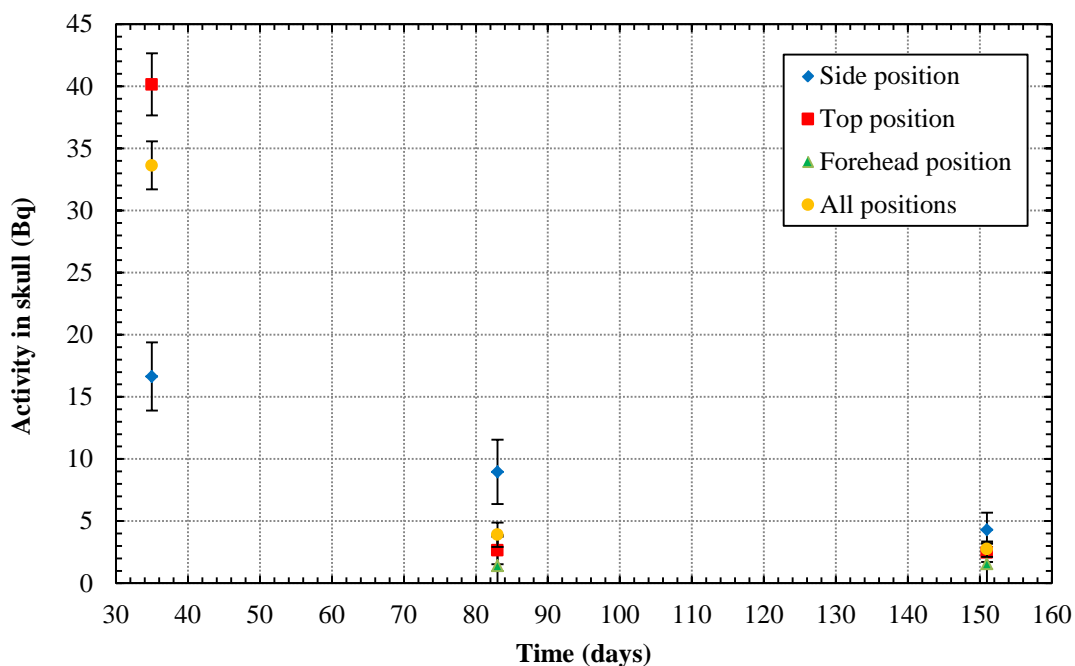


Figure 2.4.20: Case 1 activity measured in the skull function of the time after the contamination using the BfS phantom calibration. The error bars correspond to the one sigma uncertainty obtained from the Gaussian propagation of the statistical count uncertainty, the emission probability uncertainty, the BfS phantom activity uncertainty, and the activity distribution uncertainty.

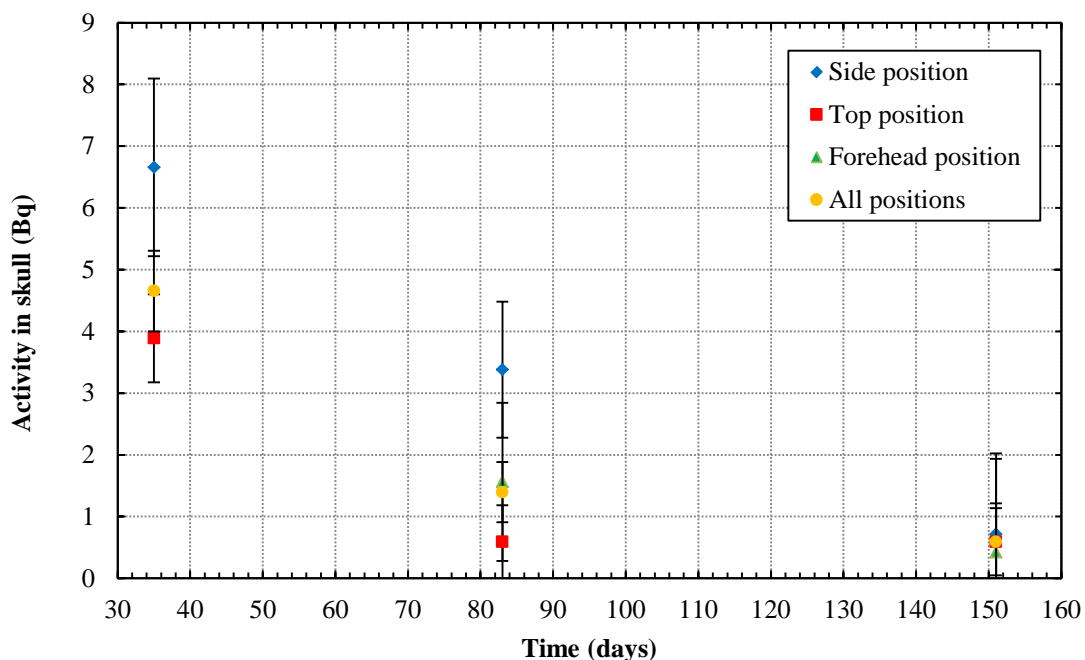


Figure 2.4.21: Case 2 activity measured in the skull function of the time after the contamination using the BfS phantom calibration. The error bars correspond to the one sigma uncertainty obtained from the Gaussian propagation of the statistical count uncertainty, the emission probability uncertainty, the BfS phantom activity uncertainty, and the activity distribution uncertainty.

2.4.4.3 Correction factors

The correction factors for critical head parameters calculated using the Max-06 voxel phantom and Monte Carlo methods were applied to personalize the BfS phantom and the Max-06 phantom efficiency calibration for Case 1 and Case 2 head parameters.

Assuming that the influence on the detection efficiency from the head dimensions is independent of the detector crystal size the correction factors previously calculated for detector 3 at the side position of the head can be applied to all other detectors with exception for the shape correction factor. This assumption is possible because the scalp correction factor depends mainly on the thickness of absorption material over the skull bone; the cortical to trabecular bone correction factor depends only on the time after exposition, this assuming that the ratio between trabecular bone and cortical bone quantity is constant in different bones of the skull; also the size correction factor being base on an average radius of the X Y and Z dimension of the head will also not be dependent on the measurement position. Only the shape correction factor will be dependent on the measurement position because the head is not a sphere and has it was observed in simulation for extreme cases of head shapes the main contribution to the efficiency variation is the contribution of the opposite side to the measurement position.

Concerning the scalp correction factors since no values of scalp thickness are available for the side and top of the head of Case 1 and Case 2, the Max-06 phantom scalp thickness values were used to calculate the correction factors at these positions, see **Table 2.4.3**.

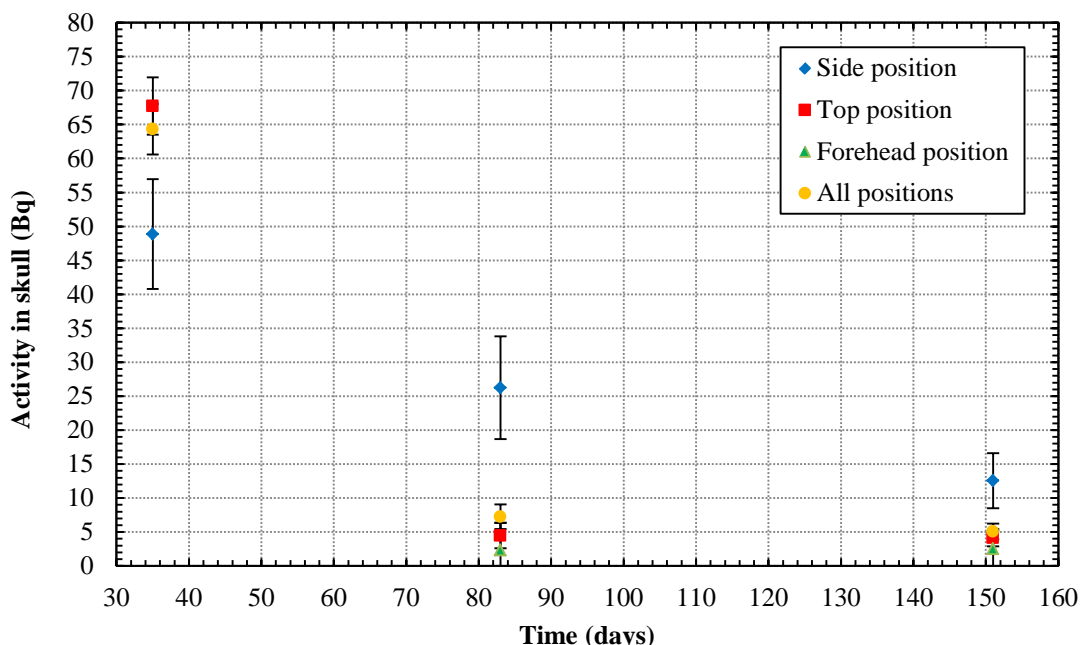


Figure 2.4.22: Case 1 activity measured in the skull function of the time after the contamination using the BfS phantom calibration together with correction factors for the critical head parameter from Case 1. The error bars correspond to the one sigma uncertainty obtained from the Gaussian propagation of the statistical count uncertainty, the emission probability uncertainty, the BfS phantom activity uncertainty, and the activity distribution uncertainty.

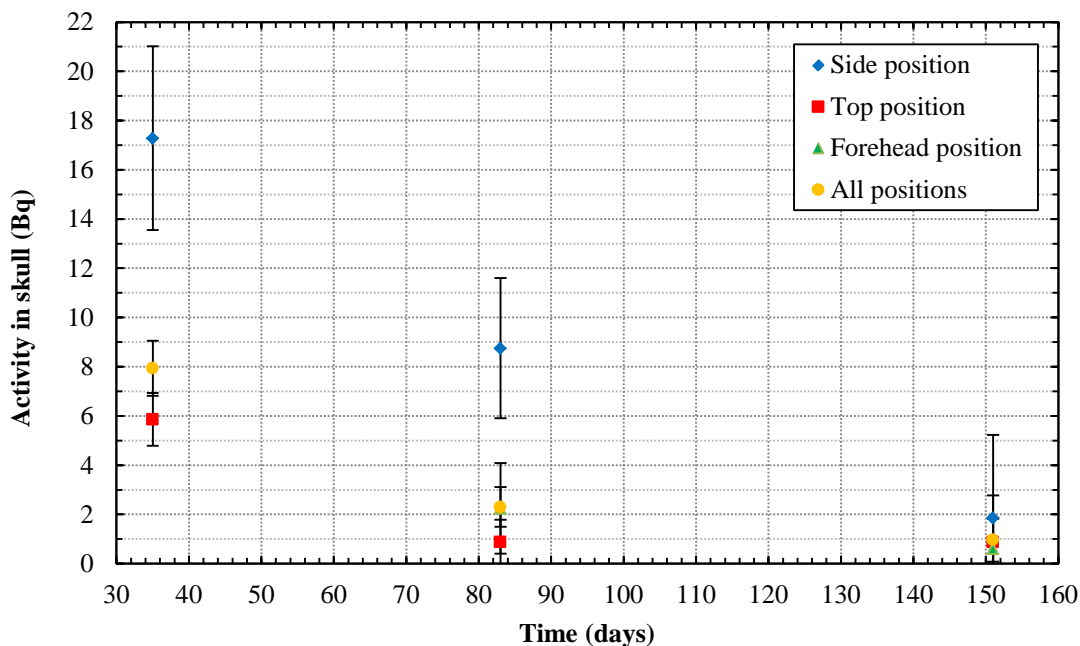


Figure 2.4.23: Case 2 activity measured in the skull function of the time after the contamination using BfS phantom calibration together with correction factors for the critical head parameter from Case 2. The error bars correspond to the one sigma uncertainty obtained from the Gaussian propagation of the statistical count uncertainty, the emission probability uncertainty, the BfS phantom activity uncertainty, and the activity distribution uncertainty.

2.4.4.4 Estimation of Dose

The total ^{241}Am skeleton content can then be estimated through the method developed by Cohen, Spitz et al. (1977), in which it is assumed that the ^{241}Am is uniformly distributed in the mineral mass (bone and teeth), and since the head represents 15.7% (ICRP-89 2002) of the mineral mass and it consequently contains 15.7% of the ^{241}Am deposited in the skeleton. The activity content values were calculated for the detectors spectra sum after applying the correction factors for the personalized calibration, see **Table 2.4.9** and **Table 2.4.11**.

For the estimation of the Case 1 and Case 2 activity intake and effective dose, the use of biokinetic models is required. At BfS, based on lung measurements, whole body measurements, and *in vitro* assays of urine samples, it was found that the biokinetic model for an inhalation absorption type S, AMAD $1\ \mu\text{m}$, following an acute intake, is the biokinetic model that fits best with the experimental results (Giussani 2013), see **Figure 2.4.24**. Below the retention curve for the skeleton calculated by Klaus Karcher using the BfS software DOSAGE (Noßke and Karcher 2014), which is used for quality assurance of the ICRP models, was used to estimate the ^{241}Am intake. The effective dose was also calculated using this model the dose coefficient for 50 years of $1.47 \times 10^{-5}\ \text{Sv Bq}^{-1}$ and the dose coefficient for the first year of $5.36 \times 10^{-6}\ \text{Sv Bq}^{-1}$ (Giussani 2013), see **Table 2.4.10** and **Table 2.4.12**.

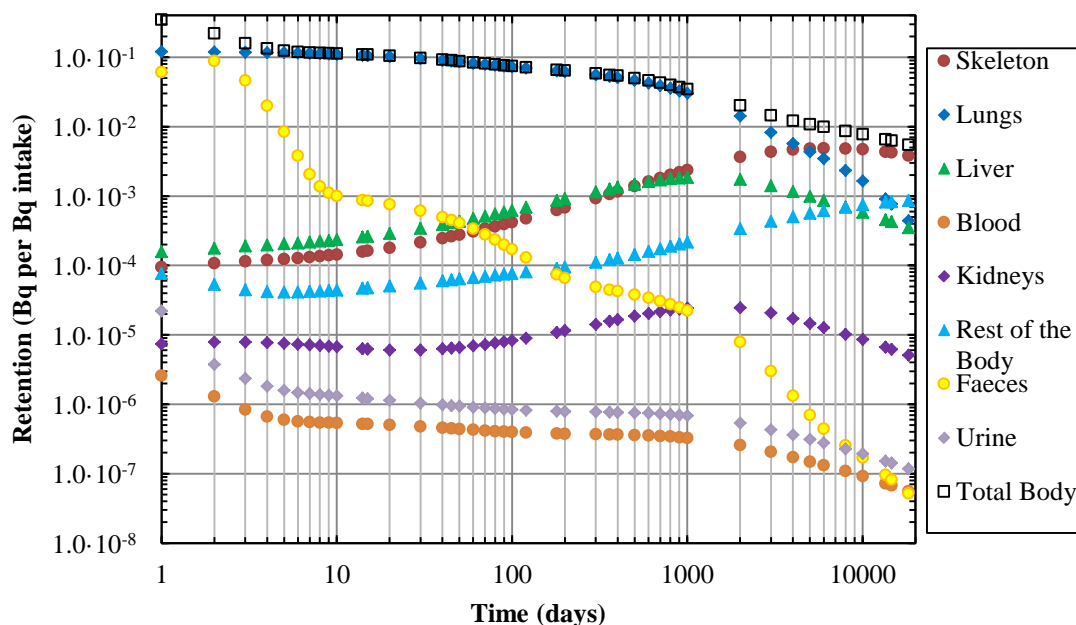


Figure 2.4.24: Retention curves for ^{241}Am inhalation absorption type S, AMAD $1\ \mu\text{m}$, following an acute intake; values calculated using the BfS software DOSAGE (Noßke and Karcher 2014) by Klaus Karcher (Giussani 2013).

Table 2.4.9: Case 1 ^{241}Am activity in the skull bone estimated using the BfS phantom and personalized correction factors, and extrapolation of the activity in the complete skeleton assuming that the skull bone contains 15.7% of the mineral bone mass from the total skeleton.

Detectors	Time after exposure (d)	Activity (Bq)			
		Skull	Uncertainty	Skeleton	Uncertainty
3-4	35	64.3	4.0	409.7	25.5
3-4-2	83	7.3	2.0	46.2	12.7
3-4-2	151	5.1	1.2	32.4	7.6

Table 2.4.10: Case 1 ^{241}Am activity intake and dose estimation, using the retention curve in skeleton (see **Figure 2.4.24**) calculated by Klaus Karcher (Giussani 2013) for a biokinetic model for an inhalation absorption type S, AMAD $1\ \mu\text{m}$, following an acute intake (inhalation).

Detector	Time after exposure (d)	Retention in skeleton (Bq per Bq intake)	BfS calibration		
			Activity intake (Bq)	Dose 50 years (Sv)	Dose in the first year (Sv)
3-4	35	$2.30 \cdot 10^{-4}$	$1.78 \cdot 10^{+6}$	26.18	9.55
3-4-2	83	$3.74 \cdot 10^{-4}$	$1.23 \cdot 10^{+5}$	1.82	0.66
3-4-2	151	$5.56 \cdot 10^{-4}$	$5.82 \cdot 10^{+4}$	0.86	0.31

Table 2.4.11: Case 2 ^{241}Am activity in the skull bone estimated using the BfS phantom and personalized correction factors, and extrapolation of the activity in the complete skeleton assuming that the skull bone contains 15.7% of the mineral bone mass from the total skeleton.

Detector	Time after exposure (d)	Activity (Bq)			
		Skull	Uncertainty	Skeleton	Uncertainty
3-4	35	7.9	1.2	50.6	7.6
3-4-2	83	2.3	0.9	14.7	5.7
3-4-2	151	1.0	1.0	6.2	6.4

Table 2.4.12: Case 2 ^{241}Am activity intake and dose estimation, using the retention curve in skeleton (see **Figure 2.Fehler! Kein Text mit angegebener Formatvorlage im Dokument..24**) calculated by Klaus Karcher (Giussani 2013) for a biokinetic model for an inhalation absorption type S, AMAD 1 μm , following an acute intake (inhalation).

Detector	Time after exposure (d)	Retention in skeleton (Bq per Bq intake)	BfS calibration		
			Activity intake (Bq)	Dose 50 years (Sv)	Dose in the first year (Sv)
3-4	35	$2.30 \cdot 10^{-4}$	$2.20 \cdot 10^{+5}$	3.23	1.18
3-4-2	83	$3.74 \cdot 10^{-4}$	$3.92 \cdot 10^{+4}$	0.58	0.21
3-4-2	151	$5.56 \cdot 10^{-4}$	$1.11 \cdot 10^{+4}$	^a 0.16	^a 0.06

^a – Dose values based on activity values that are below the detection system MDA.

For both cases the dose values calculated are significantly different depending on the measurement time after the exposure. The differences are mainly due to the decrease of the measured activity as a function of time. This decrease is in contradiction with the calculated retention curves for ^{241}Am which predicts an increase of the ^{241}Am activity in the bone as a function of time.

The reason for the contradiction between experimental and theoretical values is possibly due to the short time between the measurements and the exposure. Generally skull measurements are performed several years after the incorporation, when the ^{241}Am is mainly localized in the skeleton, lungs and liver, thus the use in skull measurements of calibration phantoms where only the skull bone is contaminated. However, for Case 1 and Case 2 the measurements were performed only some months after the exposure and as a consequence there is still possibly a great ^{241}Am activity present in soft tissues such as the brain, the adipose or the muscle tissue. The excretion of the ^{241}Am activity from these soft tissues would explain the rapid decrease of the measured activity between the measurement campaigns. Unfortunately this cannot be confirmed since no retention curves are available for these soft tissues, because they are not source organs in the ICRP model (Giussani 2013). Additionally, the available skull calibration does not contain any contribution from an additional contamination of soft tissue.

Taking into account the previous arguments the best estimations of the effective dose for 50 years are based on the last measurements thus 0.86 Sv for Case 1 and 0.16 Sv for Case 2, however, note that Case 2 dose estimation is based in an activity value below the detection system MDA, and thus not within the 95% confidence level, but this measurement number of counts is above the detection system decision limit L_C . Additionally it is noted, that there might be additional contribution to the dose from the first few weeks for both cases.

2.4.5 Conclusions and Outlook

In this work, the Helmholtz Zentrum München partial body counter has been specifically calibrated for two real human accidental exposures to ^{241}Am incorporation. This personalized calibration allowed to improve the estimation of the incorporated activity and the corresponding internal dose by values up 1.6 and 1.9 times larger than those estimated without applying any correction for person-specific parameters.

To achieve this, the Helmholtz Zentrum München partial body counter was calibrated using three skull phantoms from nine available world-wide. To study the partial body counter detection efficiency of low-energy photons, a computational set-up of one germanium detector was developed for Monte Carlo simulations using the GEANT4 code, and validate by comparison with measurement results and the MCNPX Monte Carlo code.

Finally the head of the Max-06 voxel phantom, a computational anthropomorphic phantom that was produced from human anatomical cross-sectional images, together with the GEANT4 Monte Carlo code was used to study critical body parameters. The results revealed that parameters such as the time after the internal contamination and the mean head radius size, can change significantly the detection efficiency which will, if not corrected form, result in inaccurate estimations of the activity present in the human skeleton. Using these Monte Carlo results for the first time correction factors were calculated to correct skull geometry efficiency calibrations for all major critical head parameters. These factors can be used to determine “individual-specific” calibration factors. Additionally it can be assumed that the correction factors calculated in this work can also be also applied to other partial body counter calibrations.

All simulations results demonstrate that the Monte Carlo codes are able to reproduce the experimental measurements in all major aspects. Monte Carlo simulations have several advantages compared to measurements such as being more flexible, less expensive, time saving, and able to provide better statistics than the measurement results. These advantages are particularly important given the limitations of the physical phantoms which are very expensive to build, for which only a very limited number available world-wide. Additionally all phantoms contain features that are not representative of the human anatomy, e.g. an incomplete fill of the brain region, and an incorrect description of scalp thickness. On the other hand, state of the art computational phantoms, due to their great detail, are closer to the human anatomy than physical phantoms, and through their flexibility are easily adjustable to individual specific dimensions. Taking in account the advantages provided by the use of computational tools demonstrated in this work it is expected that in the nearby future physical phantoms calibrations will be fully replaced by computational phantoms and numerical calibrations.

In an effort to improve the accuracy of dose estimations after internal contamination, the methods and correction factors provided in this work allow every partial body counter user to correct his standard skull calibration to achieve “individual-specific” calibration factors for skull measurements without the need of further measurements or simulations. Thus, this work is considered to provide a major improvement in internal dosimetry after incorporation of “bone seeking” radionuclides emitting low-energy photons.

As future work, the additional measurement positions on the skull surface should be investigated and the other detectors used should be simulated, to confirm if as assumed in this

work, the correction factors calculated for the HMGU detector 3 at the side position of the head can be used for all other positions and independent of the crystal size.

Additionally, as observed in the Case 1 and Case 2 measurements, the biokinetic of ^{241}Am has a significant role in the dose estimations from skull bone measurements. The impact of the detection efficiency from the ^{241}Am present in the soft tissues should be determined using Monte Carlo simulations, anthropomorphic phantoms and biokinetic retention curves from the surrounding tissues. Such results could then be used to determine correction factors for this time-dependent effect.

2.4.6 References

- Bolch, W., C. Lee, M. Wayson and P. Johnson (2010). "Hybrid computational phantoms for medical dose reconstruction." *Radiation and Environmental Biophysics* **49**(2): 155-168.
- Breitenstein, B. D., C. E. Newton, H. T. Norris, K. R. Heid, B. Robinson, H. E. Palmer, G. A. Riecksts, H. B. Spitz, J. F. McInroy, H. A. Boyd, B. C. Eutsler, D. Romero, P. W. Durbin and C. T. Schmidt (1985). "The U.S. Transuranium Registry Report on the ^{241}Am Content of a Whole Body." *Health Physics* **49**(4): 559-648.
- Carinou, E., V. Koukoulidou, M. Budayova, C. Potiriadis and V. Kamenopoulou (2007). "The calculation of a size correction factor for a whole-body counter." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **580**(1): 197-200.
- Cohen, N., H. B. Spitz and M. E. Wrenn (1977). "Estimation of skeletal burden of "bone-seeking" radionuclides in man from in vivo scintillation measurements of the head." *Health Phys* **33**: 431-441.
- Currie, L. A. (1968). "Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry." *Analytical Chemistry* **40**(3): 586-593.
- Debertin, K. and R. G. Helmer (1988). *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, North Holland.
- Dimov, I. T. M. S. (2000). *Monte Carlo methods for applied scientists*. [S.l.], World Scientific Publ. Co.
- Doerfel, H. and F. Karlsruhe (2006). *General Guidelines for the Estimation of Committed Effective Dose from Incorporation Monitoring Data: (project IDEAS - EU Contract No. FIKR-CT2001-00160)*, Forschungszentrum Karlsruhe.
- Fojtik, P. (2011). National Radiation Protection Institute personal communication
- Genicot, J. L., V. Koukoulidou and E. Carinou (2008). "Monte Carlo calculations applied to the parametrical studies in a whole body counter." *Radiat Prot Dosimetry* **128**(1): 49-61.
- Gilmore, G. (2008). *Practical gamma-ray spectrometry*, Wiley.
- Giussani, A. (2013). *Retention Type S AMAD 1*.
- Griffith, R. V., A. L. Anderson and J. C. Fisher (1978). Tissue-equivalent torso phantom for calibration of transuranic nuclide counting facilities *Advances in Radiation Monitoring*, IAEA Conference. Vienna. **IAEA-SM-229/56**: 4493-4504.
- Gualdrini, G., C. Daffara, K. W. Burn, P. Battisti, P. Ferrari and L. Pierotti (2005). "Monte Carlo modelling of a voxel head phantom for in vivo measurement of bone-seeker nuclides." *Radiat Prot Dosimetry* **115**(1-4): 320-323.
- Helmer, R. G., J. C. Hardy, V. E. Jacob, M. Sanchez-Vega, R. G. Neilson and J. Nelson (2003). "The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency

- curve." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **511**(3): 360-381.
- HFERAG (2000). *Human Engineering Design Data Digest*, U.S. Department of Defense Human Factors Engineering Technical Advisory Group Washinton, DC: 158.
- Hickman, D. P. and N. Cohen (1988). "Reconstruction of a human skull calibration phantom using bone sections from an ²⁴¹Am exposure case." *Health Phys* **55**(1): 59-65.
- Hubbell, J. H. and S. M. Seltzer (2004). *Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients (version 1.4)*. . <http://physics.nist.gov/xaamdi> [2013, November 7]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- Hunt, J. G., I. Malátová and S. Foltánová (1999). "Calculation and Measurement of Calibration Factors for Bone-Surface Seeking Low Energy Gamma Emitters and Determination of ²⁴¹Am Activity in a Real Case of Internal Contamination." *Radiation Protection Dosimetry* **82**(3): 215-218.
- Hurtado, S., M. García-León and R. García-Tenorio (2004). "GEANT4 code for simulation of a germanium gamma-ray detector and its application to efficiency calibration." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **518**(3): 764-774.
- ICRP-23 (1975). *Reference man: Anatomical, physiological and metabolic characteristics*. ICRP Publication 23. Oxford, UK, Pergamon Press.
- ICRP-70 (1995). *Basic Anatomical & Physiological Data for use in Radiological Protection - The Skeleton*. ICRP Publication 70. Oxford, UK, Pergamon Press.
- ICRP-89 (2002). *Basic anatomical and physiological data for use in radiological protection: reference values*. ICRP Publication 89. Oxford, UK, Pergamon Press.
- ICRU-44 (1989). *Tissues Substitutes in Radiation Dosimetry and Measurements*. ICRU Report 44. Bethesda, MD, International Commission on Radiation Units and Measurements.
- Johnson, L. C. (1964). "Morphologic Analysis in Pathology: The Kinetics of Disease and General Biology of Bone." In: Frost, H.M. (Ed.), *Bone Biodynamics*, Little Brown and Co., Boston, MA, USA,: 111.
- Johnston, P. N. (1985). *De-excitation of the L2 Subshell in Transradium Elements*, La Trobe University.
- Jurado Vargas, M. and A. L. Guerra (2006). "Application of PENELOPE code to the efficiency calibration of coaxial germanium detectors." *Applied Radiation and Isotopes* **64**(10-11): 3.
- König, K., W. Wahl, W. Rühm and W. Burkart (1998). "Direct beta measurements to determine in vivo whole-body activities of ⁹⁰Sr in residents of the southern Urals: description of a new method." *Radiation and environmental biophysics* **37**(1): 6.
- Kovtun, A. N., V. B. Firsanov, V. I. Fominykh and G. A. Isaakyan (2000). "Metrological Parameters of the Unified Calibration Whole-Body Phantom with Gamma-Emitting Radionuclides." *Radiation Protection Dosimetry* **89**(3-4): 239-242.
- Kramer, G. H., L. C. Burns and S. Guerriere (2002). "Monte Carlo simulation of a scanning detector whole body counter and the effect of BOMAB phantom size on the calibration." *Health Phys* **83**(4): 526-533.
- Kramer, G. H. and B. M. Hauck (2006). "The sliced bomab phantom: a new variant for intercomparison." *Health Phys* **90**(2): 161-166.
- Kramer, R., H. J. Khoury, J. W. Vieira and V. J. Lima (2006). "MAX06 and FAX06: update of two adult human phantoms for radiation protection dosimetry." *Phys Med Biol* **51**(14): 3331-3346.

- Laborie, J. M., G. Le Petit, D. Abt and M. Girard (2000). "Monte Carlo calculation of the efficiency calibration curve and coincidence-summing corrections in low-level gamma-ray spectrometry using well-type HPGe detectors." *Applied Radiation and Isotopes* **53**(1-2): 57-62.
- Laurer, G. (1993). Letter to W. Burkhardt from 8th April 1993, New York University Medical Center. Laboratory for Radiation Studies.
- Malátová, I., V. Becková, T. Vrba and H. Pospíšilová (2004). Exposure of workers from Intake of ²⁴¹Am in the Czech Republic. 11th International Congress of the IRPA, Madrid, Spain.
- Malátová, I. and S. Foltánová (2000). "Uncertainty of the Estimation of ²⁴¹Am Content of the Human Body." *Radiation Protection Dosimetry* **89**(3-4): 295-299.
- Malátová, I., S. Foltánová and T. Novotný (1999). Estimation of the ²⁴¹Am Content in the Skeleton of a Person Contaminated 25 years ago. 6th SRP International Symposium, Southport.
- Metropolis, N. and S. Ulam (1949). "The Monte Carlo method." *J Am Stat Assoc* **44**(247): 335-341.
- Moraleda, M., J. M. Gómez-Ros, M. A. López, T. Navarro and J. F. Navarro (2005). "A Monte Carlo-based knee phantom for in vivo measurements of ²⁴¹Am in bone." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **538**(1-3): 731-737.
- Noßke, D. (2013). Cortical bone and Trabecular Bone retention curves, personal communication.
- Noßke, D. and K. Karcher (2014). DOSAGE Biokinetic quality assurance software, personal communication: 1.
- Palmer, H. E., H. B. Spitz and G. A. Rieksts (1985). "US Transuranium Registry report on the SU Am content of a whole body. Part III: Gamma-ray measurements." *Journal Name: Health Phys.; (United States); Journal Volume: 4; Medium: X; Size: Pages: 577-586.*
- Shipman, P., A. Walker and D. Bichell (1985). *The human skeleton*, Harvard University Press.
- Tolmachev, S. (2012). United States Transuranium and Uranium Registries personal communication.
- Vrba, T. (2007). "Development and application of anthropomorphic voxel phantom of the head for in vivo measurement." *Radiation Protection Dosimetry* **127**(1-4): 201-204.
- Vrba, T. (2010a). "Head calibration phantoms for actinides: measurements and simulations." *Radiation Protection Dosimetry* **144**(1-4): 357-360.
- Vrba, T. (2010c). Development of Approaches for Realistic Retrospective Evaluation of Doses of selected Cases of Internal Contamination. Third European IRPA Congress, Helsinki, Finland
- Vrba, T. (2012). Influence of Head Shape on Measured Activity of Actinides. IRPA13, Glasgow, Scotland.
- Vrba, T., I. Malátová, P. Fojtík, M. Fülöp and P. Ragan (2013). "A SIMPLE PHYSICAL PHANTOM FOR AN INTERCOMPARISON EXERCISE ON ²⁴¹Am ACTIVITY DETERMINATION IN THE SKULL." *Radiation Protection Dosimetry*.

2.5 Arbeitspaket 3.4: Biokinetische Modellierung und interne Dosisabschätzung auf der Basis experimenteller Messdaten

Weibo Li, Uwe Oeh, Kamil Brudecki, Abteilung Medizinische Strahlenphysik und Diagnostik (AMSD)

2.5.1 Overview

To improve the risk assessment of the radiation exposure of humans from different transport pathways of radionuclides in the environment, a German competence network “Radiation and Environment II: Radionuclides in the Environment and Transport Chain into Humans” was established. The main objective is to build up a multidisciplinary research network in Germany for a better understanding of the dispersion of radionuclide in the air, water and soil, its transfer in the surfaces of the biological materials and in the chain of foodstuffs and the biokinetics in the humans. In the present work package (WP) 3.4, The main task is to connect and network biokinetic modelling based on the experimentally measured human biokinetic data, such as excretions, radioactivity in bone and organs and the environmental radioactivity in air and foodstuffs, and to validate and improve the biokinetic models currently used in radiation protection, and to analyse uncertainties that may be occurred in the biokinetic measurement and modelling. Combining biokinetic modelling with experimental investigations in humans, the internal dose can be much more precisely assessed and therefore providing a reliable risk assessment in radiation exposure. Finally, members of the public and occupational workers can be better protected from radiation exposure. In the following sections, the work, which was carried out in cooperation with other work packages, mainly WP 3.1, WP 3.3, WP 4.1 and WP 4.3, was summarised.

2.5.2 Age-dependent inhalation dosimetry of thoron progeny

2.5.2.1 Introduction

The increased indoor thoron level in Europe, North America and Asia has shown that the exposure to thoron and its decay products cannot be ignored in the environment (Tschiersch et al. 2007; Meisenberg and Tschiersch 2011). In the Helmholtz Zentrum München (HMGU), a thoron experimental house was built to investigate the dynamics of thoron and its progeny in indoor air (Tschiersch and Meisenberg 2010). In our work package, the dose coefficients of thoron progeny were calculated based on the measured parameters in the HMGU thoron house and the results can be used for a better risk assessment of the public in Germany exposure to thoron progeny, especially for young children and women.

2.5.2.2 Materials and methods

Three steps are required to evaluate the inhalation dose coefficients of thoron progeny, namely: calculation of aerosol particle deposition to obtain the deposited fraction in different lung regions of the inhaled materials; a biokinetic model for translocation of deposited materials inside the human body; and a dosimetric model to estimate both the organ equivalent dose, effective dose and dose conversion coefficient.

2.5.2.2.1 Aerosol fractional deposition in the human respiratory tract

Inhaled thoron progeny aerosols deposit in the respiratory tract, which is divided into four anatomical regions represented by filters: (1) the extrathoracic region (ET), comprising the anterior nose (ET₁) and the posterior nasal passages, larynx, pharynx, and mouth (ET₂); (2) the bronchial region (BB); (3) the bronchiolar region (bb); and (4) the alveolar-interstitial region (AI). All four regions contain lymph nodes (LN). In the deposition model, each breath is represented by a tidal flow of air that carries particles through each filter. Mathematically, each of these filters was characterized by two parameters: filtration efficiency for removing airborne particles and the volume. Taking into account both the filtration efficiency and the volumetric factor, the fraction of the number of particles deposited in each filter can be calculated.

The deposition fractions of radon progeny attached to aerosol particles in the respiratory tract depend on aerosol sizes and individual parameters such as age, sex, and lifestyle. The measured aerosol particle sizes have been proved to follow a lognormal distribution (Raab 1971; Meisenberg and Tschiersch 2011). In the present work, the typical size of indoor particles was assumed as the activity median aerodynamic diameter (AMAD) of 300 nm ($\sigma_g = 2.3$) of aerosol for the attached particles and activity median thermodynamic diameter (AMTD) in 1.5 nm ($\sigma_g = 1.0$) for unattached particles, with an unattached fraction of 0.03 (Meisenberg and Tschiersch 2011). The age and sex dependent values of the anatomical and physiological parameters in different daily activities reported by ICRP Publication 66 are adopted in the present calculations. The typical indoor time distribution of different activities for the human being is supposed as 71% and 29% for sleeping and light exercise respectively for three month children and 55%, 15%, and 30% for sleeping, sitting, and light exercise respectively for all other age and sex groups (ICRP 1994).

2.5.2.2.2 Biokinetic model of the thoron progeny

Because of the short half-life, some of the thoron progeny, i.e. ²¹⁶Po, ²⁰⁸Tl, and ²¹²Po, are not supposed to exist in the air. Thus, only the inhalation of ²¹²Pb and ²¹²Bi is considered. The progeny, i.e. ²¹²Bi, ²⁰⁸Tl, and ²¹²Po, occurring inside the human body from those two thoron progeny ²¹²Pb and ²¹²Bi are considered for dose calculation. However, ²¹²Po is not calculated separately since it is always in a certain equilibrium condition with its parent nuclide ²¹²Bi because of its minimal half-life. For the other three nuclides, 38 regions of organs and tissues are involved according to the human biokinetic models, including the radionuclide-specific systemic model, the human respiratory tract model and the human alimentary tract model, as shown in **Figure 2.5.1**.

Transfer rates between organs or tissues of those radionuclides are available for the human respiratory tract model, human alimentary tract model, and systemic model (ICRP 1979, 1989, 1993a, 1994, 1995b), except that the procedure of absorption into blood from the respiratory tract is substituted by a simplified compartmental model proposed by Marsh and Birchall (1999b), based on the earlier published data sets by Booker et al (1969), Hursh et al (1969), and Hursh and Mercer (1970). It is assumed that Pb is absorbed into blood with a half-life of 10 h and Bi with a half-life of 13 h no matter what kind of attachment forms they hold. The transfer procedure for the inhalation of ²¹²Pb can be expressed as a system of first-order differential equations. Thus, the number of each nuclide in every tissue and organ at any certain time elapsed from the initial time can be calculated by a numerical method, in the present work, the program MATLAB™ (The MathWorks GmbH, Ismaning) was used to solve the system of differential equations of the inhalation biokinetic model. The total number of nuclear transformations from any of the nuclides in any certain organ can be calculated by integrating all the concentrations in that organ.

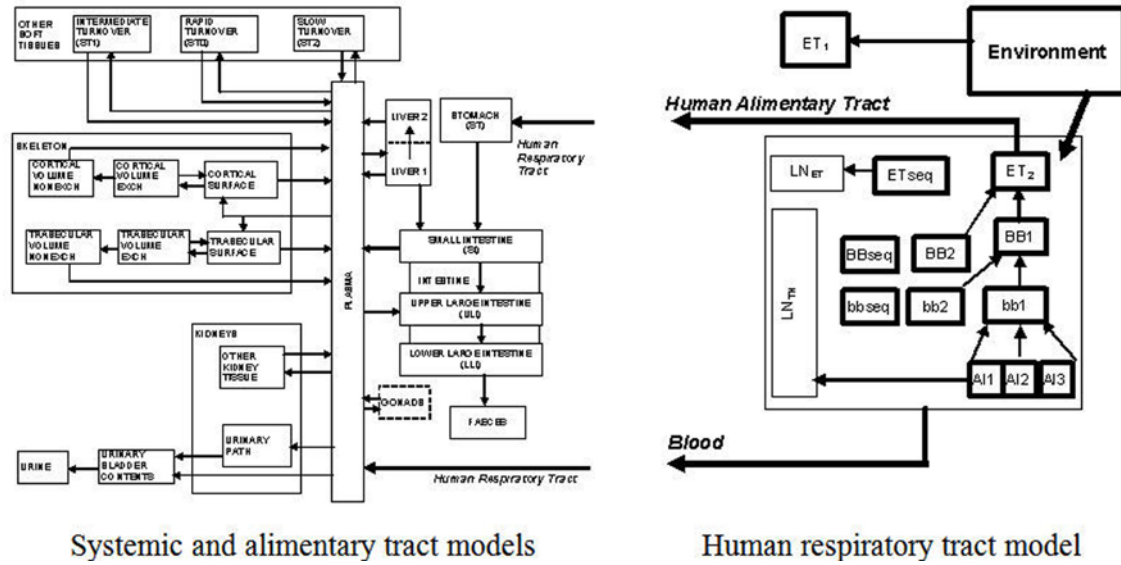


Figure 2.5.1: Inhalation biokinetic compartmental model for thoron decay products. The model used in this study, which combines the alimentary tract, the systemic models, and the human respiratory tract model. Extrathoracic region: ET₁ (anterior nose), ET₂ (posterior nasal passages, larynx, pharynx, and mouth), LN_{ET} (lymph nodes). Thoracic region: BB (bronchial), bb (bronchiolar), AI (alveolar-interstitial), LN_{TH} (lymph nodes).

2.5.2.2.3 Dosimetric model

Organ equivalent doses were calculated with the nuclear transformation number of the deposited radioactive particles in all organs and the specific effective energy. The committed equivalent dose in each target organ T from radiations emitted in a source organ S is determined by the product of two factors: 1) the total number of transformations of the radionuclide in source organ S over a period of integration τ after intake of the radionuclide; 2) the specific effective energy, that is, the energy absorbed per unit mass in target organ T , suitably modified for the radiation weighting factor, for each radiation emitted per transformation in source organ S . The equivalent dose rate at age t in organ T of an individual intake at the age of t_0 can be expressed as Eq. (2.5.1) (ICRP 1994).

$$\dot{H}_T(t, t_0) = c \sum_S \sum_j q_{S,j}(t) SEE(T \leftarrow S; t)_j \quad (2.5.1)$$

The value of SEE was calculated by using the SEECAL program (Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA), in which each type of radiation is weighted by a given radiation weighting factor, w_R , which accounts for the different biological effectiveness in inducing late effects. Calculation of $q_{S,j}$ was introduced in the biokinetic model. c is any numerical constant required by the units of q and SEE , and should be 1 if SI units were adopted. Therefore, the organ equivalent dose, H_T , can be calculated as Eq. (2.5.2).

$$\dot{H}_T(t_0) = \int_{t_0}^{70} \dot{H}_T(t, t_0) dt = c \int_{t_0}^{70} \sum_S \sum_j q_{S,j}(t) SEE(T \leftarrow S; t)_j dt \quad (2.5.2)$$

As the new ICRP Recommendation (2007) suggested, the effective dose, E , is calculated by the sum of the product of the equivalent dose, H_T , and the corresponding tissue weighting factor, w_T , over 14 tissues, T , and the product between the equivalent dose of the so called remainder tissue, H_{rem} , and its weighting factor, w_{rem} . H_{rem} is the arithmetic mean equivalent dose of 13 other tissues in each sex. Since $q_{S,j}$ and SEE of the respiratory tract are calculated

in separate anatomical regions, the assigned fractions for target cells in different regions are assumed to be 0.001, 0.998 and 0.001 for ET₁, ET₂ and LN_{ET} in the ET area, and 0.1665, 0.1665, 0.333, 0.333 and 0.001 for BB_{bas}, BB_{sec}, bb, AI and LN_{TH} in lungs, respectively (ICRP 1994).

2.5.2.2.4 Dose conversion coefficient for thoron progeny

The dose conversion coefficient of thoron progeny under typical conditions can be calculated by the product of summation of effective dose coefficients of ²¹²Pb and ²¹²Bi, the human breathing rate, and the degree of the equilibrium of thoron and its progeny in room air if measured data are available. For a conservative estimation, the dose conversion coefficient of thoron progeny was calculated by the product of summation of the effective dose coefficients and the fractions of potential alpha energy of progeny ²¹²Pb and ²¹²Bi per activity unit (Bq) as shown in Eq. (2.5.3) (Porstendörfer 1994), while contributions from ²¹⁶Po and ²¹²Po were neglected due to very small fractions. Historically, the unit of Sv WLM⁻¹ has been used for dose conversion coefficient, however, the SI unit of dose conversion coefficients is Sv (Bq h m⁻³)⁻¹. 1 Sv WLM⁻¹ equals 2.13×10⁻⁵ Sv (Bq h m⁻³)⁻¹.

$$EEC_{Tn} (Bq m^{-3}) = 7 \times 10^{-6} C_{Po216} + 0.913 C_{Pb212} + 0.087 C_{Bi212} + 8 \times 10^{-12} C_{Po212} \quad (2.5.3)$$

2.5.2.3 Results and discussion

2.5.2.3.1 Aerosol fractional deposition in the human respiratory tract

Results of the total and regional depositions of aerosol particles in the human respiratory tract for one year children and male adult are shown in **Figure 2.5.2**. For the very small particles around 1 nm, nearly 90% are deposited in the ET area, due to the effect of Brownian motion. With the increase of particle size, the effect of Brownian motion decreases and more particles are able to reach deeper parts, i.e. BB, bb, and AI, and even be exhaled. The maximum deposition in AI appears at tens of nanometers. Then, the deposition of all areas decreases because of exhalation. When the particle size increases to hundreds of nanometers, gravitational sedimentation and inertial impaction become dominant which lead to an increase

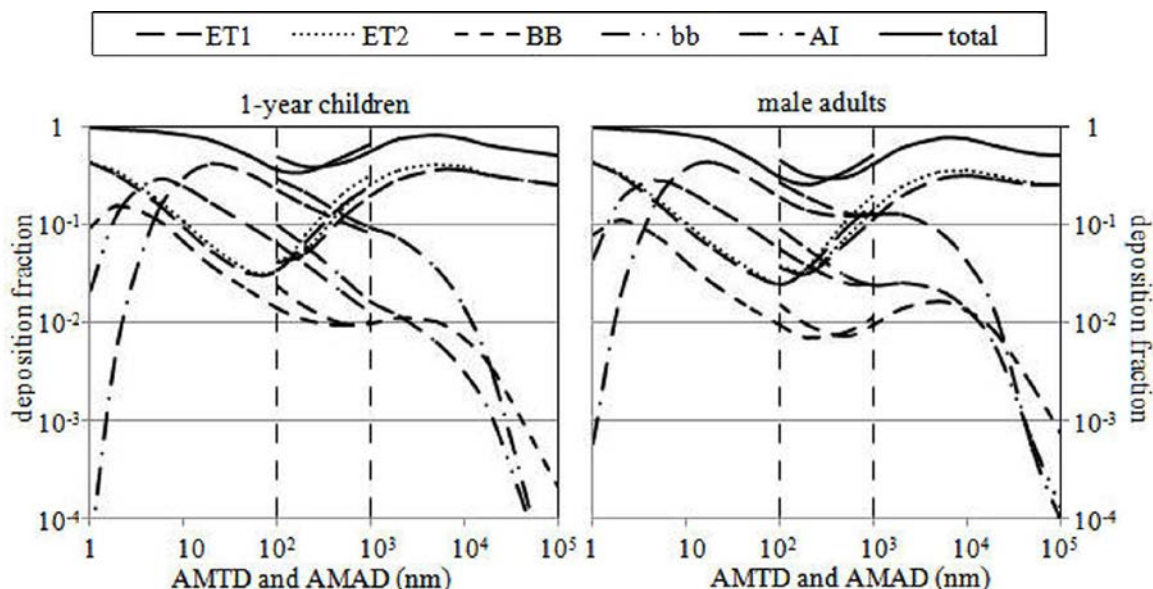


Figure 2.5.2: Regional deposition of aerosol in human respiratory tract as a function of AMTD (1-1,000 nm) and AMAD (100-100,000 nm) for 1-year children and male adult

in ET area. Therefore, the minimum total deposition is around 200 nm. When the particles are larger than 10 μm , fewer particles can enter respiratory tract, therefore, the deposition decreases again.

Detailed information of age dependent deposition in each region is shown in **Figure 2.5.3**. The unattached particles are mostly deposited before they reach the AI area. It still can be found that deposition decreases in upper area, i.e. ET and BB, with the growth of age while increases in bb area, since particles are easier to reach deeper part with the increase of airway size.

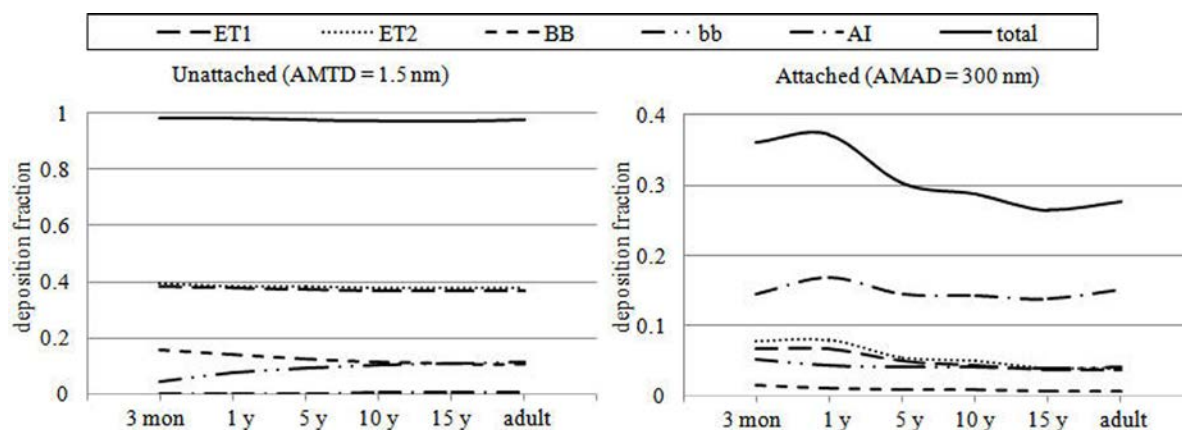


Figure 2.5.3: Regional deposition of aerosol in human respiratory tract as a function of age, assuming attached progeny with AMAD of 300 nm and σ_g of 2.3 and unattached progeny with AMTD of 1.5 nm and σ_g of 1.0.

2.5.2.3.2 Dose coefficients

The results of the dose coefficient calculations of 1-year children and male adult are shown in **Figure 2.5.4**. Similar with the deposition, adult commits lower dose than children from same inhalation, detailed information can be found in **Figure 2.5.5**. The comparison between Pb and Bi shows a similar tendency of both nuclides. Although dose coefficients of Pb and Bi are in the same range, the fraction of Bi in air is usually considered to be more than 10 times lower than Pb, so that main contribution comes from Pb.

When the inhaled particles are smaller than several micrometers, equivalent doses of lung and ET are in the same range. However, tissue weighting factor of ET is 13 times lower than lungs. Therefore, unless the particle size is larger than 10 μm , when hardly any particle deposits in lung area, as discussed above, effective dose is always in the same tendency as lung dose. The highest lung and effective doses appear when inhaled particles are several nanometers, and decrease with the increase of particle size. When the particles are larger than 10 μm , effective dose doesn't decrease as much as lung dose because of the relatively high dose of ET. Bone surface and kidneys commit the following highest equivalent doses.

The typical sizes of unattached and attached particles are 1.5 nm AMTD ($\sigma_g = 1.0$) and 300 nm AMAD ($\sigma_g = 2.3$). **Figure 2.5.4** shows that dose depends strongly on particle size near 1.5 nm AMTD, while less strongly near 300 nm AMAD, which suggests that unattached particle size be an important factor to dose, even the unattached fraction is small.

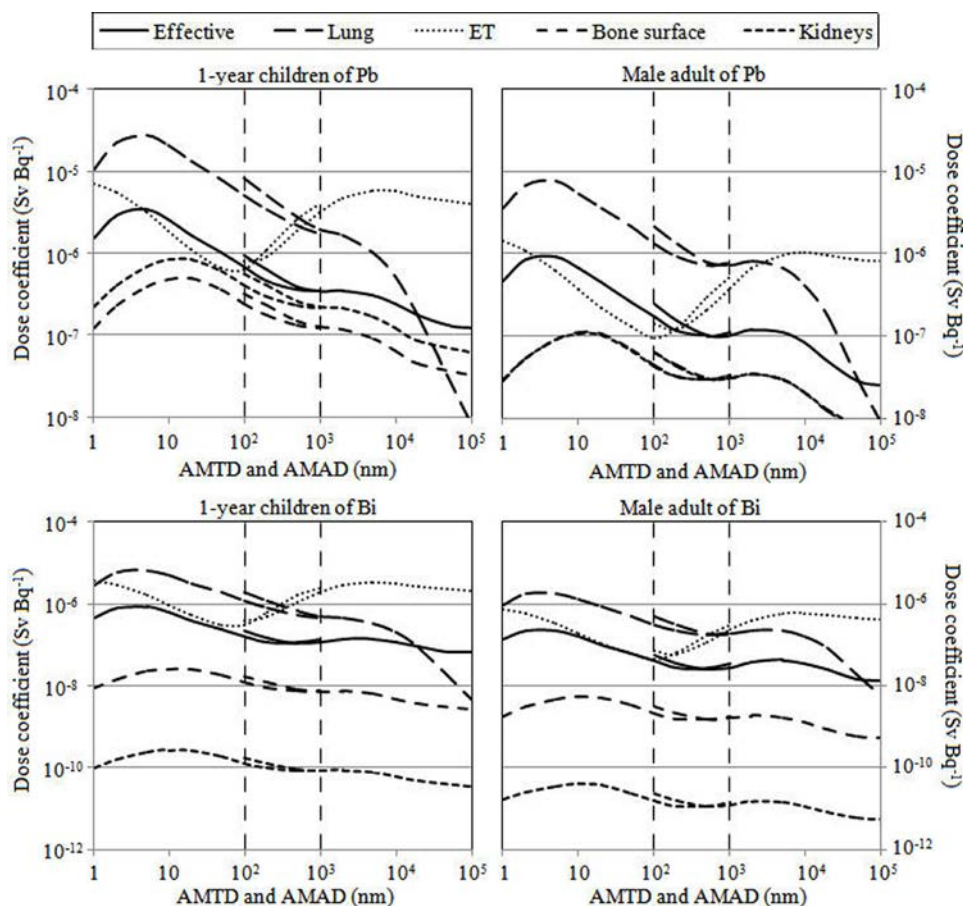


Figure 2.5.4: Dose coefficients of ^{212}Pb and ^{212}Bi as a function of AMTD (1-1,000 nm) and AMAD (100-100,000 nm) for 1-year children and male adult

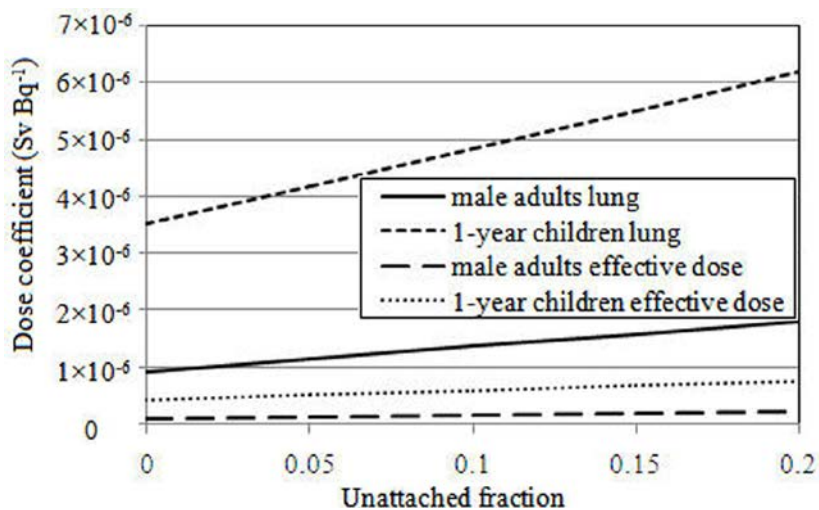


Figure 2.5.5: Dose coefficient and equivalent dose of the lungs as a function of the unattached fraction

As examples, some detailed values of dose coefficients for typical particles, 1.5 nm AMTD ($\sigma_g = 1.0$) and 300 nm AMAD ($\sigma_g = 2.3$), of age groups 1 year old, 10 years old, adult female and male are presented in **Table 2.5.1**, for all target organs. While considering different activities, dose coefficients are lower while doing exercises than in still status, as shown in **Table 2.5.2**, since the volume of trachea and bronchial expands while doing exercises, which

leads to more exhalation of particles inhaled. The main contribution of dose coefficient originates from the lungs, over 92% and increases with age due to the slower transfer rate between organs when people grow up. Although thoron progeny has a longer half-life than radon progeny, there is hardly any effect to organs other than lungs. Therefore, research of dose committed from thoron and its progeny can be focused on lungs.

Table 2.5.1: Age-dependent dose coefficients (Sv Bq^{-1}) for the decay products ^{212}Pb and ^{212}Bi , assuming attached progeny with AMAD of 300 nm and σ_g of 2.3 and unattached progeny with AMTD of 1.5 nm and σ_g of 1.0. (Age groups: 1 year old, 10 years old, and adult female and male)

Organ	1-year children			
	^{212}Pb		^{212}Bi	
	attached	unattached	attached	unattached
Adrenals	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.0×10^{-10}	1.5×10^{-10}
Urinary bladder	1.2×10^{-8}	1.3×10^{-8}	1.9×10^{-10}	2.5×10^{-10}
Bone Surface	1.7×10^{-7}	1.9×10^{-7}	9.8×10^{-11}	1.4×10^{-10}
Brain	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	9.4×10^{-11}	1.3×10^{-10}
Breasts	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.0×10^{-10}	1.4×10^{-10}
Stomach	9.8×10^{-9}	1.5×10^{-8}	7.2×10^{-10}	3.9×10^{-9}
Small intestine	1.1×10^{-8}	2.4×10^{-8}	5.0×10^{-10}	2.6×10^{-9}
Upper large intestine	1.9×10^{-8}	6.7×10^{-8}	3.7×10^{-10}	1.8×10^{-9}
Lower large intestine	2.0×10^{-8}	7.4×10^{-8}	1.1×10^{-10}	3.7×10^{-10}
Kidneys	1.9×10^{-7}	2.0×10^{-7}	9.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}
Liver	6.2×10^{-8}	6.8×10^{-8}	3.5×10^{-10}	4.7×10^{-10}
Muscle	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	9.9×10^{-11}	1.5×10^{-10}
Ovaries	1.1×10^{-8}	1.3×10^{-8}	9.8×10^{-11}	1.5×10^{-10}
Pancreas	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.1×10^{-10}	1.7×10^{-10}
Trabecular marrow	2.8×10^{-8}	7.1×10^{-8}	7.9×10^{-9}	4.6×10^{-8}
Skin	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	9.5×10^{-11}	1.3×10^{-10}
Spleen	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.0×10^{-10}	1.5×10^{-10}
Testes	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	9.3×10^{-11}	1.3×10^{-10}
Thymus	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.1×10^{-10}	1.8×10^{-10}
Thyroid	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	9.8×10^{-11}	1.4×10^{-10}
Gall bladder	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.0×10^{-10}	1.6×10^{-10}
Heart	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.1×10^{-10}	1.6×10^{-10}
Uterus	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	9.7×10^{-11}	1.5×10^{-10}
ET	1.0×10^{-6}	6.2×10^{-6}	5.6×10^{-7}	3.3×10^{-6}
Lungs	3.4×10^{-6}	1.8×10^{-5}	8.1×10^{-7}	4.7×10^{-6}
Effective dose	4.4×10^{-7}	2.2×10^{-6}	1.0×10^{-7}	6.0×10^{-7}

Table 2.5.1: (continued)

Organ	10-year children			
	²¹² Pb		²¹² Bi	
	attached	unattached	attached	unattached
Adrenals	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.6×10^{-11}	4.6×10^{-11}
Urinary bladder	2.9×10^{-9}	4.0×10^{-9}	4.8×10^{-11}	8.2×10^{-11}
Bone Surface	5.4×10^{-8}	7.5×10^{-8}	2.4×10^{-11}	4.3×10^{-11}
Brain	2.6×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.3×10^{-11}	4.1×10^{-11}
Breasts	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.6×10^{-11}	4.5×10^{-11}
Stomach	2.3×10^{-9}	4.3×10^{-9}	1.3×10^{-10}	1.1×10^{-9}
Small intestine	2.7×10^{-9}	7.3×10^{-9}	9.4×10^{-11}	7.7×10^{-10}
Upper large intestine	4.1×10^{-9}	2.0×10^{-8}	7.3×10^{-11}	5.3×10^{-10}
Lower large intestine	4.3×10^{-9}	2.2×10^{-8}	2.4×10^{-11}	1.1×10^{-10}
Kidneys	5.6×10^{-8}	7.5×10^{-8}	2.7×10^{-9}	4.5×10^{-9}
Liver	1.7×10^{-8}	2.3×10^{-8}	9.2×10^{-10}	1.6×10^{-10}
Muscle	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.4×10^{-11}	4.6×10^{-11}
Ovaries	2.7×10^{-9}	3.9×10^{-9}	2.4×10^{-11}	4.7×10^{-11}
Pancreas	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.6×10^{-11}	5.5×10^{-11}
Trabecular marrow	9.1×10^{-9}	1.3×10^{-8}	2.4×10^{-11}	4.3×10^{-11}
Skin	2.6×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.3×10^{-11}	4.1×10^{-11}
Spleen	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.5×10^{-11}	4.9×10^{-11}
Testes	2.6×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.2×10^{-11}	3.9×10^{-11}
Thymus	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	3.7×10^{-11}	5.3×10^{-11}
Thyroid	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.4×10^{-11}	4.3×10^{-11}
Gall bladder	2.7×10^{-9}	3.8×10^{-9}	2.5×10^{-11}	5.0×10^{-11}
Heart	2.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	2.8×10^{-11}	4.9×10^{-11}
Uterus	2.7×10^{-9}	3.8×10^{-9}	2.3×10^{-11}	4.6×10^{-11}
ET	2.2×10^{-7}	2.0×10^{-6}	1.1×10^{-7}	1.1×10^{-6}
Lungs	1.4×10^{-6}	8.1×10^{-6}	3.2×10^{-7}	1.1×10^{-6}
Effective dose	1.7×10^{-7}	1.0×10^{-6}	4.0×10^{-8}	2.6×10^{-7}

Table 2.5.1: (continued)

Organ	Adult female			
	²¹² Pb		²¹² Bi	
	attached	unattached	attached	unattached
Adrenals	1.6×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻¹¹	2.7×10 ⁻¹¹
Urinary bladder	1.7×10 ⁻⁹	2.3×10 ⁻⁹	3.5×10 ⁻¹¹	5.9×10 ⁻¹¹
Bone Surface	4.1×10 ⁻⁸	5.5×10 ⁻⁸	1.4×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹
Brain	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹
Breasts	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹
Stomach	1.6×10 ⁻⁹	2.8×10 ⁻⁹	6.5×10 ⁻¹¹	6.3×10 ⁻¹⁰
Small intestine	1.7×10 ⁻⁹	4.2×10 ⁻⁹	4.3×10 ⁻¹¹	3.8×10 ⁻¹⁰
Upper large intestine	2.3×10 ⁻⁹	9.9×10 ⁻⁹	3.6×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹⁰
Lower large intestine	2.4×10 ⁻⁹	1.1×10 ⁻⁸	1.7×10 ⁻¹¹	6.2×10 ⁻¹¹
Kidneys	3.5×10 ⁻⁸	4.6×10 ⁻⁸	1.7×10 ⁻⁹	2.8×10 ⁻⁹
Liver	1.1×10 ⁻⁸	1.4×10 ⁻⁸	5.9×10 ⁻¹¹	9.6×10 ⁻¹¹
Muscle	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻¹¹	2.7×10 ⁻¹¹
Ovaries	1.6×10 ⁻⁹	2.2×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹
Pancreas	1.6×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻¹¹	3.3×10 ⁻¹¹
Trabecular marrow	4.6×10 ⁻⁹	6.2×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹¹
Skin	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹
Spleen	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹
Thymus	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.6×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹
Thyroid	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹
Gall bladder	1.6×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹
Heart	1.6×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.7×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹
Uterus	1.5×10 ⁻⁹	2.1×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹¹
ET	1.3×10 ⁻⁷	1.5×10 ⁻⁶	6.5×10 ⁻⁸	7.8×10 ⁻⁷
Lungs	1.1×10 ⁻⁶	6.2×10 ⁻⁶	2.5×10 ⁻⁷	1.6×10 ⁻⁶
Effective dose	1.4×10 ⁻⁷	7.6×10 ⁻⁷	3.1×10 ⁻⁸	2.0×10 ⁻⁷

Table 2.5.1: (continued)

Organ	Adult male			
	²¹² Pb		²¹² Bi	
	attached	unattached	attached	unattached
Adrenals	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹
Urinary bladder	1.4×10 ⁻⁹	2.0×10 ⁻⁹	2.8×10 ⁻¹¹	4.7×10 ⁻¹¹
Bone Surface	3.1×10 ⁻⁸	4.3×10 ⁻⁸	1.2×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹
Brain	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.1×10 ⁻¹¹	2.1×10 ⁻¹¹
Breasts	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹
Stomach	1.4×10 ⁻⁹	2.5×10 ⁻⁹	5.8×10 ⁻¹¹	5.7×10 ⁻¹⁰
Small intestine	1.5×10 ⁻⁹	3.7×10 ⁻⁹	3.9×10 ⁻¹¹	3.5×10 ⁻¹⁰
Upper large intestine	2.0×10 ⁻⁹	9.1×10 ⁻⁹	3.2×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹⁰
Lower large intestine	2.1×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁸	1.5×10 ⁻¹¹	5.8×10 ⁻¹¹
Kidneys	3.2×10 ⁻⁸	4.2×10 ⁻⁸	1.6×10 ⁻⁹	2.5×10 ⁻⁹
Liver	8.4×10 ⁻⁹	1.1×10 ⁻⁸	4.6×10 ⁻¹¹	7.8×10 ⁻¹¹
Muscle	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹
Pancreas	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹
Trabecular marrow	4.0×10 ⁻⁹	5.5×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹
Skin	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.1×10 ⁻¹¹	2.0×10 ⁻¹¹
Spleen	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹
Testes	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.1×10 ⁻¹¹	1.9×10 ⁻¹¹
Thymus	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹
Thyroid	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹
Gall bladder	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹
Heart	1.3×10 ⁻⁹	1.8×10 ⁻⁹	1.4×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹
ET	1.1×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻⁶	5.6×10 ⁻⁸	6.6×10 ⁻⁷
Lungs	9.0×10 ⁻⁶	5.7×10 ⁻⁶	2.1×10 ⁻⁷	1.5×10 ⁻⁶
Effective dose	1.1×10 ⁻⁷	7.0×10 ⁻⁷	2.6×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻⁷

Table 2.5.2: Age and sex dependent dose conversion coefficients (nSv (Bq h m⁻³)⁻¹) under different level of activities of the decay products of ²²⁰Rn, comparing with former result

age and sex	This work				Kendall & Phipps ^a (2007)
	sleeping	sitting	light exercise	total	
3 months	87.4		155	107	
1 year	748.	100	141	98.4	125
5 years	69.2	85.2	126	88.6	
10 years	63.2	72.4	159	93.4	112
15 years	56.3	61.3	138	81.7	
Adult	55.9	63.5	138	81.7	101

^a Converted from 1.3×10⁻⁷ Sv Bq⁻¹, 2.0×10⁻⁷ Sv Bq⁻¹, 5.7×10⁻⁷ Sv Bq⁻¹ for adult, 10 years old, 1 year old assuming a breathing rate of 0.78 m³ h⁻¹, 0.56 m³ h⁻¹, 0.22 m³ h⁻¹ respectively.

2.5.2.3.3 Dose conversion coefficients

Dose conversion coefficients of different ages under different activities are shown in **Table 2.5.3**. Generally, dose conversion coefficients decrease with age. However, the descent is not so much different as that of dose coefficients. The dose conversion coefficient of 10 years old children is even higher than that of 5 years, and that of adult equal to that of 15 years. Results of 1-year children, 10-year children and adult are in the same range with results given by Kendall and Phipps (2007). The dose conversion coefficient of infant is about 25% higher than adult, and that of human performing exercise 1.8 ~ 2.6 times as high as sleeping. These results infer that it is important to keep infants away from high thoron concentration and to avoid exercise in high thoron area. Results of former work are registered in **Table 2.5.3** for comparison. Due to the lack of age dependent data, only result of adult is compared. Earlier studies showed a lower value of dose conversion coefficients. However, both deposition model and systemic model have been updated during decades, which lead to values almost twice as high. With more recent models and parameters, all values are among the range of 81.0 – 116 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹.

Table 2.5.3: Comparison between dose conversion coefficients for adult (nSv (Bq h m⁻³)⁻¹)

AMAD/AMTD(nm)	f _p	Model	DCC	Reference
200/1	0.03	James and co-workers	74.6 ^a	James (1988)
-/-	-	Marsh&Birchall	81.0 ^a	Marsh&Birchall (1999a)
200/-	-	Jacobi and co-workers	35 ~ 64	Jacobi&Eisfield (1980)
300/0.6	0.02	Marsh&Birchall	101 ^b	Kendall&Phipps (2007)
220/1	0.02	Marsh&Birchall	116	Ishikawa <i>et al.</i> (2007)
300/1.5	0.03	Marsh&Birchall	81.0 ^a	Li <i>et al.</i> (2008)
-/-	-	ICRP 50	38.3 ^a	ICRP 50 (1987)
-/-	-	ICRP 50	40	UNSCEAR (2000)
300/1.5	0.03	Marsh&Birchall	81.7	The present work

^a Converted from the unit of mSv WLM⁻¹ to unit of nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ by multiplying a factor of 21.3.

^b Converted from 1.3×10⁻⁷ Sv Bq⁻¹ by assuming a breathing rate of 0.78m³ h⁻¹.

2.5.2.4 Conclusion

In the present work package, a dosimetric approach of calculating the age- and sex-dependent dose coefficients and dose conversion coefficients of thoron progeny, including the deposition model, biokinetic model, and dosimetric model, was established. Deposition of inhaled particles in different area of the human respiratory tract, the equivalent dose coefficients of 23 organs concerned and the effective dose coefficients from two initial thoron progenies, ²¹²Pb and ²¹²Bi, were calculated separately taking into account eight age and sex groups under different daily life activities. Lung dose contributes more than 95% of dose coefficient for all the age and groups. Considering the unattached (AMTD = 1.5 nm, σ_g = 1.0) and attached (AMAD = 300 nm, σ_g = 2.3) particles of both progenies in indoor air, and the unattached fraction of 0.03, the dose conversion coefficient of thoron progeny was evaluated to be 107 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ for 3-month infant, 98.4 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ 1-year old children, 88.6 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ for 5-year old children, 93.4 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ for 10-year old children, and 81.7 nSv (Bq h m⁻³)⁻¹ for both 15-year children and adult, respectively. The finding of this work emphasized that the small children receive radiation dose 25% more than the adults in the same condition, and that human under exercise activity receive radiation dose 1.8 ~ 2.6 times as high as sleeping. Results of dose coefficients and dose conversion coefficients of thoron progeny are a strong supplement for risk estimation of lung cancer due to radon exposure in the home and in the workplace as well.

2.5.3 Age-dependent inhalation dosimetry of radon progeny

2.5.3.1 Introduction

The inhalation dose to thoron progeny can contribute to the inhalation dose estimated for radon progeny (Tschiersch and Haninger 2006). To compare the dose of inhaled thoron progeny to radon progeny in the indoor air, the dose coefficients of inhaled radon progeny was calculated according to the ICRP biokinetic and dosimetric models as recommended by ICRP (2010).

2.5.3.2 Materials and methods

In this section, the general method of dose calculation of radon progeny is introduced. First, deposition fractions of progeny and aerosol particles in different lung regions were evaluated; second, a complete biokinetic model for modeling the translocation of deposited materials within the human body after inhalation was constructed; third, the ICRP dosimetric model was applied to estimate equivalent and effective doses; finally, dose conversion factors were calculated.

2.5.3.2.1 Deposition of radon progeny in human respiratory tract

The human respiratory tract model (HRTM) published by ICRP (1994) was applied in this study. In this model, the human respiratory tract is mathematically divided into four anatomic regions that act as filters of inhaled materials: the extrathoracic (ET) region including anterior nose, posterior nasal passages, larynx, pharynx and mouth; the bronchial (BB) region; the bronchiolar (bb) region, and the alveolar-interstitial (AI) region. The deposition fractions of radon progeny attached to aerosol particles in the respiratory tract depend on aerosol sizes and individual parameters such as age, sex and life style.

To cover the particle sizes of radon progeny in indoor air, deposition fractions were calculated for three activity median aerodynamic diameters (AMADs) of attached aerosols, 50 nm, 230 nm and 2500 nm, and for one activity median thermodynamic diameter (AMTD) of 1 nm representing the unattached progeny, by a logarithmic interpolation of the deposition fraction values published in ICRP Publication 66 (1994) using a six-term exponential function in Microsoft Excel™. These aerosol sizes are assumed to be logarithmically distributed with a geometric standard deviation (σ_g) of 1.0 for AMTD of 1 nm and $\sigma_g = 1.45, 2.26$ and 2.49 for AMADs of 50 nm, 230 nm and 2,500 nm, respectively. Furthermore, the age-dependence of aerosol depositions in different regions of the lungs was implemented into the model by considering six age groups and – for 15 years old and adults – two sexes: 3 months infant (3 mo), 1 year old (1 y), 5 years old (5 y), 10 years old (10 y), 15 years old male (15 y ♂), 15 years old female (15 y ♀), adults male (Adult ♂) and adults female (Adult ♀). Fractions of the four aerosol sizes 1 nm, 50 nm, 230 nm and 2,500 nm in indoor air were defined as 0.1, 0.135, 0.747 and 0.018, respectively (Marsh et al. 2002).

Generally, the fractional depositions in regions of the respiratory tract were estimated on the basis of ICRP references values for six age groups, two sexes and three exercise levels (sitting, sleeping, light exercises) of human indoor activity as a function of aerosol sizes. The typical indoor time budget distribution of different activities for three month infants was supposed as 71% and 29% for sleeping and light exercises, respectively, while for all other age groups it was taken as 55%, 15%, and 30% for sleeping, sitting, and light exercises, respectively (see Table B.16 in ICRP 1994 and A2 in ICRP 2002). The average breathing rate

for an adult male at home is $0.78 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ while the breathing rates for the other age groups are the following: $0.11 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for 3 months infant; $0.22 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for 1 year old; $0.35 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for 5 years old; $0.56 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for 10 years old; $0.64 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for 15 years old female, $0.72 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for 15 years old male and $0.61 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ for adult female, respectively (ICRP 1994, 2002).

2.5.3.2.2 Biokinetic models

To model the biokinetics of inhaled radionuclides in human lungs and retentions in other organs and tissues, the systemic models (ICRP 1989), the HRTM model (ICRP 1994) and the GIT model (ICRP 1979) were coupled to one general compartmental model (Figure 2.5.6). Note that the systemic models for different progeny are independent and, accordingly, the structure and parameters of biokinetic models for different progeny are therefore different. This general compartment model has already been successfully applied for estimation of doses due to inhalation of thoron progeny for the public population of different age and sex (Li et al. 2008a; Bi et al. 2010) and for adults exposed to radon progeny (Al-Jundi et al. 2011). This general inhalation biokinetic model was also used to predict the retention and excretion after inhalation of aerosols of depleted uranium (Li et al. 2008b).

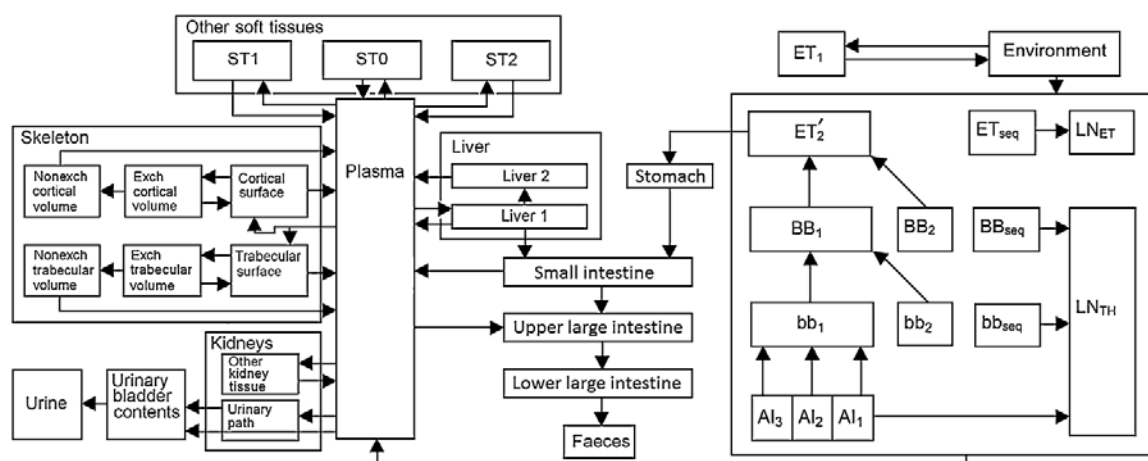


Figure 2.5.6: General inhalation biokinetic model used in the present study. The model combines the ICRP human respiratory tract, gastrointestinal tract and systemic models. ET_1 – extrathoracic region, ET_2 – posterior nasal passages, $LN_{ET,TH}$ – lymph nodes, BB – bronchial, bb – bronchiolar, AI – alveolar interstitial

For radon progeny, model transfer rates between organs or tissues for the HRTM, GIT and systemic models are reported by ICRP (1979; 1980; 1989; 1993a; 1994; 1995b). The absorption by blood from the respiratory tract was simplified by using a compartmental model proposed by Marsh and Birchall (1999b) as applied to thoron progeny in section 1.

In biokinetic modeling, two aspects are relatively complicated to be implemented, namely, age-dependent transfer rates and the treatment of daughter nuclides of each radon progeny in the decay chain. For simplicity a linear interpolation of age-dependent transfer rates in the systemic models which was used by Li et al. (2005) is applied in the present work. For modeling of Po and Bi, the intake of adults is assumed to start at age 20 years, in contrast to age 25 years which was used for uranium modeling in the work of Li et al. (2005).

Each radon progeny, namely ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , and ^{214}Po as parent nuclides, decays to daughter nuclides. For example, the radionuclide ^{214}Pb is a daughter nuclide of ^{218}Po and a parent nuclide of ^{214}Bi and ^{214}Po . In the dose calculation of each radon progeny, the biokinetics of all the daughter nuclides in the decay chain of a radon progeny should be

considered. The biokinetics of those nuclides behave independently as they are produced in the human body and thus have their independent biokinetic models (ICRP 1995b). To model the biokinetics of those radon progeny and their daughter nuclides in the human body, the independent biokinetic models should be coupled between the compartments through the physical decay constants of the radon progeny and its daughter nuclides. Because the independent biokinetic models have a different compartmental structure, ICRP (1995b) proposed two approaches for treatment of daughter nuclides. The first approach was applied in the present study which is explained in the following: In the systemic biokinetic models, a so-called “other” compartment is defined to represent a group of soft tissues. This includes organs which are not explicitly considered as tissues available for deposition of parent and daughter radionuclides. In this approach, the number of nuclear transformations of a parent or a daughter nuclide is firstly calculated using their independent biokinetic models. Then, a set of consistent source organs in the decay chain is defined. For example, in the biokinetic model of the parent nuclide ^{218}Po there is no compartment “testes” while it is present in the model of the daughter nuclide ^{214}Pb ; accordingly, the compartment “testes” is assigned to the model of the parent nuclide ^{218}Po . In the biokinetic model of ^{218}Po , a certain fraction of nuclear transformations in the soft tissue compartment “other” accumulated by ^{218}Po is then assigned to the compartment “testes”, based on the mass fraction of the testes and the “other” soft tissue. Similarly, an organ which is present in the model of the parent nuclide but not present in the model of the daughter nuclide, should receive a fraction of transformations calculated based on the mass fraction of this organ and the soft tissue “other” within the model of the daughter nuclide. The number of nuclear transformations in the “other” compartment of the model of the parent or the daughter nuclide is reduced accordingly thus conserving the number of overall transformations for the parent or the daughter nuclide, respectively.

The complete biokinetic behavior of inhaled radon progeny in the lungs and other relevant organs can be described by a system of first-order linear differential equations. The activity of each nuclide in an individual tissue and organ at any time since intake can be calculated by numerically solving these equations. The time-integrated activity, \tilde{A} (formerly defined as number of nuclear transformations, U_S (Bolch et al. 2009)) of any radon progeny in any organ was calculated here by integrating the activity in the organ up to age 70 years for children, and over the 50-year commitment period for adults following the intake. The system of first-order differential equations was solved by using the commercially available software package SAAM II (Barrett et al. 1998) (The Epsilon Group VA, USA).

2.5.3.2.3 Equivalent dose and effective dose

Equivalent doses were calculated based on the time-integrated activity, \tilde{A} , of the deposited radon progeny in so-called source organs, and radiation-weighted S_w factors (formerly defined as specific effective energy, SEE (Bolch et al. 2009)). The committed equivalent dose in each target organ r_T from radiations emitted in a source organ r_S was determined by the product of two factors: (1) the activity \tilde{A} of the radionuclide in source region r_S integrated over a period of integration T_D after intake of the radionuclide; (2) the time dependent radiation-weighted $S_w(r_T \leftarrow r_S, t)$ factors, that is, the energy absorbed per unit mass in target organ r_T , multiplied with the proper radiation-weighting factor w_R , for each radiation emitted per nuclear transformation in source region r_S . The equivalent dose $H(r_T, T_D)$ in target organ r_T at age t integrated over the dose-integration period T_D is given in Eq.(2.3-1) (ICRP 1989; Bolch et al. 2009).

$$H(r_T, T_D) = \sum_{r_S} \int_0^{T_D} A(r_S, t) S_w(r_T \leftarrow r_S, t) dt \quad (2.5.4)$$

where: $A(r_S, t)$ is the time-dependent activity in source region r_S at time t ;

$S_w(r_T \leftarrow r_S, t)$ is the radiation-weighted S factor calculated as:

$$S_w(r_T \leftarrow r_S, t) = \sum_R w_R S(r_T \leftarrow r_S, E_R, t).$$

where: w_R is the radiation-weighting factor and E_R is the energy of radiation type of R .

In practice, the factors $S_w(r_T \leftarrow r_S, t)$ are taken constant during the period of time T_D^{age} in a certain age group, $\tilde{A}(r_T, T_D^{age}) = \int_0^{T_D^{age}} A(r_S, t) dt$. Then the equivalent dose in a certain age group can be calculated as $H(r_T, T_D^{age}) = \sum_{r_S} \tilde{A}(r_T, T_D^{age}) S_w(r_T \leftarrow r_S)$. Finally, the equivalent dose is calculated by summing up all the equivalent doses of each age group as $H(r_T, T_D) = \sum_{all\ ages} H(r_T, T_D^{age})$.

The value of S_w (formerly known as *SEE*) was calculated by using the SEECAL program (Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA). The effective dose E can then be calculated, for a certain sex as a sum of the product of the equivalent doses, H_T , for each target organ and the tissue weighting factor, w_T , by Eq.(2.3-2):

$$E = \sum_T w_T H_T \quad (2.5.5)$$

The values of w_T are taken from ICRP (1991). In the respiratory tract, the activity, $A(r_S, t)$, and the radiation-weighted absorbed dose per unit activity, S_w , are modelled and simulated for separate anatomical regions (**Figure 2.5.6**). To take into account the radiation sensitivity of the target cells in different regions of the respiratory tract, assigned fractions (i.e. weighting factors assigned for the partition of radiation detriment among the respiratory tract tissues) for the different regions are recommended: 0.001, 0.998 and 0.001 for ET₁, ET₂ and LN_{ET} in the ET area, and 0.1665, 0.1665, 0.333, 0.333 and 0.001 for BB_{bas}, BB_{sec}, bb, AI and LN_{TH} in lungs, respectively (ICRP 1994).

As the new ICRP Recommendations (2007) suggest, the effective dose, E , for adults should be calculated by averaging the effective doses of female and male by Eq. (2.5.6):

$$E = \sum_T w_T \left(\frac{H_T^{Male} + H_T^{Female}}{2} \right) \quad (2.5.6)$$

where H_T^{Female} and H_T^{Male} are equivalent doses for adult female and adult male, respectively. In the present work, the effective doses for 15 years old and adult individuals are calculated using the corresponding female and male equivalent doses and Eq. (2.5.6). However, effective doses for infant and 1 year old, 5 years old and 10 years old are calculated following ICRP Publication 60 (1991) without taking into account any difference between females and males. In the calculation of effective dose E , an individual tissue weighting factor w_T is attributed to each main organ, while the remainder tissues are treated as one organ and a specific weighting factor is given (ICRP 1991, 2007). In the present work, the so-called 'splitting rule' (ICRP 2007) in the treatment for remainder tissues as recommended in ICRP Publication 60 (1991) was applied because the S_w factors for the new organs, e.g. oral mucosa and prostate, are not available for dose calculation.

2.5.3.2.4 Dose conversion factor

The effective dose from the inhalation of short-lived radon progeny is usually expressed in terms of a dose conversion factor by Eq.(2.3-4) which is given as effective dose per unit potential alpha exposure (in Sv per J h m⁻³ or in Sv per WLM, where 1 WLM corresponds to 3.54×10⁻³ J h m⁻³). One WLM equals about 6.37×10⁵ Bq h m⁻³ of equilibrium equivalent concentration (EEC) of ²²²Rn.

$$E \text{ (Sv per WLM)} = \sum_{i=1}^4 \sum_{j=1}^4 C_{j,i} B t f_{pj} E_{j,i} \quad (2.5.7)$$

where i corresponds to inhaled radon progeny ($i=1, 2, 3$ and 4 , for ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi and ²¹⁴Po, respectively); j corresponds to the aerosol size distribution ($j=1, 2, 3$ and 4 for the unattached, nucleation, accumulation and coarse modes, respectively); $C_{j,i}$ is the activity concentration of progeny i with activity size distribution j corresponding to a radon progeny mixture of 1 WL (**Table 2.5.4**); B is the average breathing rate for each age group; t is taken as the exposure period of 170 h; f_{pj} is the fraction of the PAEC associated with mode j ; and $E_{j,i}$ is the effective dose coefficient for progeny i with an aerosol size distribution for mode j .

Table 2.5.4: Activity concentrations, $C_{j,i}$ of a mixture of short-lived ²²²Rn progeny that corresponds to a concentration of 1 WL for either the unattached or the attached progeny

j	diameter	f_{pj}	$C_{j,i}$ (Bq m ⁻³)			
			²¹⁸ Po ($i=1$)	²¹⁴ Pb ($i=2$)	²¹⁴ Bi ($i=3$)	²¹⁴ Po ($i=4$)
1	1 nm	0.1	2.41×10 ⁴	2.41×10 ³	0	0
2	50 nm	0.135				
3	230 nm	0.747	5.21×10 ³	3.91×10 ³	3.13×10 ³	3.13×10 ³
4	2,500 nm	0.018				

The ratio of the activity concentrations in the air is assumed as following:

²¹⁸Po : ²¹⁴Pb : ²¹⁴Bi : ²¹⁴Po = 1 : 0.1 : 0 : 0 (unattached)

²¹⁸Po : ²¹⁴Pb : ²¹⁴Bi : ²¹⁴Po = 1 : 0.75 : 0.6 : 0.6 (attached)

In monitoring of radon and its progeny, it is convenient to know the information of the dose contributions of each progeny to the total effective dose of radon progeny. For this purpose, these contributions are calculated by Eq.(2.5.8) assuming the ratio of activity concentrations of the progeny and aerosol sizes as given in Table 1 (with ²¹⁴Po being in equilibrium with ²¹⁴Bi).

$$\frac{C_{j,i} f_{pj} E_{j,i}}{\sum_{i=1}^4 \sum_{j=1}^4 C_{j,i} f_{pj} E_{j,i}} \quad (2.5.8)$$

The parameters are explained in Eq.(2.5.7) and the parameter values are taken from **Table 2.5.4**.

2.5.3.3 Results and discussion

Equivalent dose and effective dose coefficients of short-lived radon progeny (²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, and ²¹⁴Po) in unattached mode (1 nm) and attached modes (50 nm, 230 nm and 2,500 nm) for members of the public of eight age groups were calculated (Tables with detailed age-dependent dose coefficients are available from the author by request per email: wli@helmholtz-muenchen.de). The dose coefficients of the short-lived radon progeny with “mixed” activity diameters (f_{pj} in **Table 2.5.4**) are presented in **Tables 2.5.5 – 2.5.7**. For each radon progeny, equivalent doses to ET airways and the lungs are greater than those to other organs. For progeny of 1 nm, 50 nm and 230 nm, the equivalent doses to ET airways are

usually lower than those to the lungs, whereas for progeny of 2,500 nm, the opposite is true. Besides the lungs and ET airways, bone surfaces and kidneys are among the most exposed organs, due to the higher equivalent doses received. The highest effective dose of short-lived radon progeny was found for the unattached mode of 1 nm, while the lowest effective dose was found for the attached mode of 230 nm. For each short-lived radon progeny and attached aerosol size, the effective doses were greatest for infant and decrease with increasing age (**Figure 2.5.7**).

Table 2.5.5: Inhalation dose coefficients (Sv Bq⁻¹) of ²¹⁸Po for a “mixture” of diameters (*f_{pj}* in Table 2.5.4) as a function of age

Organs\Age	3 mo	1 y	5 y	10 y	15 y ♂	15 y ♀	Adult ♂	Adult ♀
Adrenals	3.1×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	5.9×10 ⁻¹²	3.2×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²	1.4×10 ⁻¹²	2.0×10 ⁻¹²
Bladder wall	3.8×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	6.8×10 ⁻¹²	4.0×10 ⁻¹²	2.5×10 ⁻¹²	2.6×10 ⁻¹²	2.0×10 ⁻¹²	2.9×10 ⁻¹²
Bone surfaces	4.7×10 ⁻¹⁰	1.7×10 ⁻¹⁰	9.6×10 ⁻¹¹	7.1×10 ⁻¹¹	5.7×10 ⁻¹¹	5.7×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹
Brain	2.9×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	5.4×10 ⁻¹²	2.9×10 ⁻¹²	1.6×10 ⁻¹²	1.6×10 ⁻¹²	1.3×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²
Breasts	3.0×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	5.8×10 ⁻¹²	3.2×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²	1.4×10 ⁻¹²	2.0×10 ⁻¹²
St wall	3.9×10 ⁻¹⁰	1.2×10 ⁻¹⁰	5.0×10 ⁻¹¹	2.7×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹
SI wall	1.7×10 ⁻¹⁰	6.7×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	7.9×10 ⁻¹²	8.1×10 ⁻¹²	6.5×10 ⁻¹²	7.4×10 ⁻¹²
ULI wall	8.4×10 ⁻¹¹	3.5×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	8.3×10 ⁻¹²	4.3×10 ⁻¹²	4.3×10 ⁻¹²	3.5×10 ⁻¹²	4.2×10 ⁻¹²
LLI wall	3.5×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	6.4×10 ⁻¹²	3.5×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²	1.5×10 ⁻¹²	2.1×10 ⁻¹²
Kidneys	7.8×10 ⁻¹⁰	3.0×10 ⁻¹⁰	1.5×10 ⁻¹⁰	9.2×10 ⁻¹¹	6.2×10 ⁻¹¹	6.3×10 ⁻¹¹	5.4×10 ⁻¹¹	6.2×10 ⁻¹¹
Liver	7.7×10 ⁻¹¹	3.7×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹	9.7×10 ⁻¹²	5.6×10 ⁻¹²	5.7×10 ⁻¹²	5.0×10 ⁻¹²	6.7×10 ⁻¹²
Lung	2.1×10 ⁻⁷	1.1×10 ⁻⁷	6.6×10 ⁻⁸	4.7×10 ⁻⁸	3.3×10 ⁻⁸	3.5×10 ⁻⁸	2.9×10 ⁻⁸	3.7×10 ⁻⁸
ET	1.4×10 ⁻⁷	5.7×10 ⁻⁸	2.4×10 ⁻⁸	1.5×10 ⁻⁸	9.1×10 ⁻⁹	9.2×10 ⁻⁹	8.7×10 ⁻⁹	1.0×10 ⁻⁸
Muscle	3.0×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	5.7×10 ⁻¹²	3.1×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.4×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²
Ovaries	3.1×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	5.7×10 ⁻¹²	3.1×10 ⁻¹²	-	1.7×10 ⁻¹²	-	1.9×10 ⁻¹²
Pancreas	3.2×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	6.1×10 ⁻¹²	3.4×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²	1.5×10 ⁻¹²	2.1×10 ⁻¹²
Red marrow	8.3×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹	9.8×10 ⁻¹²	6.7×10 ⁻¹²	4.9×10 ⁻¹²	5.0×10 ⁻¹²	2.9×10 ⁻¹²	3.6×10 ⁻¹²
Skin	2.9×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	5.4×10 ⁻¹²	3.0×10 ⁻¹²	1.6×10 ⁻¹²	1.6×10 ⁻¹²	1.3×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²
Spleen	3.4×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	7.6×10 ⁻¹²	4.6×10 ⁻¹²	2.7×10 ⁻¹²	2.8×10 ⁻¹²	8.7×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹²
Testes	2.9×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	5.3×10 ⁻¹²	2.9×10 ⁻¹²	1.6×10 ⁻¹²	-	1.2×10 ⁻¹²	-
Thymus	3.2×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	6.1×10 ⁻¹²	3.3×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²	1.5×10 ⁻¹²	2.1×10 ⁻¹²
Thyroid	3.0×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	5.6×10 ⁻¹²	3.0×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.3×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²
GB wall	3.1×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	5.9×10 ⁻¹²	3.2×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.8×10 ⁻¹²	1.4×10 ⁻¹²	2.0×10 ⁻¹²
HT wall	3.2×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	6.1×10 ⁻¹²	3.4×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²	2.0×10 ⁻¹²	1.5×10 ⁻¹²	2.2×10 ⁻¹²
Uterus	3.0×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	5.7×10 ⁻¹²	3.1×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.7×10 ⁻¹²	1.4×10 ⁻¹²	1.9×10 ⁻¹²
Remainder	3.5×10 ⁻⁹	1.5×10 ⁻⁹	6.9×10 ⁻¹⁰	4.0×10 ⁻¹⁰	2.4×10 ⁻¹⁰	2.4×10 ⁻¹⁰	2.3×10 ⁻¹⁰	2.7×10 ⁻¹⁰
Colon	6.3×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹¹	1.1×10 ⁻¹¹	6.3×10 ⁻¹²	3.2×10 ⁻¹²	3.3×10 ⁻¹²	2.6×10 ⁻¹²	3.3×10 ⁻¹²
Effective Dose	2.5×10 ⁻⁸	1.6×10 ⁻⁸	7.9×10 ⁻⁹	5.6×10 ⁻⁹	4.0×10 ⁻⁹	4.2×10 ⁻⁹	3.5×10 ⁻⁹	4.4×10 ⁻⁹

St – Stomach; SI – Small intestine; ULI – Upper large intestine; LLI – Lower large intestine; ET – Extrathoracic; GB – Gallbladder; HT – Heart, ♂ – male, ♀ – female

Table 2.5.6: Inhalation dose coefficients (Sv Bq⁻¹) of ²¹⁴Pb for a “mixture” of diameters (f_{pj} in Table 2.5.4) as a function of age

Organs\Age	3 mo	1 y	5 y	10 y	15 y ♂	15 y ♀	Adult ♂	Adult ♀
Adrenals	2.3×10 ⁻¹⁰	9.7×10 ⁻¹¹	4.4×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹
Bladder wall	2.9×10 ⁻¹⁰	1.2×10 ⁻¹⁰	5.2×10 ⁻¹¹	3.1×10 ⁻¹¹	2.0×10 ⁻¹¹	2.0×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹
Bone surfaces	3.6×10 ⁻⁹	1.3×10 ⁻⁹	7.5×10 ⁻¹⁰	5.6×10 ⁻¹⁰	4.8×10 ⁻¹⁰	4.8×10 ⁻¹⁰	1.7×10 ⁻¹⁰	2.3×10 ⁻¹⁰
Brain	2.1×10 ⁻¹⁰	8.9×10 ⁻¹¹	4.0×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.1×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹
Breasts	2.2×10 ⁻¹⁰	9.6×10 ⁻¹¹	4.4×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹
St wall	2.7×10 ⁻⁹	8.6×10 ⁻¹⁰	3.5×10 ⁻¹⁰	1.9×10 ⁻¹⁰	1.1×10 ⁻¹⁰	1.2×10 ⁻¹⁰	9.3×10 ⁻¹¹	1.0×10 ⁻¹⁰
SI wall	1.3×10 ⁻⁹	5.3×10 ⁻¹⁰	2.2×10 ⁻¹⁰	1.3×10 ⁻¹⁰	6.3×10 ⁻¹¹	6.4×10 ⁻¹¹	5.3×10 ⁻¹¹	5.8×10 ⁻¹¹
ULI wall	6.5×10 ⁻¹⁰	2.7×10 ⁻¹⁰	1.2×10 ⁻¹⁰	6.5×10 ⁻¹¹	3.3×10 ⁻¹¹	3.4×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹	3.2×10 ⁻¹¹
LLI wall	2.6×10 ⁻¹⁰	1.1×10 ⁻¹⁰	4.8×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹
Kidneys	6.4×10 ⁻⁹	2.5×10 ⁻⁹	1.2×10 ⁻⁹	7.6×10 ⁻¹⁰	5.2×10 ⁻¹⁰	5.2×10 ⁻¹⁰	4.5×10 ⁻¹⁰	5.1×10 ⁻¹⁰
Liver	6.0×10 ⁻¹⁰	2.9×10 ⁻¹⁰	1.3×10 ⁻¹⁰	7.6×10 ⁻¹¹	4.4×10 ⁻¹¹	4.5×10 ⁻¹¹	4.1×10 ⁻¹¹	5.2×10 ⁻¹¹
Lung	1.0×10 ⁻⁶	5.5×10 ⁻⁷	3.2×10 ⁻⁷	2.3×10 ⁻⁷	1.7×10 ⁻⁷	1.7×10 ⁻⁷	1.5×10 ⁻⁷	1.8×10 ⁻⁷
ET	9.7×10 ⁻⁷	4.1×10 ⁻⁷	1.7×10 ⁻⁷	1.1×10 ⁻⁷	6.5×10 ⁻⁸	6.6×10 ⁻⁸	6.2×10 ⁻⁸	7.1×10 ⁻⁸
Muscle	2.2×10 ⁻¹⁰	9.4×10 ⁻¹¹	4.3×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹
Ovaries	2.2×10 ⁻¹⁰	9.5×10 ⁻¹¹	4.3×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹	-	1.3×10 ⁻¹¹	-	1.5×10 ⁻¹¹
Pancreas	2.4×10 ⁻¹⁰	1.0×10 ⁻¹⁰	4.6×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹
Red marrow	6.3×10 ⁻¹⁰	1.7×10 ⁻¹⁰	7.5×10 ⁻¹¹	5.2×10 ⁻¹¹	4.0×10 ⁻¹¹	4.0×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹
Skin	2.1×10 ⁻¹⁰	9.0×10 ⁻¹¹	4.1×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.1×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹
Spleen	2.8×10 ⁻¹⁰	1.3×10 ⁻¹⁰	5.9×10 ⁻¹¹	3.6×10 ⁻¹¹	2.1×10 ⁻¹¹	2.1×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹
Testes	2.1×10 ⁻¹⁰	8.9×10 ⁻¹¹	4.0×10 ⁻¹¹	2.1×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	-	1.1×10 ⁻¹¹	-
Thymus	2.4×10 ⁻¹⁰	1.0×10 ⁻¹⁰	4.6×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹
Thyroid	2.2×10 ⁻¹⁰	9.2×10 ⁻¹¹	4.2×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹
GB wall	2.3×10 ⁻¹⁰	9.7×10 ⁻¹¹	4.5×10 ⁻¹¹	2.4×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹
HT wall	2.3×10 ⁻¹⁰	1.0×10 ⁻¹⁰	4.7×10 ⁻¹¹	2.6×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹
Uterus	2.2×10 ⁻¹⁰	9.5×10 ⁻¹¹	4.3×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.2×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹
Remainder	4.6×10 ⁻⁷	1.1×10 ⁻⁸	4.6×10 ⁻⁹	2.9×10 ⁻⁹	1.7×10 ⁻⁹	1.7×10 ⁻⁹	1.6×10 ⁻⁹	1.9×10 ⁻⁹
Colon	4.8×10 ⁻¹⁰	2.0×10 ⁻¹⁰	8.6×10 ⁻¹¹	4.8×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	2.5×10 ⁻¹¹
Effective Dose	1.5×10 ⁻⁷	6.7×10 ⁻⁸	3.9×10 ⁻⁸	2.8×10 ⁻⁸	2.1×10 ⁻⁸	2.1×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻⁸	2.2×10 ⁻⁸

St – Stomach; SI – Small intestine; ULI – Upper large intestine; LLI – Lower large intestine; ET – Extrathoracic; GB – Gallbladder; HT – Heart, ♂ – male, ♀ – female

Table 2.5.7: Inhalation dose coefficients (Sv Bq⁻¹) of ²¹⁴Bi for a “mixture” of diameters (f_{pj} in Table 2.5.4) as a function of age

Organs\Age	3 mo	1 y	5 y	10 y	15 y ♂	15 y ♀	Adult ♂	Adult ♀
Adrenals	8.4×10 ⁻¹¹	3.4×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	9.0×10 ⁻¹²	5.4×10 ⁻¹²	5.4×10 ⁻¹²	4.4×10 ⁻¹²	5.4×10 ⁻¹²
Bladder wall	9.5×10 ⁻¹¹	3.8×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	9.7×10 ⁻¹²	6.4×10 ⁻¹²	6.4×10 ⁻¹²	5.1×10 ⁻¹²	6.4×10 ⁻¹²
Bone surfaces	1.7×10 ⁻¹⁰	8.1×10 ⁻¹¹	5.3×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹	7.7×10 ⁻¹¹	7.7×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹	3.7×10 ⁻¹¹
Brain	7.5×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	7.5×10 ⁻¹²	4.5×10 ⁻¹²	4.6×10 ⁻¹²	3.7×10 ⁻¹²	4.5×10 ⁻¹²
Breasts	8.3×10 ⁻¹¹	3.3×10 ⁻¹¹	1.6×10 ⁻¹¹	9.1×10 ⁻¹²	5.3×10 ⁻¹²	5.3×10 ⁻¹²	4.3×10 ⁻¹²	5.2×10 ⁻¹²
St wall	1.8×10 ⁻⁹	5.5×10 ⁻¹⁰	2.3×10 ⁻¹⁰	1.2×10 ⁻¹⁰	7.4×10 ⁻¹¹	7.5×10 ⁻¹¹	5.9×10 ⁻¹¹	6.5×10 ⁻¹¹
SI wall	4.6×10 ⁻¹⁰	1.8×10 ⁻¹⁰	7.6×10 ⁻¹¹	4.3×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	1.8×10 ⁻¹¹	2.0×10 ⁻¹¹
ULI wall	1.7×10 ⁻¹⁰	6.7×10 ⁻¹¹	2.9×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹	9.0×10 ⁻¹²	9.1×10 ⁻¹²	7.3×10 ⁻¹²	8.4×10 ⁻¹²
LLI wall	8.2×10 ⁻¹¹	3.2×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	8.1×10 ⁻¹²	4.7×10 ⁻¹²	4.8×10 ⁻¹²	3.8×10 ⁻¹²	4.6×10 ⁻¹²
Kidneys	4.2×10 ⁻⁹	1.6×10 ⁻⁹	7.8×10 ⁻¹⁰	4.9×10 ⁻¹⁰	3.4×10 ⁻¹⁰	3.5×10 ⁻¹⁰	2.8×10 ⁻¹⁰	3.2×10 ⁻¹⁰
Liver	1.0×10 ⁻¹⁰	4.8×10 ⁻¹¹	2.2×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	8.8×10 ⁻¹²	8.9×10 ⁻¹²	5.3×10 ⁻¹²	6.7×10 ⁻¹²
Lung	8.4×10 ⁻⁷	4.5×10 ⁻⁷	2.6×10 ⁻⁷	1.8×10 ⁻⁷	1.4×10 ⁻⁷	1.4×10 ⁻⁷	1.2×10 ⁻⁷	1.4×10 ⁻⁷
ET	1.9×10 ⁻⁶	8.1×10 ⁻⁷	3.4×10 ⁻⁷	2.1×10 ⁻⁷	1.3×10 ⁻⁷	1.3×10 ⁻⁷	1.2×10 ⁻⁷	1.4×10 ⁻⁷
Muscle	8.2×10 ⁻¹¹	3.2×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	8.3×10 ⁻¹²	5.0×10 ⁻¹²	5.0×10 ⁻¹²	4.0×10 ⁻¹²	4.9×10 ⁻¹²
Ovaries	7.9×10 ⁻¹¹	3.1×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	7.9×10 ⁻¹²	-	4.6×10 ⁻¹²	-	4.6×10 ⁻¹²
Pancreas	8.9×10 ⁻¹¹	3.6×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹	9.8×10 ⁻¹²	5.9×10 ⁻¹²	6.0×10 ⁻¹²	4.8×10 ⁻¹²	5.9×10 ⁻¹²
Red marrow	9.6×10 ⁻¹¹	4.0×10 ⁻¹¹	1.8×10 ⁻¹¹	1.0×10 ⁻¹¹	9.1×10 ⁻¹²	9.1×10 ⁻¹²	5.6×10 ⁻¹²	6.6×10 ⁻¹²
Skin	7.6×10 ⁻¹¹	3.0×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	7.6×10 ⁻¹²	4.5×10 ⁻¹²	4.5×10 ⁻¹²	3.7×10 ⁻¹²	4.5×10 ⁻¹²
Spleen	1.5×10 ⁻¹⁰	6.8×10 ⁻¹¹	3.2×10 ⁻¹¹	1.9×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	6.6×10 ⁻¹²	8.0×10 ⁻¹²
Testes	7.4×10 ⁻¹¹	2.8×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	7.1×10 ⁻¹²	4.2×10 ⁻¹²	-	3.4×10 ⁻¹²	-
Thymus	9.6×10 ⁻¹¹	3.9×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹	1.0×10 ⁻¹¹	5.8×10 ⁻¹²	5.8×10 ⁻¹²	4.7×10 ⁻¹²	5.8×10 ⁻¹²
Thyroid	7.8×10 ⁻¹¹	3.1×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	8.1×10 ⁻¹²	4.9×10 ⁻¹²	4.9×10 ⁻¹²	4.0×10 ⁻¹²	4.8×10 ⁻¹²
GB wall	8.5×10 ⁻¹¹	3.3×10 ⁻¹¹	1.5×10 ⁻¹¹	8.6×10 ⁻¹²	4.9×10 ⁻¹²	4.9×10 ⁻¹²	4.0×10 ⁻¹²	4.8×10 ⁻¹²
HT wall	9.0×10 ⁻¹¹	3.7×10 ⁻¹¹	1.7×10 ⁻¹¹	1.0×10 ⁻¹¹	6.3×10 ⁻¹²	6.3×10 ⁻¹²	5.0×10 ⁻¹²	6.3×10 ⁻¹²
Uterus	7.8×10 ⁻¹¹	3.1×10 ⁻¹¹	1.4×10 ⁻¹¹	7.8×10 ⁻¹²	4.6×10 ⁻¹²	4.6×10 ⁻¹²	3.7×10 ⁻¹²	4.5×10 ⁻¹²
Remainder	9.1×10 ⁻⁷	3.9×10 ⁻⁷	1.6×10 ⁻⁷	1.0×10 ⁻⁷	3.2×10 ⁻⁸	3.2×10 ⁻⁸	5.8×10 ⁻⁸	3.4×10 ⁻⁸
Colon	1.3×10 ⁻¹⁰	5.2×10 ⁻¹¹	2.3×10 ⁻¹¹	1.3×10 ⁻¹¹	7.2×10 ⁻¹²	7.2×10 ⁻¹²	5.8×10 ⁻¹²	6.8×10 ⁻¹²
Effective Dose	1.5×10 ⁻⁷	7.3×10 ⁻⁸	4.0×10 ⁻⁸	2.7×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻⁸	1.7×10 ⁻⁸	1.9×10 ⁻⁸

St – Stomach; SI – Small intestine; ULI – Upper large intestine; LLI – Lower large intestine; ET – Extrathoracic; GB – Gallbladder; HT – Heart, ♂ – male, ♀ – female

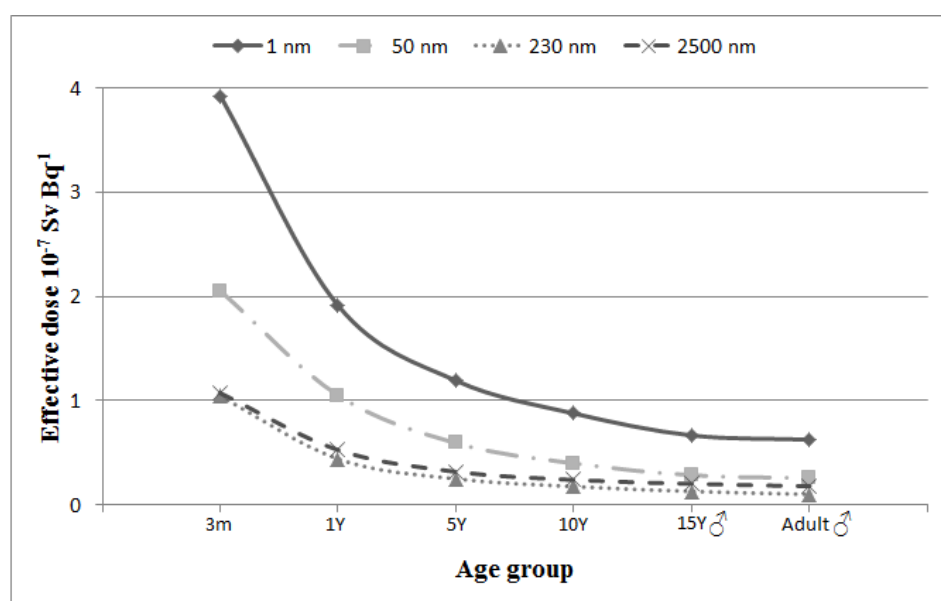


Figure 2.5.7: Effective dose per activity intake (Sv Bq⁻¹) due to ²¹⁴Pb as a function of age, for various activity-weighted mean aerosol diameters

For adult males the lung equivalent dose due to ^{218}Po reaches $9.8 \times 10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ for the unattached mode, being 2.2 to 5.6 times larger than that for the attached modes. Lung equivalent doses to adult males due to ^{214}Pb and ^{214}Bi were estimated in a range from $8.5 \times 10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ and $6.7 \times 10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ to $5.2 \times 10^{-7} \text{ Sv Bq}^{-1}$ and $4.3 \times 10^{-7} \text{ Sv Bq}^{-1}$, respectively.

In the present study, effective dose coefficients were separately calculated for males and females, for 15 years old individuals and for adults. In contrast, with their new dosimetric model ICRP calculate an average effective dose between the female and the male. For this reason, **Table 2.5.8** compares both methods. As can be seen, there are some small differences in the results for 15 years old males and 15 years old females which are, however, negligible for radiation protection dose assessment. Interestingly, for adults the difference between males and females are somewhat larger. For example, effective dose per Bq intake of ^{218}Po in the 230 nm mode reaches $2.1 \times 10^{-9} \text{ Sv Bq}^{-1}$ for males while it reaches $2.9 \times 10^{-9} \text{ Sv Bq}^{-1}$ for females. These differences may be due to several factors such as, for example, different biokinetics, different assumptions on breathing rates and deposition in the tissues of the respiratory tract, or the use of different phantoms for the calculation of S_w . A quantitative evaluation of the origin of these differences would require a detailed uncertainty and sensitivity analysis of biokinetic models which is discussed in section 2.7 (Li et al. 2010a; 2010b; Li et al. 2015). The contribution of ^{218}Po to the total DCF is, however, small.

Table 2.5.8: Comparison of effective dose per Bq intake between the sex-dependent calculation (ICRP 1991) and the sex-averaged values (ICRP 2007)

Isotopes	Diameter	Effective dose (Sv Bq^{-1})					
		15 y ♂	15 y ♀	Average	Adult ♂	Adult ♀	Average
^{218}Po	1 nm	1.1×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.2×10^{-8}	1.3×10^{-8}	1.2×10^{-8}
	50 nm	6.1×10^{-9}	6.3×10^{-9}	6.2×10^{-9}	5.5×10^{-9}	6.5×10^{-9}	6.0×10^{-9}
	230 nm	2.7×10^{-9}	2.8×10^{-9}	2.7×10^{-9}	2.1×10^{-9}	2.9×10^{-9}	2.5×10^{-9}
	2,500 nm	3.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	3.7×10^{-9}	3.3×10^{-9}	3.6×10^{-9}	3.5×10^{-9}
^{214}Pb	1 nm	6.7×10^{-8}	6.7×10^{-8}	6.7×10^{-8}	6.3×10^{-8}	6.8×10^{-8}	6.5×10^{-8}
	50 nm	2.9×10^{-8}	3.0×10^{-8}	2.9×10^{-8}	2.6×10^{-8}	3.1×10^{-8}	2.8×10^{-8}
	230 nm	1.3×10^{-8}	1.3×10^{-8}	1.3×10^{-8}	1.0×10^{-8}	1.4×10^{-8}	1.2×10^{-8}
	2,500 nm	2.0×10^{-8}	2.0×10^{-8}	2.0×10^{-8}	1.8×10^{-8}	2.0×10^{-8}	1.9×10^{-8}
^{214}Bi	1 nm	7.0×10^{-8}	7.0×10^{-8}	7.0×10^{-8}	6.5×10^{-8}	7.2×10^{-8}	6.9×10^{-8}
	50 nm	2.2×10^{-8}	2.3×10^{-8}	2.3×10^{-8}	2.0×10^{-8}	2.4×10^{-8}	2.2×10^{-8}
	230 nm	1.0×10^{-8}	1.0×10^{-8}	1.0×10^{-8}	9.9×10^{-9}	1.1×10^{-8}	1.0×10^{-8}
	2,500 nm	2.3×10^{-8}	2.3×10^{-8}	2.3×10^{-8}	2.0×10^{-8}	2.3×10^{-8}	2.2×10^{-8}
^{214}Po	1 nm	1.4×10^{-14}	1.4×10^{-14}	1.4×10^{-14}	1.3×10^{-14}	1.4×10^{-14}	1.3×10^{-14}
	50 nm	3.2×10^{-15}	3.3×10^{-15}	3.3×10^{-15}	2.9×10^{-15}	3.4×10^{-15}	3.1×10^{-15}
	230 nm	2.2×10^{-15}	2.2×10^{-15}	2.2×10^{-15}	1.9×10^{-15}	2.4×10^{-15}	2.1×10^{-15}
	2,500 nm	5.6×10^{-15}	5.6×10^{-15}	5.6×10^{-15}	5.2×10^{-15}	5.8×10^{-15}	5.5×10^{-15}

In **Table 2.5.9**, dose coefficients of radon progeny calculated in the present study are compared to those calculated by Kendall and Smith (2002, 2005), and the differences were found to be in the range from 0% to 32% with an average value of 16%. Note that Kendall and Smith calculated dose coefficients only for two aerosol size modes, 0.6 nm AMTD and 200 nm AMAD; in addition, the transfer rate from lung to blood they used is different to that used in the present study.

The contributions of each short-lived radon progeny to the effective dose for each age group and aerosol size are presented in **Table 2.5.10**. The contribution to effective dose from ^{214}Po is very small compared to that from other short-lived radon progeny and can therefore be neglected in the dose assessment. Taking into account all aerosol sizes, the dose contributions to effective dose were attributed to the progeny ^{214}Pb (43.5% to 48.4%), ^{214}Bi (22.9% to 29.5%), and ^{218}Po (22.5% to 30.9%), for all age groups. The contribution from the unattached (1 nm mode) progeny ^{218}Po to effective dose ranges from 12.8% to 21.7%, the rest (8.4% to 11.4%) is due to ^{214}Pb , for all ages. In case of activity size of 2,500 nm, the contributions of progeny to effective dose are in general small, e. g. from 0.2% for ^{218}Po to 0.9% for ^{214}Bi .

The DCFs of radon progeny estimated in the present study were 20 mSv WLM⁻¹ for 3 months infants, 21 mSv WLM⁻¹ for 1 year old, 18 mSv WLM⁻¹ for 5 years old, 20 mSv WLM⁻¹ for 10 years old, 18 mSv WLM⁻¹ for 15 years old males, 16 mSv WLM⁻¹ for 15 years old females, 18 mSv WLM⁻¹ for adult males and 17 mSv WLM⁻¹ for adult females, respectively.

The DCFs for adults obtained in other studies are presented in **Table 2.5.11** for comparison. Depending on the different models and exposure conditions, the DCF values shown range from 6 mSv WLM⁻¹ to 20 mSv WLM⁻¹ (Jacobi and Eisfeld 1980; ICRP 1987; ICRP 1993b; Birchall and James 1994; Marsh and Birchall 2000; Porstendörfer 2001; Yu et al. 2001a; Yu et al. 2001b; Marsh et al. 2002; James et al. 2004; Marsh et al. 2005; Lau et al. 2006; Nikezic et al. 2006; UNSCEAR 2008; Marsh et al. 2010; Al Jundi et al. 2011).

The calculations described in the present work were performed independently and they followed the biokinetic and dosimetric models recommended by ICRP (2010). Thus they represent the state-of-the-art of radon dose calculation. The DCF value of 18 mSv WLM⁻¹ obtained is close to the value of 20 mSv WLM⁻¹ calculated by James et al. (2004) and the value of 15 mSv WLM⁻¹ reported by Marsh and Birchall (2000), Marsh et al. (2002), Lau et al. (2006), Nikezic et al. (2006) and Al Jundi et al. (2011). It is emphasized that the lower value of 6 mSv WLM⁻¹ reported by ICRP (1987) and UNSCEAR (2008) was based on the earlier calculation of Jacobi and Eisfeld (1980). As Porstendörfer (1994) pointed out, these authors neglected the contribution from the unattached progeny and considered only one particle size of 200 nm; in addition, the lung models used in their study were based on an earlier model developed by ICRP (TGLD 1966) and the symmetric model A developed by Weibel (1963). According to Table 2.3-7, if the dose contributions of about 50% from the unattached fraction and the particle size of 50 nm are not taken into account, a reduced DCF of 9 mSv per WLM would be obtained, which is close to the values of 6-8 mSv per WLM reported by Jacobi and Eisfeld (1980). Therefore the present study supports a DCF at the higher end of the range of values as most of the recent investigations.

Table 2.5.11: Dose conversion factors of indoor radon progeny for adults

Dose conversion factor (mSv WLM ⁻¹)	Dose conversion factor (nSv (J m ⁻³ h) ⁻¹)	Approach	Reference
18	64	Dosimetric	Present study
6 – 8	21 – 28	Dosimetric	Jacobi and Einfeld 1980
6	21	Epidemiological	ICRP 1987
4 – 5	14 – 18	Epidemiological	ICRP 1993
13	46	Dosimetric	Birchall and James 1994
15	53	Dosimetric	Marsh and Birchall 2000
8	28	Dosimetric	Porstendörfer 2001
7	25	Dosimetric	Yu et al. 2001a
12 and 8	42 and 28	Dosimetric	Yu et al. 2001b
15	53	Dosimetric	Marsh et al. 2002
20	71	Dosimetric	James et al 2004
13	46	Dosimetric	Marsh et al. 2005
15	53	Dosimetric	Lau et al. 2006
15	53	Dosimetric	Nikezic et al. 2006
6	21	Epidemiological	UNSCEAR 2008
6 – 20	21 – 71	Dosimetric	Marsh et al. 2010
15	53	Dosimetric	Al Jundi et al. 2011

Recently, ICRP proposed that the same approach should be applied to intakes of radon and its progeny as that applied to other radionuclides, using reference biokinetic and dosimetric models (ICRP 2010). According to ICRP this change is likely to result in an increase in effective dose per unit exposure of around a factor of two, compared to the dose conversion convention recommend by ICRP 65 (1993b). The dose conversion convention was derived from epidemiological studies by comparing risks from internal exposure to radon with those from external exposure.

2.5.3.4 Conclusion

In the present work, age-dependent doses to members of the public due to inhalation of indoor short-lived radon decay products, ²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, and ²¹⁴Po were calculated. The results obtained demonstrate that the equivalent doses to ET airways and the lungs are greater than those to other organs. The contribution to effective dose from ²¹⁴Po was found to be very small compared to that from other short-lived radon progeny and can be neglected in the dose assessment. About 90% of effective dose from short-lived radon progeny is attributed to ²¹⁴Pb and ²¹⁴Bi, the other 10% to ²¹⁸Po. The dose conversion factor per unit exposure of radon progeny calculated in the present study was 18 mSv WLM⁻¹ which is in the range of 6 to 20 mSv WLM⁻¹ calculated by other investigators. The dose coefficients and dose conversion factors calculated can be used to estimate the radiation doses of the population, especially for small children and women, who living in specific geographic regions of the world exposed to radon progeny by measuring their concentration, aerosol particle sizes and unattached fraction.

2.5.4 Biokinetic modelling and internal dose of soil-derived ²³⁸U in humans

2.5.4.1 Introduction

In the present competence network, an experimental investigation was designed in the WP 3.1 to obtain the absorption of soil-derived uranium in humans (Träber et al. 2014; also refer to the WP 3.1 section in this report). Based on the experimentally measured bioaccessibility and bioavailability of the soil-derived uranium in humans, the internal dose from ingested soil-

derived uranium in humans can be precisely estimated other than using the current recommended absorption fraction by ICRP. To support the WP 3.1, the competences on biokinetic modelling and internal dose calculation from this WP 3.4 were provided.

2.5.4.2 Materials and methods

2.5.4.2.1 Experimental design and assessment of f_A^{sol}

The experimental design for investigation of the bioavailability (f_A), bioaccessibility (DF) and the factor f_A^{sol} is depicted in **Figure 2.5.8** (Träber et al. 2014). The detail of the experimental performance and the evaluation of the factor f_A^{sol} are extensively described in WP 3.1 in this report.

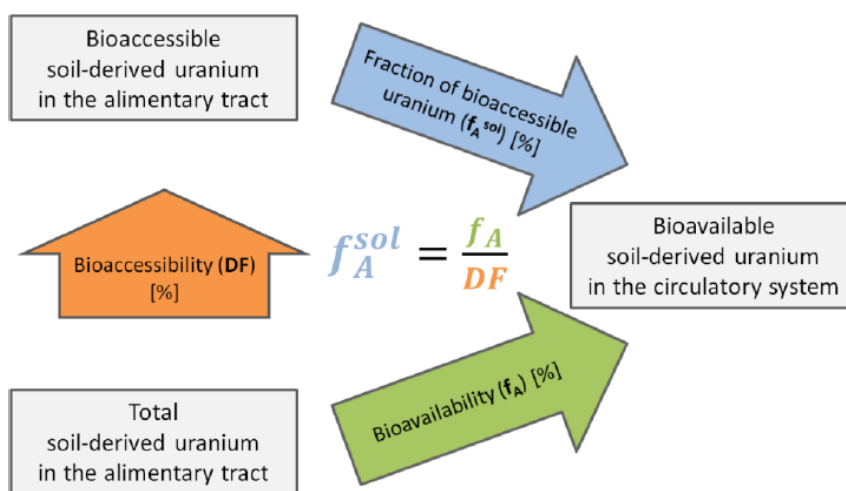


Figure 2.5.8: Scheme of the relation of bioavailability (f_A), bioaccessibility (DF) and the factor f_A^{sol} (Träber et al. 2014)

2.5.4.2.2 Biokinetic modelling and internal dosimetry of ingested soil-derived uranium

Based on the relevant biokinetic parameters, i.e. bioavailability (f_A), bioaccessibility (DF) and the factor f_A^{sol} which were obtained from the experimental investigation performed in WP 3.1. Biokinetic modelling and internal dose calculations of ingested soil-derived uranium were conducted by WP 3.1 with the supports of the present WP 3.4. The detailed modelling and internal dosimetry and the quality assurance of the calculations can be found in WP 3.1 in this report.

2.5.4.3 Results and discussion

The main results of this study are the in-vivo measured gastric pH values before and after eating the healing soil in humans, the bioaccessibility of healing soil-derived ^{238}U in vitro and the bioavailability of healing soil-derived ^{238}U for humans. Based on the experimentally derived DF and f_A , the factor f_A^{sol} was estimated.

Two types of soil and additionally one fertilizer were analyzed by using the results of this experimental study. One of the soil sample ‘‘Gauern’’ was selected from a former uranium mining site in the east of Thuringia, Germany. It was taken from the surface (0-10 cm) of a

hot spot, a supposed former ore terminal, near the former heap “Gauernhalde”. Another soil sample “E1” was taken from a heap of a former uranium mining site (Coschütz/Gittersee) near Dresden in Saxony, Germany. Both soil samples were sieved at 2 mm. The fertilizer “Blaukorn NovaTec” (COMPO Gesellschaft GmbH & Co. KG, Germany), with an indicated mass fraction of P₂O₅ of 7%, was bought at retail. The internal doses, which were assessed for “Gauern” and “E1” samples and the Fertilizer, are shown in **Table 2.5.12**.

Table 2.5.12: Sample-specific committed effective dose coefficients (ingestion)

	GM (Sv Bq ⁻¹) ^A	P _{2.5th} (Sv Bq ⁻¹) ^B	P _{97.5th} (Sv Bq ⁻¹) ^C
Gauern			
²³⁴ U	1.21×10 ⁻⁸	6.30×10 ⁻⁹	6.02×10 ⁻⁸
²³⁵ U	1.15×10 ⁻⁸	6.18×10 ⁻⁹	5.61×10 ⁻⁸
²³⁸ U	1.09×10 ⁻⁸	5.73×10 ⁻⁹	5.41×10 ⁻⁸
E1			
²³⁴ U	9.68×10 ⁻⁹	6.03×10 ⁻⁹	4.00×10 ⁻⁸
²³⁵ U	9.31×10 ⁻⁹	5.93×10 ⁻⁹	3.74×10 ⁻⁸
²³⁸ U	8.76×10 ⁻⁹	5.48×10 ⁻⁹	3.60×10 ⁻⁸
Fertilizer			
²³⁴ U	8.55×10 ⁻⁹	5.90×10 ⁻⁹	3.05×10 ⁻⁸
²³⁵ U	8.26×10 ⁻⁹	5.81×10 ⁻⁹	2.86×10 ⁻⁸
²³⁸ U	7.74×10 ⁻⁹	5.37×10 ⁻⁹	2.75×10 ⁻⁸

^AGeometric mean, ^B2.5th percentile, ^C97.5th percentile

2.5.4.4 Conclusion

Based on the experimental data and the assumption of a daily soil or fertilizer ingestion of 10 mg over 1 year, the internal dose calculations showed that neither the uranium-contaminated fertilizer nor the investigated highly uranium-contaminated soils are expected to pose any major health risk to humans related to radiation of uranium contained in the soil.

2.5.5 Biokinetic modelling of ²²⁸Ra, ²²⁸Th, ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po by ingestion

2.5.5.1 Introduction

By using the high saline contained water in the geothermic energy facility, a considerable amount of radionuclides, e.g. ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²¹⁰Pb and ²²⁸Th were attracted attentions. During the work of cleaning, reconstruction and reparation, the occupational workers can be exposed to these radionuclides. To assess the possible exposure of workers, the radionuclides in urine and faeces from workers are monitored and the internal exposure is to be estimated. To validate the monitoring results, a parallel experimental design of biokinetic investigation of the above mentioned radionuclides in humans is carried out. The monitoring and experimental investigations were performed in WP 4.1, and the present WP 3.4 provides the biokinetic model prediction and assesses the internal doses for the workers.

2.5.5.2 Materials and methods

2.5.5.2.1 Biokinetic model of Ra

To model the biokinetics and excretions of potential ingestion of ^{226}Ra and ^{228}Ra in humans, the systemic model of Ra (ICRP 1993a) and the GIT model (ICRP 1979) were combined to a biokinetic model (**Figure 2.5.9**). The model parameters and absorption fraction in GI tract for adult male reported by ICRP (1979, 1993a) were adopted in the present work.

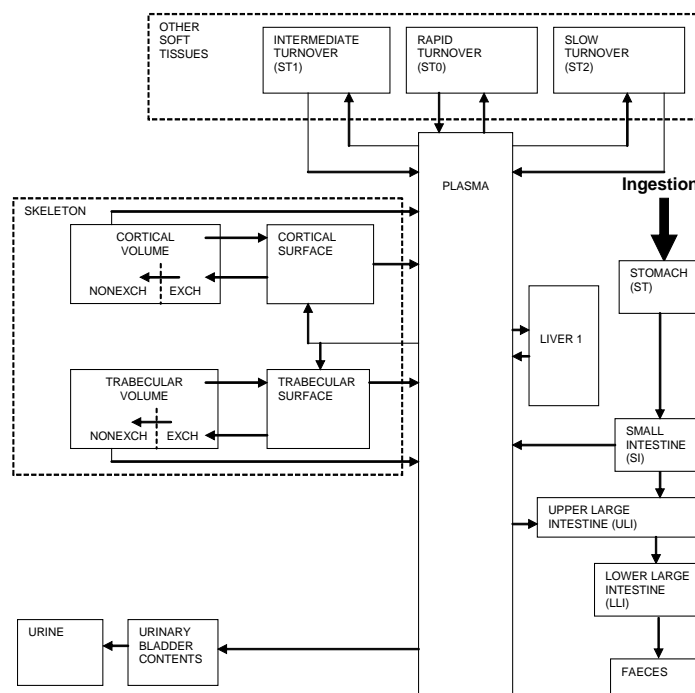


Figure 2.5.9: Biokinetic model combining the systemic biokinetic model of Ra and the GI tract model for Ra ingestion recommended by ICRP (1979, 1993a)

2.5.5.2.2 Biokinetic model of Pb

The retentions and excretions of Pb in the body by possible ingestion of ^{210}Pb is modelled by combining the systemic biokinetic model of Pb (ICRP 1993a) and the GI tract models (ICRP 1979) as a whole model for ingestion. The model is illustrated in **Figure 2.5.10**. The model parameters and GI tract absorption fraction of adult given by ICRP (1979, 1993a) were applied in the present report.

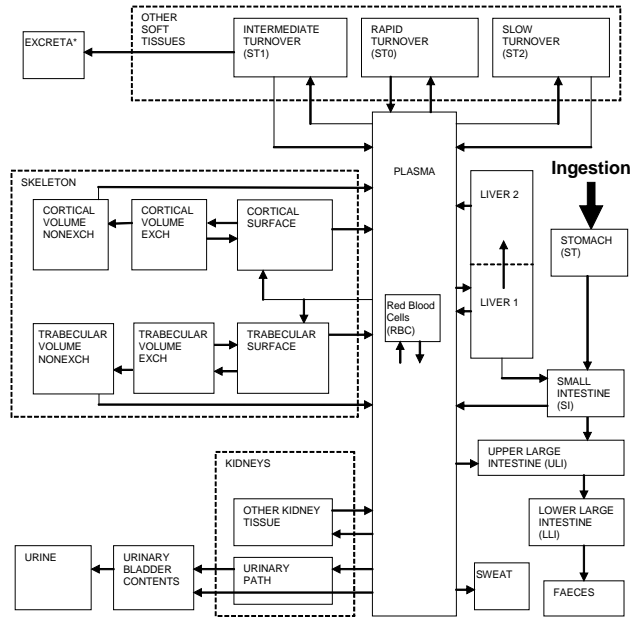


Figure 2.5.10: Ingestion biokinetic model for Pb which combines the systemic biokinetic model of Pb (1993a) and the GI tract model (1979) recommended by ICRP. *EXCRETA – Mainly hair, but includes loss in nails and desquamated skin.

2.5.5.2.3 Biokinetic model of Th

The retentions and excretions of Th in and from the human body by ingestion of ²²⁸Th are modelled by a ingestion model which combines the systemic biokinetic model of Th (ICRP 1995a) and the GI tract models (ICRP 1979) as a whole model. The model is illustrated in **Figure 2.5.11**. The model parameters and GI tract absorption fraction of adult given by ICRP (1979, 1995a) were applied in this report.

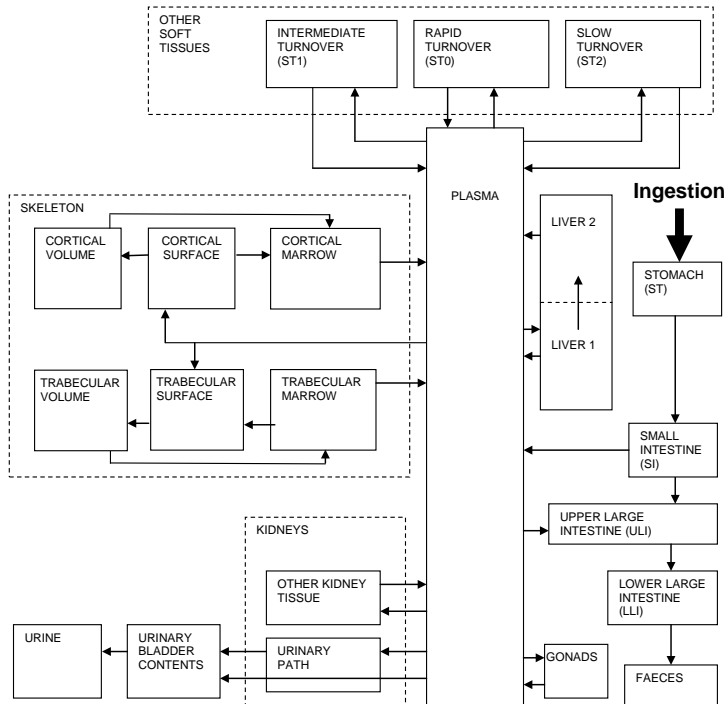


Figure 2.5.11: Biokinetic model for ingestion of Th. The model combines the systemic biokinetic model of Th (ICRP 1995a) and the GI tract model (ICRP, 1979)

2.5.5.2.4 Biokinetic investigation in humans

In the biokinetic experimental design prepared in WP 4.1, the prepared foodstuffs and drinking water were served to the investigated subjects for seven days, before and after the intake of the special prepared foodstuffs, the subjects are assumed to consume the normal diets in Germany. The radioactivity in the prepared foodstuffs and in drinking water was measured by applying radioanalytical methods in the framework of WP 4.1. The radioactivity in urine and faeces of these investigated subjects were measured as well in WP4.1.

2.5.5.3 Results and discussion

The modelled daily excretions in urine and faeces after intake of 1 Bq d^{-1} of the radionuclides ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{228}Th for seven days were presented in the following **Figures 2.5.12 – 2.5.15**, respectively. The kinetic excretions provide basic information for the preparation of the experimental investigation. As a basic reference values, Schäfer and Seitz (2005) measured the baseline excretions in urine and faeces of radionuclides ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po in humans in Germany. If the radioactivity in foodstuffs and drinking water was measured and known, the excretions of the investigated subjects can be estimated from these model predictions shown in figures. Based on the excretion measurement of the related radionuclides for the workers which will be conducted by WP 4.1, the internal exposure for the occupational workers can be estimated.

Excretion in urine and faeces of ^{210}Pb

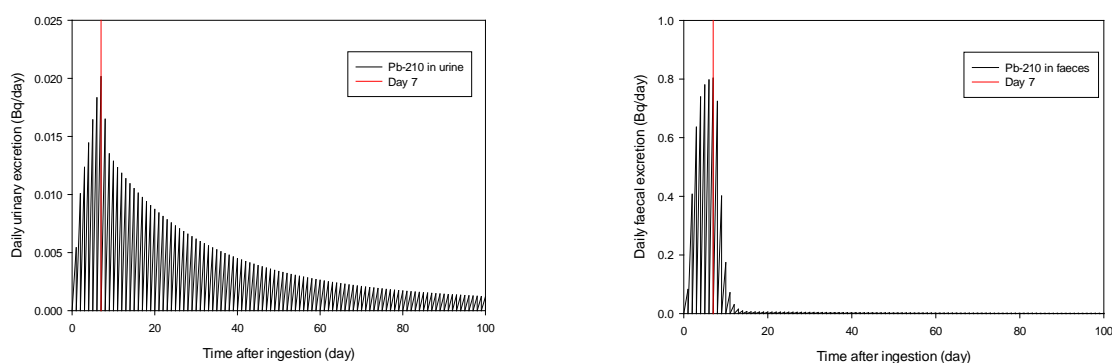


Figure 2.5.12: Daily excretion of ^{210}Pb in urine and faeces after 1 Bq d^{-1} intake for seven days. The red line indicates the day 7

Excretion in urine and faeces of ^{226}Ra

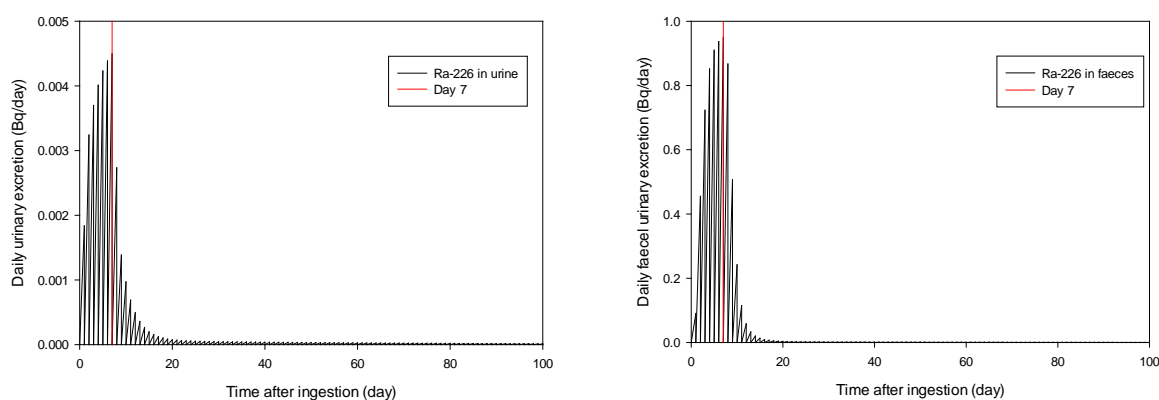


Figure 2.5.13: Daily excretion of ^{226}Ra in urine and faeces after 1 Bq d^{-1} intake for seven days. The red line indicates the day 7.

Excretion in urine and faeces of ^{228}Ra

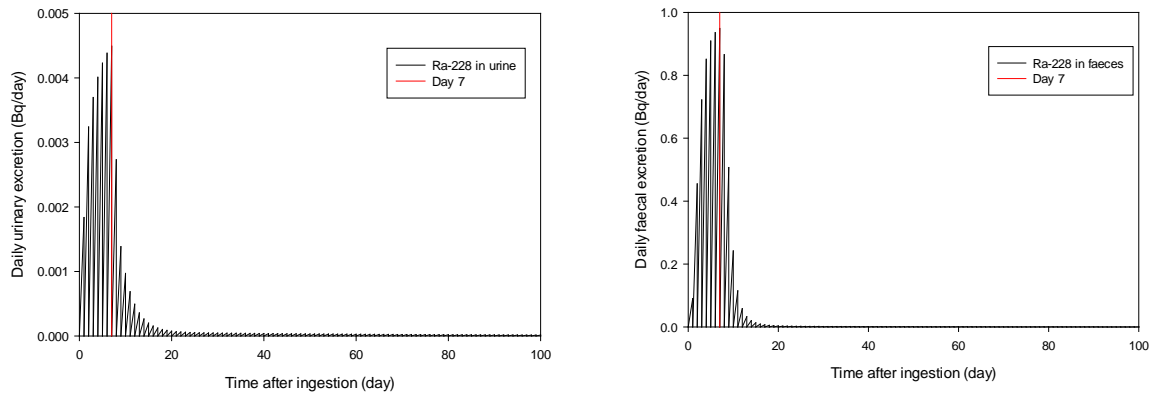


Figure 2.5.14: Daily excretion of ^{228}Ra in urine and faeces after 1 Bq d^{-1} intake for seven days. The red line indicates the day 7.

Retention and excretion of ^{228}Th

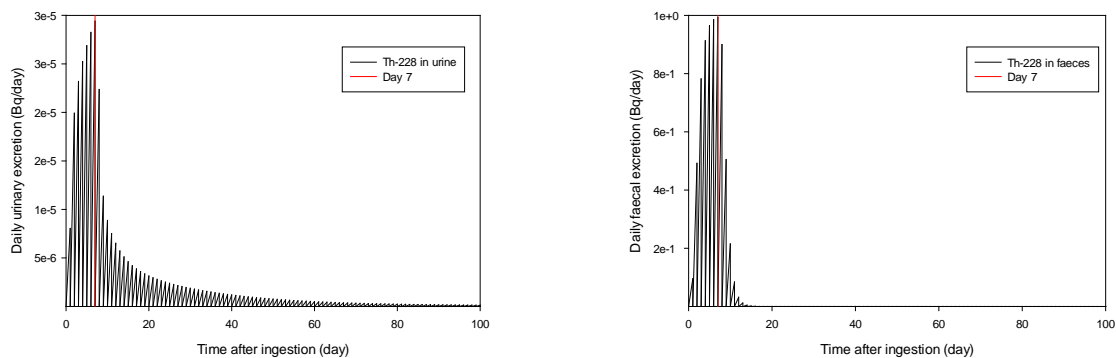


Figure 2.5.15: Daily excretion of ^{228}Th in urine and faeces after 1 Bq d^{-1} intake for seven days. The red line indicates the day 7.

2.5.5.4 Conclusion

The biokinetic modelling of incorporated radionuclides plays a central role in the internal exposure monitoring and internal dose assessment for occupational workers and for the public population as well. To proof and validate the biokinetic models developed for reference person, further human biokinetic investigations are highly desired. With the specific and regional information of radionuclide intake and excretion in humans, the bioassay data directly measured from the persons working or living in the specific workplace or regions can be precisely and individually used for internal dose assessment. In the present competence networks, The WP 4.1 with the competence in biokinetic measurement and our WP 3.4 with the competence in biokinetic modelling and internal dosimetry worked close together and contributed to the internal dose assessment for the workers who were working in the geothermic energy facility.

2.5.6 Biokinetic modelling of ²²⁶Ra in humans for in-vivo measurement

2.5.6.1 Introduction

Two persons, who were assumed incorporated radium-226 during their occupational employment, were measured by the partial body counter in Helmholtz Zentrums München (HMGU). The measurement results showed that the upper limit activity of ²²⁶Ra in bone reaches 82 Bq and 120 Bq, respectively. The detail of in-vivo measurement by the partial body counter can be found in the report (Rühm, et al. 2008). Based on the measured activity of ²²⁶Ra in bone, in the present WP 3.4, the biokinetic modelling was performed to predict the amount of ²²⁶Ra intake during the working time of these two persons. With the intake predicted, the upper limit internal dose was estimated for the two persons. Consequently, the radiation risk can be estimated based on diagnostic findings in these two persons.

2.5.6.2 Biokinetic modelling of intake of ²²⁶Ra

To predict the retention of ²²⁶Ra in bone, the systemic biokinetic model of Ra was combined with GI tract model and human respiratory model recommend by ICRP. The biokinetic model of Ra by ingestion is depicted in **Figure 2.5.9**. In that model, the Ra systemic model and GI tract model was coupled. The inhalation biokinetic model for Ra is presented in **Figure 2.5.16**. The model parameters i.e. transfer rates of the biokinetic models are taken from ICRP Publications 30, 66 and 67 (ICRP 1979, 1993a, 1994). To model the kinetics of Ra in body during the times before and after the occupational employment, the age-dependent model parameters of Ra were applied to the two persons. The birthday of the two persons were taken as the beginning time for modelling. The intakes of ²²⁶Ra for the general public in Germany were assumed to be applicable to the two persons (**Tables 2.5.13 – 2.5.15**) (UNSCEAR 2000). Those transfer rates were linearly interpolated in the modelling according to the different age groups as recommended by ICRP. The absorption type of Ra was assumed as default type M (ICRP 1994) as there is no further specific information.

The assumed intake and the age-dependent model parameters were implemented in the software program SAAM II (Barrett et al. 1998) (The Epsilon Group VA, USA). The intake during the occupation employment was estimated by fitting the activity in bone equal to the measured activity, e.g. 120 Bq for Mr. S at the known time point.

Table 2.5.13: Mean age-dependent intake of ²²⁶Ra by ingestion based on the age-dependent consumption (BMJ 2001) and mean intake of ²²⁶Ra of 40 Bq a⁻¹ in Germany (UNSCEAR 2000)

Age	Annual consumption of foodstuffs and drinking water (kg)	Relative consumption normalized to adult	Intake of ²²⁶ Ra (mBq/Tag)
3 monats	236	0.30	32.6
1 year	397	0.50	55.0
5 year	510	0.65	70.7
10 year	614	0.78	85.1
15 year	691	0.87	95.8
Adult	791	1	109.6

Table 2.5.14: Mean age-dependent intake of ^{226}Ra by inhalation based on the age-dependent breathing rate (BMJ 2001) and the mean concentration of ^{226}Ra of $2.25 \mu\text{Bq m}^{-3}$ in air in Germany (UNSCEAR 2000)

Age	Breathing rate ($\text{m}^3 \text{a}^{-1}$)	Average ^{226}Ra concentration in air in Germany ($\mu\text{Bq m}^{-3}$)	Inhalation rate of ^{226}Ra in Germany ($\mu\text{Bq d}^{-1}$)
3 months	1100	2.25	6.8
1 year	1900	2.25	11.7
5 years	3200	2.25	19.7
10 years	5640	2.25	34.8
15 years	7300	2.25	45.0
Adult	8100	2.25	49.9

Table 2.5.15: Assumption of age-dependent natural intake of ^{226}Ra by ingestion and inhalation, in Bq d^{-1} plus assumed additional chronic intake of ^{226}Ra by ingestion or inhalation, in Bq d^{-1} (solid) during the occupational working time for Mr. S, in his bone surface about 120Bq was measured; t_1 : Begin of the additional potential incorporation; t_2 : end of the additional incorporation; t_3 : Time of diagnose; t_M : Time of measurement.

Mr. S						t_1	t_2	t_3	t_M
Time (d)	90	365	1,825	3,650	5,475	7,131	7,861	18,728	24,151
Ingestion (Bq d^{-1})	3.3×10^{-2}	5.5×10^{-2}	7.1×10^{-2}	8.5×10^{-2}	9.6×10^{-2}	1.1×10^{-1}	60.9	1.1×10^{-1}	1.1×10^{-1}
Inhalation (Bq d^{-1})	6.8×10^{-6}	1.3×10^{-5}	2.0×10^{-5}	3.5×10^{-5}	4.5×10^{-5}	5.0×10^{-5}	148.3	5.0×10^{-5}	5.0×10^{-5}

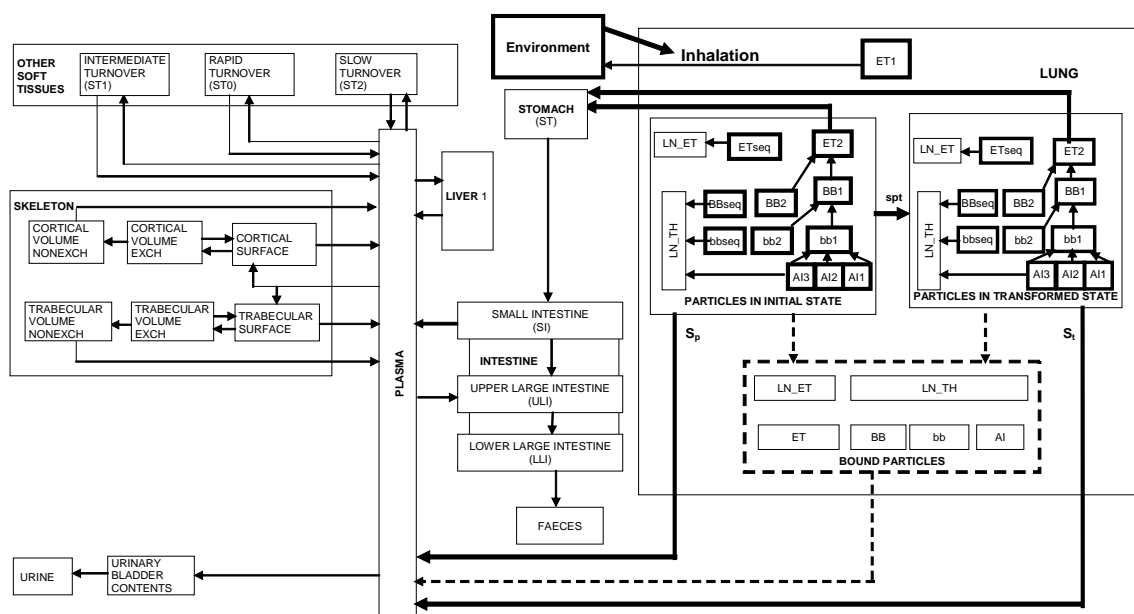


Figure 2.5.16: Combination of the systemic model of Figure 2.5.9 with human respiratory tract model recommended by ICRP for modelling inhalation of ^{226}Ra (ICRP 1979, 1993, 1994)

2.5.6.3 Biokinetic model prediction and in-vivo measurement

As one example, the estimated intakes for Ms. S during the employment are 60.9 Bq d^{-1} by ingestion and 148.3 Bq d^{-1} by inhalation, respectively (**Figure 2.5.17**). With this measurement-based estimated potential intake, the internal dose (effective dose: 0.012 Sv and 0.96 Sv according to ingestion and inhalation, respectively), especially the equivalent dose in bone surface (0.53 Sv and 3.9 Sv according to ingestion and inhalation, respectively) to Mr. S (who died from bone cancer) can be assessed for further risk analysis (**Table 2.5.16**).

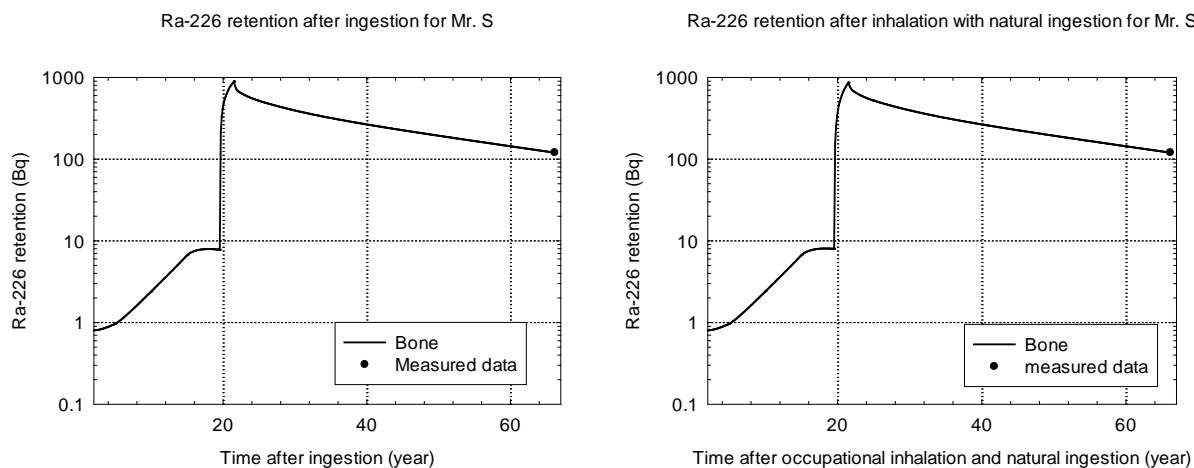


Figure 2.5.17: Activity of ^{226}Ra for Mr. S. During the critic working time occurred daily intake of 60.9 Bq by ingestion and 148.3 Bq by inhalation, respectively. The intake lead to 120 Bq in bone activity at the time measured for Mr. S. There is no big difference between the two curves, however, by estimation of the intake, the assumed routes of intakes are different, and the left figure takes into account the mixture of ingestion and inhalation.

2.5.6.4 Conclusion

The collaboration between WP 3.3 in in-vivo measurement and our WP 3.4 in biokinetic modeling and internal dose assessment, showed the power of the biokinetic modelling in practical application for radiation risk analysis. The basis of the results of measurement is essential for the biokinetic modelling; however, the absorbed dose and equivalent dose in humans cannot generally be measured, therefore, the biokinetic models can be used as a tool, which gathers and integrates the intake information and the in-vivo or in-vitro measured data, for individual internal exposure assessment. For the potential contamination of ^{226}Ra during the occupational employment time, we can provide the potential incorporation of ^{226}Ra and the specific organ dose to regulators for making a decision for a potential compensation to the workers.

Table 2.5.16: Dose estimated for Mr. S. by ingestion and inhalation, respectively

Equivalent dose (Sv) und effective dose (Sv) to ²²⁶ Ra at time of diagnose				
Organ	Natural ²²⁶ Ra intake (integrated from birth to diagnose time)		Additional intake of ²²⁶ Ra (integrated from begin work to diagnose time)	
	Ingestion Mr. S	Inhalation Mr. S	Ingestion Mr. S	Inhalation Mr. S
Respiratory Track				
ET Airway	1.1×10 ⁻⁴	5.8×10 ⁻⁶	1.8×10 ⁻³	5.7
Lungs	1.1×10 ⁻⁴	2.6×10 ⁻⁵	1.8×10 ⁻³	7.4
Bladder Wall	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Breast	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Brain	1.1×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Skin	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Testes	1.2×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Bone Surface.	5.8×10⁻²	1.1×10⁻⁵	5.3×10⁻¹	3.9
Liver	5.7×10 ⁻⁴	1.1×10 ⁻⁷	8.0×10 ⁻³	5.6×10 ⁻²
GI-Tract				
Oesophagus	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
St Wall	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
SI Wall	1.2×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻⁸	1.9×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
ULI Wall	1.7×10 ⁻⁴	3.1×10 ⁻⁸	2.8×10 ⁻³	1.8×10 ⁻²
LLI Wall	3.9×10 ⁻⁴	5.9×10 ⁻⁸	6.7×10 ⁻³	3.5×10 ⁻²
Colon	2.6×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻⁸	4.4×10 ⁻³	2.5×10 ⁻²
Spleen	1.8×10 ⁻⁴	3.6×10 ⁻⁸	2.4×10 ⁻³	1.7×10 ⁻²
Muscle	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Adrenals	1.1×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Kidneys	2.1×10 ⁻⁴	4.1×10 ⁻⁸	2.6×10 ⁻³	1.9×10 ⁻²
Ovaries	1.1×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Pancreas	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Red Marrow	3.2×10 ⁻³	6.3×10 ⁻⁷	3.9×10 ⁻²	2.8×10 ⁻¹
Thyroid	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Thymus	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Uterus	1.1×10 ⁻⁴	2.2×10 ⁻⁸	1.8×10 ⁻³	1.3×10 ⁻²
Effective Dose	1.1×10⁻³	3.3×10⁻⁶	1.2×10⁻²	9.6×10⁻¹

2.5.7 Uncertainty and sensitivity analysis in biokinetic models

2.5.7.1 Introduction

As demonstrated in above sections, biokinetic models are essential for calculations of internal radiation dose and risk estimation for occupational workers, members of the public and patients exposed to radionuclides; they therefore underpin regulatory policy decisions in radiation protection. In addition, biokinetic models serve as tools for interpretation of *in vitro* bioassay analysis (e.g. measurement in blood, urine, faeces, hair and nails), and *in vivo* monitoring (e.g. whole body and specific organ monitoring).

Usually, models incorporating human physiological parameters are needed to estimate the content and behaviour of radionuclides in the human body. Human organs and tissues are simplified in the model as separate compartments; the translocations of materials between the organs and tissues are described by transfer rates, commonly designated as model parameters. These parameters are derived mostly from experimental data obtained from studies of laboratory animals and from a follow-up of accidental human contamination cases. Because of the physiological variability of individuals, the uncertainty in the extrapolation of animal data to humans, the uncertainties in measurement techniques, the sparsity or inconsistency in reported data and the choice of parameter values, the values of parameters in biokinetic models are often subject to significant uncertainties (NCRP 1996, 1998, 2009; IAEA 1989, Leggett 2001).

A quantitative analysis of the uncertainties in the model inputs and outputs, including bioassay predictions and doses, can help to guide regulators in setting appropriate limits on intakes (Görtz et al. 2000). The information on parameter sensitivity can help to guide national and international organizations and stakeholders on decisions regarding where to invest scientific efforts for updating the models (Bailey et al. 2007). With the information both on the uncertainty and sensitivity of the model parameters and model predictions, policy decision makers and monitoring service personnel can make proper decisions and adapt monitoring programs in order to provide uncertainties of doses for occupational workers (Henrichs 2007). Moreover, quantifying uncertainties on doses that result from sources of uncertainty in the biokinetic models can be used to assess the reliability of dose coefficients as a radiation protection device; that is, supporting their use in ensuring exposures comply with regulatory dose limits and constraints (Puncher and Harrison 2012). Finally, the uncertainty on the assessed doses is an important input to the study of the resulting health risk.

For an overall reliability analysis and quality control of the biokinetic models, it is therefore useful to develop a strategy to quantify the uncertainties and identify the model parameters that strongly influence the model outputs pertinent to the assessment of internal doses and in the monitoring of internal exposures. By doing so, the model developers and users can help preparing for unexpected situations (i.e., retrospective internal dose estimation after an accident) and applying the information to help in the experimental design to acquire the relevant parameters.

In the present work, the biokinetic model of Cs developed by Leggett and co-workers (Leggett et al. 2003) was analysed by means of a global uncertainty and sensitivity analysis. This model formed the basis of the slightly modified the new proposed ICRP model in its coming publication - Occupational Intakes of Radionuclides Part 3. A local sensitivity analysis was performed as well for comparisons. First, the parameter uncertainties were evaluated from biokinetic data available in the literature. The uncertainties of predicted retention and excretion of Cs in humans were calculated and the most influential model parameters that affect model predictions were identified. The benefits of the uncertainty and sensitivity analysis, and some limitations or difficulties in the approach with respect to situations where experimental data are sparse, are discussed.

2.5.7.2 Analysis of ICRP proposed Cs biokinetic model

In this section uncertainties in the values of parameters in the Cs biokinetic model, described by Leggett et al (2003), are evaluated. An uncertainty analysis method is used to calculate the uncertainty in model predictions. Furthermore, a global and a local sensitivity analysis are used to identify the most influential parameters affecting blood clearance, whole body retention and urinary excretion of Cs.

2.5.7.2.1 Some concepts used in the present study

In the present study, several concepts are used to quantify the uncertainty of model parameters and the model predictions:

Standard uncertainty: The concept of uncertainty defined by ISO associated with the result of measurement (ISO 1995) was applied. The standard uncertainty refers to a standard deviation (SD) of a quantity, say, a model parameter.

Uncertainty factor (UF): A subjective confidence interval [A, B] was determined for a model feature, the true but unknown value was judged with reasonably high confidence, say 95%, to lie between A (2.5th percentile) and B (97.5th percentile). The associated UF is defined (Leggett et al. 2007) as $(B/A)^{1/2}$. Another definition (Leggett 2001) of UF is the maximum value of C/A and B/C, where the value of C might be selected as the 50th percentile of a distribution. The first definition of $UF=(B/A)^{1/2}$ was used in the present study.

Partial rank correlation coefficient (PRCC): A measure of the rank correlation between one defined output variable with an input variable, under the condition that the indirect influence on this defined output variable due to other further input variables is somehow eliminated (Conover 1999; Saltelli et al. 2004) PRCC takes a value from [-1, 1], a value near ± 1 indicates a strong influence; a value near 0 shows a weak influence.

Coefficient of variation (CV) (ISO 2006a): A positive random variable; it is the standard deviation divided by the mean.

Confidence interval (CI) (ISO 2006a): Interval estimator (T_0, T_1) for the parameter θ with the statistics T_0 and T_1 as interval limits and for which it holds that $P(T_0 < \theta < T_1) \geq 1 - \alpha$, where α is generally a small number.

2.5.7.2.2 Caesium model structure and parameter

The biokinetic model structure for Cs proposed by Leggett et al. (2003) is shown in **Figure 2.5.18**. There are 24 compartments and 50 parameters in the model. The retention and excretion of Cs in the compartmental model are described by a system of first-order linear ordinary differential equations.

2.5.7.2.3 Parameter uncertainty analysis

The principal method used for evaluating the uncertainty of model parameters in the present work is to follow the steps involved in the derivation of the parameters of the biokinetic model for Cs. The uncertainties of the individual components which constitute the model parameter are then determined. The combined uncertainty of each parameter, which is derived from the different components, is thereby calculated by the law of uncertainty propagation (ISO 1995).

Most of the model parameters of Cs are derived by addition, like $p=p_1+p_2$ or multiplication, like $p=p_1 \times p_2$ or division, like $p=p_1/p_2$ of several uncertain components or factors. According to the law of uncertainty propagation (ISO 1995; Bevington and Robinson 2003):

$$\sigma^2 = \sigma_1^2 + \sigma_2^2 + 2\sigma_{12} \quad (2.5.9)$$

for addition,

$$(\sigma/p)^2 = (\sigma_1/p_1)^2 + (\sigma_2/p_2)^2 + 2\sigma_{12}^2/p_1p_2 \quad (2.5.10)$$

for multiplication,

$$(\sigma/p)^2 = (\sigma_1/p_1)^2 + (\sigma_2/p_2)^2 - 2\sigma_{12}^2/p_1p_2 \tag{2.5.11}$$

for division,

$$\sigma_{12} = \sigma_1\sigma_2r_{12} \tag{2.5.12}$$

for covariance and correlation,

where p and p_i are respectively model parameter and component or factor i , from which the model parameter is derived; σ and σ_i are standard deviation of model parameter and component or factor i , respectively. σ_{ij} and r_{ij} are covariance and correlation of components or factors i and j . The correlation r_{ij} normally takes a value from $[-1, 1]$, with a negative value it indicates a negative correlation between components i and j .

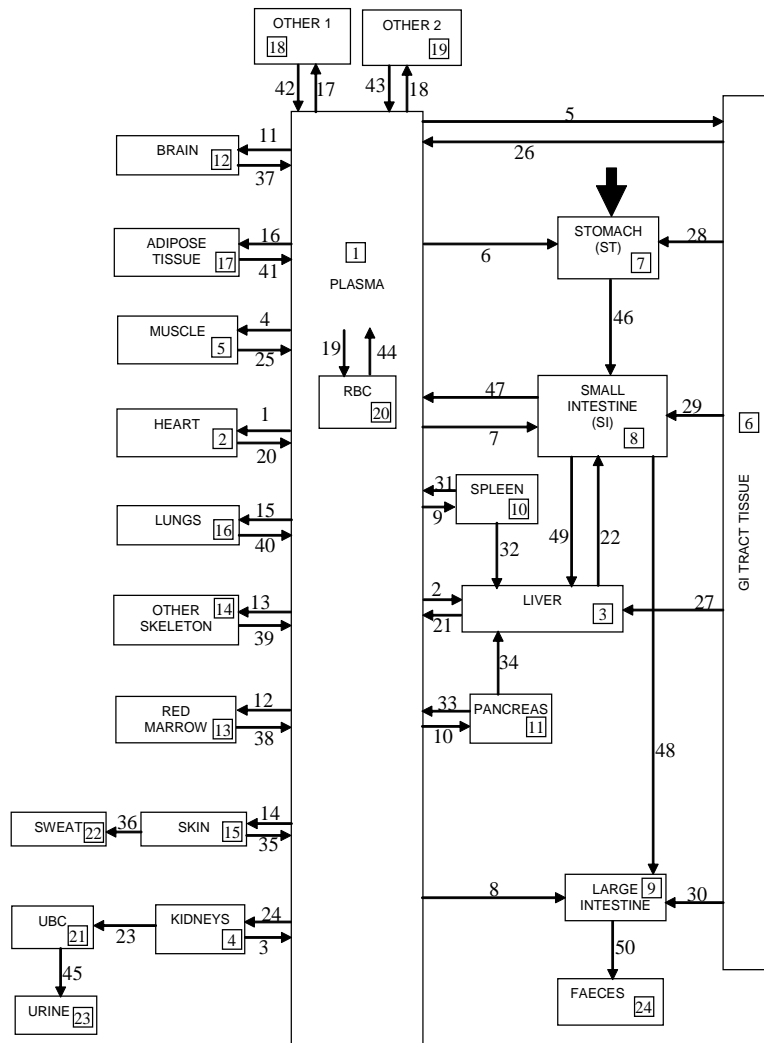


Figure 2.5.18: Biokinetic model of Cs developed by Leggett and co-workers (Leggett et al. 2003)

A degree of correlation is introduced in the present study between uptakes of Cs from plasma by the fact that transfer rates from plasma to tissue are related to cardiac output. A similar correlation between the equilibrium contents of Cs in plasma and in organs or tissues are assumed, this is related to the extraction fraction of Cs in tissues. The correlation between model parameters is usually measured by the correlation coefficient r_{ij} . Because of lack of experimental data for estimation of the correlation coefficient, a value of 0.9 or -0.9 is assumed for taking into account an extremely strong positive and negative correlation.

For convenience, the 50 parameters of the systemic model of Cs were classified into four groups: (1) parameters affecting transfer of Cs from plasma to tissues, (2) parameters affecting transfer of Cs from tissues to plasma, (3) parameters affecting transfer of Cs through and from the gastrointestinal tract tissues, and (4) other parameters. Derivation of the uncertainty of the value of each parameter can be found in (Li et al. 2015).

2.5.7.2.4 Distributions of model parameters

In the present study, the uncertainties reflect inter-subject variability in these processes (regarded as “aleatory” uncertainty) rather than “epistemic” uncertainty, i.e. values that are fixed but unknown. Generally, a normal or lognormal distribution is assumed for most transfer rates. Uniform, triangle distributions are assigned to some parameters by taking into account the justification for the choice of these distributions by other authors.

2.5.7.2.5 Parameter sensitivity analysis

The goal of sensitivity analysis is to quantify the effects of parameter variations on calculated results. The principal method used to evaluate the model parameter sensitivity is sampling-based (Saltelli et al. 2000; 2008). In this method, the sampling of the model inputs and calculated model outputs are analysed by a regression algorithm based on the rank transformation of the sampled data, the PRCC as a sensitivity measure index was applied in this work to identify the mostly influential parameter.

2.5.7.3 Results

2.5.7.3.1 Uncertainty of model parameters

The model parameters and their uncertainties described in Li et al. (2015) are summarised in **Table 2.5.17**. The 95% CI values and distribution are used for sampling the computer inputs.

2.5.7.3.2 Uncertainty of model prediction

In this section, the uncertainties of model predictions in the compartments are presented following injection for blood, whole body and daily urinary excretion; this is because these bioassay quantities are normally measured in experiments and radiation protection practice, and used to estimate the intake and internal doses.

The 50th and 2.5th and 97.5th percentiles of the model predictions for blood clearance are plotted in **Figure 2.5.19a**, and compared with the measured data of Cs in human blood. The UF of blood clearance calculated by the 97.5th and 2.5th percentiles is less than 2.0 in the first 100 days after intake. The predicted UF increases to 17 at day 500 and to 44 at day 1000.

The 50th and 2.5th and 97.5th percentiles of model predictions for whole body retention is presented in **Figure 2.5.20a**, and compared to the measured whole body data of Cs in humans. According to the ICRP Publication 78 (1997), in the *in vivo* monitoring, the whole body content of Cs is defined as the total amount of Cs in the following organs and tissues: blood, heart, liver, kidneys, muscle (skeleton muscle), GI tract tissue, content in urinary bladder, spleen, pancreas, brain, red marrow, skeleton (other skeleton), skin, lungs, adipose tissue, Other 1, Other 2, RBC. During the first 100 days, the UF of whole-body retention of Cs is less than a factor of 2 with the maximum value of 2 at day 100. The UF increases to a factor of 20 at day 500 and a factor of 23 at day 1000. The greater of the UF can be attributed to fact that model predicts very small values at these times. The median value closely agrees with the observed human data, the 95% range of values possibly overstates the range of the human

data; however, the uncertainty of the each measurement point in whole body content of Cs is not available for comparison to the calculated uncertainty.

Table 2.5.17. Mean values^a, default values^b by Leggett et al. (2003) and 95% confidence interval of transfer rates with assigned distributions

No.	Parameter	Mean ^a (d ⁻¹)	95% CI (d ⁻¹)		Distribution	Values ^b (d ⁻¹)
1	Blood→Heart	14.128	5.631	22.625	Normal	14.128
2	Blood→Liver	19.515	7.991	31.039	Normal	19.515
3	Blood→Kidney	67.108	28.890	105.326	Normal	67.108
4	Blood→Muscle	30.022	4.409	55.635	Normal	30.022
5	Blood→GI Tract Tissue	52.980	21.016	84.944	Normal	52.980
6	Blood→Stomach	4.516	0.421	8.611	Normal	4.516
7	Blood→Small intestine	1.048	0.163	1.933	Normal	1.048
8	Blood→Large Intestine	0.020	0.003	0.037	Normal	0.020
9	Blood→Spleen	5.298	0.796	9.800	Normal	5.298
10	Blood→Pancreas	1.766	0.200	3.332	Normal	1.766
11	Blood→Brain	0.424	0.146	0.702	Normal	0.424
12	Blood→Red Marrow	5.298	0.494	10.102	Normal	5.298
13	Blood→Other Skeleton	3.532	0.330	6.734	Normal	3.532
14	Blood→Skin	4.415	1.686	7.144	Normal	4.415
15	Blood→Lungs	4.415	0.297	8.533	Normal	4.415
16	Blood→Adipose Tissue	8.830	1.157	16.503	Normal	8.830
17	Blood→Other 1	8.826	0.561	17.091	Normal	8.826
18	Blood→Other 2	0.004	0.0002	0.007	Normal	0.004
19	Blood→RBC	1.800	1.686	1.914	Normal	1.800
20	Heart→Blood	8.073	2.635	13.511	Normal	8.073
21	Liver→Blood	2.204	0.799	3.609	Normal	2.204
22	Liver→Small intestine	0.116	0.042	0.190	Normal	0.116
23	Kidney→UBC	1.678	0.598	2.758	Normal	1.678
24	Kidney→Blood	31.876	12.343	51.409	Normal	31.876
25	Muscle→Blood	0.075	0.010	0.140	Normal	0.075
26	GI Tract Tissue→Blood	8.191	3.101	13.281	Normal	8.191
27	GI Tract Tissue→Liver	0.431	0.146	0.716	Normal	0.431
28	GI Tract Tissue→Stomach	0.033	0.024	0.043	Normal	0.033
29	GI Tract Tissue→Small intestine	0.108	0.078	0.138	Normal	0.108
30	GI Tract Tissue→Large intestine	0.067	0.048	0.085	Normal	0.067
31	Spleen→Blood	5.033	0.692	9.374	Normal	5.033
32	Spleen→Liver	0.265	0.108	0.422	Normal	0.265
33	Pancreas→Blood	1.678	0.170	3.186	Normal	1.678
34	Pnacreas→Liver	0.088	0.036	0.141	Normal	0.088
35	Skin→Blood	0.867	0.315	1.419	Normal	0.867
36	Skin→Excreta	0.016	0.005	0.026	Normal	0.016
37	Brain→Blood	0.085	0.023	0.146	Normal	0.085
38	Red Marrow→Blood	0.706	0.037	1.375	Normal	0.706
39	Other Skeleton→Blood	0.128	0.0066	0.250	Normal	0.128
40	Lungs→Blood	1.472	0.080	2.864	Normal	1.472
41	Adipose Tissue→Blood	1.766	0.209	3.323	Normal	1.766
42	Other 1→Blood	0.692	0.009	1.375	Normal	0.692
43	Other 2→Blood	0.001	0.000019	0.0028	Normal	0.001
44	RBC→Blood	0.257	0.166	0.348	Normal	0.257
45	UBC→Urine	13.33	6, 12, 22 ^c		Triangular	12
46	Stomach→Small intestine	31	14, 48 ^d		Uniform	40
47	Small intestine→Blood	28.215	4.017	52.413	Normal	28.215
48	Small intestine→Large intestine	0.3	0.241	0.359	Normal	0.3
49	Small intestine→Liver	1.485	1.138	1.832	Normal	1.485
50	Large intestine→Feces	0.667	0.5, 0.5, 1 ^c		Triangular	0.5

^a The mean values which was evaluated in the present work.

^b The values of transfer rates given by Leggett and co-workers (Leggett et al. 2003)

^c The values which are assumed as a triangular distribution.

^d The values which are assumed as a uniform distribution.

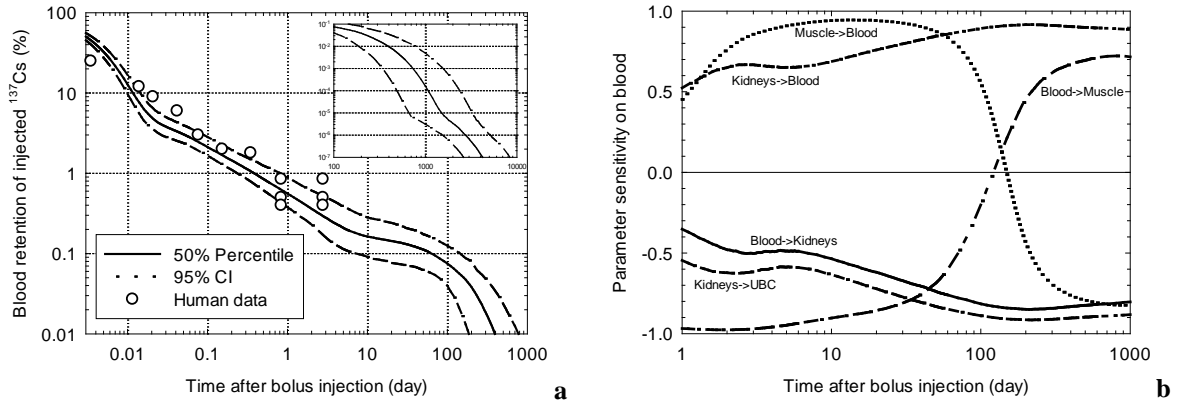


Figure 2.5.19: Uncertainty (a) and sensitivity (b) of model prediction in blood clearance of Cs

The 50th and 2.5th and 97.5th percentiles of daily urinary excretion is shown in **Figure 2.5.21a**. The UF of urinary excretion is very similar to that of blood clearance. A UF of 12 at day 500 and a factor of 29 at day 1000 were revealed, smaller than that of blood at the same time point. However, unfortunately, there is no measurement on the urinary excretion data for comparison to the calculated uncertainty.

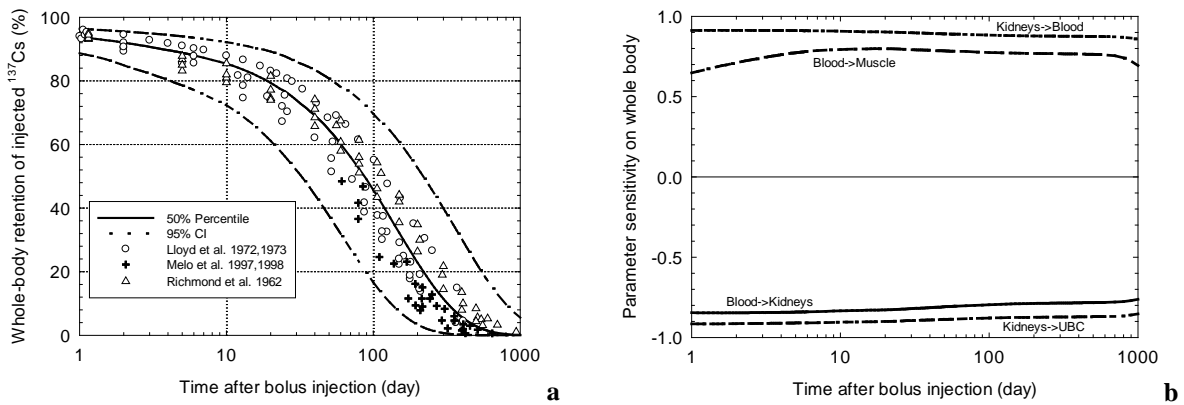


Figure 2.5.20: Uncertainty (a) and sensitivity (b) of model prediction in whole-body retention of Cs

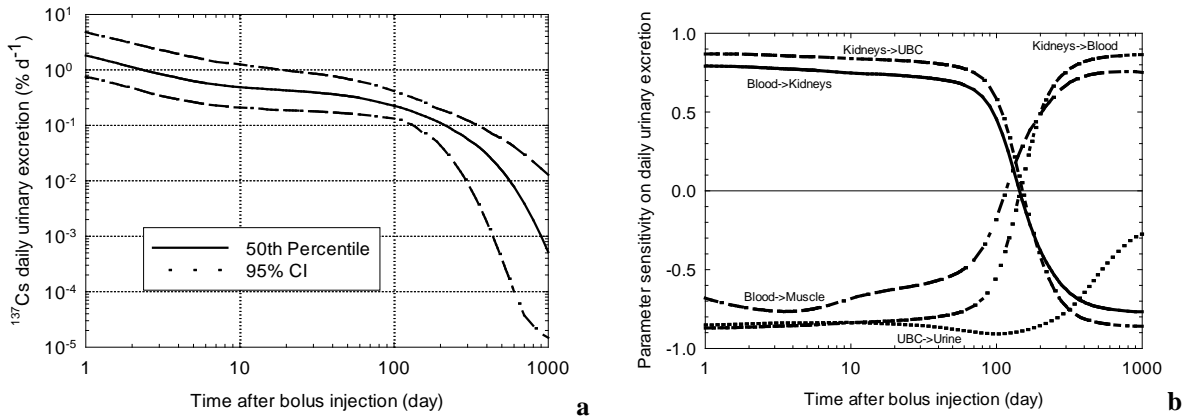


Figure 2.5.21: Uncertainty (a) and sensitivity (b) of model prediction in daily urinary excretion of Cs

In summary, for the retentions in blood and in whole-body and the urinary excretion curve, the UF is generally smaller than 2 during the time course from day 1 to day 100. The UF is dramatically increased to 17 – 23 at day 500, and is gradually approaching 29 – 44 at day 1000.

2.5.7.3.3 Sensitivity of model parameter

The sensitivity of model parameter on the retention in blood, in whole-body and in daily urine excretion is presented in **Figures 2.5.19b, 2.5.20b, 2.5.21b**, respectively together with percentiles of model prediction.

For blood clearance (**Figure 2.5.19b**), it is found that, in the first 50 days after intake, the parameters $k_{\text{muscle} \rightarrow \text{blood}}$ and $k_{\text{blood} \rightarrow \text{muscle}}$ are most influential. At day 100 after intake, the parameters $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{UBC}}$ and $k_{\text{blood} \rightarrow \text{kidneys}}$ have a large effect on blood retention. However, the parameter $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{blood}}$ has a strong and consistent influence on blood retention. Throughout the whole-body retention course (**Figure 2.5.20b**), the parameters $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{blood}}$ and $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{UBC}}$ have the greatest impact. For daily urinary excretion, the parameter $k_{\text{UBC} \rightarrow \text{urine}}$ shows an important role. Parameters $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{UBC}}$ and $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{blood}}$ impact the excretion curve in the first 100 days after intake positively and negatively, respectively; after 400-500 days, the effect is reversed. In summary, the parameters, that connect blood with muscle and kidneys, seem to be important in the biokinetic model of Cs developed by Leggett and co-workers (2003).

2.5.7.3.4 Inference of parameter uncertainty and sensitivity

With respect to uncertainty of whole-body retention of Cs, the results of the parameter uncertainty and sensitivity analysis indicate that the most important parameters are $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{blood}}$ and $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{UBC}}$, and these contribute equally to the variation in retention during the time course. Regarding blood clearance, although the parameters $k_{\text{muscle} \rightarrow \text{blood}}$ and $k_{\text{blood} \rightarrow \text{muscle}}$ have the biggest effect on the uncertainty of blood clearance at early times, the magnitude of the uncertainty on blood clearance is small. For the larger uncertainty (UF ca. 40) at later times, say at day 1000, the parameters $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{UBC}}$ and $k_{\text{kidneys} \rightarrow \text{blood}}$ show a stronger influence.

2.5.7.4 Discussion

In the present study, the uncertainty of model parameters was analysed by taking into account the experimental data that are available from the literature. Strictly speaking, the term “uncertainty” here refers primarily to inter-individual variability in Cs retention and excretion rather than to uncertainty on the population mean or median value. It therefore primarily represents “aleatory” rather than “epistemic” uncertainty, and as is evident from Figure 4a, reproduces the range of whole body retention observed among human subjects. Furthermore, a key source of epistemic uncertainty - the choice and structure of the model itself – was not included in the analysis as the model structure was assumed to be accurate. It should be noted however, that the distributions reflect some additional variance incurred by the fact that the measurement data, on which the distributions are based, contain an element of measurement uncertainty. This is consistent with the observation that the range of whole body retention, predicted by the uncertainty analysis, is over-dispersed with respect to the human data.

However, in radiation protection monitoring, it is an individual person who is monitored. In this situation, if the model does not fit the monitoring data (*in vivo* or *in vitro* measurements), as might occur in situations where special monitoring has been initiated and many measurements are available, then model parameter values can be adjusted to best fit the data. If the uncertainties described here accurately reflect inter-subject variability in Cs retention and excretion, then the choice of values should typically be within the 95% ranges of values

given in **Table 2.5.17**. In fact, these distributions could be used as prior distributions in a Bayesian analysis of a worker's monitoring data. Under these circumstances, the distributions represent prior knowledge (an epistemic uncertainty) on the fixed but unknown values of the model parameters of the worker in question, before the monitoring data are considered. The posterior distributions of model parameters can then be compared with their respective priors to check the consistency of the approach: it would be expected that posterior values of parameters are "not too far" removed from the range of values indicated by their corresponding prior if the model and parameter distributions reflect accurately the retention of Cs for the population in question (adult males in this instance).

In individual monitoring programs of internal exposures, the content of ^{137}Cs in whole-body and in urine is measured for intake and dose assessment with regulatory purpose. For a single acute intake, monitoring interval of 180 day is recommended (BMUB 2007; ISO 2006b). For calculation of an intake, the retention at the middle of the monitoring interval, i.e. 90 days before the measurement is assumed. The calculation of this work shows that the uncertainty factor of the model prediction in whole-body and in urine at 90 day is 2.0 and 1.8, respectively; at day 180 the corresponding UF is 3.5 and 1.9, respectively, the statistical inference of the analysis implies that the use of urinary data for internal dose assessment is preferred to whole-body counter. The smaller uncertainty in urinary prediction implies that urine measurement is reliable for internal dose assessment. However, there is a larger variability in the urine measurements from day to day compared to whole body measurements, and the uncertainty associated with the measurement technique, notably in the sampling procedure and in the detector calibration, should also be taken into account when designing the monitoring program. As mentioned above, due to the lack of measured urinary excretion data on Cs, it is difficult to judge the validation of the calculated uncertainty of urinary excretion. In the practice, two measurements are suggested to be applied.

The present work shows that simultaneous uncertainty and sensitivity analysis can identify important model parameters that may guide further research effort in model calibration. The benefit of uncertainty and sensitivity analysis can broaden our knowledge about the impact of parameters at different time points, for example, if a larger uncertainty exists at a certain time, then sensitivity information can help to identify the parameter that is responsible.

It is acknowledged that there are some limitations in the analysis, especially the paucity of experimental data that makes it difficult to determine the standard uncertainty of the parameter. Furthermore, the assignment of a distribution to a parameter is generally difficult with scarce measurement data; in this case, the rationale for the choice of distribution for model parameters usually is assumed based on experience in the literature, sometimes this is subjective. Nevertheless, the chosen distributions and their parameters can be justified on the basis that the subsequent uncertainty analysis reproduces the median and range of observed human data reasonably well.

As noted earlier, the quantification of uncertainties in biokinetic models can also be used to assess the reliability of effective dose coefficients (Sv per Bq intake) as a protection device. To this end, Puncher and Harrison (2013) derived uncertainties in a slightly modified version of the revised Cs model (ICRP, Occupational Intakes of Radionuclides, in preparation) that is compatible with the ICRP Publication 60 and Publication 103 dosimetry framework (ICRP 1991, 2007). A local sensitivity analysis indicated that the effective dose per unit injection was most sensitive to the rates to and from muscle and kidneys to blood, and from kidney to bladder, which is consistent with the sensitivity analysis described here. For simplicity, Puncher and Harrison (2013) assumed that the rates to and from blood to all soft tissues are

100% positively correlated through their relationship between cardiac output and the efficiency of tissues in extracting caesium from plasma via the plasma membrane bound K^+/Na^+ -ATPase enzyme complex. In a slightly different approach to that adopted here, the authors chose a sampling regime that reproduces the variability in blood and whole body retention given in **Figures 2.5.19** and **2.5.20**, respectively. In this regime the rates to and from all soft tissues were multiplied by a common factor which was sampled from a lognormal distribution with median of unity and GSD of 1.4. This gave similar UF values to those calculated here, and a geometric 95% range of effective dose per unit ingestion of around a factor of ten for adults, calculated using the ICRP Publication 60 schema (ICRP 1991).

2.5.7.5 Conclusion

A relative small uncertainty factor, say less than 2, is revealed during the first 100 days after intake. However, a larger uncertainty factor, up to a maximum factor of 43 in whole-body compartment, was found in the later time, say, after day 500. Taking the blood clearance, whole body retention and the urinary excretion into account, transfer rates of muscle to and from blood, transfer rates of kidneys to and from blood and the rate of kidney to UBC are mostly influential parameters in the investigated biokinetic model.

2.5.8 References

- Al-Jundi J, Li WB, Abusini M, Tschiersch J, Hoeschen C, Oeh U (2011) Inhalation dose assessment of indoor radon progeny using biokinetic and dosimetric modeling and its application to Jordanian population. *J Environ Radioact* 102: 574-580
- Bailey MR, Ansoborlo E, Guilmette RA, Paquet F (2007) Updating the ICRP human respiratory tract model. *Radiat Prot Dosim*. 127: 31-34
- Barrett PHR, Bell BM, Cobelli C, Golde H, Schumitzky A, Vicini P, Foster DM (1998) SAAM II: simulation, analysis, and modeling software for tracer and pharmacokinetic studies. *Metabolism* 47: 484-492
- Bevington PR, Robinson DK (2003) *Data Reduction and Error Analysis for Physical Sciences*. (New York: McGraw- Hill Companies, Inc.)
- Bi L, Li WB, Tschiersch J, Li JL (2010) Age and sex dependent inhalation doses to members of the public from indoor thoron progeny. *J Radioact Prot* 30: 639-658
- Birchall A, James AC (1994) Uncertainty analysis of the effective dose per unit exposure from radon progeny and implications for ICRP risk-weighting factors. *Radiat Prot Dosim* 53: 133-140
- BMJ (2001) Bundesgesetzblatt Teil I: Verordnung für die Umsetzung von EURATOM-Richtlinien zum Strahlenschutz, G 5702, Nr. 38, Bundesanzeiger, Bonn. BM der Justiz
- BMUB (2007) Richtlinie für die physikalische Strahlenschutzkontrolle zur Ermittlung der Körperdosis Teil 2: Ermittlung der Körperdosis bei innerer Strahlenexposition (Inkorporationsüberwachung) (§§ 40, 41 und 42 StrlSchV). Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit
- Bolch WE, Eckerman KF, Sgouros G, Thomas SR (2009) MIRD pamphlet No. 21: a generalized schema for radiopharmaceutical dosimetry-standardization of nomenclature. *J Nucl Med* 50(3): 477-484
- Booker DV, Chamberlain AC, Newton D, Scott AN (1969) Uptake of radioactive lead following inhalation and injection. *Br J Radiol* 42: 457-466
- Conover WJ (1999) *Practical nonparametric statistics*. (New York: John Wiley & Sons)

- Görtz R, Bath N, Berg HP (2000) Generic use of uncertainties in endpoint predictions for regulatory purpose. *Radiat Prot Dosim.* 90, 377-381
- Henrichs K (2007) Concepts of ISO for the monitoring of workers for internal exposure and the present approach for the dose assessment. *Radiat Prot Dosim.* 124, 266-273
- Hursh JB, Mercer TT. (1970) Measurement of ^{212}Pb loss rate from human lungs. *J Appl Physiol* 28: 268-274
- Hursh JB, Schraub A, Sattler EL, Hofmann HP (1969) Fate of ^{212}Pb inhaled by human subjects. *Health Phys* 16: 257-267
- IAEA (1989) Evaluation the reliability of predictions made using environmental transfer models. Safety series No. 100
- ICRP (1979) Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. Part 1. ICRP Publication 30. Ann. ICRP 2(3-4). Pergamon, Oxford
- ICRP (1987) Lung cancer risk from indoor exposure radon daughters ICRP Publication 50. Ann ICRP 17(1). Pergamon, Oxford
- ICRP (1989) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 1. ICRP Publication 56. Ann ICRP 20 (2). Pergamon, Oxford
- ICRP (1991) 1990 recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60. Ann. ICRP 21 (1-3). Pergamon, Oxford
- ICRP (1993a) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2. Ingestion dose coefficients. ICRP Publication 67. Ann ICRP 23 (3-4). Pergamon, Oxford
- ICRP (1993b) Protection against Radon-222 at home and at work. ICRP Publication 65. Ann ICRP 23 (2). Pergamon, Oxford
- ICRP (1994) The human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. Ann ICRP 24 (1-3). Pergamon, Oxford
- ICRP (1995a) Age-Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 3: Ingestion Dose Coefficients. ICRP Publication 69. Ann ICRP 25(1). Pergamon Press: Oxford
- ICRP (1995b) Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 4. Inhalation dose coefficients. ICRP Publication 71. Ann ICRP 25 (3-4). Pergamon, Oxford
- ICRP (1997) Individual monitoring for internal exposure of workers. ICRP Publication 78
- ICRP (2002) Guide for the practical application of the ICRP human respiratory tract model. ICRP Supporting Guidance 3. Pergamon, Oxford
- ICRP (2007) The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. Ann. ICRP 37 (2-4). Pergamon, Oxford
- ICRP (2010) Lung cancer risk from radon and progeny and statement on radon. ICRP Publication 115. Ann. ICRP 40 (1). Elsevier Ltd, Oxford
- Ishikawa T, Tokanami S, Nemeth C (2007) Calculation of dose conversion factors for the thoron decay products *J. Radiol. Prot.* 27: 447-456
- ISO (2006a) Statistics - Vocabulary and symbols - Part 1: Probability and general statistical terms. Second edition. (Geneva, Switzerland: International Organization for Standardization)
- ISO (2006b) Monitoring of workers occupationally exposed to a risk of internal contamination with radioactive material. ISO International Standard 20553. (Geneva, Switzerland: International Organization for Standardization)
- ISO, BIPM, IEC, IFCC, IUPAC, IUPAP and OIML (1995) Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM). (Geneva: International Organization for Standardization)

- Jacobi W, Eisfeld K (1980) Dose to tissues and effective dose equivalent by inhalation of Radon-222, Radon-220 and their short-lived daughters. GSF Report S-626, GSF - Research Center for Environment and Health, Neuherburg
- James AC (1988) Lung dosimetry. In: Radon and its decay products in indoor air Nazaroff W W and Nero A V, New York, John Wiley and Sons Inc. pp259-309
- James AC, Birchall A, Akabani G (2004) Comparative dosimetry of BEIR VI revisited. *Radiat Prot Dosim* 108: 3-26
- Kendall GM, Smith TJ (2002) Doses to organs and tissues from radon and its decay. *J Radiol Prot* 22: 389-406
- Kendall GM, Smith TJ (2005) Doses from radon and its decay products to children. *J Radiol Prot* 25: 241-256
- Kendall GM, Phipps AW (2007) Effective and organ doses from thoron decay products at different ages. *J. Radiol. Prot.* 27 427-435
- Lau BMF, Nikezic D, Yu KN (2006) Killing of target cells due to radon progeny in the human lung. *Radiat Prot Dosim* 122 (1-4): 534-536
- Leggett R, Harrison J, Phipps A (2007) Reliability of the ICRP's dose coefficients for members of the public: IV. Basis of the human alimentary tract model and uncertainties in model predictions. *Radiat Prot Dosim.* 123: 156-170
- Leggett RW (2001) Reliability of the ICRP's dose coefficient for members of the public. I. Sources of uncertainty in the biokinetic models. *Radiat Prot Dosim.* 95: 199-213
- Leggett RW, Williams LR, Melo DR, Lipsztein JL (2003) A physiologically based biokinetic model for cesium in the human body. *Sci Total Environ.* 317: 235-255
- Li WB, Gerstmann UC, Höllriegl V, Szymczak W, Roth P, Hoeschen C, Oeh U (2008b) Radiation dose assessment of exposure to depleted uranium. *J Expo Sci Environ Epidemiol* 19 (5): 502-514
- Li WB, Roth P, Wahl W, Oeh U, Hollrigel V, Paretzke HG (2005) Biokinetic modeling of uranium in man after injection and ingestion. *Radiat Environ Biophys* 44: 29-40
- Li WB, Tschiersch J, Oeh U, Hoeschen C (2008a) Lung dosimetry of inhaled thoron decay products. In: IRPA 12 Proceeding, Buenos Aires Argentina 19-24 October 2008. CD-ROM, pp. 1-10. <http://www.irpa12.org.ar/fullpapers/FP0823.pdf>
- Marsh JW, Birchall A (1999a) Letter to the editor *Radiat. Prot. Dosim.* 81 311-312
- Marsh JW, Birchall A (1999b) Determination of lung-to-blood absorption rates for lead and bismuth that are appropriate for radon progeny. *Radiat Prot Dosim* 83: 331-337
- Marsh JW, Birchall A (2000) Sensitivity analysis of the weighted equivalent lung dose per unit exposure from radon progeny. *Radiat Prot Dosim* 87: 167-178
- Marsh JW, Birchall A, Butterweck G, Dorrian MD, Huet C, Reineking G, Tymen G, Schulert, CH, Vargas A, Vezzu G, Wendt J (2002) Uncertainty analysis of the weighted equivalent lung dose per unit exposure to radon progeny in the home. *Radiat Prot Dosim* 102(3): 229-248
- Marsh JW, Birchall A, Davis K (2005) Comparative dosimetry in homes and mines: estimation of K-factors. *Radioact Environ* 7: 290-298
- Marsh JW, Harrison JD, Laurier D, Blanchardon E, Paquet F, Tirmarche M (2010) Dose conversion factors for radon: recent developments. *Health Phys* 99: 511-516
- Meisenberg O, Tschiersch J (2011) Thoron in indoor air: modeling for a better exposure estimate. *Indoor Air.* 2011; 21(3):240-252.
- NCRP (1996) A Guide for Uncertainty Analysis in Dose and Risk Assessments Related to Environmental Contamination. Commentary No. 14

- NCRP (1998) Evaluating the reliability of biokinetic and dosimetric models and parameters used to assess individual doses for risk assessment purposes. NCRP Commentary No. 15
- NCRP (2009) Uncertainty in internal radiation dose assessment. NCRP Report No. 164
- Nikezic D, Lau B, Stevanovic N, Yu KN (2006) Absorbed dose in target cell nuclei and dose conversion coefficient of radon progeny in the human lung. *J Environ Radioact* 89: 18-29
- Porstendörfer J (1994) Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *J Aerosol Sci* 25(2): 219-263
- Porstendörfer J (2001) Physical parameters and dose factors of the radon and thoron decay products. *Radiat Prot Dosim* 94(4): 365-373
- Puncher M, Harrison JD (2012). Assessing the reliability of dose coefficients for inhaled and ingested radionuclides. *J Radiol Prot.* 32, 223–241
- Raabe OG (1971) Particle size analysis utilizing grouped data and log-normal distribution *J. Aerosol. Sci.* 2: 289–303
- Rühm W, Li WB, El-Faramawy N, Weitzenegger E, Wahl W (2008) Rekonstruktion einer potentiellen ²²⁶Ra-Skelettaktivität mit einem Teilkörperzähler. Internal HMGU-Bericht
- Saltelli A, Chan K and Scott EM (2000) Sensitivity analysis. (Chichester: J. Wiley & Sons)
- Saltelli A, Ratto M, Andres T, Campolongo F, Cariboni J, Gatelli D, Saisana M, Tarantola S. Global sensitivity analysis. The primer. (Chichester: John Wiley & Sons Ltd) (2008).
- Saltelli A, Tarantola S, Campolongo F, Ratto M. Sensitivity analysis in practice. (Chichester: John Wiley & Sons Ltd) (2004).
- Schäfer G, Seitz G (2007) Ausscheidungsraten von ²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb und ²¹⁰Po bei Personen der Bevölkerung und Beschäftigten an NORM-Arbeitsplätzen, Report VKTA-83, Rosendorf
- TGLD (Task Group on Lung Dynamics) (1966). Deposition and retention models for internal dosimetry of the human respiratory tract. *Health Phys* 12: 173-207
- Träber SC, Höllriegl V, Li WB, Czeslik U, Rühm W, Oeh U, Michalke B. Estimating the absorption of soil-derived uranium in humans. *Environ. Sci. Technol.* 2014; 48: 14721–14727
- Tschiersch J, Haninger T (2006) Comments on “adjusting lung cancer risks for temporal and spatial variations in radon concentrations in dwellings in Gansu Province, China”. *Radiat Res.* 166:120
- Tschiersch J, Li WB, Meisenberg O (2007) Increased indoor thoron concentrations and implication to inhalation dosimetry. *Radiat Prot Dosim.* 127(1-4):73-78.
- Tschiersch J, Meisenberg O (2010) The HMGU thoron experimental house: a new tool for exposure assessment. *Radiat Prot Dosim.* 141(4):395-399.
- UNSCEAR (2000) UNSCEAR 2000 Report. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to the General Assembly with Scientific Annexes. United Nations, New York
- UNSCEAR (2008) UNSCEAR 2006 Report. Effects of Ionizing Radiation. In: Annex E Sources-to-effects Assessment for Radon in Homes and Workplaces, Vol. II. United Nations, New York
- Weibel ER (1963) Morphometry of the human lung. Springer-Verlag, Berlin
- Yu KN, Cheung TTK, Haque AKMM, Nikezic D, Lau BMF, Vucic D (2001a) Radon progeny dose conversion coefficients for Chinese males and females. *J Environ Radioact* 56: 327-340
- Yu KN, Wong BTY, Law JYP, Lau BMF, Nikezic D (2001b) Indoor dose conversion coefficients for radon progeny for different ambient environments. *Environ Sci Technol* 35: 2136-2140

2.6 Arbeitspaket 4.1: Aufnahme und Ausscheidung von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 an NORM/TENORM-Arbeitsplätzen

T. Shinonaga, A. Dieter, Institut für Strahlenschutz;
W.B. Li, Abteilung Medizinische Strahlenphysik und Diagnostik

2.6.1 Introduction

The energy supply by nuclear power generation, which occupies about 15.4% energy source in Germany in 2013, as shown in **Fig. 2.6.1** (<https://www.bdew.de/internet.nsf/id/energiemix-de>), will be stopped in 2022. [1, 2] According to the preliminary numbers announced by the German Energy and Water Industries Federation (BDEW) on the 29th of December, 2014, the share of renewable energy in 2014 in the total amount of power generation will be reached to 25.8%, and it became the most important power source among various energy sources. On the other hand, the total power consumption is reduced by about 3.6 % to 6.104 billion kWh from the 6.332 billion kWh, and the energy power source by fossil fuel was reduced. Geothermal energy, which generates from the original formation of the planet (20%) and from radioactive decay of nuclides (80%) [3], is one of the renewable energy sources. Instead of artificial radionuclide contamination through nuclear power plants, in geothermal energy plants, technically-enhanced naturally-occurring radioactive-materials (TENORM) by the human technical activities can increase radiation exposure, not only to the person directly involved in these activities, but also to the local or even whole population. [4] Maximum activity concentration in residues from geothermal energy production in Northern German Basin and Upper Rhine Valley was reported as **Table 2.6.1**. [5, 6]

Table 2.6.1 Maximum activity concentration in residues from geothermal energy production in Bq·g⁻¹.

Geothermal province	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Ra-224	Th-228	Source of information
Northern German Basin	270	800	210		190	[5]
Upper Rhine Valley	1347	1100	442	384	459	[6]

Some workers at geothermal industry are required to participate in cleaning work of facilities and tools on-site where concentrated naturally-occurring radioactive material (NORM) and/or TENORM in scale is found. The inhalation dose of workers through working activities, especially during the cleaning work for heat-exchanger and inlet/outlet filters in such industries are important data for their radiation exposure record.

In this study, we demonstrated how to estimate the inhalation doses to workers from Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 during cleaning work of tools/facilities which were used at geothermal plant (Neustadt-Glewe), analyzing those nuclides in foodstuffs, urine and feces of the workers for 7 days. As a reference, the office workers were also involved in the program under similar conditions except performing the cleaning work.

Gross power generation by energy sources 2013

<https://www.bdew.de/internet.nsf/id/energiemix-de>

Brutto-Stromerzeugung 2013 in Deutschland: 629 Mrd. Kilowattstunden*

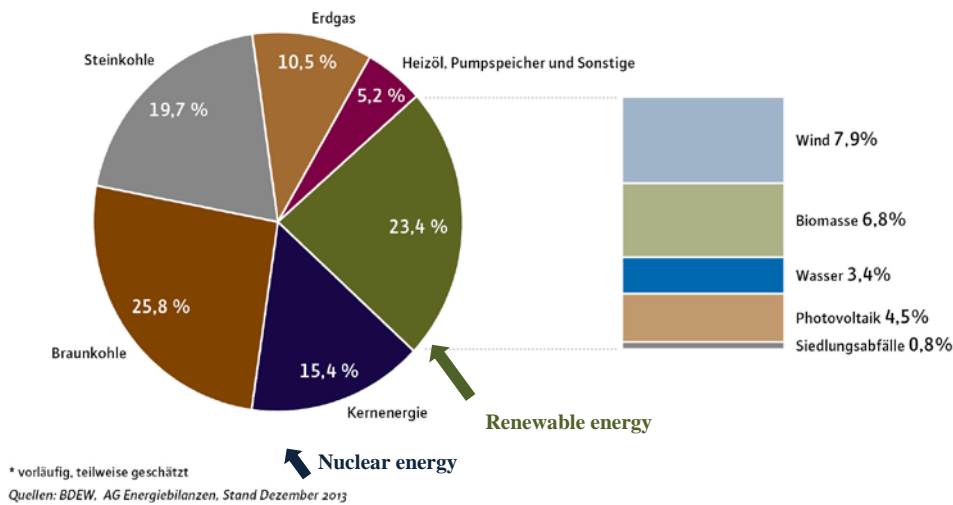


Fig. 2.6.1 Gross power generation by energy sources in Germany in 2013.

2.6.2 Objectives of the project

The objectives of this project are to

- 1) organize a model experiment program and provide possible data for the estimation of inhalation dose to workers from radioactive materials after cleaning work of attached equipment containing scale used at a geothermal energy plant,
- 2) determine the activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in foods and drinks which were deliberately supplied to the participants, workers and references/office workers,
- 3) determine the activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 in urine and feces of each participant for every day during the program execution (by VKTA),
- 4) calculate effective dose to the participants from Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 through the diet,
- 5) measure Rn-222 concentration in air surrounding the participants to estimate annual inhalation dose to the participants by Rn-222 exposure.

2.6.3 Program and performance

The schematic explanation of the project is shown in **Fig. 2.6.2**. In this study, the cleaning work was not performed at a real geothermal energy plant because it was unable to find an available company. The “workers” cleaned the heat-exchangers, which were virtually used at a geothermal energy plant in northern Germany, in a laboratory of the VKTA, Rossendorf.

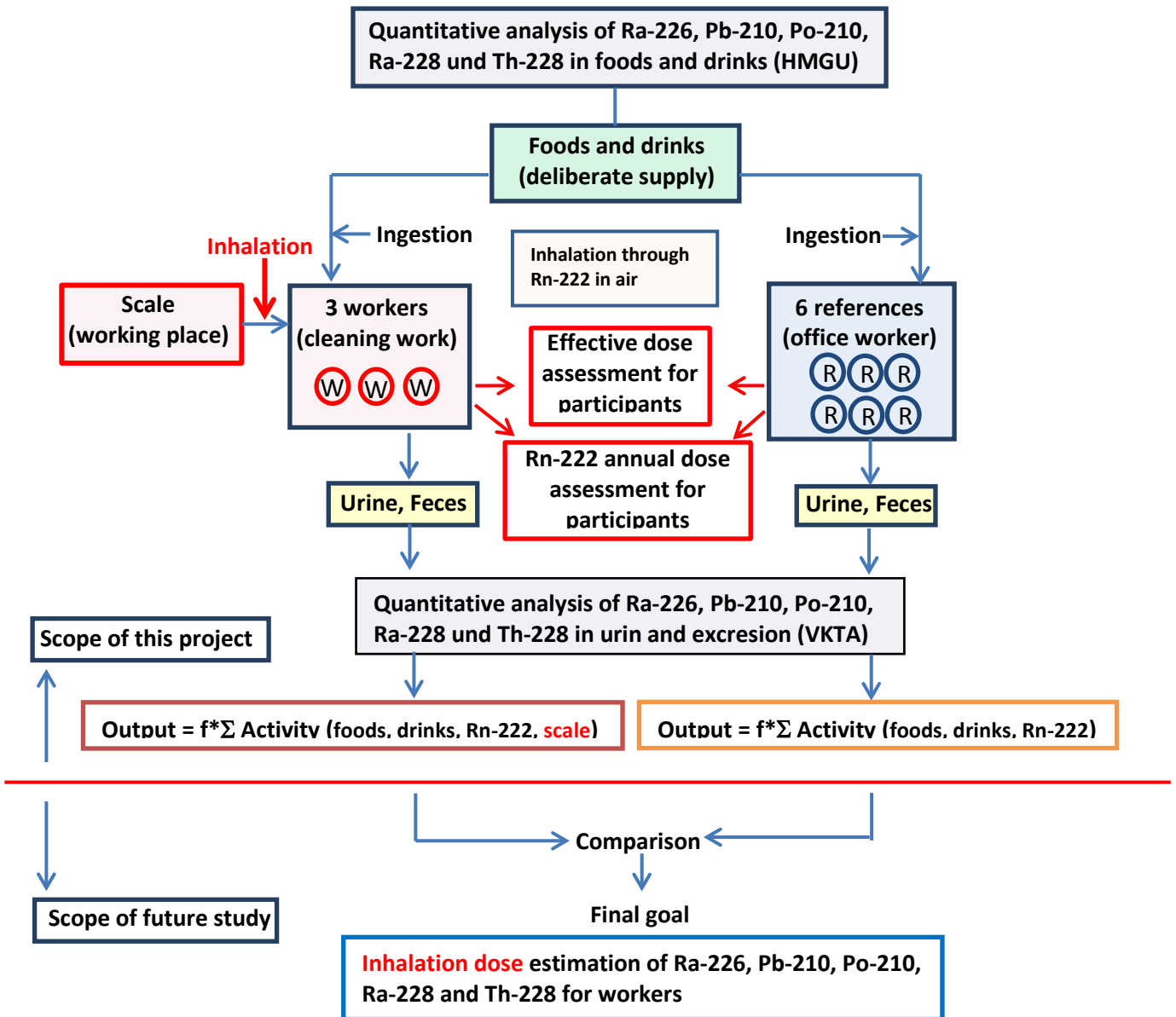


Fig. 2.6.2 Schematic explanation of the project. The program was carried out continuous 7 days assigning to 3-day cleaning-work.

The execution of the program for the workers was continued for seven days (22. – 28. September 2012) and during this period, three days were assigned for the cleaning work of heat-exchangers. The schematic explanation of the execution of the program during 7 days is show in **Fig. 2.6.3**. The program for the reference people was executed from 27. January through 1. February 2013.

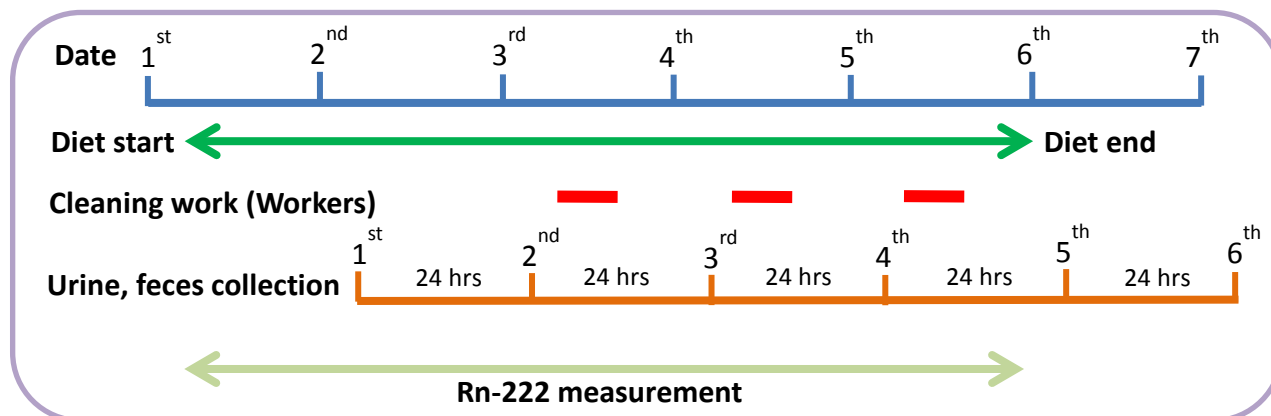


Fig. 2.6.3 Schematic explanation of the program execution.

2.6.3.1 Participants in the program

The participants of the program were classified into two groups: one is three workers who engaged cleaning work of heat-exchangers, which were used in a geothermal energy plant in northern Germany; another group is consisted with non-factory workers, i.e., office-worker, as references for workers. The participants were limited to non-smoker to avoid interference of Pb-210 and Po-210 intake through component of tobacco leaves [6, 7] on the dose assessment. Information on the participants is shown in **Table 2.6.1**.

Table 2.6.1. Information on the participants.

	W1	W2	W3	R1	R2	R3	R4	R5	R6
Gender	male	male	male	male	male	male	male	male	male
Birth [dd.mm.yy]	15.01.62	15.09.55	12.12.61	23.09.84	28.07.86	27.09.85	14.07.85	27.02.86	26.09.82
Age [y]	50	57	50	28	26	27	27	26	30
Height [m]	1.73	1.75	1.76	1.96	1.90	1.76	1.75	1.90	1.79
Weight [kg]	90	90	76	93	89	75	62	87	65
Smoker	non	non	non	non	non	non	non	non	non
Residence	D	Wi	D	M	G	M	M	M	M

W: Worker, R: Reference (office worker), Residence (during program execution): D: Dresden; Wi: Wischofswerda; M: Munich; G: Garching b. München

2.6.3.2 Diet program

The foods and drinks supplied to the participants during the program execution were prepared and supplied by the project organizer. To minimize the influence of variety of diet on the results, the cooked meal prepared by a delivery service company and sale foods and drinks were prepared and supplied to the participant. The contents of the food are shown in

Table 2.6.2. The participants recorded the name and amount of the foods and drinks they took and of additional foods and drinks which they prepared by themselves. The same amount of the additional materials eaten was kept. Nuts, chocolate with nuts, fruits and vegetables were limited to eat, and unfiltered drinks, e.g., brewed beer from wheat were forbidden to take, although consumption of filtered drinks like wine, champagne and hard liquor were accepted to drink.

Table 2.6.2 Cooked meal prepared by a delivery service company (main and side dish), and other sale foods and drinks supplied to the participants.

Main dish	Fixed side dish	Sale foods and drinks	
Beef goulash	- Spaetzle	Bread	Honey
Braised beef	- Beetroot, potato wedge	Bread roll	Jam
Cheese noodle	- (without side dish)	Butter	Ring Bologna (processed meat)
Chili Con Carne	-Rice	Camembert cheese	Salami (processed meat)
Coalfish filet	-Mashed potato, carrot	Cereal	Apple juice
Poulard	-Potato	Chocolate	Milk
Pork cutlet	-Noodle	Edam cheese	Orange juice
Sausage	-Mashed potato, sauerkraut		Water (for direct drinking, and for tea and coffee preparation)

2.6.3.3 Cleaning work of heat-exchanger

Cleaning work of heat-exchanger was organized and performed on the 3rd, 4th and 5th day in the program. The heat-exchanger, which was used at the geothermal plant at Neustadt-Glewe, was transported to a workplace of VKTA at Rossendorf to perform cleaning work.

2.6.3.4 Analysis of activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in foods and drinks

Activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in foods and drinks were determined by non-destructive gamma spectrometry for Ra-226, Pb-210 and Ra-228, and alpha spectrometry accompanying chemical separation for Po-210 and Th-228.

2.6.3.5 Radon-222 measurement in air surrounding the participants

Lead-210 and Po-210 are the decay products of Rn-222 which outdoor concentration is about 10 Bq·m⁻³ outside and about 50 Bq·m⁻³ in house. [9] For one of the datum for inhalation does estimation, Rn-222 concentration in air surrounding each participant was measured using radon exposure meter developed by J. Irlinger et al. (AP 4.2). [10] The participants were equipped with that portable radon exposure meter during over the program running period. For additional information, the actions and the surrounding environment of the participants were recorded by themselves.

2.6.3.6 Collection and analysis of urine and feces of the participants

Urine and feces of the participants were collected every day during 7 days continuously. The collection of excretion was begun on the 2nd day after the diet start, and ended on the 7th day before noon. The excretion was collected as of 24-hour-sample (**Fig. 2.6.3**). The activity concentration of objective radionuclides were determined by VKTA.

2.6.4 Determination of activity concentration of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in certified reference materials, foods and drinks

Activity concentration in foods and drinks was determined by gamma (Pb-210, Ra-226 and Ra-228) and alpha spectrometry (Po-210 and Th-228) at ISS_HMGU [11], and those in urine and feces were achieved at VKTA Rossendorf.

2.6.4.1 Analytical procedure of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 by gamma spectrometry

Foods and drinks were prepared for non-destructive gamma-ray measurements as shown in **Table 2.6.3** (Sample preparation method). The samples were fully filled in a polystyrene container, closed tightly and stored for the build-up of the radioactive equilibrium for about three weeks.

For the gamma-ray measurements, n-type high-purity germanium detectors (HPGe) with relative efficiency 22-39 % were used for most of the samples and performed at ISS_HMGU and a part at Felsenkeller_VKTA. Raw data evaluation of gamma spectrometry was carried out using software of APEX 1.3 (Cannberra).

The energy line of 46.54 keV was used for Pb-210 analysis. For Ra-226 analysis, the intensity of its decay nuclides Pb-214 and Bi-214 were used because of the interference of U-235 energy line (185.71 keV) to the Ra-226 energy line (186.21 keV). Radium-228 was determined using its decay nuclide Ac-228. The samples were measured by gamma spectrometers for typically 10-14 days.

Self-absorption correction was carried out following the method based on the experimental determination of transmission factors suggested by N. H. Cutshall [12].

2.6.4.2 Analytical results of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in certified reference materials by gamma spectrometry

Activity concentration of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in the certified reference materials of NIST SRM-4359 (seaweed) [13], IAEA-447 (moss-soil) [14] and IAEA-414 (fish) [15] were analysed to examine the availability of the gamma spectrometry used in this study for the analysis of foods and drinks. The results are shown as bias % compared to the certified/information value in **Table 2.6.3**.

Table 2.6.3 Analytical results of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in NIST SRM 4359, IAEA-447 and IAEA-414 shown as bias %.

Sample name	Nuclide	Activity concentration [mBq·kg ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [mBq·kg ⁻¹]	Bias [%]* This study
NIST-4359 as of analysed date	Pb-210	15.4	2.2	5.2
	Ra-226	5.7 [§]	(3.8 – 9.5) ⁺⁺	1.7
	Ra-228	2.98	0.35	-0.60
IAEA-474 as of analysed date	Pb-210	387	37	7.8
	Ra-226	25.1	4.0	-7.2
	Ra-228	37.0	4.0	-3.0
IAEA-414 as of analysed date	Pb-210	1.3 [§]	(1.1 – 1.6) ⁺⁺	-64
	Ra-226	1.4 [§]	(0.6 – 1.6) ⁺⁺	-68
	Ra-228	-	-	-

+: expanded uncertainty, coverage factor 2

*bias %: (difference between certified/information value and determined value in this study) x 100.

§: uncertified/information value

++: range of reported results.

2.6.4.3 Analytical results of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in foods and drinks supplied to the participants by gamma spectrometry

Analytical results of activity concentration, uncertainty, detection limit, detection threshold of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in foods and drinks by gamma spectrometry are shown in **Table 2.6.4** together with sample preparation method, dry/wet weight ratio and ash weight of each sample.

Table 2.6.4 Analytical results of Pb-210, Ra-226 and Ra-228 in foods and drinks by gamma spectrometry. The activity concentration is presented as $\text{mBq} \cdot [\text{wet weight: kg}]^{-1}$.

Sample name	Nuclide	Activity concentration [$\text{mBq} \cdot \text{kg}^{-1}$] [$\text{mBq} \cdot \text{L}^{-1}$]	U (k=2) ⁺ [$\text{mBq} \cdot \text{kg}^{-1}$] [$\text{mBq} \cdot \text{L}^{-1}$]	Detection limit [§] [$\text{mBq} \cdot \text{kg}^{-1}$] [$\text{mBq} \cdot \text{L}^{-1}$]	Detection threshold [#] [$\text{mBq} \cdot \text{kg}^{-1}$] [$\text{mBq} \cdot \text{L}^{-1}$]	Sample wet weight [kg] [L]	wet/dry weight ratio	U (k=2) ⁺	wet/ash weight ratio	Sample preparation method [§]
Beaf goulash							Meat			
- (Beaf + Spaetzle)	Pb-210	-	-	66	33		6.06	0.39	n	ash
	Ra-226	16.6	6.0	8.5	4.2	1.8	Spaetzle			
	Ra-228	-	-	32	16		3.69	0.16	n	
Braised beef										
-Beaf	Pb-210	-	-	166	83					
	Ra-226	-	-	42	21	0.65	5.08	0.24	n	ash
	Ra-228	-	-	94	46					
-Potato wedges	Pb-210	-	-	177	88					
	Ra-226	-	-	40	20	0.33	4.83	0.38	n	ash
	Ra-228	-	-	118	59					
-Beetroot	Pb-210	-	-	143	71					
	Ra-226	62	20	33	16	0.57	5.68	0.39	n	ash
	Ra-228	87	64	94	47					
Cheese spaetzle										
	Pb-210	-	-	120	60					
	Ra-226	-	-	24	12	1.3	2.91	0.24	n	ash
	Ra-228	-	-	64	32					
Chili Con Carne										
-Meat	Pb-210	-	-	404	201					
	Ra-226	-	-	89	44	0.41	3.978	0.072	n	fd
	Ra-228	-	-	179	88					
-Rice	Pb-210	-	-	543	269					
	Ra-226	-	-	128	64	0.21			n	fd
	Ra-228	-	-	309	153					

Sample name	Nuclide	Activity concentration [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Detection limit [§] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Detection threshold [#] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Sample wet weight [kg] [L]	wet/dry weight ratio	U (k=2)	wet/ash weight ratio	Sample preparation method [§]
Coalfish filet										
-Fish	Pb-210	-	-	496	245	0.28	4.19	0.089	n	fd
	Ra-226	-	-	128	64					
	Ra-228	-	-	297	147					
-(Mushed potato + Carrot)	Pb-210	-	-	380	188	0.29	na	na	n	fd
	Ra-226	-	-	122	61					
	Ra-228	-	-	380	189					
Pork cutlet										
-Meat	Pb-210	-	-	112	56	1.5	3.447	0.0083	n	ash
	Ra-226	-	-	26	13					
	Ra-228	-	-	65	32					
-Noodle	Pb-210	-	-	127	63	0.77	3.59	0.18	n	ash
	Ra-226	-	-	31	15					
	Ra-228	-	-	70	35					
Poulard										
-Meat	Pb-210	-	-	125	62	1.1	5.37	0.31	n	ash
	Ra-226	-	-	24	12					
	Ra-228	-	-	57	28					
-Potatoo	Pb-210	-	-	101	50	0.95	4.19	0.21	n	ash
	Ra-226	-	-	25	12					
	Ra-228	-	-	71	35					
Sausage										
-(Sausage + Mashed potato + Sauerkraut)	Pb-210	-	-	97	49	2.1	4.472	0.089	n	ash
	Ra-226	-	-	19	9.6					
	Ra-228	-	-	48	24					

Sample name	Nuclide	Activity concentration [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Detection limit [§] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Detection threshold [#] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Sample wet weight [kg] [L]	wet/dry weight ratio	U (k=2)	wet/ash weight ratio	Sample preparation method [§]
Apple juice	Pb-210	-	-	114	57					
	Ra-226	7.4	4.9	5.9	2.9	6.0	ev	ev	ev	ev
	Ra-228	-	-	16	7.9					
Bread	Pb-210	-	-	220	109					
	Ra-226	46	26	5.1	2.5	0.84	1.680	0.0085	n	ash
	Ra-228	132	76	126	63					
Butter	Pb-210	-	-	982	491					
	Ra-226	-	-	191	96	0.037	1.194	0.017	93	ash
	Ra-228	-	-	496	248					
Butter roll	Pb-210	-	-	272	136					
	Ra-226	3440	1650	30	15	0.62	1.623	0.051	52	ash
	Ra-228	-	-	119	59					
Camembert cheese	Pb-210	-	-	310	155					
	Ra-226	-	-	36	18	0.52	2.165	0.049	27	ash
	Ra-228	-	-	120	60					
Chocolate	Pb-210	-	-	444	222					
	Ra-226	3950	1820	47	24	0.81	1.026	0.024	43	ash
	Ra-228	-	-	175	88					
Cornflakes	Pb-210	-	-	200	99					
	Ra-226	-	-	45	22	0.69	1.064	0.044	n	ash
	Ra-228	-	-	105	52					
Edam cheese	Pb-210	392	30	280	140					
	Ra-226	78	30	32	16	0.42	1.894	0.049	25	ash
	Ra-228	-	-	138	69					

Sample name	Nuclide	Activity concentration [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Detection limit [§] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Detection threshold [#] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Sample wet weight [kg] [L]	wet/dry weight ratio	U (k=2)	wet/ash weight ratio	Sample preparation method [§]
Honey	Pb-210	168	63	142	70	0.88	1.426	0.044	n	ash
	Ra-226	-	-	38	19					
	Ra-228	-	-	88	44					
Jam	Pb-210	-	-	113	56	1.0	2.131	0.034	n	ash
	Ra-226	-	-	32	16					
	Ra-228	-	-	46	23					
Milk	Pb-210	-	-	283	139	1.2	ev	ev	ev	ev
	Ra-226	116	27	41	21					
	Ra-228	-	-	110	55					
Orange juice	Pb-210	-	-	220	110	0.85	n	n	n	fd
	Ra-226	59	30	58	29					
	Ra-228	-	-	190	94					
Ring Bologna	Pb-210	-	-	376	188	0.64	2.500	0.076	28	ash
	Ra-226	-	-	41	20					
	Ra-228	-	-	150	75					
Salami	Pb-210	-	-	440	220	0.5	2.079	0.056	23	ash
	Ra-226	-	-	48	24					
	Ra-228	-	-	164	82					
Water	Pb-210	-	-	6.2	3.1	27	ev	ev	ev	ev
	Ra-226	2.23	0.70	1.34	0.67					
	Ra-228	4.0	3.8	3.2	1.6					

+: expanded uncertainty (coverage factor 2) calculated following GUM [16].

§: detection limit and #: detection threshold were calculated following DIN ISO 11929 [17].

-: below detection limit. n: not weighed.

§: sample preparation method: ash = high temperature (>450°C) ash; fd = freeze-drying; ev = evaporation (105 – 120°C).

2.6.4.4 Analytical procedure of activity concentration of Po-210 and Th-228 in certified reference materials, foods and drinks by alpha spectrometry

Polonium-210 and Th-228 in foods and drinks were determined by alpha spectrometry after chemical separation. Polonium-210 and Th-228 in the ashed sample were extracted into concentrated HNO₃ and H₂O₂ solution and divided into two aliquots. Ion exchange chromatography was used for chemical separation and about 20 mBq Po-209 (NIST 4326) and Th-229 (NIST4328C) spike solutions were added into the sample solution for isotope dilution method analysis.

2.6.4.4.1 Chemical separation of Po-210

The sample solution with a spike was adjusted to 8 M (mol/L) HNO₃ after the sample extraction. The solution was loaded onto 3ml of MP-1M resin (500-100 µm mesh, BioRad Laboratories) conditioned with 8 M HNO₃. Polonium-210 was eluted with 40 ml of 8 M HNO₃ and the eluant was heated to dryness and converted into chlorate form by fuming with conc. HCl, adjusted to 2 M HCl and loaded onto 2 ml of Sr ion chromatographic resin (100 - 150 500 - 100 µm mesh, TRISKEM International) conditioned with 2 M HCl. Then after the Sr resin was washed with 10 ml 2 M HCl and Po was eluted with 30 ml 6 M HNO₃. The eluent was evaporated to dryness and the residue was converted into chlorate form. The residue was dissolved in 50 ml 1 M HCl containing 0.5 g L-ascorbic acid for autodeposition on a nickel disk (20 mm in diameter, 1.0 mm in thickness) for alpha particle measurement.

2.6.4.4.2 Chemical separation of Th-228

A few ml of 10 M HCl, iron carrier and a Th-229 spike were added to a sample solution. Ammonium hydroxide was added to adjust pH value about 8 to coprecipitate Th. The solution was centrifuged to separate the precipitation and liquid phase. The precipitation was dissolved in a conc. nitric acid and then after in 0.5 M aluminium nitrate solution. The solution was heated after adding iron sulphamate and ascorbic acid. The solution adjusted to 3 M HNO₃ was loaded onto 0.5 g TEVA resin (TRSKEM, 100-150 µm mesh) conditioned with 3 M HNO₃. The resin was washed with 15 ml 3M HNO₃. Thorium was eluted with 10 ml 9 M HCl and further 10 ml 5 M HCl, and evaporated to 3 ml volume, diluted with 0.3 M H₂SO₄, added CeCl₃ and mixed with a few ml of 40% HF to make microcoprecipitation of Th. The solution was stayed for about 20 min and filtered with 0.1 µm pore size membrane filter. After drying the filter, the filter was fixed with a sample holder for alpha particle measurement.

2.6.4.4.3 Analytical results of Po-210 and Th-228 in certified reference materials

Activity concentration of Th-228 in certified reference materials of NIST SRM-4359 was analysed to examine the availability of the analytical method for Po-210 and Th-228 used in this study. For the sample treatment of Po analysis, 40% HF was used to digest an undissolved residue after extraction with HNO₃. The results are shown as a bias % compared to the certified/information value of NIST SRM-4359 in **Table 2.6.5**.

Table 2.6.5 Analytical results of activity concentration of Po-210 and Th-228 in NIST SRM 4359 shown as bias %.

Sample name	Nuclide	Activity concentration [Bq·kg ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [Bq·kg ⁻¹]	Bias [%]*
NIST-4359	Po-210	20.6	1.5	-11 – -17
as of 01.01.2002	Th-228	3.6 [§]	(1.0 – 4.8) ⁺⁺	+27 – +30

+ : expanded uncertainty (coverage factor 2)

§ : uncertified/information value

*bias %: difference between certified/information value and determined value in this study x 100.

++ : range of reported results.

2.6.4.4 Analytical results of Po-210 and Th-228 foods and drinks supplied to the participants

Activity concentration, corresponding uncertainty, detection limit, detection threshold, sample preparation method, dry/wet weight ratio and estimated ash weight of each sample are shown in **Table 2.6.6**.

Table 2.6.6 Analytical results of Po-210 and Th-228 in foods and drinks by alpha spectrometry. The activity concentration is presented as mBq·[wet weight: kg]⁻¹.

Sample name	Nuclide	Activity concentration [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Chemical yield [%]	Detection limit [§] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Sample wet weight [kg] [L]	wet/dry weight ratio	U (k=2)	wet/ash weight ratio	Sample preparation method [§]
Beaf goulash										
-Beaf	Po-210	No data								
	Th-228									
-Spaetzle	Po-210									
	Th-228									
Braised beef										
-Beaf	Po-210	No data								
	Th-228									
-Potato wedges	Po-210									
	Th-228									
-Beetroot	Po-210									
	Th-228									
Cheese spaetzle										
	Po-210	No data								
	Th-228									
Chili Con Carne										
-Meat	Po-210	No data								
	Th-228									
-Rice	Po-210									
	Th-228									
Coalfish filet										
-Fish	Po-210	-	-	74	4.5	0.093	4.194	0.089	42	ash
	Th-228	5.0	2.8	100	2.3					
-Mushed potato	Po-210	-	-	60	1.1	0.160	n	n	67	ash
	Th-228	-	-	91	1.6					
-Carrot	Po-210			28	13	0.115	n	n	77	ash
	Th-228	25.7	6.6	89	2.5					

Sample name	Nuclide	Activity concentration [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	U (k=2) ⁺ [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Chemical yield [%]	Detection limit [§] [mBq·kg ⁻¹] [mBq·L ⁻¹]	Sample wet weight [kg] [L] (concentrated)	wet/dry weight ratio	U (k=2)	wet/ash weight ratio	Sample preparation method [§]
Chocolate	Po-210	12.6	5.8	78	5.8	0.120	1.026	0.024	43	ash
	Th-228	53	16	15	3.6					
Cornflakes	Po-210	No data								
	Th-228									
Edam cheese	Po-210	28	23	21	25	0.077	1.894	0.049	25	ash
	Th-228	-	-	4	58					
Honey	Po-210	No data								
	Th-228									
Jam	Po-210	No data								
	Th-228									
Milk	Po-210	No data								
	Th-228									
Orange juice	Po-210	No data								
	Th-228									
Ring Bologna	Po-210	-	-	73	5.4	0.087	2.500	0.076	28	ash
	Th-228	-	-	77	3.8					
Salami	Po-210	-	-		13	0.067	2.079	0.056	22	ash
	Th-228	26.1	7.5	59	3.6					
Water	Po-210	0.89	0.22	81	0.058	6.9 (80 g)	ev	ev	ev	ev
	Th-228									

+ : expanded uncertainty (coverage factor 2) calculated following GUM [16].

§ : detection limit and # : detection threshold were calculated following DIN ISO 11929 [17].

- : below detection limit. No data: not analyzed. n: not weighed.

§ : sample preparation method: ash = high temperature (>450°C) ash; fd = freeze-drying; ev = evaporation (105 – 120°C).

2.6.5 Minimum activity amount of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 ingested by each participant through diet

Activity amount of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 ingested by each participant thorough daily diet was calculated according to the analytical results. However, because the activity concentration was not determined for all samples, the values show minimum activities taken by the participants. The results are shown in **Table 2.6.7**.

Table 2.6.7 Minimum amount of ingested radioactivity through diet by each participant.

Worker 1							
	1st day	2nd day	3rd day	4th day	5th day	6th day	total
Ra-226 [mBq]	451	345	387	699	859	558	3299
Pb-210 [mBq]	15.7	0	15.7	0	15.7	0	47.1
Po-210 [mBq]	2.15	0.40	1.88	0.80	1.92	1.03	8.18
Ra-228 [mBq]	8.70	1.80	14.4	9.10	7.70	1.80	43.5
Th-228 [mBq]	3.32	3.12	7.00	1.56	3.32	5.77	24.1
total [mBq]	481	351	426	711	887	566	3422

Worker 2							
	1st day	2nd day	3rd day	4th day	5th day	6th day	total
Ra-226 [mBq]	247	15.2	1262	1026	366	351	3267
Pb-210 [mBq]	15.7	15.7	62.7	78.4	31.4	0	204
Po-210 [mBq]	3.00	2.10	6.18	7.87	3.26	1.20	23.6
Ra-228 [mBq]	38.6	15.4	4.80	36.3	26.6	16.4	138
Th-228 [mBq]	11.6	4.93	4.39	9.11	9.25	4.85	44.1
total [mBq]	316	53	1340	1158	437	373	3678

Worker 3							
	1st day	2nd day	3rd day	4th day	5th day	6th day	total
Ra-226 [mBq]	657	489	579	543	480	719	3467
Pb-210 [mBq]	31.4	47.0	31.4	31.4	31.4	47.0	220
Po-210 [mBq]	3.27	4.39	3.04	3.04	2.73	4.25	20.7
Ra-228 [mBq]	3.20	8.70	13.2	13.2	13.2	13.6	65.1
Th-228 [mBq]	2.20	17.1	4.44	16.0	3.11	6.69	49.6
total [mBq]	697	555	631	597	531	791	3802

Reference 1							
	1st day	2nd day	3rd day	4th day	5th day	6th day	total
Ra-226 [mBq]	223	615	738	477	415	415	2883
Pb-210 [mBq]	15.7	15.7	0	15.7	31.4	0	78.5
Po-210 [mBq]	4.42	5.90	4.34	4.11	3.58	1.30	23.7
Ra-228 [mBq]	42.0	24.0	28.6	9.20	6.00	1.60	111
Th-228 [mBq]	6.01	10.2	14.3	4.41	0.87	7.87	43.7
total [mBq]	291	670	785	510	456	426	3138

Reference 2							
	1st day	2nd day	3rd day	4th day	5th day	6th day	total
Ra-226 [mBq]	543	520	158	762	558	458	2999
Pb-210 [mBq]	0	0	0	0	0	0	0
Po-210 [mBq]	4.29	4.25	0.58	3.54	3.71	2.68	19.1
Ra-228 [mBq]	12.2	12.2	1.2	6.0	9.60	6.40	47.4
Th-228 [mBq]	6.63	8.88	5.22	11.5	10.5	9.19	52.0
total [mBq]	566	545	165	783	582	476	3117

Reference 3

	1 st day	2 nd day	3 rd day	4 th day	5 th day	6 th day	total
Ra-226 [mBq]	742	149	779	139	50	524	2384
Pb-210 [mBq]	3.36	31.4	22.6	0	78.4	0	136
Po-210 [mBq]	2.49	4.15	3.52	1.42	7.87	2.27	21.7
Ra-228 [mBq]	22.2	30.6	21.8	11.9	51.5	10.2	148
Th-228 [mBq]	3.55	6.22	3.55	1.12	11.0	2.25	27.7
total [mBq]	773	222	830	154	199	539	2717

Reference 4

	1 st day	2 nd day	3 rd day	4 th day	5 th day	6 th day	total
Ra-226 [mBq]	118	254	242	262	266	261	1402
Pb-210 [mBq]	31.4	19.7	15.7	15.7	627	627	1333
Po-210 [mBq]	3.80	3.89	3.32	3.43	47.31	47.0	109
Ra-228 [mBq]	30.3	20.6	18.0	18.6	15.4	19.3	122
Th-228 [mBq]	7.55	5.76	6.20	6.20	6.77	4.44	36.9
total [mBq]	191	300	285	305	963	959	3003

Reference 5

	1 st day	2 nd day	3 rd day	4 th day	5 th day	6 th day	total
Ra-226 [mBq]	822	681	725	717	881	575	4401
Pb-210 [mBq]	0	3.36	5.04	6.72	5.04	5.04	25.2
Po-210 [mBq]	3.75	3.88	3.07	3.16	2.31	1.29	17.5
Ra-228 [mBq]	27.7	18.7	19.3	14.2	10.40	5.8	96.1
Th-228 [mBq]	12.2	5.97	1.99	4.76	1.31	5.22	31.5
total [mBq]	896	712	755	745	900	592	4571

Reference 6

	1 st day	2 nd day	3 rd day	4 th day	5 th day	6 th day	total
Ra-226 [mBq]	726	350	394	576	74	58	2177
Pb-210 [mBq]	0	0	0	0	0	0	0
Po-210 [mBq]	2.50	1.02	0.58	0.76	0.58	1.56	7.00
Ra-228 [mBq]	7.00	4.60	2.60	3.40	2.60	7.00	27.2
Th-228 [mBq]	3.98	0	0	0	0	0	3.98
total [mBq]	740	355	397	580	76.8	66.4	2215

2.6.6 Radon-222 concentration in air surrounding the participants

Activity concentration of Rn-222 in air surrounding each participant was measured using radon measurement device developed by J. Irlinger et al. (AP 4.2). [10] The participants were equipped with that portable radon exposure meter during the program execution. The average values of Rn-222 concentration for each participant for each day and those of cleaning work period are shown in **Table 2.6.8**.

Table 2.6.8 Average activity concentration of Rn-222 and combined uncertainty (coverage factor: 2) for each participant and for each day, and those for workers during the time of cleaning work.

Day	W1 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	W2 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	W3 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	R1 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	R2 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	R3 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	R4 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	R5 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])	R6 [Bq·m ⁻³] (u _c [Bq·m ⁻³])
1	25 (21)	24 (26)	31 (24)	70 (26)	-	-	286 (35)	103 (25)	60 (28)
2	27 (21)	19 (26)	25 (24)	176 (37)	-	-	68 (23)	314 (40)	79 (28)
3	27 (21)	156 (32)	28 (24)	81 (26)	36 (19)	-	45 (22)	129 (29)	116 (30)
4	36 (21)	51 (27)	35 (25)	96 (31)	40 (10)	-	111 (28)	97 (26)	84 (30)
5	66 (23)	99 (29)	32 (25)	86 (28)	71 (12)	-	69 (23)	121 (27)	59 (28)
6	56 (22)	107 (30)	16 (24)	97(27)	36 (9)	-	143 30)	116 (29)	242 (37)
7	-	-	-	24 (25)	40 (11)	-	67 (23)	85 (24)	16 (26)
During the time of cleaning work									
3	311 (155)	1272 (343)	39 (124)						
4	224 (139)	195 (154)	128 (136)						
5	484 (188)	344 (177)	39 (134)						

W: worker, R: reference = office worker, u_c: combined uncertainty of the average value, -: no data

2.6.7 Effective dose assessment for workers and references/members of the public through diet and Rn-222 exposure

The committed effective doses (E) were individually calculated by taking into account the exposure scenarios of the investigated subjects and by using the age-dependent dose coefficients published by ICRP (ICRP 68, 1994; ICRP 72, 1996) [18, 19].

$$E = \int_{t=T_0}^{t=T_1} I(t) \times e(t) \times dt$$

where $I(t)$ is the age-dependent intake rate (Bq d^{-1}) by ingestion; $e(t)$ is the age-dependent dose coefficient (Sv Bq^{-1}) (ICRP 68; ICRP 72); T_0 is the begin of time for potential incorporations, and T_1 is end of time the effective doses are expected.

Before and after the program execution period, the age-dependent average daily intakes of the investigated radionuclides in German population were applied. The age-dependent average daily intakes of radionuclides were calculated by the daily consumption of foodstuffs and drinking water of German population (BMJ 2001) [20] and the radionuclide concentrations in foodstuffs and in drinking water in Germany (UNSCEAR Report 2000). If the consumption and concentration of investigated radionuclides in Germany are not available, the reference data for world population reported by UNSCEAR (UNSCEAR Report 2000) [21] were applied.

2.6.7.1 Effective doses by ingestion of foods and drinks for each participant

The committed effective doses by ingestion were estimated from the day of birth till the end of 2014 for each participant. Generally, the difference between the workers and the reference subject is very small. And inside each group, e.g. workers or reference subjects, the difference is small as well. This is because the committed effective doses are dominant by the average daily intakes of the German population, even though the intakes of radionuclides during the short investigation time (seven days) were somewhat different.

The results of the dose assessment through diet are shown in **Table 2.6.9**.

Table 2.6.9 Committed ingestion effective doses [Sv] of radionuclides to the participants through diet till the end of 2014.

	W1	W2	W3	R1	R2	R3	R4	R5	R6
Ra-226	1.1E-03	1.2E-03	1.1E-03	8.6E-04	8.4E-04	8.5E-04	8.5E-04	8.5E-04	8.8E-04
Pb-210	3.4E-03	3.6E-03	3.4E-03	2.4E-03	2.3E-03	2.4E-03	2.4E-03	2.3E-03	2.5E-03
Po-210	4.7E-03	5.2E-03	4.7E-03	3.1E-03	3.0E-03	3.1E-03	3.1E-03	3.0E-03	3.3E-03
Ra-228	1.7E-03	1.7E-03	1.7E-03	1.4E-03	1.4E-03	1.4E-03	1.4E-03	1.4E-03	1.4E-03
Th-228	8.1E-05	8.9E-05	8.1E-05	5.3E-05	5.1E-05	5.2E-05	5.2E-05	5.1E-05	5.6E-05

2.6.7.2 Radon-222 annual doses to the participants

The Rn-222 annual doses to the workers and the references were calculated by applying the measured average radon concentrations in this work package and the dose conversion factor of 9 nSv/(Bq·h·m⁻³), which is recommended by UNSCEAR (UNSCEAR Report 2000). The radon equilibrium factor of 0.4 indoor and occupancy factor of 0.8 were used. Furthermore, for the workers, the additional exposure to Rn-222 during the cleaning working period was estimated by assuming that the workers work under the measured average Rn-222 concentrations for one month (about 170 h working hours) per year. The uncertainties of the radon annual doses to the investigated subjects and the additional annual doses to the cleaning workers are calculated as well for indication of the natural uncertainties and variation of the radon concentration in the measurement and in the dose assessment of Rn-222.

The Rn-222 annual doses estimated for the workers and the references range from 0.3 to 3.5 mSv. Taking into account the large uncertainties in the measurement and estimation, these values are comparable to the average indoor radon dose, 0.9 mSv·a⁻¹ in Germany (BMUB 2014) [22]. Additional effective doses were estimated assuming that the workers work under the measured radon concentration in this study for one month in one year. The additional dose ranged from 0.04 to 0.4 mSv·a⁻¹, which might be received by the workers due to the working microenvironment. The results of doses assessment through Rn-222 exposure are shown in **Table 2.6.10**. The combined uncertainty was calculated as

$$y = \frac{1}{n}(x_1 + x_2 + \dots + x_n)$$

$$u_c = \frac{1}{n}\sqrt{u_1^2 + u_2^2 + \dots + u_n^2}$$

where y is average value of the analytical results, u_i : uncertainty of x_i , and n : number of analysis.

Table 2.6.10 Radon-222 annual doses [mSv·a⁻¹] estimated with the data obtained in this study.

	W1	W2	W3	R1	R2	R3	R4	R5	R6
Annual dose	1.00	1.91	0.70	2.27	1.12	-	2.84	3.47	2.36
u_c	0.22	0.29	0.25	0.27	0.14	-	0.25	0.28	0.27
Additional dose during cleaning work	0.208	0.369	0.042						
u_c	0.057	0.085	0.046						

u_c: combined uncertainty

2.6.8 Conclusions

In this project, we demonstrated and introduced a method for inhalation dose estimation for workers at geothermal plants during cleaning work of scale which contains NORM/TENORM. The work of project includes

- organization of participants, diet program, cleaning work, excretions collection, Rn-222 measurements, and analysis of radionuclides in foods, drinks, urine and feces.
- method validation of analysis of radionuclides in foods, drinks, urine and feces,
- assessment of minimum committed effective dose by ingestion through diet for the participants, and
- assessment of Rn-222 annual dose for the participants, and additional dose during the cleaning work.

As conclusions,

- Activity concentration of analyzed radionuclides in most foods was $< 500 \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ or L^{-1} . More than $1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ of Ra-226 was found only in butter roll and chocolate as $(3440 \pm 1650) \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ and $(3950 \pm 1820) \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively.
- Minimum total amounts of ingested radioactivity through 6-day diet by each participant range from 2200 to 4600 mBq.
- Differences of committed effective doses (CED) by ingestion estimated from the day of birth till the end of 2014 among participants are, however, very small. Thus, no remarkable difference of CED between the worker-group and the reference-group was observed.
- Rn-222 annual doses estimated for the workers and the references range from 0.3 to 3.5 mSv. Taking into account the large uncertainties in the measurement and estimation, these values are comparable to the average indoor radon dose, $0.9 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ in Germany (BMUB 2014) [22]. The additional dose ranged from 0.04 to $0.4 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$, which might be received by the workers due to the working micro-environment.

The presented model experiment can be expected to be applied for inhalation dose estimation for workers at real geothermal energy plants. The results obtained in this study indicate one of the examples for effective doses by Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 through diet, annual dose by Rn-222 exposure in the environment and additional annual dose by Rn-222 exposure due to cleaning work. Those data can be used for the final goal, namely, inhalation dose estimation for workers at geothermal energy plants together with the analytical results of excretions. This further study might be assigned in a future project.

2.6.9 References

- [1] Atomgesetz (AtG), Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit. www.bmub.bund.de/N2667/
- [2] <https://www.bdew.de/internet.nsf/id/energiemix-de>
- [3] Turcotte, D. L., Schubert, G. (2002), "4", *Geodynamics* (2nd ed.), Cambridge, England, UK: Cambridge University Press, pp. 136–137 (2002), ISBN 978-0-521-66624-4
- [4] Bou-Rabee, F., Al-Zamel, A. Z., Al-Fares, R. A., Bem, H. Technologically enhanced naturally occurring radioactive materials in the oil industry (TENORM). A review, NUKLEONIKA 54, 3-9 (2009).
- [5] Köhler, M. & Degering, D. Radiation protection for deep geothermal facilities. In: Proceedings of the Annual Conference 2010 of the Fachverband für Strahlenschutz e.v. Borkum. 153-158. FS-2010-153-T (2010).

- [6] Cuenot, N.; Goerke, X.; Guéry, B.; Bruzac, S.; Meneust, P.; Sontot, O.; Maquet, J. & Vidal, J. Evolution of the natural radioactivity within the Soultz geothermal installation. Soultz Geothermal Conference, October 5 & 6, (2011).
- [7] Papastefanou, C. Radioactivity in tobacco leaves. *Journal of Environmental Radioactivity* 53, 67-73 (2001).
- [8] Skwarzec, B., Ulatowski, D.I., Struminska, Borylo, A. Inhalation of ^{210}Po and ^{210}Pb from cigarette smoking in Poland. *Journal of Environmental Radioactivity* 57, 221–230 (2001).
- [9] Hamlat MS, Kadi H, Djeflal S, Brahimi H. Radon concentrations in Algerian oil and gas industry. *Appl Radiat Isot* 58,125–130 (2003).
- [10] Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., Thoron detection with an active Radon exposure meter—First results. *Review of Scientific Instruments*, 85, 022106 (2014).
- [11] Dieter A. Method Development and Validation for the Quantification of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in foods and drinking water. Dissertation (2015 in preparation)
- [12] Cutshall, N. H., Larsen, I. L., Olsen, C. R., Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: Self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 206, 309-312 (1983).
- [13] National Institute of Standards and Technology, Certificate, Standard Reference Material® 4359, Seaweed Radionuclide Standard. November 2005.
- [14] International Atomic Energy Agency, Reference Sheet, Certified Reference Material IAEA-447, Natural and artificial radionuclides in moss-soil. May 2011.
- [15] International Atomic Energy Agency, Reference Sheet, Certified Reference Material IAEA-414, Radionuclides in mixed fish from the Irish sea and North sea. October 2006.
- [16] International Organisation for Standardisation, Evaluation of measurement - Guide to the expression of uncertainty in Measurement. 1995.
- [17] DIN Deutsches Institut für Normung e.V., Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation - Fundamentals and applications (ISO 11929:2010). 2011.
- [18] ICRP 1994. Dose coefficients for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 68, Pergamon Press. Oxford.
- [19] ICRP 1996. Age-dependent doses to members of public from intake of radionuclides: Part 5 Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. ICRP Publication 72, Pergamon Press. Oxford.
- [20] BMJ 2001. Bundesgesetzblatt Teil I: Verordnung für die Umsetzung von EURATOM-Richtlinien zum Strahlenschutz, G 5702, Nr. 38, Bundesanzeiger, Bundesministerium der Justiz. Bonn.
- [21] UNSCEAR 2000. Sources and effects of ionizing radiation: 2000 report to the General Assembly, with scientific annexes, Vol 1, Annex B. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York.
- [22] BMUB 2014. Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2012. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit. Accessed 2.04.2015, https://doris.bfs.de/jspui/bitstream/urn:nbn:de:0221-2014040311384/1/Parlamentsbericht_2012.pdf

2.7 Arbeitspaket 4.2: Entwicklung von aktiven Detektoren zur Bestimmung individueller Radon- und Thoronexpositionen

J. Irlinger, W. Rühm, Institut für Strahlenschutz

2.7.1. Introduction

The human organism is exposed to ionizing radiation from natural and artificial sources throughout the entire life span. Using this distinction, for the majority of the population the natural exposure exceeds that from man-made sources. The main contributors to natural radiation exposure are high-energy cosmic radiation and radioactive nuclides emanating from the earth's crust [1]. The principal source for radiation exposure of the inner body originates from the ubiquitous, radioactive and inert noble gas radon. The radioisotope Rn-222 (in the following called radon) is a decay product of the naturally occurring primordial isotope U-238. The radon progeny have been identified to increase the excess relative risk for lung cancer [1], [2] and are, after smoking, the main cause responsible for that disease [3]. This was, amongst others, deduced from epidemiological studies, in which the radon concentration at homes [1], [4] and in uranium mines [5], [6] had been correlated to increased lung cancer rates. It is noted, however, that indoor epidemiological studies are necessarily based on retrospective dose estimation of lung-cancer diseased persons. The data were derived from measurements of Rn-222 activity concentrations in the air of sleeping and living rooms. Accordingly, a persons' mobility was not taken into account, which can influence the persons' exposure to radon considerably, thus adding to the uncertainty in the deduced excess risk estimates.

In order to quantify the radon exposure of an individual, a portable electronic radon exposure meter has been developed at the Helmholtz Zentrum München (HMGU) [7]. This device allows for a realistic and on-line evaluation of a persons' radon exposure and, consequently, allows prevention against high exposure when constantly worn. But despite these efforts to determine the health risk of radon exposure, the effects of the decay products of another radon isotope, Rn-220, commonly called thoron, have not yet been adequately taken into account. Thoron is considered to contribute about 4% to the annual effective dose of natural radiation [8], and cannot be neglected [9], [10]. In fact, worldwide studies suggest that under certain conditions, the annual effective lung dose of thoron can exceed that of radon [11]–[14]. In contrast to radon, the gas concentration of the short lived Rn-220 isotope (half-life 55.6 s) is difficult to measure and advanced methods have to be applied [15]. It also has been pointed out, that passive sampling radon monitors are also sensitive to thoron exposure, thus overestimating the radon exposure [16]–[18] at times considerably. In order to address the mentioned issues, recent developments already combine radon and thoron gas measurements [19], [20]. However, most devices are not designed as personal exposure monitors, or do not allow on-line evaluation, and thus cannot help to prevent exposure.

In this work a radon/thoron monitor was developed, allowing simultaneous measurements of the activity concentrations of Rn-222 and Rn-220. It is based on the previously developed radon exposimeter prototype, and features small size, low weight and minimal power

consumption. The successive steps for its usage as a radon/thoron on-line monitor were improving its sensitivity for radon via new detectors and amplifier design, followed by the implementation of an alpha-particle-spectrometer, realized by a new embedded digital circuit design. The development was facilitated by use of electronic design automation software, granting the optimization and complete modeling via SPICE simulations of the employed components.

A new diffusion chamber design was established for which several filter materials were investigated, to identify the most suitable material for fast thoron diffusion into the measurement volume. An approach based on the necessity for a high thoron sensitivity of the device. Additionally, any progeny must be kept out of the diffusion chamber by the filter element. The new device was calibrated in high radon and thoron concentrations within a closed chamber, where the variation of the Rn-220 calibration factor was intensively studied. The accuracy of the device was validated by participating in an international intercomparison measurement campaign. An evaluation method based on the recently released ISO 11665 standard for measurement of radioactivity in the environment [21] was developed and verified by comparison measurements in mixed radon and thoron gas environments. Decision threshold and detection limit were evaluated based on background count rates and calibration factors [22]. Further, simulation programs were developed to study the effects of environmental parameters such as humidity, temperature and pressure as well as diffusion chamber size on the calibration factors. These programs are employing Monte Carlo methods and are based on an analytic and on the Geant4 transportation code. The alpha particle spectroscopy newly implemented in the device as part of this theses, offered the unique opportunity to explicitly study and compare the change of the spectral shape of the measured signal due to different measurement conditions, with the results of the developed simulations. In addition, the simulations were validated by intercomparison of transportation codes, own measurement results and findings reported in literature.

2.7.2. Theory on Radon

Only a few years after the discovery of radioactivity in the early 1900 Ernest Rutherford observed apart from the ionizing radiation from alpha and beta decay an additional ionizing gas diffusing from thorium compounds [23], which was called thoron. In the same year Fritz Dorn found a similar radioactive gas emanating from radium salts to which was referred as radon [24]. Nowadays it is known that both are isotopes of the same element, where radon generally refers to Rn-222 while Rn-220 is commonly nominated as thoron. Another isotope is Rn-219 actinon and all are the respective products of the three radioactive decay chains of uranium, thorium and actinium occurring in nature [25]. In this chapter some physical aspects of Rn-222 and Rn-220 are described.

2.7.2.1. Appearance and origin

Rn-222 and Rn-220 are color- and odorless, chemically inert noble gases with no stable isotopic form. Both are naturally occurring and originate from radium and thorium present in rock and soil. These two long lived mother nuclides are ubiquitous with a concentration of Th-232 in the earth crust which is about 4 times larger than that of U-238 equal to 2.7 mg/kg

[26]. Due to the abundance of uranium and Rn-222's long half-life of 3.8 days it has the highest activity concentration of the three stated isotopes in air and is widely distributed. It therefore contributes the major part to the human natural exposure. Additionally the short lived (55.6 s) Rn-220, which to most parts already decays in the earth before emanating to the atmosphere, can still significantly contribute to the radiation exposures in homes and even exceed the contribution of Rn-222. On the other hand actinon is because of the lack of its natural parent U-235 and its short half-life (3.96 s) not available in notable concentrations in the air and hence of no interest to radiation protection.

2.7.2.2. Radon, Thoron and progenies

The three main transport mechanisms important for Rn-222 migration are transport from solid to either gas or liquid in porous spaces, molecular diffusion in the material or convection flow in gas or liquid [27].

The process of gaseous Rn-222 transport from the solid is called emanation, where the emanation coefficient is defined as ratio of atoms which escaped the solid over the ones produced in the material. Hence the emanation rate is dependent on the soil composition, humidity and porosity. Thus the ground Rn-222 and Rn-220 gas concentrations are depending on the soil's uranium and thorium concentration and the emanation rate. Due to this geogenic dependence there is a large variation in ground Rn-222 gas concentrations, for example in Germany in the domain of 10-500 kBq/m³ [28], but generally speaking in areas with high ground concentrations a higher indoor concentration is to be expected [29], [30].

Isotopes of Rn-222 and Rn-220 progenies are heavy metals such as polonium, lead, bismuth and thallium as shown in the decay chain in **Figure 2.7.2** and **Figure 2.7.4**. They share similar chemical and aerodynamically properties if belonging to the same element or sharing alike atomic mass. Normally when of airborne origin these progeny are positive ionized due to recoil or the interaction of the alpha particles with the electronic shell [31]. Such ions are quickly adsorbed by water molecules or trace gases, shaping into clusters with diameters between 0.3 to 4 nm, denoted as unattached fraction f_p [32].

These clusters are highly reactive and shortly deposit on aerosol or dust particles in the environment, where the rate depends on the aerosol size distribution and their density in air [33]. The size diameter of this attached fraction is approximately equal for progenies of both decay series [34] and was found to be in range of 20-3000 nm [35] in real indoor environments. These properties influence the effective dose which a person receives.

2.7.2.2.1. Radon decay chain

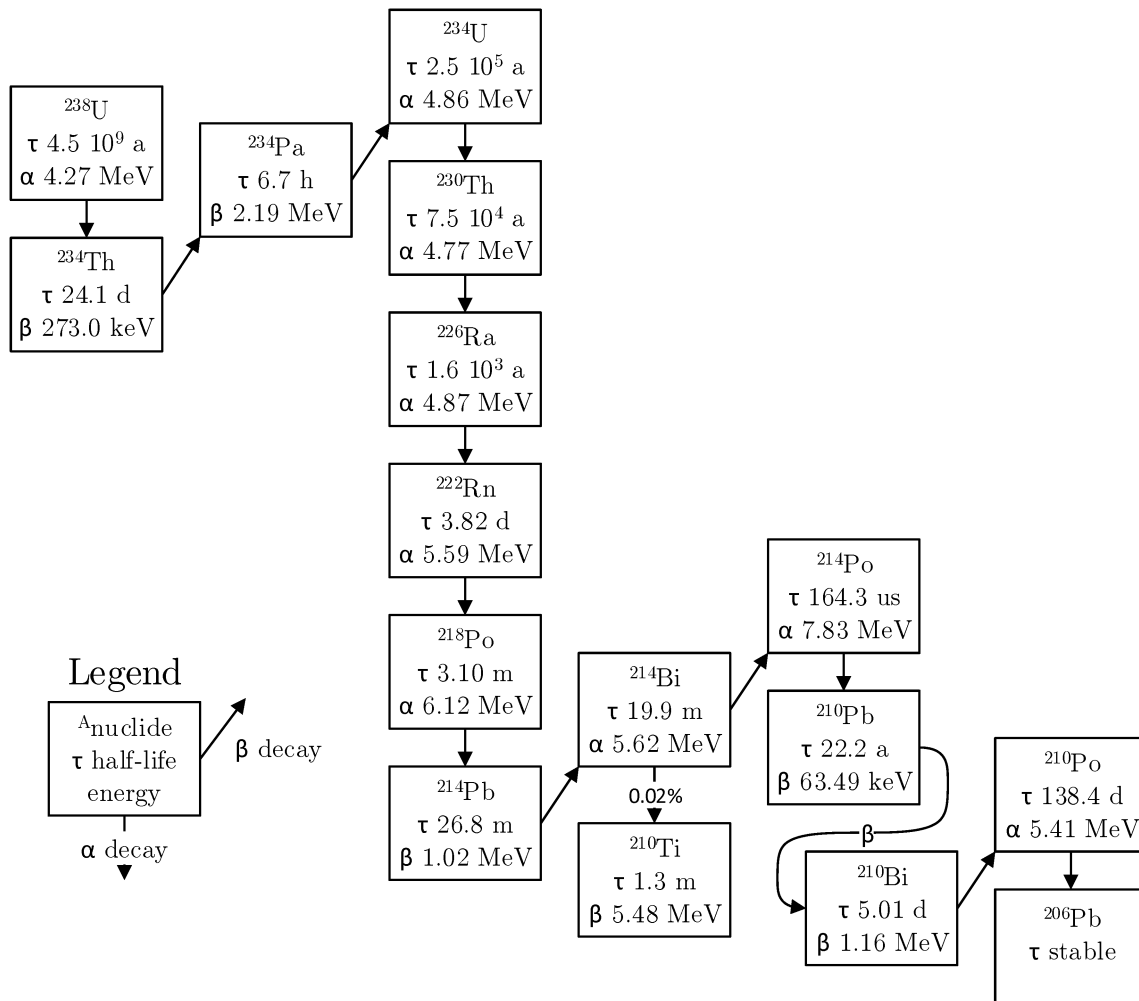


Figure 2.7.1: Simplified U-238 decay series, including radon Rn-222 and its progenies. Only the major decay branches with the respective decay modes, energies and half-lives are shown.

All Rn-222 isotopes are radioactive and disintegrate either by alpha or beta particle decay, where the decay rate is characterized by the half-life, which defines the period after which only half of the initial quantity of radioactive atoms is still present. The stochastic process of radioactive decay is regarded as Poisson distributed [36] and is described by:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t) \quad (2.7-1)$$

where N is the time dependent number of atoms, t the time and λ the decay constant which equals $\ln(2)/t_{1/2}$ by definition. To this quantity one also refers as activity $A=\lambda N(t)$ generally stated in the unit of Becquerel, which are decays per second ($\text{Bq}=1/\text{s}$). Equation (2.7-1) can be used to relate the radioactive growth and decay of successive nuclides such as depicted in. Here it is done exemplary for $\text{Ra-226} \rightarrow \text{Rn-222} \rightarrow \text{Po-218} \rightarrow \text{Pb-214} \rightarrow \text{Bi-214} \rightarrow \text{Po-214}$ which are described by a set of coupled differential equations, where N and λ_j refer to the number of atoms and decay constant of the respective atom in the subscript. It is assumed here

that there is a radium source term and zero concentration of its daughters at $t=0$. The solution the differential equations is rather lengthy but a general equation for this kind of problem was found by Bateman [37]:

$$N_n(t) = \prod_{j=0}^{j=n-1} \lambda_j \sum_{i=1}^n \sum_{j=i}^n \frac{N_i(0)e^{-\lambda_j t}}{\prod_{p=i,p \neq i}^n (\lambda_p - \lambda_j)} \quad (2.7-2)$$

which also can be expanded with daughter source terms and decay branches [38], which are in this case however of no interest. Equation (2.7-2) can be implemented into a computer program but if $\lambda_p \lambda_j$, isotope pair cancellation can lead to computational errors.

The solution to Equation (2.7-1) is $N(t)=N_0 e^{-\lambda t}$, with N_0 being the initial number of atoms. Hence the relative activity for a single radionuclide behaves in an exponential way, i.e. after a period of six half-life's either a 98% relative activity is reached or atoms have decayed from the initial amount N_0 . After eleven half-lives the activity is at a total of 100% with 1% accuracy.

Equation (2.7-2) has been implemented in a Mathematica program and solved numerically in order to plot the individual activities under the assumption of a constant Rn-222 source, with a value of $N_0=(\ln(2)/\lambda)^{-1}$. Each solution of the equations is then multiplied by its corresponding decay constant yielding the respective activity. **Figure 2.7.2** demonstrates that the progeny enter a so called secular equilibrium, which occurs if the half-life of the mother nuclide is much larger than that of their daughters [39]. Here after 4 hours the equilibrium for all depicted progenies is reached and beyond this point all have the same decay rate, i.e. at this time the activity of the short lived decay products and Rn-222 are the same. It can also be seen in Figure 2.7.2 that the activity of Po-218 increases rapidly as it is the case in a closed vessel or in a building subjected to Rn-222 entry. Within 10 minutes almost 90% equilibrium between radon and its first decay product is reached. Next the Rn-220 decay series is discussed.

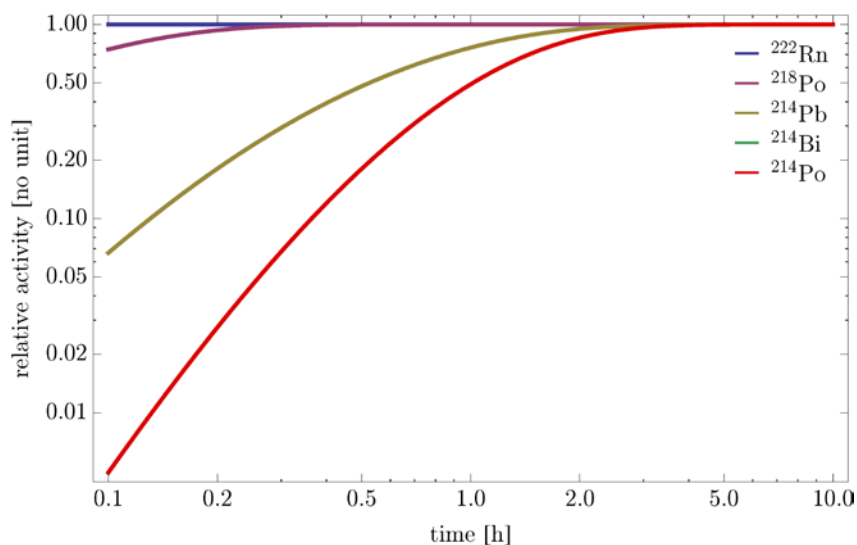


Figure 2.7.2: Relative activities of Rn-222 and its immediate progenies. Here it is assumed that only Rn-222 is present initially and is also constant. Lines of bismuth and polonium overlap due to the short half-life of Po-214.

2.7.2.2.2. Thoron decay chain

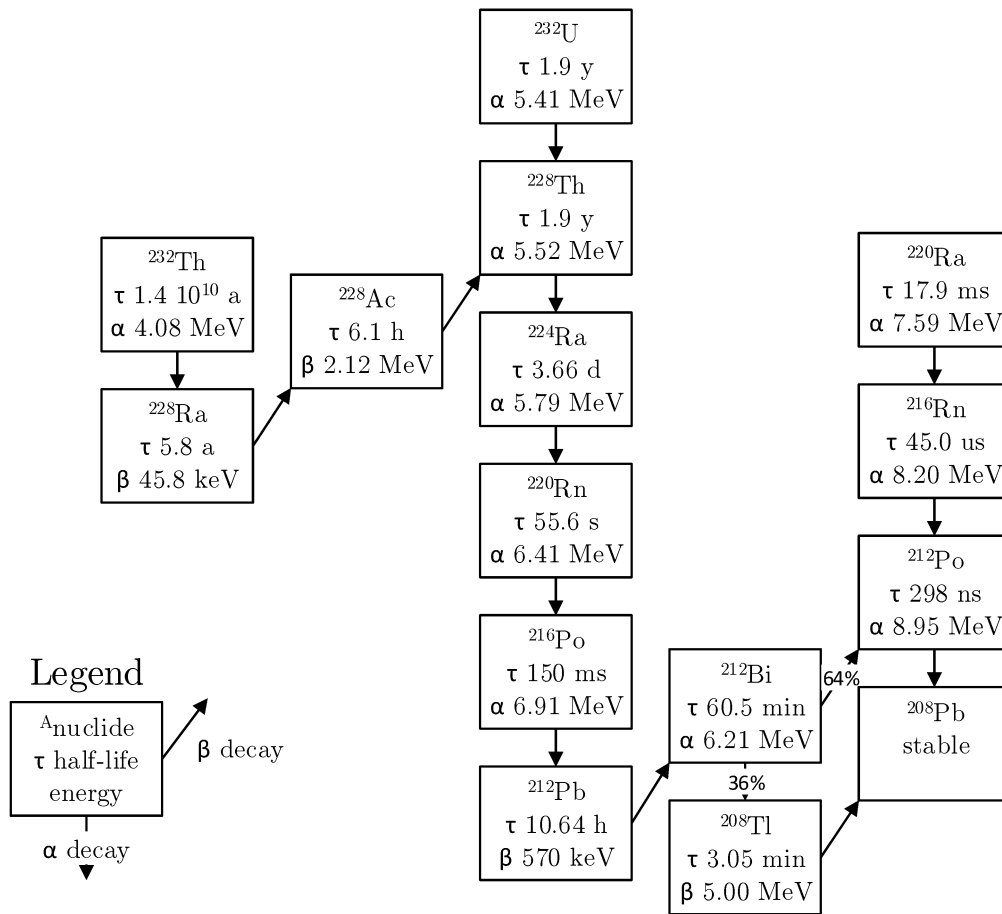


Figure 2.7.3: Part of the thorium Th-232 decay series immediately preceding and following Rn-220, also showing rounded half-lives, alpha and beta particle decays.

The Rn-220 thoron decay chain can be seen in **Figure 2.7.3** and decay parameters of both isotopes can also be found in literature. The activity can be again modeled by Formula (2.7-2), with the assumption of zero concentration at start for all elements except Ra-224.

One has to take into account the branching of Bi-212 into two nuclides with different alpha-particle decay energies. The resulting equations were also solved in Mathematica and plotted in **Figure 2.7.4**. Rn-220 is assumed to be at a constant level here and its first daughter, polonium, is in equilibrium in about one second, hence both lines overlap in drawing **Figure 2.7.4**. Under such conditions a secular equilibrium is reached in about 60 hours after starting a measurement. However in real indoor environments such equilibrium conditions are hardly achieved since the airborne decay products concentrations are influenced by indoor aerosol concentrations, ventilation and entry rates. However after the gas diffused into the measurement chamber of an Rn-222/Rn-220 monitor the influence is eliminated and build up is exactly as described. The basic principles of diffusion are discussed next.

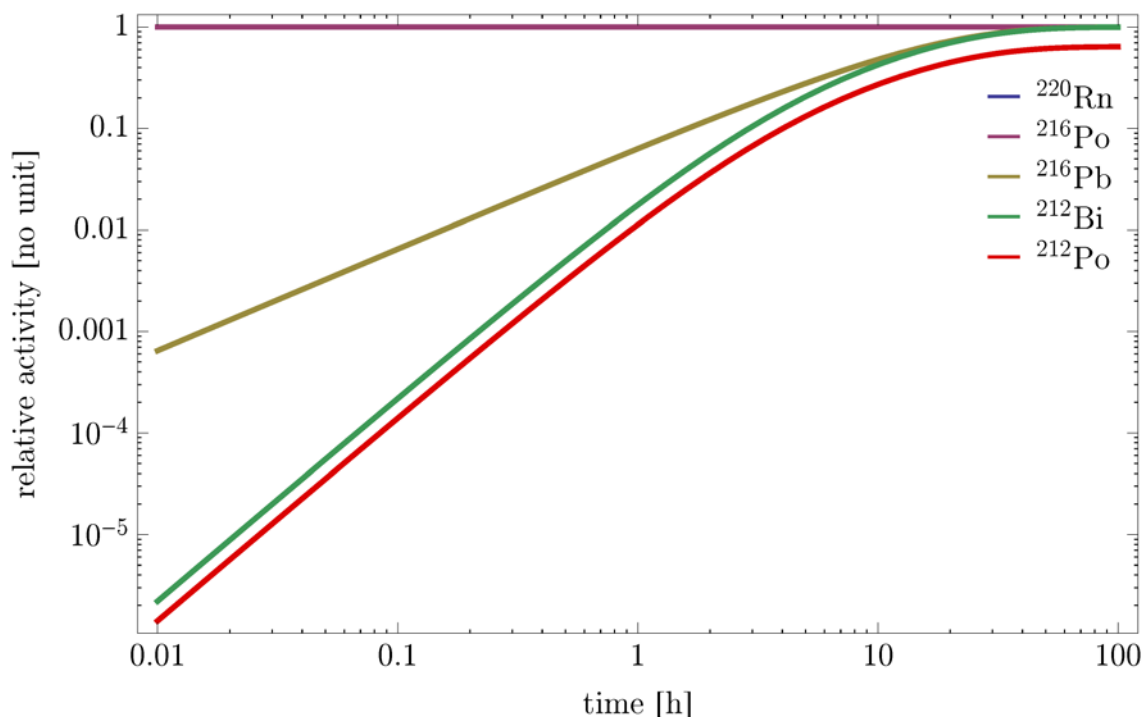


Figure 2.7.4: Relative activities of Rn-220 and its immediate progenies. Here it is assumed that only thoron is present initially and at a constant level. Lines of thoron and polonium overlap due to the short half-life of Po-216.

2.7.2.3. Radon transport

The main ways for Rn-222 to enter a dwelling are by soil-gas or water-gas emanation, flow transport through cracks and joints in places such as basements driven by pressure differences caused by convection currents, the influence of outdoor wind and of course diffusion, which is the migration of the gas relative to a solid, liquid or gas. It is the dominant transport mechanism [40], [41] by which Rn-222 gas migrates through an intact media. Therefore basements often are observed to have high average Rn-222 concentration which then decreases significantly with the floor levels [42]. Also since the Rn-222 flow into an enclosure is influenced by a pressure gradient between in- and outdoors, for example arising through a temperature gradient due to indoor heating or also wind, one can typically notice seasonal changes in the indoor concentrations. The main transport mechanism of Rn-222 into an exposure monitor is however by diffusion.

In a microscopic view the Rn-222 transport can be described as a diffusion process obeying the standard Fick's laws, where the flux is proportional to the concentration gradient [43]. Of course gas diffusion is fastest in other gases as compared to diffusion in liquids or solids, where the diffusion coefficient is several order of magnitudes smaller.

2.7.2.3.1. Diffusion at thin barriers

One important aspect of diffusion chamber based devices to consider is its applied filter. It influences the time dependence of the Rn-222 concentration build up in the measurement chamber as well as how much Rn-220 is able to enter it. The time dependence is described by Fick's second law and taking into account the decay law (Eq. (2.7-1)) which leads to [44],

$$\frac{\delta C(\vec{x}, t)}{\delta t} = D \nabla^2 C(\vec{x}, t) - \lambda C(\vec{x}, t) \quad (2.7-3)$$

with λ being the decay constant, D the diffusion coefficient and C the activity concentration. If one considers Cartesian coordinates with x,y being the floor plane vectors and z being the height, diffusion along x and y axes is negligible as it does not change concentration along the chamber height, where the inlets are located. Thus considering diffusion only along the z-axis and using the finite element method Equation (2.7-3) can be rewritten to [45]:

$$\frac{\delta C(z, t)_{in}}{\delta t} = -\lambda C(z, t)_{in} + \gamma [C(z, t)_{in} - C(z, t)_{out}] \quad (2.7-4)$$

where $C(z, t)_{in}$ is the concentration inside the measurement chamber, $C(z, t)_{out}$ the outside concentration at the filter surface and γ the air exchange rate (time^{-1}),

$$\gamma = \frac{DA}{\Delta x V} \quad (2.7-5)$$

with A being the effective area of the membrane, Δx the thickness of the filter, and V the interior volume of the monitor.

The one dimensional state Equation (2.7-4) can either be solved numerically [46] or analytically when $\delta C(z, t)_{in}/\delta t=0$, i.e. if the exposure time is long enough $t \gg (\gamma + \lambda)^{-1}$ [19] and a steady state equilibrium is achieved. This can only be reached by a stable Rn-222 concentration and distribution within the measurement chamber. Then the ratio R of the concentration inside to outside the monitor is given by an dimensionless ratio, also called infiltration rate [47], is in the range from 0 to 1, where 0 indicates no diffusion into the chamber, while 1 is the ideal case with no concentration difference. The higher R the better is the sensitivity of the device for Rn-220. Thus according to Equation (2.7-5) the sensitivity of a monitor from a diffusion viewpoint mainly depends on the diffusion constant and thickness of the filter, the area of inlets on the device and its volume. The diffusion process of Rn-222 and Rn-220 in a filter is exactly similar as the diffusion coefficient of atoms or molecules in porous media is proportional to $M^{1/2}$, with M being the mass of the atom or molecule [48], [49].

2.7.2.3.2. Diffusion in media

The Rn-222 gas distribution in indoor air can be described by the mass balance model [50], [51], which is however not applicable to Rn-220 due to its short half-life. Instead for thoron also diffusion has to be considered and its spacial distribution can be described by introducing an effective diffusion coefficient [52], which expresses the diffusion in a room macroscopically. Solving Equation (2.7-4) with the appropriated boundary conditions the concentration C(z) versus the distance z from the emanating surface is then given by [53],

$$C(z) = C_0 e^{-z/L} \quad (2.7-6)$$

where C_0 is the concentration at zero distance from the wall, i.e. the maximum Rn-220 concentration at the entry. The parameter $L=(D/\lambda)^{1/2}$ is the so called diffusion length, which is

the characteristic distance traversed by Rn-222 or Rn-220 atoms during one half-life. In Table 2.7.1 some diffusion coefficients and diffusion lengths for radon and thoron are given for typical materials.

Table 2.7.1: Typical diffusion coefficients

Medium	Diffusion coefficient m ² /s	Diffusion length		Reference
		Rn-222	Rn-220	
Air	9,98×10 ⁻⁶	2,18 m	2,83 cm	[54]
Soil	3,16×10 ⁻⁶	1,23 m	1,59 cm	[40]
Coarse sand	4,37×10 ⁻⁶	1,44 n	1,87 cm	[54]
Concrete	4,30×10 ⁻⁸	0,14 m	1,86 mm	[55]
Polyethylene	4,10×10 ⁻¹²	1,40 mm	18,1 μm	[56]

Values in **Table 2.7.1** are valid for stagnant conditions where other transport processes such as advection can be neglected. In that case a large spread for the permeability of the materials for Rn-222 is notable. Concrete has the smallest diffusion coefficient as compared to other building materials such as sand or soil. In general the Rn-222 diffusion through soil and sand reduces with decrease in their grain size [40], [54], due to increased packing density. The high density polyethylene membrane shows the best capability for Rn-222 mitigation by blocking its entry. Such types of foils can be used to seal basements of houses to reduce Rn-222 gas concentration in the building. It has to be noted that other publications have found diffusion lengths for Rn-220 to be in the range of 3.0-3.5 cm [53], [57] and about 2.4 m for radon [27], however these are within the error boundaries of the values in **Table 2.7.1**.

2.7.2.4. Indoor Radon occurrence

Only recently the Joint Research Centre (JRC) of the European Commission (EC) started collecting data for indoor Rn-222 concentrations (IRC). The goal is a European Atlas of Natural Radiation, not limited only to Rn-222, with the main objective to inform the public of its natural radioactive environment [58]. Though most European National Authorities agreed to contribute to a European map for IRC there are many challenges to be solved as type and number of available data varies significantly. While some countries introduced Rn-222 monitoring programs decades ago and already finished them, others, such as Germany, have not even started yet. So for example in Sweden about 500,000 dwellings were already monitored compared to Germany with less than 50,000, pooled together from individual studies. Nevertheless most European countries provide an estimated annual mean level for IRC which varies from 20-140 Bq m³ [59]. Even though the representation of Rn-222 levels in form of a map greatly helps to identify areas that are prone to Rn-222, one has to keep in mind that there may be huge variations even at a certain location. The individual IRC of a dwelling is influenced by a great number of variables such as type of building and foundation, year of construction, floor level, outdoor temperature [60] and living habits of the inhabitants, just to name a few.

2.7.2.4.1. Concentration in German homes

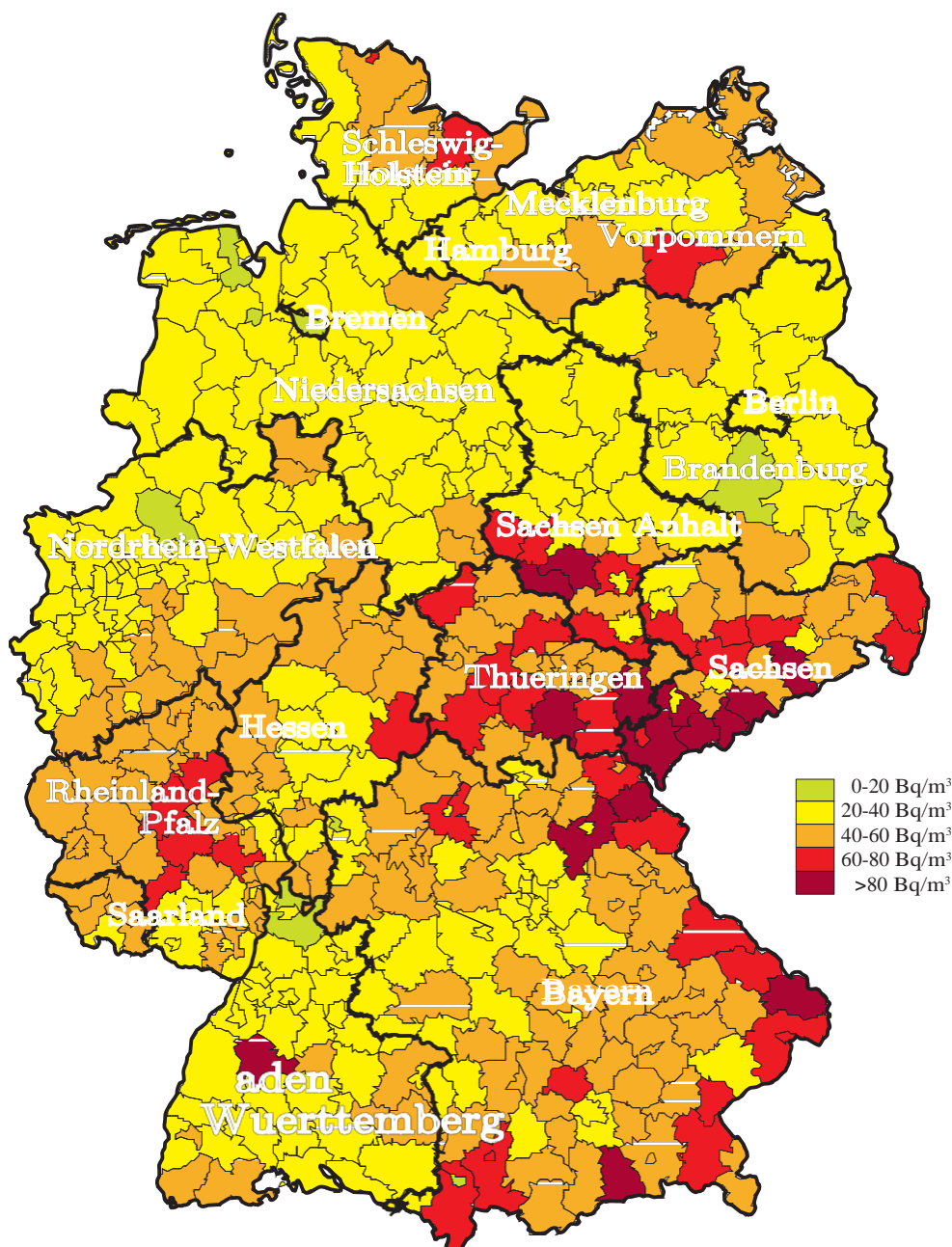


Figure 2.7.5: Average Rn-222 concentration in dwellings in the Federal Republic of Germany [61] adapted from [62].

In **Figure 2.7.5** the distribution of IRC in German dwellings is illustrated. It is based on about 75000 Rn-222 readings in approximately 28000 residences [63]. Each individual Rn-222 measurement was weighted according to the corresponding measurement interval and corrected for seasonal variations. In areas in which the number of available measurements was too low the data-set was increased by adding random concentrations of dwellings with similar soil-gas concentrations, leading to a total number of about 32000 habitats. In the areas Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern, Sachsen-Anhalt and Schleswig-Holstein the number of measurements was still too small so no regional conclusion could be drawn.

However, when taking into account the number of residence in the respective area, the construction time and floor levels of the buildings, an arithmetic mean of 49 Bq/m^3 for Germany could be estimated. At this IRC level about 1900 deaths per year due to lung cancer, or about 5% of the all annual deaths connected to former, may be attributed to Rn-222 in Germany [61].

2.7.2.4.2. Indoor distribution

In early discussions generally a homogeneous gas distribution of indoor Rn-222 and Rn-220, as well as of their progenies, in a room by complete mixing was assumed [50]. This hypothesis relies on the transport mechanism of advection, i.e. air currents caused by temperature gradients in a room by either heating or cooling. A critical review of the refined Porstendörfer model [51] for indoor Rn-222 levels showed that it quite accurately predicts equilibrium factors and unattached fractions (f_p) [64]. The main physical processes involved in that model are radioactive decay, attachment of nuclides to aerosols, or recoil from aerosols through decay, deposition on surfaces, for the unattached progeny the so called plate-out and removal by ventilation. Such a model, however, is not necessarily true, especially for the short-lived Rn-220, in rooms with a spatially inhomogeneous radioactive source. However, considering the large diffusion length of Rn-222, an almost homogenous indoor distribution of Rn-222 and its progeny can be in most of the cases reached. Detailed simulations concerning that matter show a maximum 11% deviation in the room center compared to the concentration close to the source in the walls, under the assumption of moderate ventilation [65]. This implies that the only condition for placing a Rn-222 monitor in a room should be that it is not close to a sink such as a window or door as this could bias the measurement towards lower exposure levels. For Rn-220, however, the gas concentration behaves differently as discussed in the next section.

2.7.2.5. Thoron occurrence

Very little is known about the concentration distribution of indoor Rn-220 levels compared to those for Rn-222. This can be attributed to mainly two effects, which both originate from the short half-life of Rn-220. On one hand thoron gas is difficult to measure and devices for that purpose are therefore hard to calibrate, and on the other hand, due to its short diffusion length (see **Table 2.7.1**), the origin of Rn-220 in the atmosphere is almost entirely limited to sources in the top few centimeters of soil or building material. Also early estimates indicated that under typical atmospheric conditions the potential alpha particle energy concentration (PAEC) from Rn-220 progenies would only deliver one tenth of the dose to the lung compared to an equivalent PAEC of Rn-222 [66]. Thus exposure due to Rn-220 seemed negligible and hence no epidemiological data to that subject exists [10], although it was already pointed out earlier that the role of Rn-220 as an air pollutant needs to be investigated [67]. Still only scarce data is available for European indoor thoron concentrations [9], mostly due to the lack of cost effective Rn-220 progeny measurement equipment. Only recently the topic again gained momentum when several studies in different parts of the world discovered increased thoron concentrations [12]–[14], [68]. For example the year 2000 Chinese study investigated mainly cave dwellings and adobe brick houses showing a significant Rn-220 influence on the total annual effective dose with a Rn-220 contribution of 1.7 mSv/y and $4.8\text{--}14.4 \text{ mSv/y}$ respectively, highly exceeding the dose rates of Rn-222 from 1.0 mSv/y to 2.3

mSv/y [68]. Similar results were obtained for India where the highest Rn-220 concentrations were found in dwellings with mud floors [12], with mean Rn-220 concentrations of 143 ± 83 Bq m³. These findings are not exclusively limited to developing countries, since for example also in Europe one can find dwellings (7-14% of investigated houses) in which exposure due to Rn-220 exceeds that of Rn-222 [14]. Therefore, indoor Rn-220 progeny doses are not always of negligible radiological importance.

These results also led to the development of mathematical models which allow assessment of the annual effective dose due to Rn-220 in certain mud building types [69]. Key factors which influence the indoor Rn-220 concentration are the air exchange rate, the aerosol concentration, the specific Th-232 activity, Rn-220 emanation rates plus the room dimensions and material properties. Also in Germany the Rn-220 issue is again a topic as discussed in the next section.

2.7.2.5.1. Concentration in German homes

Already in the early 1980's a survey in 150 dwellings and 100 outdoor areas took place acquiring the indoor Rn-222 and Rn-220 progeny concentrations as well as Rn-222 gas concentrations [70]. The Rn-222 activity concentration was found to have a median value of 26.0 Bq/m³, while median PAEC value for its daughters was 1.7×10^{-3} W.L., which equals an EEC of 3.4 Bq/m³. For Rn-220 the median PAEC value was determined to be 0.9×10^{-3} W.L., corresponding to an ECC of 0.5 Bq/m³. The outdoor concentration was found to be lower by a factor of 3-4. In conclusion the study showed that the Rn-220 progeny concentration is only about 14% of that of Rn-222. However, the study did not take into account the building materials used. More recent studies considering very common adobe houses in Germany show that Rn-220 progeny concentrations range between 2-10 Bq/m³ [71]. Accordingly the resulting annual effective dose of 0.6-4.0 mSv/a due to Rn-220 can exceed that of Rn-222 for such types of houses, meaning that Rn-220 is an issue for radiation protection and thus needs to be accounted for in further studies.

2.7.2.5.2. Indoor distribution

Large-scale studies with passive detectors as conducted for Rn-222 gas concentration are not so easily applicable for Rn-220. The main issue here is the inhomogeneous Rn-220 gas distribution in a room. Simulations and measurements show [65], [72] that the Rn-220 gas concentration decreases exponentially with distance from the source walls (Equation (2.7-4)). This originates from the short half-life of Rn-220 as it shares the same transport processes as Rn-222. For Rn-220 complete mixing can only be achieved by unrealistically high ventilation rates (60 h^{-1} [73]), meaning that Rn-220 is generally in an incomplete mixing state. Therefore, due to the inhomogeneity of Rn-220 gas, its first decay product and the unattached fraction of the following bismuth and lead isotopes are also not evenly spread in a room [74]. However, if Rn-220 emanates from all room walls, the attached fraction of Pb-212 is distributed homogeneously, as demonstrated by measurements and simulations [72]. All these effects have to be taken into account when using devices for indoor Rn-220 concentration measurements.

2.7.2.6. Exposure to dose conversion

In order to be able to compare health effects due to Rn-222 exposure with other sources of radiation, the International Commission on Radiological Protection (ICRP) introduced the dose conversion convention [75], which allows calculation of the effective dose from an exposure. For this several quantities were introduced with the most important ones being discussed in the following.

2.7.2.6.1. Potential alpha energy concentration

The potential alpha energy (PAE) E_{pj} is the sum of alpha energies emitted by an atom decaying through its entire radioactive series, for Rn-222 or Rn-220 for example up to Pb-210 or Pb-208. It describes the energy which could be potentially released in the lung if an atom experienced all decays there. The PAE of all nuclei of a nuclide j with decay constant λ_j and activity A_j is therefore $A_j \times E_{pj} / \lambda_j$.

The potential alpha energy concentration (PAEC) C_p is defined as the sum of the PAE of all daughter nuclides present per volume of air [34]:

$$C_p = \sum_j C_{pj} = \sum_j C_j E_{pj} / \lambda_j \quad (2.7-7)$$

where C_j (Bq/m^3) is the activity concentration of the corresponding decay product. The unit commonly used for the PAEC is (J/m^3) in the SI-system. An older unit still often encountered is the working level [WL] which can be converted via factor $2.08 \times 10^{-5} \text{ J/m}^3$.

2.7.2.6.2. Equilibrium-equivalent concentration

The equilibrium-equivalent concentration (EEC) equals an Rn-222 concentration which is in equilibrium with its daughters and which has the same PAEC as a non-equilibrium mixture. Only alpha decays are considered, because other decays are radio-biologically less important. This then leads by definition to the following relation [34]:

$$C_{eq} = \sum_j k_{pj} C_j \text{ with } k_{pj} = \frac{E_{pj}}{\lambda_j} / \sum_j \frac{E_{pj}}{\lambda_j} \quad (2.7-8)$$

Its unit is also Bq/m^3 and the EEC is used to calculate the accumulated exposure and convert that to an effective dose.

For Rn-222, Rn-220 and their short-lived daughters Equation (2.7-8) transforms to:

$$\begin{aligned} C_{eq,Rn} &= 0.105 C_{218Po} + 0.516 C_{214Pb} + 0.379 C_{214Bi} \\ C_{eq,Tn} &= 0.913 C_{212Pb} + 0.087 C_{212Bi} \end{aligned} \quad (2.7-9)$$

where C_j (Bq/m^3) are the individual progeny concentrations in air. There are other individual factors for the progenies PAE which are not shown, however, only those given in Equation (2.7-9) are relevant for dose estimation. In the case when only gas measurements are available, the EEC can be calculated via the equilibrium factor, as discussed next.

2.7.2.6.3. Equilibrium factor F

The equilibrium factor describes the disequilibrium between the progeny mixture and the mother nuclide with respect to PAE. It is defined as the ratio between EEC (C_{eq}) to the activity concentration of its parent in air C_0 [75].

Measurements of the equilibrium factor for indoor Rn-222 yield a range from 0.1 to 0.9 but for most cases it is possible to use an equilibrium factor of 0.4 [75]–[77]. In mines without diesel engines polluting the air a factor of 0.2 is recommended [78]. For Rn-220 the determination of the equilibrium factor is much more difficult, due to its large spacial variation (Section 2.7.2.5.2). Latest results show values between 0.02-0.03 for indoor Rn-220, which are subjected to large uncertainties [8]. Therefore it is arguable to use Rn-220 gas measurements as domestic exposure estimation.

2.7.2.6.4. Exposure

For radiation dose estimation the equilibrium equivalent exposure E_{eq} is required which is defined as the integral of the activity concentration over a certain exposure time T , $E_{eq} = \int_0^T C_{eq}(t) dt$, with unit ($Bq \times h/m^3$).

The effective dose D_{eff} (Sv) an individual receives is then calculated via,

$$D_{eff} = f_{DCF} \int_0^T C_{eq}(t) dt = f_{DCF} F \int_0^T C(t) dt \quad (2.7-10)$$

where f_{DCF} is the dose conversion factor ($nSv/(Bq \times h/m^3)$), C_{eq} the equivalent equilibrium concentration (Bq/m^3), F the equilibrium factor, $C(t)$ the gas activity concentration (Bq/m^3) and T the exposure time (h).

2.7.2.7. Health effects of radon

The main pooled Rn-222 studies on miners [5], [79]–[81] and the public [4], [82], [83] indicate a significant association between risk of lung cancer and exposure to Rn-222. The difference between risk estimates for residential and occupational exposure can be attributed to the lack of information on smoking behavior for the latter, which is a potential confounding factor in both study types. There is far more data on smoking history available for the residential studies. However, with a joint analysis of three European miner case-control studies with a restricted data set including only individuals with low exposure (<300 WLM) and known smoking behavior the results are consistent [84].

Despite this strong evidence there is still controversy regarding the results of the case-control studies, as large ecologic studies such that of Cohen [85], [86] showed an inverse relationship between ERR and Rn-222 exposure. In addition all studies failed to show a significant effect on health for low level Rn-222 concentrations below $150 Bq/m^3$. The inverse correlation revealed in the ecological studies was attributed to smoking as confounding factor, because in rural regions, where higher indoor Rn-222 concentrations were measured, people tend to smoke more. Other methodological challenges of ecological study types are their inability to adjust for individual mobility [87], [88].

Thus, they are considered of limited value in assessing the risk from Rn-222 because of their dependence on grouped data and confounding [89]. On the other hand, it is argued that the results indicating a significant increase in lung cancer risk are biased since cases tend to underestimate their actual cigarette consumption, in particular after being diagnosed with lung cancer. Hence retrospective smoking history is largely unreliable and health effects of Rn-222 are blurred by cancer incidence due to smoking [90]. This author also emphasized that far more studies have been conducted on an anti-radon attitude with the support of governmental agencies, while studies questioning the official linear non-threshold (LNT) theory are hardly supported, leading to an imbalance of published data.

Nonetheless, the current consensus of several institutions like the ICRP, the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), the International Atomic Energy Agency (IAEA), the National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP) and the Environmental Protection Agency (EPA) is to consider Rn-222 as a significant risk factor for lung cancer. An ERR of 0.16 (95% CI:0.05-0.31) per 100 Bq/m³ is suggested as an appropriate and possible conservative estimate of lifetime risk from residential Rn-222 [81].

2.7.3. Principle and design of the exposimeter

Different techniques for radon and thoron detection have been elaborated in the past decades and new ones are still being developed. Here only airborne radon/thoron measurement principles shall be discussed because devices based on progeny sampling [91]–[94] are not topic of this thesis.

2.7.3.1. Measurement principles

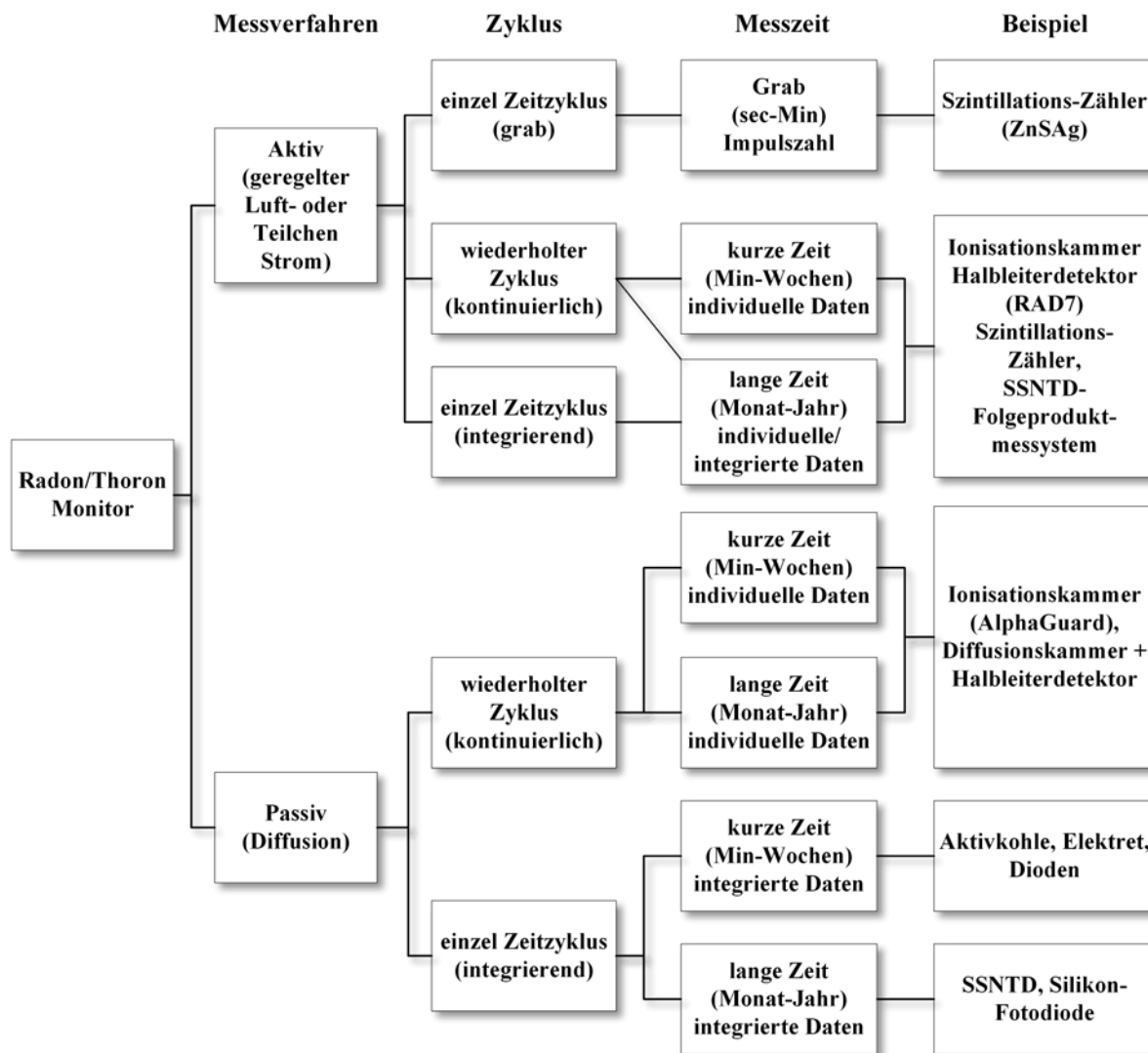


Figure 2.7.6: Categories for radon and thoron measurement methods, adapted from [95] The developed device belongs to passive and continuous group.

In general a radon/thoron monitor consists at least of a detector or collector (e.g., active charcoal) and a diffusion chamber or something similar where the components are mounted. Such airborne monitors are separated into two sampling methods, namely active, when a pressure difference is generated, or passive, relying only on natural diffusion, and two cycling methods, as depicted in **Figure 2.7.6**. They either allow for a one time cycle, so called integrated or grab sampling, and continuous sampling, which means repeated cycling. For latter electronic components are required, while integrated devices often use solid-state nuclear track detectors (SSNTD) based typically on cellulose nitrate (LR 115) or allyl diglycol carbonate (CR-39) [95]. These types of detectors are cost effective, easy to handle and transport and hence often employed for radon and thoron gas measurements. Activated charcoal detectors have the same features, however, they suffer from temperature and humidity dependence [96], [97], and thus can only be used for short periods. All are proportional counters requiring a so called calibration factor (CF) to determine the radon or thoron concentration. In this work a diffusion chamber type device was developed, because bare detectors without filter have serious disadvantages since their CF is dependent on the

progeny deposition rates influenced by humidity, aerosol concentration, airflow and equilibrium factor of the environment [98], [99]. With a diffusion chamber monitor this problem is omitted because a filter applied to the diffusion inlets grants only undisturbed diffusion of the inert radon and thoron gas [100], [101], and the counts/tracks generated by the alpha decays from radon and its progeny are then proportional to the respective gas activity concentration. Due to its smaller dependence on environmental parameters, this method has also been set as default method by the recently released ISO standards [102] for passive devices.

2.7.3.2. Discrimination methods

Several methods allow to differentiate between radon and thoron, for example by parallel measurements with the two filter method [20], [103]–[105], where one chamber only measures radon, by preventing thoron to diffuse inside its measurement volume, while the other permits both. The difference in counts is then related to the thoron concentration. Another approach is to switch between active and passive sampling which results in different count rates for either mode, for example realized with an electronic detector such as a scintillation cell [19], which usually requires a large acquisition apparatus and high power consumption.

The third approach measures the individual energy of each alpha particle decay, using ionization chambers or semiconductor detectors [106]. Ion-implanted silicon detectors are standard equipment and widely used for alpha-particle spectrometry. They can be used in hand-held devices with low power consumption while allowing for discrimination of radon and thoron by definition of different regions of interest [107], [108].

A commonly used [109], [110] semiconductor detector is the DurrIDGE Rad7, which utilizes a pump for active sampling and additionally electrostatic collection. It was also used in this work as reference for radon/thoron measurements.

The passive discriminative monitor developed in this work employs alpha-particle spectroscopy, to determine the gas activity concentration.

2.7.3.3. Electronic design

The electronic parts of the exposure meter partly developed in the frame of this project are described in full detail in the thesis [111]. The amplifier and shaper design employed by an in house developed Neutron dosimeter [112] were adapted and used for the present monitor. The different stages of the device are discussed in detail, as well as simulation results to characterize the circuit behavior under changing component values and temperatures.

2.7.3.4. Setup

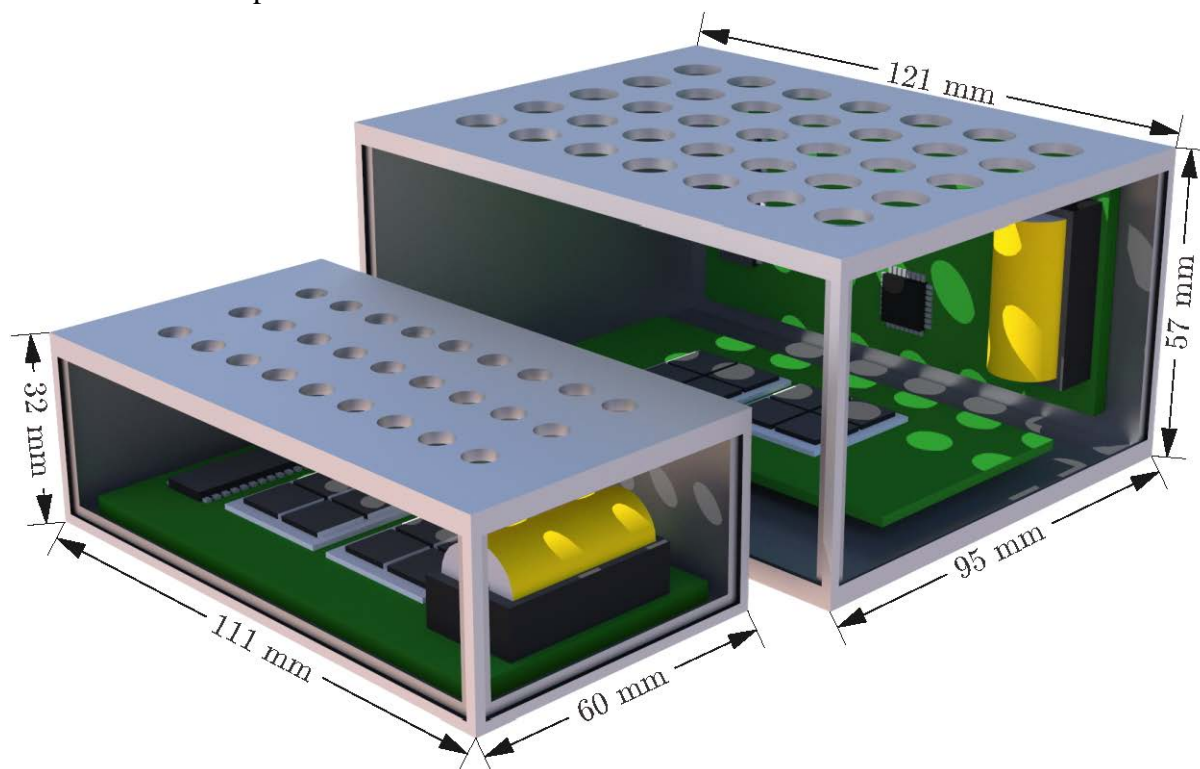


Figure 2.7.7: Rendered CAD drawing of both geometries showing size and PCB position differences. In final setup the side walls are complete, and the top inlets are covered with a filter.

The geometry of the diffusion chamber influences the calibration factor of the device and the shape of the acquired spectrum. For experimental purposes two casing geometries, as depicted in **Figure 2.7.7**, have been realized.

2.7.4. Calibration

Metrology relies on standards that define a relationship between a unit of measurement and a physical quantity [113]. There are three different quality levels known as primary, secondary and reference calibration standard. The primary calibration standard should have long-term stability, sufficient accuracy and should allow transfer of calibration to other measuring instruments [114]. The latter is then called secondary standard, i.e. it is a device or method calibrated against the national primary standard and thus a very close approximation to that. A so called working standard is a device, generally commercially available, which has a traceable relationship to secondary and primary standards. It is normally routinely used to calibrate or check measures. Finally, the reference standard is referred to as having the highest metrological quality available at a certain location or organization [115].

For the generation of radon reference atmospheres, two different primary methods have been developed. One is the radon-in-air activity standard [116] which allows absolute activity measurements for example by counting alpha particles emitted from condensed Rn-222 at a defined solid angle. In this method the radon gas activity concentration in the reference atmosphere decreases due to radioactive decay. The second uses an emanation source which

allows for a constant reference atmosphere after a build-up period [117]. In this case the traceability of the activity concentration is given by the radium source activity, the emanation coefficient and the reference volume. This method also allows to generate low-level constant activity concentrations down to 150 Bq/m³. For thoron only recently a primary standard based on emanation sources has been established [118]. Gas activity standards are not feasible here as no reasonable thoron activity can be produced with such. Apart from gas standards it is often required to produce reference atmospheres for radon progeny with the control of temperature, humidity, air pressure and aerosol size distribution [119], [120].

This enables traceable calibrations of devices measuring radon, thoron and all of their progenies, when environmental parameters and the respective radon gas and progeny activity concentration are monitored. Such systems also allow to investigate the behavior of the equilibrium factor F and the attached fraction f_p . It is controlled via the aerosol size distribution [121], and when particle density is low also F is low while f_p is high. This is of course natural as with clean air less progeny can attach to aerosols while also there is an increased plate-out rate of unattached progenies to chamber walls (no equilibrium reached). The effect is vice versa for high aerosol concentrations ($F \rightarrow 1$, $f_p \rightarrow 0$) [119].

2.7.4.1. Calibration factor

The recently released ISO standards for measurement of radioactivity in the environment for radon [102] state that the activity concentration C shall be calculated via,

$$C = (cr - cr_0) cf \quad (2.7-12)$$

where cr is the measured count rate (cph), cr_0 the background count rate and cf the calibration factor Bq×m⁻³/cph. Due to the high energy threshold of the detection system of about 1 MeV and the stability of the amplifier, generally a background count rate of zero due to electronic noise can be assumed ($cr_0=0$). Another source for background counts are the immediate short-lived daughter products. These can be ignored as long as the time between consecutive measurements is significantly larger than the longest half-life, which is from the Po-212 progeny. In contrast the long-lived daughters cannot be ignored and their influence on the background count rate can only be kept small on the condition of low total cumulative exposure of the device.

In this work calibrations are conducted in similar manner as described in the recently released ISO standard for radon measurements. The exception is that the devices are calibrated against a reference device and not a primary standard. The two reference devices used in the present work are a Saphymo AlphaGuard, exclusively employed for radon calibrations, and a DurrIDGE Rad7 for radon and thoron calibrations. All calibrations in this work were conducted in a standard procedure applying the emanation method. The exposure meter and the radioactive source are placed within a closed vessel, and depending on the reference devices it is either placed within the same or is externally connected to it. The achievable activity concentration in a vessel depends on the characteristics of the used source the tightness of the chamber, its volume, since $C=A/V$ with A being the activity, and the surface area A_{src} of the source, since the emanation is proportional to the area. Hence in a completely tight vessel with a semi-permeable source, a stable radon concentration would be reached only after about 23 days. However the less airtight the calibration chamber the faster

an equilibrium between emanation of the source and loss through leakage is reached [64]. In the present work, calibration measurements were always conducted in stable gas concentration environments.

The reading of the reference device and the quantity measured by the radon monitors, which are counts per interval, a count rate, is related by the so called calibration factor cf via Equation (2.7-12) and,

$$cf = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{C(t_i)}{N(t_i)} \quad (2.7-13)$$

with $C(t_i)$ being the gas activity concentration (Bq/m^3) at interval i and $N(t_i)$ the number of counts (c) recorded by the exposure meter in that time. The unit generally used for the calibration factor is then activity concentration over counts per time interval ($\text{Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$), with cph being counts per hour. For continuous monitors an annual calibration is recommended [122]. Along with calibration at elevated radon gas concentration levels also a background measurement has to be performed for quality assurance [123], in order to acquire a reliable instrument background and check instrument operation. Background signals originate mainly from the alpha decays of Po-210, a daughter nuclide of Pb-210, which is accumulated within the detection chamber and on the detectors, with a half-life of 22.2 years. Due to its long half-life the background signal cr_0 can be seen as constant when the measurement periods are much smaller. A high background means that a device was either exposed to very high radon concentrations beforehand or that there is an electronic error present.

2.7.4.2. Calibration chamber setup

At the HMGU no accredited calibration chamber is available. For large scale calibrations normally a big steel chamber with a volume of 1 m^3 is used. For day-to-day measurements however, this is not very applicable, especially not for thoron, and smaller volumes are more feasible. They reach constant atmospheres faster, allow for a spatially more homogenous thoron concentration and are quicker accessible. All chambers used in the present work were made of conductive metals, in order to avoid generation of charged surfaces which could influence distribution and deposition of gas and progeny. Information on geometry and employed sources can be found in the thesis [111].

2.7.4.3. Radon calibration

The new radon exposimeters with improved sensitivity were calibrated in a radon atmosphere in order to allow for a comparison to the previously developed devices.

2.7.4.3.1. Calibration factors

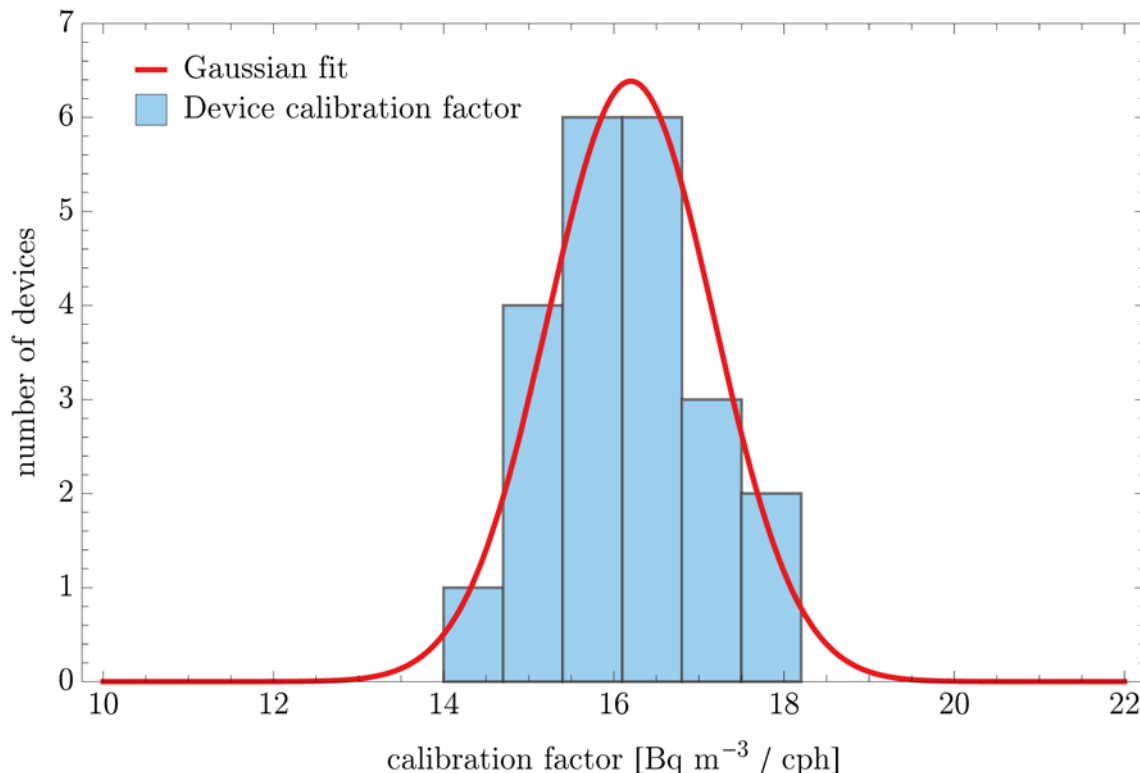


Figure 2.7.8: Distribution of calibration factors with bin width of 0.7 and Gaussian fit (solid line), resulting from a measurement with 22 radon monitors.

With the improved amplifier and detector layout 22 new Radon monitor prototypes in geometry 1 (standard housing) have been built. The devices have been calibrated in a high radon concentration environment (up to 2,300 Bq/m³) within a closed vessel, using an uranite rock as radon source. As reference device an AlphaGuard was used. The measurement period was 9 days and 21 hours, with environmental conditions being at 65% relative humidity, 18.1 °C ambient temperature and 959.0 hPa absolute pressure. The comparator energy threshold for the devices was set to 1.8 MeV. Generally the uncertainty associated with the calibration factor of a single device is governed by the number of counts detected. In the present experiment this uncertainty was about 8.8% with a mean count rate of 128 cph. **Figure 2.7.8** shows the distribution of the obtained calibration factors. With a mean value of $cf_{Rn-222}=16.2\pm0.9$ Bq×m⁻³/cph (mean ±standard deviation), the calibration factor of the device, compared to the previous one of 29.9 ± 1.4 Bq×m⁻³/cph, was almost doubled. All individual acquired factors are stated in **Table 2.7.2**. After the calibration also a 46 h background check was performed by opening the box and putting it in a ventilation shaft, where the mean radon concentration was determined to be 35.8 ± 19.0 Bq/m³.

Table 2.7.2: Device calibration factors (cf) with 1σ standard deviation as uncertainty (std) for exosimeters of first (V1xx) and third (V3xx) generation in a Rn-222 environment.

Device (1 detector)	$cf \pm std$ $Bq\ m^{-3} / cph$	Device (2 detectors)	$cf \pm std$ $Bq\ m^{-3} / cph$
V101	29.4 ± 3.2	V306	15.3 ± 2.0
V102	29.1 ± 3.2	V309	14.4 ± 1.9
V104	29.0 ± 2.9	V310	15.2 ± 2.0
V108	29.4 ± 2.5	V311	16.1 ± 2.2
V109	29.6 ± 2.8	V312	16.9 ± 2.3
V111	28.5 ± 2.2	V313	15.4 ± 2.0
V112	28.3 ± 2.6	V314	15.7 ± 2.1
V113	29.8 ± 3.0	V315	15.5 ± 2.1
V114	28.8 ± 2.5	V317	15.3 ± 2.0
V115	29.9 ± 2.9	V318	18.1 ± 2.5
V121	30.4 ± 2.9	V319	17.8 ± 2.5
V122	32.5 ± 3.0	V320	16.2 ± 2.2
V123	33.3 ± 3.5	V321	17.4 ± 2.4
V124	31.2 ± 2.8	V322	15.6 ± 2.1
V127	29.7 ± 2.8	V323	16.5 ± 2.2
		V324	16.4 ± 2.2
		V325	17.1 ± 2.3
		V326	15.8 ± 2.1
		V327	15.6 ± 2.1
		V328	16.7 ± 2.3
		V330	16.6 ± 2.2
		V331	15.8 ± 2.1
		V301	15.6 ± 1.3
Mean:	29.9 ± 1.4		16.2 ± 0.9

The excess counts were then calculated by subtracting the reference concentration from the one determined by the exosimeter and dividing the difference by the individual calibration factor. It yielded a mean value for the background count rate of $cr_0=0.29$ cph for the 22 new prototypes and thus background correction can be disregarded and proper functionality is proven. This was to be expected as the devices were newly assembled with unexposed detectors and cases. The background measurement can be improved by putting the devices in a calibration chamber which is flushed with pure nitrogen to reduce radon gas concentrations to zero.

Figure 2.7.8 also demonstrates that the device can be built in a reproducible manner within a small error boundary. Hence, for a series of devices it may be sufficient to calibrate only one instead of each individual device, and to assume that the resulting calibration factor is representative for the other devices, although an individual calibration is preferred.

2.7.4.3.2. Spectrum

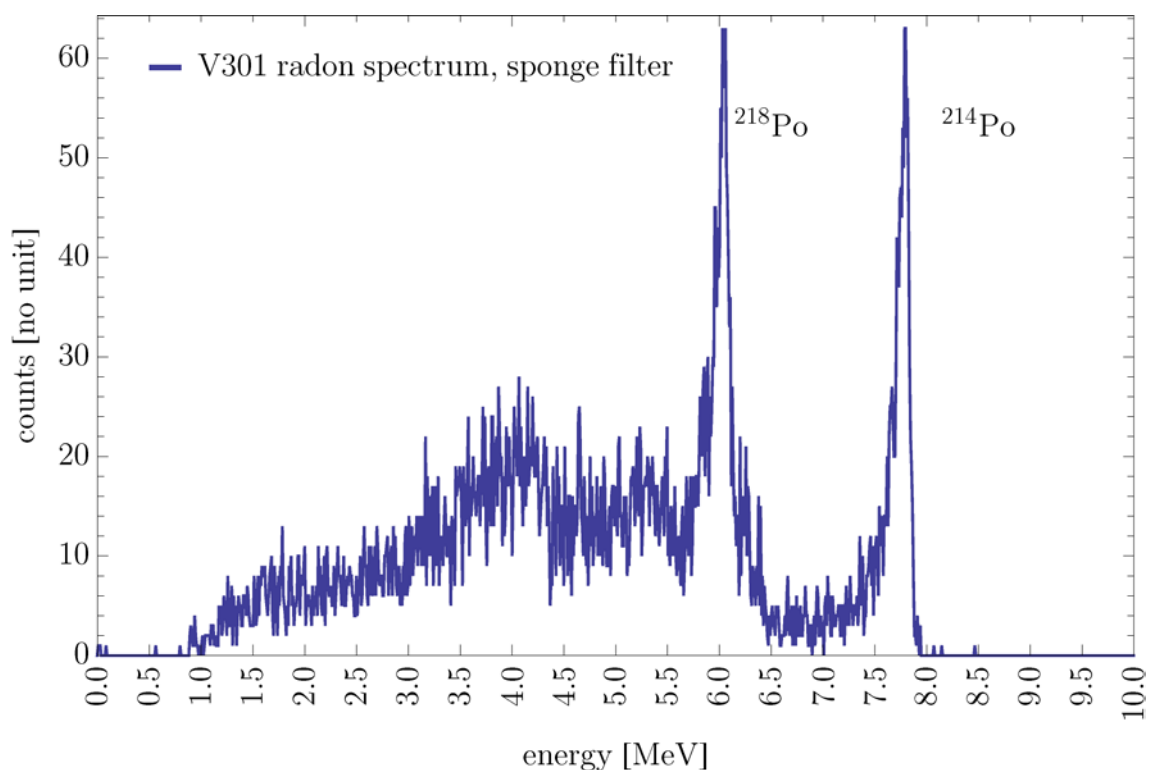


Figure 2.7.9: Typical alpha particle spectrum acquired in a radon environment for the small housing (geometry 1). In the summed spectrum (hours 10-50) the characteristic alpha peaks of two progeny are clearly visible.

The most significant improvement of the new devices is however the possibility to acquire additional information on each decay via alpha spectroscopy. **Figure 2.7.9** depicts a typical energy spectrum acquired in a high radon gas environment with mean activity concentration of $3,310 \pm 250 \text{ Bq/m}^3$. Environmental conditions during the calibration in the small calibration were 47.6% RH, 19.8 °C and 968.1 hPa. As expected two peaks can be identified, which belong to the immediate radon daughters which decay via alpha particle emission. These decays measured at energies of approximately 6 and 7.8 MeV originate from particles deposited directly on the detector surface. This allows counting of alpha particles with smallest energy loss before entering the detectors' sensitive volume, as they only need to pass the thin aluminum coating on top of the detector of about 400 nm. The other signals in the spectrum are a superposition of decays registered from radon gas and progeny decomposition, originating from the volume and housing walls. The spectral form is thus influenced by the environmental conditions, as they change alpha-particle energy absorption in air, and the geometry of the device. The geometry determines the path lengths alpha particles can traverse and the fraction of detector surface to total inner housing surface, which influences the number of direct deposited progenies on the detector area. This is however discussed in detail in the next Chapter by comparing measurements with simulations. The calibration factor is then found by summing all counts from 1-10 MeV each hour and dividing the reference concentration with the found value. The resulting calibration factor for device V301 was determined to be $15.6 \pm 1.3 \text{ Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$ and thus lies within the range of previous determined factors (**Table 2.7.2**) for this geometry.

2.7.4.4. Thoron calibration

While a radon calibration is straightforward and a high accuracy, less than 6% deviation, can be achieved with respect to the variation of the calibration factors, this is much less trivial for thoron. The minor variation of the radon calibration factor can be attributed to two facts, firstly the homogenous distribution of Rn-222 and secondly the reproducible assembly of pin-diode based monitors (see **Figure 2.7.8**). On the other hand, reason for a possible inhomogeneous thoron distribution is the short half-life of Rn-220 and therefore its small diffusion length L of about 3 cm. This means that at a distance of 6 cm ($2L$) from the Rn-220 source, only about 13.5% of the original concentration C_0 remains. Therefore active air stirring by means of ventilators or pumps has to be employed within a small calibration volume to achieve an almost homogenous distribution. Still the total uncertainty of such a system can be in the range of 10-15% where a 4.15 l reference chamber was used [124]. Measurements at the National Institute of Radiological Sciences (NIRS), within a 150 l pot with active ventilation and at 5 cm from the bottom, indicate a Rn-220 concentration deviation of less than 10% relative standard deviation for active sampling devices, such as the Rad7 [109]. However, calibrations performed with a passive sampling device, such as the RADUET monitor, at the same institute show a variation of the thoron calibration factor of up to 30% for the high air-exchange rate chamber type (1,800-2,400 cts/cm²) and 34% (41-55 cts/cm²) for the low air-exchange chamber type. Less variation is seen when calibrating the devices in a radon atmosphere with ranges of 24% (3,900-5,100 cts/cm²) and 20% (4,400-5,500 cts/cm²) for the corresponding chamber type respectively [20]. Intercomparison measurements with the RADUET monitor at the PTB facility yielded discrepancies of more than 50% [109]. Therefore special attention to the thoron distribution during calibrations has to be paid.

2.7.4.4.1. Spectrum

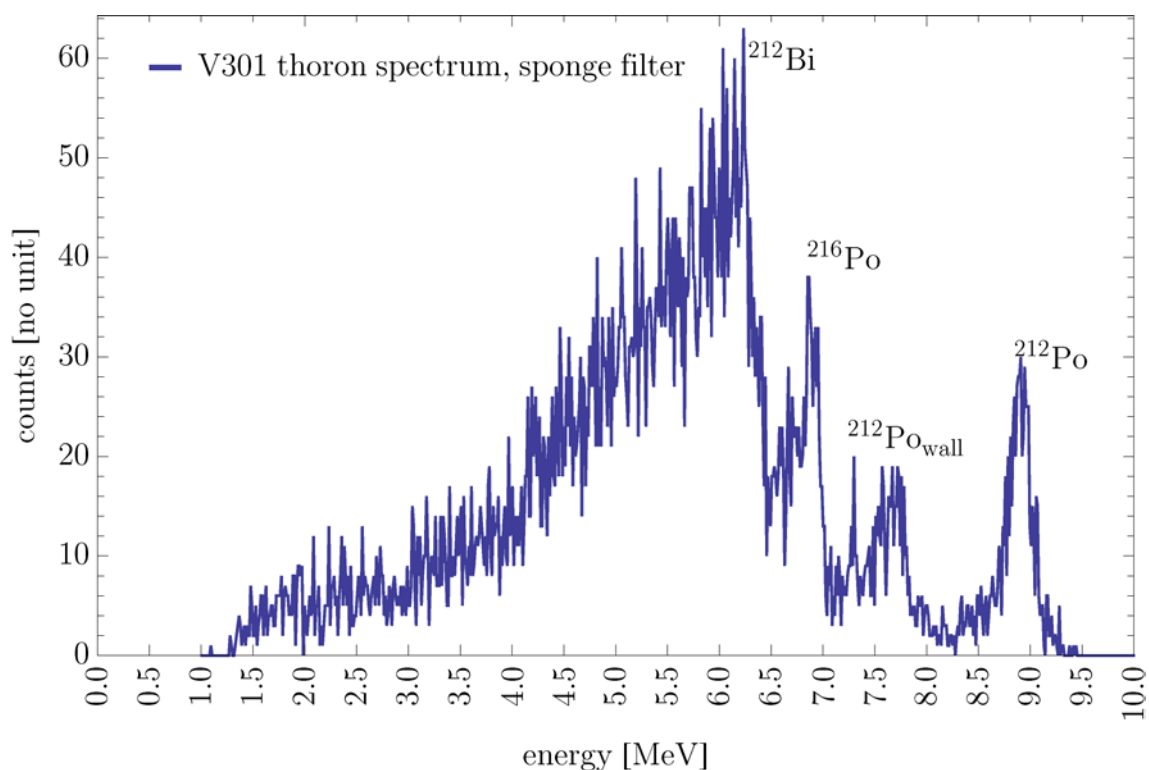


Figure 2.7.10: Typical alpha particle spectrum acquired in a thoron environment for the standard housing (geometry 1). In the summed spectrum (hours 60-85) the characteristic alpha peaks of two progeny are clearly visible.

Figure 2.7.11 shows a typical energy spectrum acquired in a high thoron gas environment with mean activity concentration of $8,280 \pm 330 \text{ Bq/m}^3$. Environmental conditions during the calibration in the small calibration chamber were 46.0% RH, 23.4 °C and 968.6 hPa. Again two progeny peaks can be identified which belong to the thoron daughters Bi-212 and Po-212, which decay via alpha particle emission. These decays measured at energies of approximately 6.2 and 8.9 MeV originate from particles deposited directly on the detector surface. The energy loss by transition through the thin aluminum coating on top of the detector (400 nm) was considered for the stated energies.

The other signals in the spectrum are a superposition of events registered from thoron gas, volume decays of Po-216 and of course from progeny deposited on inner walls. Specifically one notices in Figure 2.7.11 a peak between energies 7 and 8 MeV which is a result of alphas originating from Po-212 which was deposited on the inner surface of the housing, indicated as Po_{wall}-212. The calibration factor has been calculated by summing all counts from 1-10 MeV each hour and dividing it by the reference concentration. The resulting calibration factor for device V301 was determined to be $cf_{\text{Rn-220}} = 14.4 \pm 0.8 \text{ Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$ and thus is close to but below of the corresponding range of previously determined Rn-222 calibration factors (Table 2.7.2) for this geometry. The higher thoron sensitivity can be again explained by the fact that due to higher decay energies more alpha particles are able to reach the detector. This effect, with respect to the difference between radon and thoron calibration factors, is more dominant in bigger cases, i.e. the calibration factor for thoron is smaller than for radon with increased geometrical size, up to certain threshold.

2.7.4.5. Mixed concentrations

The results in Sections 2.7.4.3 and 2.7.4.4 show that the calibration factor for both isotopes Rn-222 and Rn-220 is quite similar for both geometries employed. However, when both isotopes are present in the atmosphere and it is necessary to distinguish either one from the other, another evaluation approach is necessary. This is due to the continuity of the spectra, which mainly interfere in the energy domain from 1 to 8 MeV. Only the region of interest (ROI) between 8 to 10 MeV, denominated here as ROI₄, is free from any Rn-222 contribution, as there is no element in the decay chain of radon with such high energies. Other regions to distinguish radon and thoron effectively and without dependence on environmental parameters are not available. In this section measurements of different concentration mixtures between radon and thoron are presented and discussed. Again as reference device a Rad7 was employed and measurements were executed in such a way that equilibrium conditions for both isotopes would settle. In order to allow for a maximum consistency of the reference concentration values determined by the Rad7, this time the thoron activity was calculated via the raw output of the device. This is necessary since the formula to calculate the corresponding activity concentrations in the proprietary *Capture* software is unknown. The Rad7 also determines the concentrations by use of a ROI, where the Po-212 peak lies within the so called ROI_D. The calibration factor for this ROI was determined in 10 measurements at high thoron concentrations to be about $cf_{ROI_D} = 3.67 \pm 0.19 \text{ Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$, where the error is the standard deviation. Hence the relative standard deviation is about 5%, which is about the accuracy that is assumed for the Rad7 [125] for thoron measurements. In the following cf_{ROI_D} is used as the equilibrium calibration factor for Po-212 and the Rad7 reference device between hours 60 to 85 and for a relative humidity of about 46% - 49%. This method ensures that there is no interference from signals originating from Rn-222, as the Rad7 usually calculates the thoron concentration on basis of ROI_B (Po-216).

2.7.4.5.1. Acquired spectra

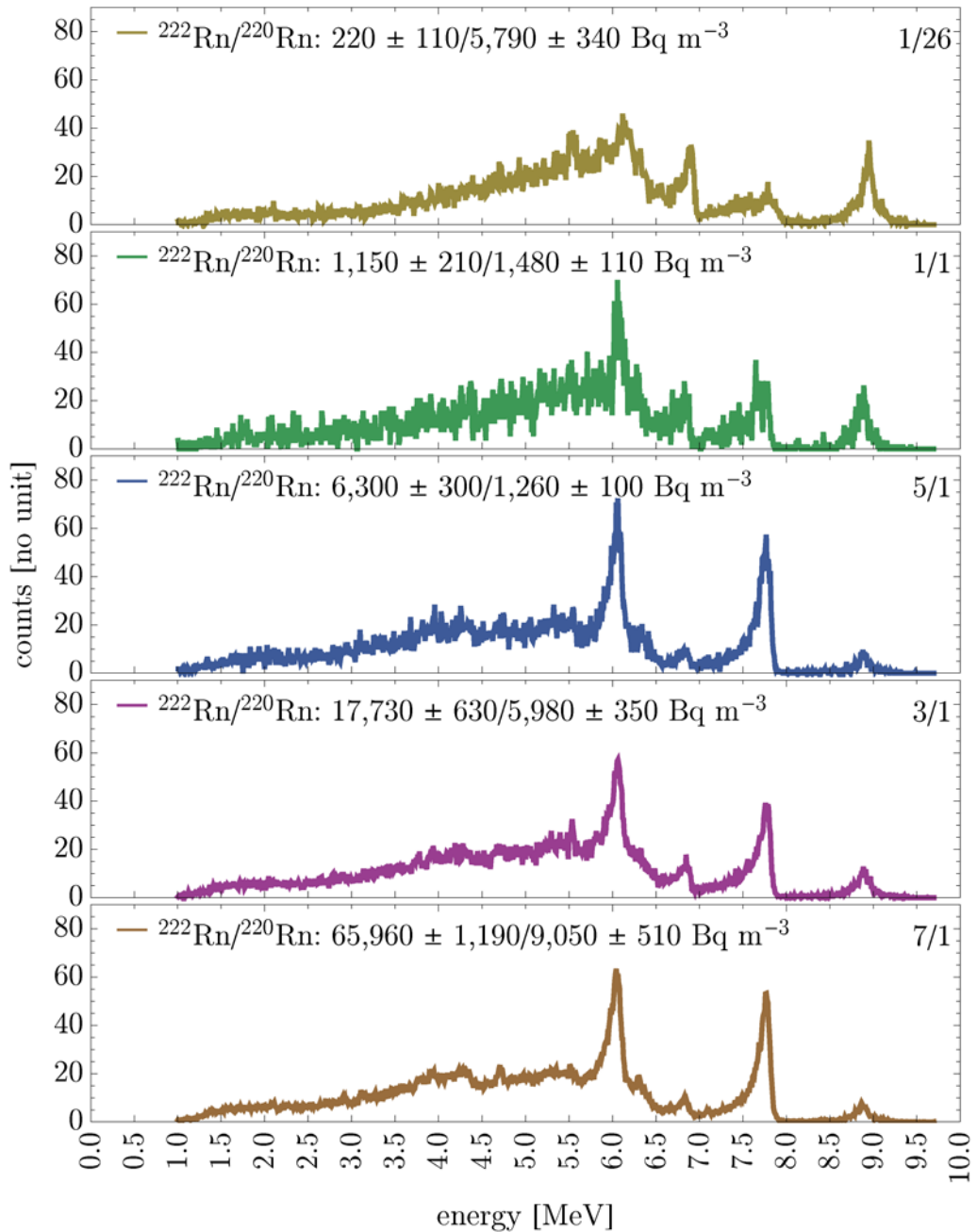


Figure 2.7.11: Spectra in mixed Rn-222 and Rn-220 concentrations acquired by device V305 with standard housing (Geo1) and improved ADC circuit. Spectra are normalized with respect to total count number.

In order to test whether the newly developed device allows discrimination between radon and thoron decays, several measurements in mixed concentrations have been performed. All measurements were performed in the small calibration chamber with one 200 mm fan at the top and sources position at the center of the chamber below the ventilator. The Rad7 was connected via a tube externally. The measurements were conducted consecutively and the same time frame, thus ensuring quite stable environmental conditions. The relative fraction of the concentration mixture for Rn-222/Rn-220 was about 1/26, 1/1, 5/1, 3/1 and 7/1

respectively. The device employed for these measurements was built with the standard housing dimensions (Geo1), and used the new improved 12-bit ADC, just as the new devices with geometry 2. For this device V301 was modified, the battery was removed, and the digital part was disconnected from any power source. The microprocessor and power supply were situated on a second, external PCB in another housing. Both boxes were taped together and the amplifier output line was connected via a shielded coaxial cable. Thus the only difference to standard geometry 1 is the removed battery, and thus about 3.6% more volume inside the diffusion chamber ($V_{\text{bat}}=5.78 \times 10^{-6} \text{ mm}^3$).

2.7.4.5.2. Evaluation method

Due to the interference of thoron and radon decays in the energy domain of 1-8 MeV, in addition to the coupled influence of environmental parameters on the calibration, the best method for discrimination in a single chamber device is by integration of counts over certain region of interests (ROI). A detailed explanation of the effects affecting the calibration factor is given in the next Section. For the evaluation of the acquired spectra obtained in mixed concentrations two ROIs are considered, namely ROI₁ in the domain from 1-8 MeV and ROI₄ from 8-10 MeV. The Rn-220 concentration $C_{\text{Rn-220}}$ is calculated from count rate cr in the ROI₄ where no radon interference is expected since there all progeny decay energies are below 8 MeV. Then, of course, one has to consider the number of counts registered in ROI₁ due to thoron quantified by the factor f . This fraction f , determined in high thoron concentrations, is given by the quotient of the respective count rates cr in the regions, i.e. $cr_{\text{ROI1}}/cr_{\text{ROI4}}$, which are a measure for the Rn-220 concentration. These have to be subtracted from counts in ROI₁, and the difference is used for the determination of the Rn-222 concentration $C_{\text{Rn-222}}$. This methodology leads to following formulas for the concentration calculations,

$$\begin{aligned} C_{220 \text{ Rn}} &= cf_{220 \text{ Rn}} cr_{\text{ROI4}} \\ C_{222 \text{ Rn}} &= cf_{222 \text{ Rn}} (cr_{\text{ROI1}} - f cr_{\text{ROI4}}) \end{aligned} \quad (2.7-14)$$

where the calibration factor cf is given in activity concentration per counts per time interval ($\text{Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cpt}$) and the resulting concentration in Bq / m^3 .

In independent calibration measurements following values have been determined for device V305:

- V305: $cf_{\text{Rn-222}} = 17.0 \pm 2.1 \text{ Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$, $cf_{\text{Rn-220}} = 95.1 \pm 11.1 \text{ Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$, $f = 11.79 \pm 2.67$ and $cr_0 = 0.03 \text{ cph}$.

where the fraction f has been calculated by evaluating 6 high thoron concentration calibrations with the error stating the standard deviation. The background count rate cr_0 has been determined in a low thoron environment, but is assumed here to be zero. The radon calibration factor $cf_{\text{Rn-222}}$ is in well agreement with the previous result for this type of device. Further the Po-212 calibration factor $cf_{\text{Rn-220}}$ for thoron yields a similar value as the one determined by a simulation performed for this device, which resulted in a value of $106.9 \pm 2 \text{ Bq} \times \text{m}^{-3} / \text{cph}$. With the stated values and the counts obtained from the spectra in Figure 2.7.12, it is possible to calculate the corresponding mean activity concentrations measured with V305 via Equations (2.7-14) and compare them to the reference concentrations determined by the Rad7.

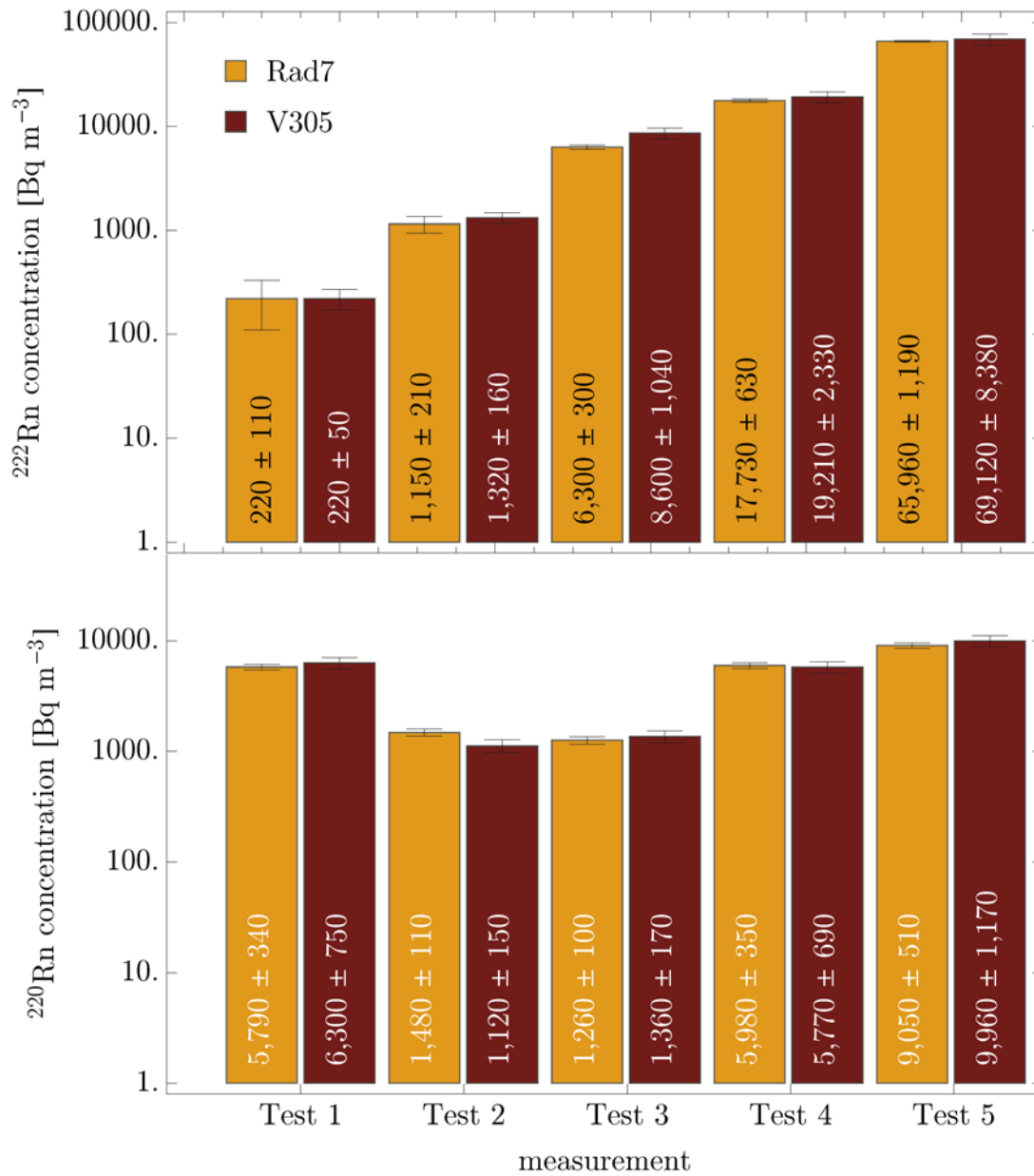


Figure 2.7.12: Comparison of reference activity concentration with calculated values from device V305 with standard housing (Geo1). Note that concentration is plotted on a logarithmic scale. Uncertainties refer to 1σ .

Figure 2.7.13 shows that in most cases the results agree within their respective 1σ uncertainty. The error of the concentration determined by V305 is calculated via Gaussian error propagation of Equations (2.7-14) taking into consideration the statistical error, which was taken to be the square root of the number of counts $u(cr) = \sqrt{ct}/t_m$, and the respective error of the involved constants, assuming a negligible error of the time interval t_m . This can result in quite large relative errors of up to 12% in this evaluation. In general the error mainly depends on the precision of the employed calibration factors and the number of obtained counts. The

reasonable agreement between reference and calculated values demonstrate that this evaluation method is valid and can be employed to discriminate Rn-222 and Rn-220. Further it is also the standard method for calculation of the activity concentration defined by the recently released ISO standard for measurement of radioactivity in the environment [21].

2.7.5. Monte-Carlo simulations

Monte Carlo simulations related to Rn-222 monitors have been performed already very early [126], where also diffusion into the chamber has been considered, to calculate the calibration factor on a theoretical basis. Another approach uses a SRIM based transportation code to simulate alpha-particle spectra [127] in dry air, while a recent study employs Geant4 to investigate the effect of environmental changes on the calibration factor [128]. All studies focused, however, on passive etch-track detectors and therefore could not provide a good agreement of simulated and measured spectrum. With the new device developed within the framework of this thesis this was for the first time possible.

Monte Carlo can be considered as a statistical sampling method using pseudo-random number generation and numerical calculations. It focuses on repetitive trials, forming a so called history for a large number of runs, and tries to find an estimated solution to a given problem [129]. A typical application for the Monte Carlo method is the problem of radiation transport, which refers to the transport of particles such as electrons, protons, ions, photons etc. through some medium. The interaction of particles within the medium is a purely statistical process and thus Monte Carlo simulations are a well suited tool which allow prediction of the average behavior of particles traversing a volume.

Within the framework of this thesis the Geant4 toolkit (version 9.5.2) was employed, which is an open source C++ code, originally developed for high energy physics [130]. It covers an ample set of particles and energy ranges from a few eV to the TeV scale. The implementation of the geometry and the physics model (electromagnetic, hadronic, transportation, decay, optical, photolepton-hadron, parametrization) are the most important aspects in any Geant4 simulation and are the sole responsibility of the application developer. Depending on the problem at hand the required physic models have to be chosen.

The Monte Carlo approach should provide answers to several questions, namely the dependence of the calibration factor on geometry and on environmental parameters, thus granting a complete understanding of the detection mechanisms.

2.7.5.1. Model

An alpha particle decay is random in nature, with an isotropic angular distribution and a stochastic spatial origin. Only decay energies are known which are a constant input parameter for the simulation. The energy spectrum an exosimeter will acquire thus depends on its geometry, which determines the possible distances between source and detector as well as the density and composition of air, which influences the energy loss experienced by an alpha particle traversing the medium. Alpha particles suffer mostly energy loss due to inelastic collisions with shell electrons, producing so called Δ electrons, which is commonly referred to

as ionization. The mean energy loss per distance traveled can be calculated via the Bethe-Bloch formula for heavier particles like ions [131].

2.7.5.1.1. Environmental parameters

The composition of air, considering its most important constituents, is, for example, defined by the National Institute of Standards and Technology (NIST) at a standard temperature and pressure (STP) of 0% relative humidity (RH), 20 °C and 1,013.25 hPa, with a density of 1.20479 mg/cm³. The relative fraction by weight and the molecular composition of air for its individual nuclides are C= 0.000124, Ar=0.012827, N=0.755267 and O=0.231781. In the case of a gas mixture, for example with water vapor, Dalton's law of partial pressure can be applied to calculate the individual composition.

Rn-222 itself has in general no significant fractional part of air. For example consider a relatively high Rn-222 concentration of C=1 kBq/m³ that leads to a total number of n= 476×cm⁻³ of Rn-222 atoms per unit volume. Its density is then about 0.176×10⁻¹⁵ kg/m³. Hence Rn-222 contributes only insignificantly to the general composition of air (1.2 kg/m³) and is therefore a negligible constituent, for radiation transport simulations.

2.7.5.1.2. Assumptions

The developed simulation is time-independent, which means at static conditions without diffusion processes and the precondition of an equilibrium between mother and daughter nuclides. For Rn-222 this is reached after about 7 h and for Rn-220 after 70 h. Only the decay of alpha-particle emitters is considered, i.e. Rn-222→Po-218→Po-214 for radon and Rn-220→Po-216→Bi-212→Tl-208 and Po-212→Pb-208 for thoron. For Rn-222 the ratio is 1:1:1 and for Rn-220 1:1:0.36:0.64 respectively. Beta decays and δ-electrons are disregarded, since their deposited energies are in general way below the energy threshold of the detection system of approximately 1 MeV, and even when exceeding it, assumed to contribute mainly to the electronic noise. The radioactive and inert gas is assumed to decay within the volume, while the progeny alphas are assumed to originate from the wall and detector surfaces (except Po-216). The deposition fraction of progeny on housing walls for cylindrical dimension up to 100 mm (height, diameter) is mostly > 0.9 for Po-218 and unity for Po-214, Po-212 and Bi-212 [132], depending on the employed diffusion coefficient. For common detector geometries, which generally have a small volume, all deposition fractions are essentially equal to one [128]. All simulations performed in the framework of this thesis assume a unity deposition fraction for Po-218, Po-214, Po-212 and Bi-212. The Po-216 progeny, with a half-life of about 150 ms, has insufficient time for deposition on the surfaces, and it is more likely to decay within the volume.

Accordingly Rn-222 and most of its progeny are therefore distributed via a uniform probability density function (PDF) within the volume and the surface. For thoron and its first progeny (Po-216), which immediately follows its decay, the diffusion length L has to be considered, as the concentration decreases exponentially from the entry point. The function to generate values subject to an exponential PDF can be inferred by using a uniform PDF via equating it to the inverse exponential cumulative distribution function (CDF), the so called inverse transform technique [133].

The histogram of all resulting values, i.e. the energies deposited in the detector, yields a simulated spectrum with a discrete number of energies. In order to achieve a better agreement between simulation and measurement, however, one has to consider the energy broadening introduced by the amplification stage. This is generally done by applying the Gaussian energy broadening (GEB) method [134], via multiplication of each individual energy bin value with a normalized Gaussian function.

2.7.5.1.3. Geometry

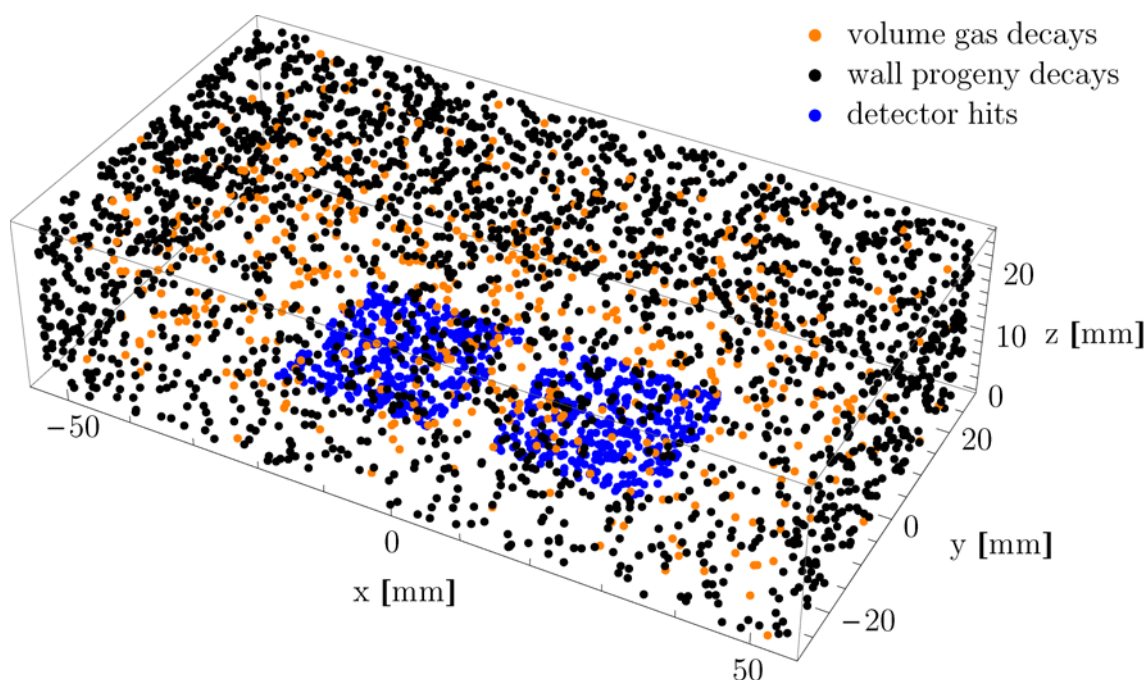


Figure 2.7.13: Schematic representation of exosimeter geometry 1 with random decay origins from volume and walls. Decays from the bottom area are not calculated since these cannot hit the detectors.

The two device geometries, which were realized, were also implemented in the Monte Carlo simulation. Only the volume of the inner housing is considered, with the approximate dimensions, which are stated in **Figure 2.7.7**, where the housing wall thickness was subtracted (1.7 mm).

In the simulation only the distance between the detector surface and upper housing wall are relevant for the height, since all decays lower to it, as for example from progeny attached to the bottom or gas below the printed circuit board (PCB), are very unlikely able to reach the detector, and thus generate a significant amount of events. This is due to the low cross section of elastic nuclear scattering of alphas, and simulations with a source at the detector bottom hardly produces events. For example a simulation with 1.5×10^5 events each from Po-218 and Po-212 decaying at the bottom in upward direction only produced a total of 5 counts, which is negligible compared to the over 15,000 counts when considering the top wall of geometry 1 as source. Most probably these 5 counts were generated from decays entering the sensitive detector volume from the side or from below, as the particle scorer does not discriminate between decay directions, and not from scattering on air molecules. Therefore these decays were not simulated further, the area and volume, however, is still considered when weighting

the progeny deposition. The geometry was parametrized with a single rectangular form, as shown in **Figure 2.7.14**. The detector is modeled as a combination of two materials. At its top is a 400 nm layer of aluminum followed by a 0.5 mm thick silicon bulk. The width and length of the detector was set to 24.8 mm. When an alpha particle enters the detector its energy deposition within the volume is scored and saved for output. The histogram of events, using a fixed energy bin width and applying a Gaussian smooth function, accounting for the energy resolution of the system, then results in the alpha spectrum

2.7.5.2. Results

The main goal of the simulations performed was to reproduce the alpha particle spectra measured in either a Rn-222 or Rn-220 rich environment.

The normalization factor to compare simulation and measurement spectra depends on the total count number ct and the decays/events N that occurred. If all other relevant influencing parameters are considered in the simulation, one is able to model the measurement conditions realistically. Then the quotient of the observed count number ct over the number of total decays is the same as in the simulation,

$$\frac{ct_m}{N_{actual}} = \frac{ct_s}{N_{sim}} \quad (2.7-15)$$

where ct_m and ct_s are the counts in the measurement and the simulation, respectively. The total number N_{actual} of airborne Rn-222 or Rn-220 decays in Equation (2.7-15) can be estimated from the known reference concentration $C(t)$ and the chamber volume of the exposimeter.

Hence according to Equation (2.7-15) a simulated spectrum needs to be multiplied by N_{actual}/N_{sim} , when comparing absolute count numbers per channel. The calibration factor for a simulated spectrum, on the other hand, depends on the events, the volume and the count number by,

$$cf_{sim} = \frac{C_s}{ct_s} = \frac{N_{sim}}{V t ct_s} \quad (2.7-16)$$

where the time interval t can be chosen freely for any $t > 0$, since the simulation is time independent. The simulated observed counts ct_s are assigned the unit counts per time interval (cpt). The calibration factor cf is then calculated according to Equation (2.7-16).

In the following t is set to 3600 seconds for ease of comparison, which yields a calibration factor unit of $Bq \times m^{-3} / cph$. In all the results presented the number of simulated decays was 1.5×10^5 directed into the 2π solid angle facing the detectors, which equals an actual decay number of $N_{sim} = 3 \times 10^5$ when considering the 4π solid angle.

2.7.5.3. Radon spectra

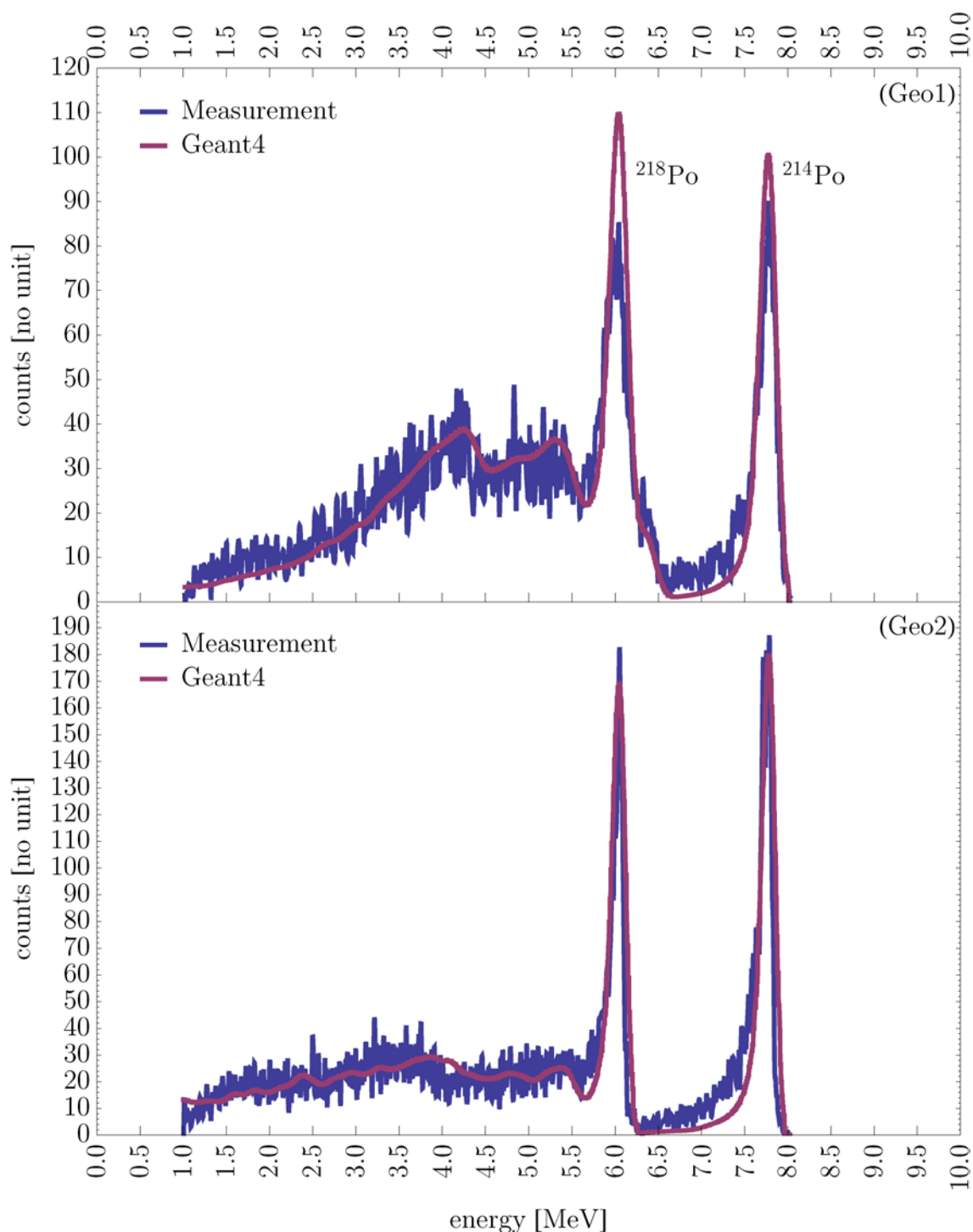


Figure 2.7.14: Simulated and measured spectra in a Rn-222 environment for geometries 1 (Geo1) and 2 (Geo2).

Several calibration measurements in standard laboratory conditions were performed. Temperature and pressure were not controllable but continuously monitored. Here the typical acquired spectra for two different geometries in a Rn-222 environment are discussed. The mean environmental conditions during the calibration period between hour 85 to 115 were 45% RH, 16.3 °C and 96,836 Pa. The mean Rn-222 concentration was $6,866 \pm 331 \text{ Bq/m}^3$ while only negligible Rn-220 was present ($7 \pm 27 \text{ Bq/m}^3$). Two exposure meters with standard

and large dimensions, named geometry 1 and 2, have been calibrated to demonstrate the influence of housing size. Geometry 1 has a volume of 124.4 cm^3 and geometry 2 of about 493.4 cm^3 . Therefore the number of occurred decays N during the measurement within the respective volume and the given Rn-222 concentration were found to be $N_{\text{geo1}}=122,633$ and $N_{\text{geo2}}=378,042$.

The total number of measured and simulated counts as function of energy are shown in **Figure 2.7.15**. Energy calibration was performed by evaluating the channel number of the clearly visible progeny peaks, assigning the energy according to the calculated value, and assuming a linear energy-channel relationship.

One finds a reasonable agreement between absolute counts per channel as well as in the general energy dependence. This is particularly noteworthy since the simulation was not adjusted via any least-squares fit, but only via the factor $N_{\text{geo}}/N_{\text{sim}}$, where the number of simulated events was $N_{\text{sim}}=3 \times 10^5$, and the number of occurred decays N_{geo} depends on the values measured by the reference device. This indicates that the most important factors influencing the shape and count number of the acquired spectrum have been considered. The characteristic quantity of a radon monitor is, however, its calibration factor, which for any simulation can be calculated via Equation (2.7-16). The simulated calibration factor is completely independent on any reference concentration measurements. The number of simulated counts ct_s is integrated from 1 to 10 MeV, using the same energy bin width as the corresponding measurement device.

2.7.5.4. Thoron spectra

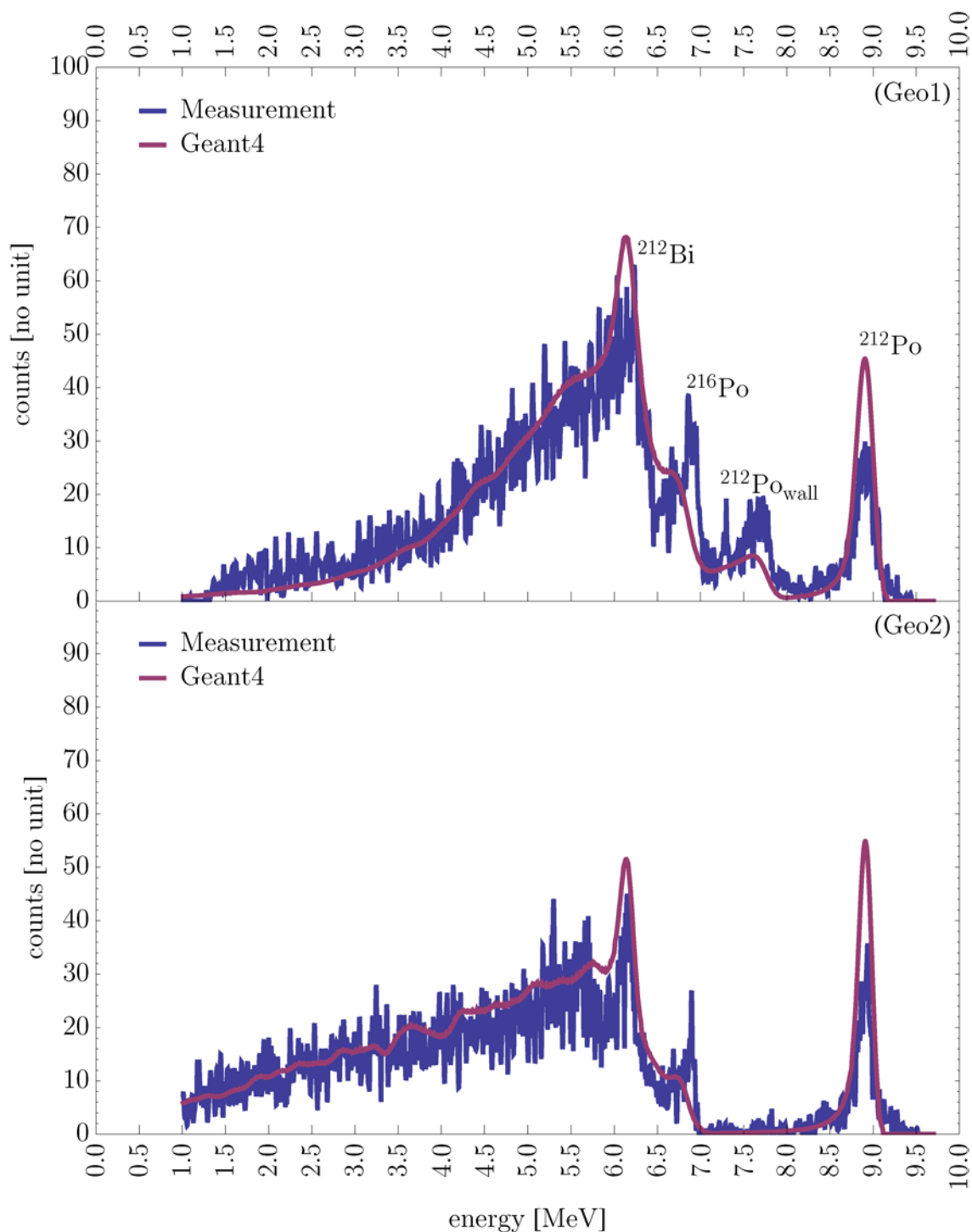


Figure 2.7.15: Simulated and measured spectra in a Rn-220 environment for geometries 1 (Geo1) and 2 (Geo2).

In principle the simulation for Rn-220 is similar as that for Rn-222 except a different diffusion length has to be considered for Rn-220. The activity concentration decreases exponentially from the inlet area. The higher decay energies, however, lead to a fundamentally different spectrum. Again two measurements are compared with the corresponding simulation for the two available housing geometries. The standard housing (Geo1) spectrum was acquired under environmental conditions of about 46\ RH, 23.4 °C and

96,861 Pa between hours 60-77 at a mean activity concentration of $8,263 \pm 332 \text{ Bq/m}^3$ for Rn-220 and $91 \pm 130 \text{ Bq/m}^3$ for Rn-222.. The bigger housing (Geo2) was calibrated during hours 60-85 at 44% RH, 24.2 °C, 96,100 Pa and a mean Rn-220 concentration of $3,916 \pm 259 \text{ Bq/m}^3$ (Rn-222: $69 \pm 117 \text{ Bq/m}^3$) was present. In **Figure 2.7.16** the acquired spectra plus the corresponding simulation is shown. The simulated spectra are again in well agreement with those measured. However, the Po-216 progeny peak is more visible than expected while the Po-212 is overestimated and Po_{wall}-212 underestimated. The reason for this is most probably the complex diffusion behavior of decay products, which is not considered in the static simulation. Nevertheless, energy position and amplitude are considered to be reasonably simulated. Further one can recognize some counts beyond the right edge of the Po-212 peak at 9.16 MeV. Actually these originate from pileups due to the beta-decay (2.25 MeV) of Bi-212 which is directly followed by a Po-212 alpha decay ($t_{1/2}=298 \text{ ns}$). If by coincidence an beta, which has enough energy to generate a signal within the detector, is followed by an alpha decay, both signals are in superposition and add to an amplitude which is higher than the one which would be induced by a single alpha. As explained the distance between successive signals needs to be about 50 μs , that they can be distinguished, which is about 166 times the half-life of Po-212. This favors the probability of pileups.

2.7.5.5. Calibration factors

The results and environmental conditions of all comparison experiments are listed in **Table 2.7.3**. It reveals that the simulated calibration factors are quite close to the experimentally determined ones, with a maximum relative deviation of about 8%. This indicates that the simple static model, taking only alpha-particle decays into account and assuming an homogenous progeny distribution within the diffusion chamber, is sufficient to obtain reasonable agreement between simulated and measured spectra for both Rn-222 and Rn-220 environments, thus validating the developed simulations.

Table 2.7.3: Comparison of calibration factors determined experimentally and by means of a Monte-Carlo simulation for two different detector housing sizes and under changing environmental conditions.

Geometry	Environment	$c f_{meas}$	$u(c f_{meas})$ $\text{Bq m}^{-3}/\text{cph}$	$c f_{sim}$	$u(c f_{sim})$ $\text{Bq m}^{-3}/\text{cph}$	rel. diff. %
	RH, °C, hPa, Bq m^{-3}					
Geo1	45%, 16.3, 968.4, $C_{222Rn} = 6,870 \pm 330$	16.9	0.2	16.8	0.7	1
Geo2		11.3	0.5	10.7	0.3	6
Geo1	24%, 23.9, 772.6, $C_{222Rn} = 1,460 \pm 150$	17.6	0.3	16.4	0.7	7
Geo2		11.3	0.5	11.2	0.3	2
Geo1	46%, 23.4, 968.6, $C_{220Rn} = 8,260 \pm 330$	14.4	0.8	14.3	0.6	1
Geo2		9.1	0.5	8.4	0.2	8

2.7.5.6. Conclusion

Further simulations on the dependence of the calibration factor on environmental condition (humidity, temperature, pressure) revealed that smaller chamber dimensions are preferable with respect to the influence of environmental changes on the calibration factor, but also due to better portability and therefore use as an individual exposure-meter. In general, for the standard housing the influence of the environment can be assumed to be negligible and hence the introduced parameters do not have to be monitored. This is an important requirement to

allow for the construction of a cost-effective measurement device, since it reduces necessary hardware components to a minimum. Simulation changing the geometry of the device implied that there is some optimization possibility with respect to the base area of the device, where an increase would provide slightly better sensitivity, on the expense of portability of the device.

2.7.6. Application

The newly developed prototypes have been tested in a variety of environments, in order to validate their functionality in practice and outside the standardized laboratory condition. Furthermore intercomparison measurements have been performed to verify measurement accuracy. For full details see [111].

2.7.6.1. Thoron field measurements

In order to demonstrate the functionality of the developed radon/thoron monitor beyond standardized laboratory conditions, where its ability to determine correct activity concentrations in mixed Rn-222/Rn-220 environments was already validated (see Section 2.7.4.5), also long term field measurements were performed.

The first field measurement was performed in the HMGU thoron experimental house [137]. This house is a miniature model (7.3 m^3) of a traditional Chinese clay house usually found in the Gansu region, China. Built from unfired clay stones and plaster it offers the possibility to control several environmental parameters important for progeny concentration measurements, such as air exchange rate and aerosol concentration. A comparison measurement with other devices (cup exposimeter, Rad7) showed that the concentrations measured with the new radon/thoron monitors developed in the frame of this work, are very similar to the ones determined by the reference. This was another verification of the validity of the results determined by the HMGU radon/thoron monitors.

Due to recent reports of elevated Po-212 concentrations levels in German clay houses [71], a field measurement was performed in a modern clay house, where clay is used as wall plastering for ecological and aesthetic reasons. The measurement period was in spring (04/28/2014 till 05/22/2014) and two radon and one radon/thoron monitors were placed in a basement bedroom. One radon monitor (V311) was placed next to the mixed gas exposimeter at 4.2 cm distance from the wall, while the other was placed in the middle of the room (V315). Both devices measured a mean radon concentration of $180 \pm 70 \text{ Bq/m}^3$ and $190 \pm 70 \text{ Bq/m}^3$, indicating a trend in the concentration level with a period of about 12 days. In **Figure 2.7.17** the acquired spectrum of the combined monitor (V404) is shown with a total number of 78 counts in the energy ROI₄ (8 to 10 MeV), that are purely attributable to Po-212 decays. In this measurement a software threshold was set that only decays which generated signal amplitudes larger than 1.8 MeV (channel 200) were recorded, which manifests in a clear edge at this point. This was done in order to reduce possible counts generated by vibrations due to shock of device. **Figure 2.7.17** demonstrates that even at this very low thoron concentration level it is still possible to measure the mean Rn-220 activity concentration reliably based on the single Po-212 peak which is not influenced by radon.

2.7.6.1.1. Bavarian clay house

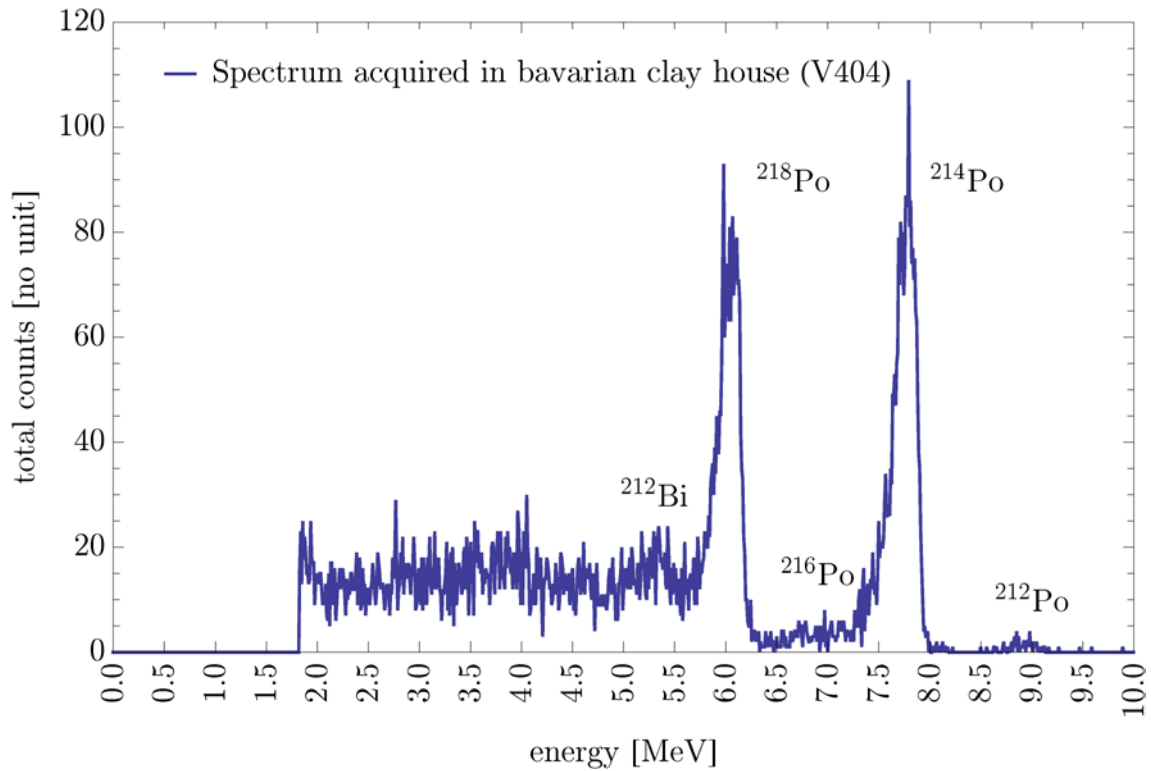


Figure 2.7.16: Spectrum acquired during a 600 h measurement in a modern Bavarian clay house. Main contribution originates from Rn-222 and its progenies, while Rn-220 is almost not present, indicated by the low Po-212 peak.

The decision threshold and the detection limit for device V404, for a measurement time $t_m=600$ h and a background count rate $cr_0=0.02$ cph ($t_0=308$ h), is about $C^*=1.6$ Bq/m³ and $C^\# = 3.8$ Bq/m³, respectively. The mean Rn-220 concentration during the measurement period was determined to be about $C_{Rn-220}=13.0\pm 3.0$ Bq/m³, where the error has been calculated by standard error propagation considering the statistical uncertainty of about 11% and the uncertainty of the calibration factor. Thus about 2 counts each hour in the radon energy ROI₁ are attributable to thoron. When considering this the resulting mean radon concentration measured by V404 was about $C_{Rn-222}=200\pm 70$ Bq/m³, in agreement with the other radon monitors. In case no correction for thoron is applied the resulting Rn-222 concentration would be about 240 ± 70 Bq/m³, thus about 20% more than the actual value, yielding a quite significant overestimation. Also it was found that the temporal course of the concentration as well as absolute values determined by all devices agree reasonably well.

2.7.7. Conclusions and outlook

In the framework of this thesis several new and unique techniques for the general topic of radon and thoron monitoring were developed. These developments include both, development of new hardware for actual measurement equipment, and detailed characterization with respect to the employed diffusion filter, sensitivity and geometry. Further software tools for simulating the calibration factor dependence on environmental parameters were established

based on the Geant4 toolkit. This led to a sound understanding of the intrinsic mechanisms determining the functionality of the device.

More specifically the sensitivity of the new radon exposimeter was improved by about a factor two compared to the previous prototype. Additionally, the sensitivity is about 3-5 times higher than that of other comparable commercially available devices. In order to improve the sensitivity and allow the discrimination of Rn-222 and Rn-220, a new amplifier and digital circuit for alpha particle spectroscopy was developed. The electronics feature low power consumption resulting in a life time of up to one month when running on battery. SPICE simulations performed for the analog circuit allowed reproduction of the actual signal behavior and revealed for established thresholds a minimum tolerance for certain electrical components, while also indicating a negligible influence on temperature. The thoron sensitivity of the newly developed device was determined to be in the same range as for radon when using an appropriate filter and diffusion chamber design.

It was shown in this thesis that thoron calibrations are less reproducible compared to radon calibrations with respect to the acquired calibration factor which shows a relative standard deviation of about 5% for radon. Participation in an international radon intercomparison campaign proofed the accuracy of the developed device to be sufficient, since the results obtained were in the range of a 7% relative deviation from the reference. After optimization of the calibration chamber, a relative standard deviation of the thoron calibration factor of about 17% was found. This increase in uncertainty is mainly attributed to an inhomogeneous thoron distribution in the calibration chamber caused by the short half-life of Rn-220, and therefore its limited diffusion length. Several filters have been investigated to identify the one most effective for thoron diffusion. This part of the study demonstrated that the employed polyurethane foam filter features about a factor two larger diffusion velocity than other cellulose based filters. Thus, similar to stagnant air, it almost introduces no obstacle for thoron gas diffusion, while it effectively stops progeny from entering the diffusion chamber. This is a necessary requirement since otherwise the calibration factor would depend additionally on the progeny deposition rates influenced by humidity, aerosol concentration, airflow and equilibrium factor of the environment. However, this also constraints the wearability of the device, since it has to be ensured that no additional layer of material (clothes) masks the inlets.

The device measures the activity concentrations of either Rn-222 or Rn-220 according to the recently released ISO 11665 standards for measurement of radioactivity in the environment. Measurements in mixed radon/thoron environments were performed at laboratory as well as naturally thoron rich environments, where a reasonable agreement with reference devices was found. The results verified the employed evaluation method.

With the measured calibration factors, the detection threshold for a new device with standard housing was determined to be $C_{\text{Rn-222}}^{\#}=44.0 \text{ Bq}\times\text{m}^{-3}/\text{cph}$ and $C_{\text{Rn-220}}^{\#}=40.0 \text{ Bq}\times\text{m}^{-3}/\text{cph}$ for radon and thoron respectively, in a one hour measurement interval. Therefore, the developed handheld device offers the unique feature to determine radon and thoron activity concentrations simultaneously with a single diffusion chamber design.

For the first time, the high energy resolution of the alpha particle spectroscopy allowed to study the effects of changing air density or housing dimension on the spectral shape. In order to theoretically verify the observed changes, both an analytic and a Geant4 based Monte-Carlo simulation was developed to compute spectra, allowing comparison to those spectra acquired experimentally with the devices. It was shown that a simple static model, taking only alpha-particle decays into account and assuming an homogenous progeny distribution within the diffusion chamber, is sufficient to obtain reasonable agreement between simulated and measured spectra for both Rn-222 and Rn-220 environments, thus validating the developed simulations. The Geant4 simulation was then utilized to systematically study the dependence of the calibration factors for both Rn-222 and Rn-220 on environmental parameters such as relative humidity, ambient temperature and pressure. The results obtained revealed that a device with smaller housing dimension is less affected by air density changes and that the relative change of the calibration factors is below 4% for an ample altitude and temperature range. In contrast, for the larger housing the calibration factor changes can exceed 31%, and thus environmental conditions have to be considered. Additionally, simulations to investigate the calibration factor as a function of the housing dimensions were used to identify the optimal housing size, while demonstrating a clear saturation region where any further increase does not enhance the sensitivity. Hence, the developed and validated simulation proved to be a valuable and fundamental tool for the further development of radon/thoron monitors.

With the provided results and simulation tools it is now possible to further optimize the portable radon/thoron monitor, with respect to size and sensitivity. More specifically, a compromise has to be found between usability and wearability, between housing size and detection limit. A reduced housing size allows for a decreased dependence of the calibration factors on environmental parameters, while losing sensitivity. Furthermore despite the developed evaluation method including alpha particle spectroscopy, which was demonstrated to be a useful method to investigate the influence of air density changes and the housing size, an alternative method for signal acquisition can be developed, including a comparator with two channels. This would allow reducing development and production costs and, as surplus, also would ensure that the thoron influence on future diffusion-chamber-based radon monitor devices can be measured and a radon concentration overestimation is avoided. Note also that the diffusion constant of the employed filter is a major factor determining the calibration coefficient for thoron. Thus, the effect of layers of clothes that may cover the diffusion filter needs to be investigated. In any case, different approaches for wearing the device on a person have to be evaluated.

Further, the thoron detection limit can be increased by exposimeters with dual diffusion chamber design, where one chamber only enables radon diffusion while the other allows for radon and thoron to enter. This method allows for a better thoron sensitivity compared to the limited region of interest evaluation method applied with spectroscopy, since the calibration factor for both isotopes is almost the same in the energy domain between 1 and 10 MeV . When integrating the dual chamber in the standard housing, the smaller individual chamber size also reduces the influence of environmental parameters on the calibration factors as well as the production costs.

Finally, a very promising possible future development, based on the methods developed in the frame of this thesis, is the design of a stationary progeny monitor, employing electrostatic progeny collection and solid state detectors for exposure measurements. According to the recently released European council directive 2013/59/EURATOM, member states shall establish national reference levels for indoor radon concentrations not higher than 300 Bq/m^3 , and ensure that an effective annual lung dose of 6 mSv due to radon or thoron progeny is not exceeded. Electrostatic progeny collection and spectroscopic measurement resolves the issue of inhomogeneous indoor thoron gas distribution, since the decay products responsible for the lung dose are homogeneously distributed, and the equilibrium factor can be determined exactly. Thus, this new development could provide the ideal means of ensuring the new directive.

2.7.8. References

- [1] S. Darby, D. Hill, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. Baysson, F. Bochicchio, H. Deo, R. Falk, F. Forastiere, M. Hakama, I. Heid, L. Kreienbrock, M. Kreuzer, F. Lagarde, I. Mäkeläinen, C. Muirhead, W. Oberaigner, G. Pershagen, A. Ruano-Ravina, E. Ruosteenoja, A. S. Rosario, M. Tirmarche, Tomásaron, L. Ek, E. Whitley, H.-E. Wichmann, and R. Doll, "Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies," *BMJ*, vol. 330, no. 7485, p. 223, Jan. 2005.
- [2] M. Tirmarche, J. Harrison, D. Laurier, E. Blanchardon, F. Paquet, and J. Marsh, "Risk of lung cancer from radon exposure: contribution of recently published studies of uranium miners," *Ann. ICRP*, vol. 41, no. 3–4, pp. 368–377, Oct. 2012.
- [3] H. Zeeb and F. Shannoun, *Handbook on indoor radon: a public health perspective*. WHO, 2009.
- [4] H. E. Wichmann, A. S. Rosario, I. M. Heid, M. Kreuzer, J. Heinrich, and L. Kreienbrock, "Increased lung cancer risk due to residential radon in a pooled and extended analysis of studies in Germany.," *Health Phys.*, vol. 88, no. 1, pp. 71–79, Jan. 2005.
- [5] L. Tomasek, A. Rogel, M. Tirmarche, N. Mitton, and D. Laurier, "Lung cancer in French and Czech uranium miners: Radon-associated risk at low exposure rates and modifying effects of time since exposure and age at exposure," *Radiat. Res.*, vol. 169, no. 2, pp. 125–137, 2008.
- [6] L. Walsh, A. Tschense, M. Schnelzer, F. Dufey, B. Grosche, and M. Kreuzer, "The influence of radon exposures on lung cancer mortality in German uranium miners, 1946–2003," *Radiat. Res.*, vol. 173, no. 1, pp. 79–90, 2010.
- [7] F. L. Karinda, "Verbesserung und Einsatz von Echtzeit-Exposimetern zur Bestimmung individueller Radonexpositionen," 2009.
- [8] UNSCEAR, *UNSCEAR 2008 Report, Vol. I: Sources of ionizing radiation. Annex A: Medical Radiation Exposures*. New York, NY: United Nations, 2010.
- [9] F. Steinhäusler, W. Hofmann, and H. Lettner, "Thoron Exposure of Man: A Negligible Issue?," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 56, no. 1–4, pp. 127–131, Jan. 1994.
- [10] S. Tokonami, "Why is ^{220}Rn (thoron) measurement important?," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 141, no. 4, pp. 335–339, Oct. 2010.
- [11] B. Shang, J. Tschiersch, H. Cui, and Y. Xia, "Radon survey in dwellings of Gansu, China: The influence of thoron and an attempt for correction," *Radiat. Environ. Biophys.*, vol. 47, pp. 367–373, 2008.
- [12] M. Sreenath Reddy, P. Yadagiri Reddy, K. Rama Reddy, K. P. Eappen, T. V. Ramachandran, and Y. S. Mayya, "Thoron levels in the dwellings of Hyderabad city, Andhra Pradesh, India," *J. Environ. Radioact.*, vol. 73, pp. 21–28, 2004.
- [13] B. Shang, H. Cui, W. Yun-yun, and B. Lei, "Study on ^{220}Rn Equilibrium Factor in China Traditional Dwellings," *At. energy Sci. Technol.*, vol. 45, no. 6, 2011.

- [14] J. McLaughlin, M. Murray, L. Curriuan, D. Pollard, V. Smith, S. Tokonami, A. Sorimachi, and M. Janik, "Long-term measurements of thoron, its airborne progeny and radon in 205 dwellings in Ireland," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 145, no. 2–3, pp. 189–193, Jan. 2011.
- [15] C. Nuccetelli and F. Bochicchio, "The Thoron Issue: Monitoring Activities, Measuring Techniques and Dose Conversion Factors," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 78, no. 1, pp. 59–64, Jan. 1998.
- [16] D. Nikezić and K. N. Yu, "The influence of thoron and its progeny on radon measurements with CR39 detectors in diffusion chambers," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 419, no. 1, pp. 175–180, Dec. 1998.
- [17] S. Tokonami, M. Yang, and T. Sanada, "Contribution from thoron on the response of passive radon detectors.," *Health Phys.*, vol. 80, no. September 2000, pp. 612–615, 2001.
- [18] C. G. Sumesh, A. Vinod Kumar, R. M. Tripathi, R. N. Nair, and V. D. Puranik, "Impact of flow rate on sensitivity of semiconductor type thoron monitor," *Radiat. Meas.*, vol. 59, pp. 241–244, 2013.
- [19] S. Tokonami, M. Yang, H. Yonehara, and Y. Yamada, "Simple, discriminative measurement technique for radon and thoron concentrations with a single scintillation cell," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 73, no. 1, p. 69, 2002.
- [20] S. Tokonami, H. Takahashi, Y. Kobayashi, W. Zhuo, and E. Hulber, "Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 76, pp. 1–5, 2005.
- [21] ISO, *ISO 11665-5:2012 - Measurement of radioactivity in the environment -- Air: radon-222 - Part 5: Continuous measurement method of the activity concentration*. International Organization for Standardization, 2012.
- [22] ISO, *Determination of the Characteristic Limits (Decision Threshold, Detection Limit and Limits of the Confidence Interval) for Measurements of Ionizing Radiation—Fundamentals and Application*. 2010.
- [23] E. Rutherford, "I. A radio-active substance emitted from thorium compounds," *Philos. Mag. Ser. 5*, vol. 49, no. 296, pp. 1–14, 1900.
- [24] J. R. Partington, "Discovery of radon," 1957.
- [25] J. K. Tuli, *Nuclear wallet cards*. BNL. N.-Y, 2005.
- [26] B. Sarkar, *Heavy Metals In The Environment*. CRC Press, 2002.
- [27] C. R. Cothorn and J. E. Smith, *Environmental Radon*. Springer, 1987.
- [28] J. Kemski, A. Siehl, R. Stegemann, and M. Valdivia-Manchego, "Mapping the geogenic radon potential in Germany," *Sci. Total Environ.*, vol. 272, no. 1–3, pp. 217–230, May 2001.
- [29] J. A. Gunby, S. C. Darby, J. C. Miles, B. M. Green, and D. R. Cox, "Factors affecting indoor radon concentrations in the United Kingdom.," *Health Phys.*, vol. 64, no. 1, pp. 2–12, 1993.
- [30] L. Kreienbrock and A. Siehl, "Multiple statistische Analyse von Radon Erhebungsmessungen in der Bundesrepublik Deutschland," *Umweltradioaktivität Geol. und Ökologie im Kontext. Ernst Sohn, VCH, Berlin*, pp. 299–310, 1996.
- [31] C.R. Phillips, A. Khan, and H.M.Y Leung, "The nature and determination of the unattached fraction of radon and thoron progeny," J. Wiley, 1988.
- [32] J. Porstendörfer and A. Reineking, "Radon: characteristics in air and dose conversion factors," *Health Phys.*, vol. 76, no. 3, pp. 300–305, Mar. 1999.
- [33] J. Porstendörfer, G. Röbig, and A. Ahmed, "Experimental determination of the attachment coefficients of atoms and ions on monodisperse aerosols," *J. Aerosol Sci.*, vol. 10, no. 1, pp. 21–28, 1979.
- [34] J. Porstendörfer, "Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air," *J. Aerosol Sci.*, vol. 25, no. 2, pp. 219–263, Mar. 1994.
- [35] T. Haninger, *Messungen der Größenverteilungen von Radon-Folgeprodukten zur Verbesserung der Quantifizierung des durch Radonexpositionen verursachten Lungenkrebsrisikos*. GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, 1997.
- [36] J. Stanford and S. Vardeman, *Statistical Methods for Physical Science*. Academic Press, 1994.

- [37] H. Bateman, *Partial Differential Equations*. Read Books, 2008.
- [38] J. Magill and J. Galy, *Radioactivity Radionuclides Radiation*. Springer, 2005.
- [39] M. Curie, *Die Radioaktivität*. Salzwasser-Verlag GmbH, 2012.
- [40] R. P. Chauhan, M. Nain, and K. Kant, "Radon diffusion studies through some building materials: Effect of grain size," *Radiat. Meas.*, vol. 43, Supple, pp. S445–S448, Aug. 2008.
- [41] K. J. Renken and T. Rosenberg, "Laboratory measurements of the transport of radon gas through concrete samples.," *Health Phys.*, vol. 68, no. 6, pp. 800–808, Jun. 1995.
- [42] N. L. Nagda, *Radon: Prevalence, Measurements, Health Risks, and Control*. ASTM International, 1994.
- [43] E. L. Cussler, *Diffusion: Mass Transfer in Fluid Systems*. Cambridge University Press, 2009.
- [44] K. Rovenska and M. Jiránek, "1st International comparison measurement on assessing the diffusion coefficient of radon," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 145, no. 2–3, pp. 127–132, May 2011.
- [45] T. V. Ramachandran, B. Y. Lalit, and U. C. Mishra, "Measurement of radon permeability through some membranes," *Int. J. Radiat. Appl. Instrumentation. Part D. Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, vol. 13, no. 1, pp. 81–84, 1987.
- [46] M. Jiránek and A. Froňka, "New technique for the determination of radon diffusion coefficient in radon-proof membranes," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 130, no. 1, pp. 22–25, Jun. 2008.
- [47] A. Sorimachi, S. Tokonami, Y. Omori, and T. Ishikawa, "Performance test of passive radon–thoron discriminative detectors on environmental parameters," *Radiat. Meas.*, vol. 47, no. 6, pp. 438–442, Jun. 2012.
- [48] A. Sorimachi, H. Takahashi, and S. Tokonami, "Influence of the presence of humidity, ambient aerosols and thoron on the detection responses of electret radon monitors," *Radiat. Meas.*, vol. 44, no. 1, pp. 111–115, 2009.
- [49] M. Wilkening, "Radon - Soil to Air," Elsevier, 1990, p. 46.
- [50] W. Jacobi, "Activity and Potential Alpha-energy of 222Radon and 220Radon daughters in Different Air Atmospheres," *Health Phys.*, vol. 22, no. 5, pp. 441–450, 1972.
- [51] J. Porstendörfer, A. Wicke, and A. Schraub, "The influence of exhalation, ventilation and deposition processes upon the concentration of radon (222Rn), thoron (220Rn) and their decay products in room air," *Health Phys.*, vol. 34, no. 5, pp. 465–473, 1978.
- [52] T. Yamasaki, "Thoron Progeny concentrations in living space." 1995.
- [53] L. Tommasino, S. Tokonami, and P. M. Tommasino, "The measurements of thoron, radon and their decay products thanks to Pinocchio, Tengu and Trolls," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 141, no. 4, pp. 340–345, Oct. 2010.
- [54] A. K. Narula, S. K. Goyal, S. Saini, R. P. Chauhan, and S. K. Chakarvarti, "Calculation of radon diffusion coefficient and diffusion length for different building construction materials," *Indian J. Phys.*, vol. 83, no. 8, pp. 1171–1175, 2009.
- [55] V. Urošević and D. Nikezi, "Radon transport through concrete and determination of its diffusion coefficient," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 104, no. 1, pp. 65–70, Jan. 2003.
- [56] A. Malki, N. Lavi, M. Moinester, H. Nassar, E. Neeman, E. Piasetzky, and V. Steiner, "Measurement of radon diffusion length in thin membranes," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 150, no. 4, pp. 434–440, Jul. 2012.
- [57] J. Sogaard-Hansen and A. Damkjær, "Determining 222Rn Diffusion Lengths in Soils and Sediments," *Health Phys.*, vol. 53, no. 5, pp. 455–459, 1987.
- [58] G. Dubois, P. Bossew, T. Tollefsen, and M. De Cort, "First steps towards a European atlas of natural radiation: status of the European indoor radon map," *J. Environ. Radioact.*, vol. 101, no. 10, pp. 786–798, Oct. 2010.
- [59] G. Dubois, *An Overview of Radon Surveys in Europe*. Italy: Office for Official Publication of the European Communities, 2005.
- [60] G. Kropat, F. Bochud, M. Jaboyedoff, J.-P. Laedermann, C. Murith, M. Palacios, and S. Baechler, "Major influencing factors of indoor radon concentrations in Switzerland," *J. Environ. Radioact.*, vol. 129, pp. 7–22, Mar. 2014.

- [61] S. Menzler, A. Schaffrath Rosario, H. E. Wichmann, and L. Kreienbrock, "Abschätzung des attributablen Lungenkrebsrisikos in Deutschland durch Radon in Wohnungen," *ecomed Medizin*, 2006.
- [62] I. Brüske-Hohlfeld and L. K. H.-E. Wichmann, "Lungenkrebs durch Radon," *mensch und umwelt*, no. 18, Aug. 2006.
- [63] Strahlenschutzkommission, "Attributives Lungenkrebsrisiko durch Radon Expositionen in Wohnungen," *SSK*, Jun. 2006.
- [64] W. W. Nazaroff and A. V. Nero, *Radon and its decay products in indoor air*. J. Wiley, 1988.
- [65] V. Urosevic, D. Nikezic, and S. Vulovic, "A theoretical approach to indoor radon and thoron distribution," *J. Environ. Radioact.*, vol. 99, no. 12, pp. 1829–1833, 2008.
- [66] J. C. Anthony, "Lung dosimetry," Wiley-Interscience, 1988, pp. 259–309.
- [67] S. D. Schery, "Thoron in the Environment," *J. Air Waste Manage. Assoc.*, vol. 40, no. 4, pp. 493–497, 1990.
- [68] J. Wiegand, S. Feige, X. Quingling, U. Schreiber, K. Wieditz, C. Wittmann, and L. Xiarong, "Radon and thoron in cave dwellings (Yan'an, China)," *Health Phys.*, vol. 78, no. 4, pp. 438–444, 2000.
- [69] O. Meisenberg and J. Tschiersch, "Thoron in indoor air: Modeling for a better exposure estimate," *Indoor Air*, vol. 21, pp. 240–252, 2011.
- [70] G. Keller, K. H. Folkerts, and H. Muth, "Activity concentrations of ²²²Rn, ²²⁰Rn, and their decay products in german dwellings, dose calculations and estimate of risk," *Radiat. Environ. Biophys.*, vol. 20, no. 4, pp. 263–274, Dec. 1982.
- [71] S. Gierl, O. Meisenberg, P. Feistenauer, J. Tschiersch, and H. Z. Mu, "THORON AND THORON PROGENY MEASUREMENTS IN GERMAN CLAY HOUSES," pp. 1–4, 2014.
- [72] W. Zhou, T. Iida, J. Moriizumi, T. Aoyagi, and I. T. (invited), "Simulation of the Concentrations and Distributions of Indoor Radon and Thoron," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 93, no. 4, pp. 357–367, Feb. 2001.
- [73] E. O. Knutson, W. Nazaroff, and A. Nero, "Modeling indoor concentrations of radon's decay products. Radon and its Decay Products in Indoor Air. J.," *J. Wiley Sons, New York*, 1988.
- [74] O. Meisenberg, "Specific properties of a model of thoron and its decay products in indoor atmospheres," *Nukleonika*, vol. 55, no. June 2009, pp. 463–469, 2010.
- [75] ICRP, "ICRP 65 - Radon-222 at Home and at Work," *ICRP Publ.*, vol. 65, 1993.
- [76] UNSCEAR, *Sources and effects of ionizing radiation: sources*, vol. 1. New York: United Nations Publications, 2000.
- [77] J. W. Marsh, J. D. Harrison, D. Laurier, E. Blanchardon, F. Paquet, and M. Tirmarche, "Dose conversion factors for radon: recent developments.," *Health Phys.*, vol. 99, no. Icrp 1991, pp. 511–516, 2010.
- [78] T. Domanski, W. Chruscielewski, and K. Dobrzynska, "Equilibrium between radon and its daughters in the atmosphere of certain mines," 1979.
- [79] J. H. Lubin, *Radon and lung cancer risk: a joint analysis of 11 underground miners studies*. US Dept. of Health and Human Services, Public Health Service, National Institutes of Health, 1994.
- [80] BEIR, *Health effects of exposure to radon (BEIR VI)*, vol. 6. Washington, D.C.: National Academies Press, 1999.
- [81] UNSCEAR, *Effects of Ionizing Radiation: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation-UNSCEAR 2006 Report, Volume II-Report to the General Assembly, with Scientific Annexes C, D, and E*, vol. 2. United Nations Publications, 2009.
- [82] J. H. Lubin, Z. Y. Wang, J. D. Boice, Z. Y. Xu, W. J. Blot, L. De Wang, and R. a. Kleinerman, "Risk of lung cancer and residential radon in China: Pooled results of two studies," *Int. J. Cancer*, vol. 109, pp. 132–137, 2004.
- [83] S. Darby, D. Hill, H. Deo, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. Baysson, F. Bochicchio, R. Falk, S. Farchi, A. Figueiras, M. Hakama, I. Heid, H. Hunter, L. Kreienbrock, M. Kreuzer, F. Lagarde, I. Mäkeläinen, C. Muirhead, W. Oberaigner, G. Pershagen, E. Ruostenoja, A. S. Rosario, M.

Tirmarche, L. Tomásek, E. Whitely, H. E. Wichmann, and R. Doll, "Residential radon and lung cancer--detailed results of a collaborative analysis of individual data on 7148 persons with lung cancer and 14,208 persons without lung cancer from 13 epidemiologic studies in Europe.," *Scand. J. Work. Environ. Health*, vol. 32 Suppl 1, pp. 1–83, 2006.

[84] N. Hunter, C. R. Muirhead, L. Tomasek, M. Kreuzer, D. Laurier, K. Leuraud, M. Schnelzer, B. Grosche, V. Placek, A. Heribanova, and M. Timarche, "Joint Analysis of Three European Nested Case-control Studies of Lung Cancer among Radon Exposed Miners: Exposure Restricted to Below 300 WLM," *Health Phys.*, vol. 104, no. 3, pp. 282–292, 2013.

[85] B. L. Cohen, "Test of the linear-no threshold theory of radiation carcinogenesis for inhaled radon decay products," *Health Phys.*, vol. 68, no. 2, pp. 157–174, Feb. 1995.

[86] B. L. Cohen, "Lung cancer rate vs. mean radon level in U.S. counties of various characteristics," *Health Phys.*, vol. 72, no. 1, pp. 114–119, Jan. 1997.

[87] C. A. Stidley and J. M. Samet, "A Review of Ecologic Studies of Lung Cancer and Indoor Radon.," *Health Phys.*, vol. 65, no. 3, pp. 234–251, Sep. 1993.

[88] C. A. Stidley and J. M. Samet, "Assessment of Ecologic Regression in the Study of Lung Cancer and Indoor Radon," *Am. J. Epidemiol.*, vol. 139, no. 3, pp. 312–322, Jan. 1994.

[89] C. W. J. Heath, P. D. Bond, D. G. Hoel, and C. B. Meinhold, "Residential radon exposure and lung cancer risk: commentary on Cohen's county-based study," *Health Phys.*, vol. 87, no. 6, pp. 647–655; discussion 656–658, Dec. 2004.

[90] K. Becker, "Health effects of high radon environments in central Europe: another test for the LNT hypothesis?," *Nonlinearity Biol. Toxicol. Med.*, vol. 1, no. 1, pp. 3–35, 2003.

[91] P. Russbuedt, *Design und Analyse kompakter, Diodengepumter Femtosekunden-laser*. BoD – Books on Demand, 2005.

[92] A. C. George, "State-of-the-art instruments for measuring radon/thoron and their progeny in dwellings-a review," *Health Phys.*, vol. 70, no. 4, pp. 451–463, 1996.

[93] R. Mishra and Y. S. Mayya, "Study of a deposition-based direct thoron progeny sensor (DTPS) technique for estimating equilibrium equivalent thoron concentration (EETC) in indoor environment," *Radiat. Meas.*, vol. 43, pp. 1408–1416, 2008.

[94] R. Mishra, B. K. Sapra, and Y. S. Mayya, "Multi-parametric approach towards the assessment of radon and thoron progeny exposures," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 2, p. 022105, Feb. 2014.

[95] M. Janik, T. Ishikawa, Y. Omori, and N. Kavasi, "Invited Article: Radon and thoron intercomparison experiments for integrated monitors at NIRS, Japan," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 2, p. 022001, Feb. 2014.

[96] L. Jw, H. L, and E. Sm, "Adsorption of ^{222}Rn by open-faced and diffusion-barrier canisters at different conditions of temperature and humidity.," *Health Phys.*, vol. 66, no. 1, pp. 63–71, Jan. 1994.

[97] A. Vargas and X. Ortega, "Influence of environmental changes on integrating radon detectors: results of an intercomparison exercise," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 123, no. 4, pp. 529–536, Mar. 2007.

[98] D. Arnold and K. N. Yu, "Uncertainty in radon measurements with CR39 detector due to unknown deposition of ^{218}Po ," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 450, no. 2–3, pp. 568–572, Aug. 2000.

[99] D. Nikezic and K. N. Yu, "Computer simulation of radon measurements with nuclear track detectors," *Comput. Phys. Res. trends*, vol. 3, pp. 119–150, 2007.

[100] Y. Yoshtoa, K. Kitano, M. Murata, and S. Moriyasu, "Comparison of performance characteristics of some filters using Thoron daughters as radioactive aerosol," 1968.

[101] R. G. Stafford and H. J. Ettinger, "Filter efficiency as a function of particle size and velocity," *Atmos. Environ.*, vol. 6, no. 5, pp. 353–362, 1972.

[102] ISO, *ISO 16641:2014 - Measurement of radioactivity in the environment -- Air -- Radon 220: Integrated measurement methods for the determination of the average activity concentration using passive solid-state nuclear track detectors*. 2014.

- [103] J. W. Thomas and P. C. LeClare, "A study of the two-filter method for radon-222.," *Health Phys.*, vol. 18, no. 2, pp. 113–22, 1970.
- [104] G. Somogyi, B. Paripás, and Z. Varga, "Measurement of radon, radon daughters and thoron concentrations by multi-detector devices," *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, vol. 8, no. 1–4, pp. 423–427, 1984.
- [105] W. Zhuo, S. Tokonami, H. Yonehara, and Y. Yamada, "A simple passive monitor for integrating measurements of indoor thoron concentrations," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 73, no. 8, pp. 2877–2881, Aug. 2002.
- [106] E. García-Toraño, "Current status of alpha-particle spectrometry," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 64, no. 10–11, pp. 1273–1280, Oct. 2006.
- [107] J. Bigu, "RADON DAUGHTER AND THORON DAUGHTER DEPOSITION S = = E Vu ' iJu ' iCi + j , i," vol. 16, pp. 157–165, 1985.
- [108] A. Fröjdh, G. Thungström, C. Fröjdh, and S. Petersson, "An optimized system for measurement of radon levels in buildings by spectroscopic measurement of radon progeny," *J. Instrum.*, vol. 6, no. 12, p. C12018, Dec. 2011.
- [109] A. Sorimachi, T. Ishikawa, M. Janik, and S. Tokonami, "Quality assurance and quality control for thoron measurement at NIRS," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 141, no. 4, pp. 367–370, Jan. 2010.
- [110] C. G. Sumesh, A. V. Kumar, R. M. Tripathi, and V. D. Puranik, "Comparison study and thoron interference test of different radon monitors," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 153, no. 3, pp. 309–315, Mar. 2013.
- [111] J. Irlinger, "Development of an electronic monitor for the determination of individual radon and thoron exposure," 2015.
- [112] M. Wielunski, R. Schütz, E. Fantuzzi, A. Pagnamenta, W. Wahl, J. Palfálvi, P. Zombori, A. Andrási, H. Stadtmann, and C. Schmitzer, "Study of the sensitivity of neutron sensors consisting of a converter plus Si charged-particle detector," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 517, no. 1–3, pp. 240–253, Jan. 2004.
- [113] P. F. Ostwald and J. Munoz, *Manufacturing Processes And Systems, 9Th Ed.* Wiley India Pvt. Limited, 2008.
- [114] M. P. Unterweger, "The NIST Primary Radon-222 Measurement System," *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, vol. 95, no. 2, 1990.
- [115] BIPM, "Bureau International des Poids et Mesures - standards," Jun-2014. [Online]. Available: <http://www.bipm.org/en/convention/wmd/2004/standards.html>. [Accessed: 11-Jun-2014].
- [116] J. L. Picolo, "Absolute measurement of radon 222 activity," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 369, no. 2–3, pp. 452–457, Feb. 1996.
- [117] D. Linzmaier and A. Röttger, "Development of a low-level radon reference atmosphere," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 81, pp. 208–211, Nov. 2013.
- [118] A. Röttger, A. Honig, R. Dersch, O. Ott, and D. Arnold, "A primary standard for activity concentration of 220Rn (thoron) in air," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, pp. 1292–1296, 2010.
- [119] A. Paul, A. Honig, S. Röttger, and U. Keyser, "Measurement of radon and radon progenies at the German radon reference chamber," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 52, no. 3, pp. 369–375, 2000.
- [120] A. Röttger, A. Honig, and D. Arnold, "The German thoron progeny chamber-Concept and application," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 67, pp. 839–842, 2009.
- [121] J.-M. Lee, K. H. Ahn, H. S. Chai, and T. S. Park, "Development of radon calibration chamber at KRIS," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 61, no. 2–3, pp. 237–241, Aug. 2004.
- [122] NRPP, "National Radon Proficiency Program - Measurement & Lab Calibration," Jun-2014. [Online]. Available: http://www.nrpp.info/measurement_lab_calibration.shtml. [Accessed: 12-Jun-2014].
- [123] EPA, "Radon Decay Product Measurement Device Protocols," *Doc. EPA*, vol. 402, 1992.
- [124] H. Möre, R. Falk, and L. Nyblom, "A bench-top calibration chamber for 220Rn activity in air," *Environ. Int.*, vol. 22, Supple, pp. 1147–1153, 1996.
- [125] Durridge, "RAD7 RADON DETECTOR User Manual." 2014.

- [126] M. Urban, "Passive one-element track etch dosimeter for simultaneous measurement of radon, thoron and decay products in air," *Int. J. Radiat. Appl. Instrumentation. Part D. Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, vol. 12, no. 1–6, pp. 685–688, 1986.
- [127] J. Rickards, J.-I. Golzarri, and G. Espinosa, "A Monte Carlo study of radon detection in cylindrical diffusion chambers," *J. Environ. Radioact.*, vol. 101, no. 5, pp. 333–337, 2010.
- [128] C. Zhao, W. Zhuo, D. Fan, Y. Yi, and B. Chen, "Effects of atmospheric parameters on radon measurements using alpha-track detectors," *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 2, p. 022101, Feb. 2014.
- [129] W. L. Dunn and J. K. Shultis, *Exploring Monte Carlo Methods*. Elsevier, 2011.
- [130] S. Agostinelli, J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrant, F. Behner, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytracsek, G. Cooperman, G. Cosmo, P. Degtyarenko, A. Dell'Acqua, G. Depaola, D. Dietrich, R. Enami, A. Feliciello, C. Ferguson, H. Fesefeldt, G. Folger, F. Foppiano, A. Forti, S. Garelli, S. Giani, R. Giannitrapani, D. Gibin, J. J. Gomez Cadenas, I. Gonzalez, G. Gracia Abril, G. Greeniaus, W. Greiner, V. Grichine, A. Grossheim, S. Guatelli, P. Gumplinger, R. Hamatsu, K. Hashimoto, H. Hasui, A. Heikkinen, A. Howard, V. Ivanchenko, A. Johnson, F. W. Jones, J. Kallenbach, N. Kanaya, M. Kawabata, Y. Kawabata, M. Kawaguti, S. Kelner, P. Kent, A. Kimura, T. Kodama, R. Kokoulin, M. Kossov, H. Kurashige, E. Lamanna, T. Lampen, V. Lara, V. Lefebure, F. Lei, M. Liendl, W. Lockman, F. Longo, S. Magni, M. Maire, E. Medernach, K. Minamimoto, P. Mora de Freitas, Y. Morita, K. Murakami, M. Nagamatsu, R. Nartallo, P. Nieminen, T. Nishimura, K. Ohtsubo, M. Okamura, S. O'Neale, Y. Oohata, K. Paech, J. Perl, A. Pfeiffer, M. G. Pia, F. Ranjard, A. Rybin, S. Sadilov, E. di Salvo, G. Santin, T. Sasaki, N. Savvas, Y. Sawada, S. Scherer, S. Sei, V. Sirotenko, D. Smith, N. Starkov, H. Stoecker, J. Sulkimo, M. Takahata, S. Tanaka, E. Tcherniaev, E. Safai Tehrani, M. Tropeano, P. Truscott, H. Uno, L. Urban, P. Urban, M. Verderi, A. Walkden, W. Wander, H. Weber, J. P. Wellisch, T. Wenaus, D. C. Williams, D. Wright, T. Yamada, H. Yoshida, and D. Zschiesche, "GEANT4 - A simulation toolkit," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 506, no. 3, pp. 250–303, Jul. 2003.
- [131] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-To Approach*. Springer, 1994.
- [132] D. Pressyanov, I. Rusinov, and G. Simeonov, "Radon progeny deposition in track-detection diffusion chambers," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 435, no. 3, pp. 509–513, Oct. 1999.
- [133] J. B. Dixit, *Solutions to Programming in C and Numerical Analysis*. Firewall Media, 2006.
- [134] X. G. Xu and K. F. Eckerman, *Handbook of Anatomical Models for Radiation Dosimetry*. CRC Press, 2009.
- [135] M. Janik, S. Tokonami, T. Kovács, N. Kávási, C. Kranrod, A. Sorimachi, H. Takahashi, N. Miyahara, and T. Ishikawa, "International intercomparisons of integrating radon detectors in the NIRS radon chamber," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 67, no. 9, pp. 1691–1696, Sep. 2009.
- [136] K. Jílek, M. Hýža, L. Kotík, J. Thomas, and L. Tomášek, "International Intercomparison of Measuring Instruments for Radon Thoron Gas and Radon Short-Lived Daughter Products in the Nрпи Prague," *Radiat. Prot. Dosimetry*, p. ncu079, Apr. 2014.
- [137] J. Tschiersch and O. Meisenberg, "The HMGU thoron experimental house: A new tool for exposure assessment," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 141, pp. 395–399, 2010.

2.8 Arbeitspaket 4.3: Innenraumexposition durch Thoron

O. Meisenberg, S. Burgert, J. Tschiersch, Institut für Strahlenschutz

2.8.1 Einleitung

Bereits seit Jahrzehnten ist das radioaktive Edelgas Radon als Grund für einen bedeutenden Beitrag zur Strahlenexposition des Menschen Gegenstand der Forschung im Strahlenschutz. In der Vergangenheit konzentrierte sich die Forschung auf das Isotop mit der längsten Halbwertszeit (3,8 Tage), ^{222}Rn , für das die Kurzbezeichnung Radon üblich ist. Das Isotop ^{220}Rn (kurz Thoron) aus der Thorium-Zerfallsreihe wurde häufig vernachlässigt oder nur als Neben-aspekt von Radonmessungen berücksichtigt, weil es aufgrund seiner vergleichsweise kurzen Halbwertszeit von 55,6 Sekunden nur aus dünnen, oberflächlichen Schichten des Bodens oder von Baumaterial die Innenraumluft von Gebäuden erreichen kann und durch Diffusionsbarrieren wie ein Gebäudefundament zurückgehalten wird. Jedoch wurden vor einigen Jahren erhöhte Thoron-Konzentrationen in Häusern gefunden, die aus ungebranntem Lehm gebaut sind oder als Höhlen in Lehmboden gegraben sind (Sreenath Reddy et al., 2004; Wiegand et al., 2000; Shang et al., 2008). In den Wohnhöhlen des Zentralchinesischen Lössplateaus wurde der Beitrag von Thoron und seiner Folgeprodukte zur Inhalationsdosis auf etwa 50 % geschätzt (Shang et al., 2005). Häuser, in denen solches Material an den Oberflächen des Innenraums verwendet wird, sind auf Grundlage dieser Ergebnisse mögliche Orte einer signifikanten Thoron-Exposition.

Ungebrannter Lehm ist ein Baustoff, der in den meisten Gebieten der Erde weit verbreitet ist. In Deutschland wurde Lehm traditionell vor allem in Fachwerkhäusern zur Ausfüllung der Gefache in der Holzständerkonstruktion verwendet. Häuser aus Lehmsteinen, Stampflehm und Wellerlehm sind weitere Beispiele für die Verwendung von Lehm als Baustoff in älteren Gebäuden. Im modernen Lehmbau, der aufgrund seiner Zutraglichkeit für ein gesundes Wohnklima und seiner ökologischen Vorteile seit einigen Jahren Bedeutung besitzt, werden dagegen häufig Lehmputze oder Lehmbauplatten auf einer tragenden Konstruktion aus anderen Baustoffen verwendet. Der Bestand an Häusern, in denen Lehm aus Baustoff vorhanden ist, in Deutschland wird auf zwei Millionen geschätzt (Schreckenbach, 2004).

Thoron ist Teil der bei ^{232}Th beginnenden Thorium-Zerfallsreihe und unmittelbares Folgeprodukt von ^{224}Ra . In der Zerfallsreihe folgen ihm eine Reihe radioaktiver Isotope von Schwermetallen (**Abbildung 2.8.1**), die im Gegensatz zum Edelgas Thoron bei einer Inhalation an den Wänden des Atemtrakts deponieren können. Wie beim Radon tragen deshalb die Folgeprodukte einen wesentlich größeren Beitrag zur Inhalationsdosis bei als das Gas. Aufgrund ihrer vergleichsweise langen Halbwertszeit besitzen dabei ^{212}Pb und ^{212}Bi die größte Bedeutung für die Dosimetrie; physikalische Prozesse in der Luft wie eine Anlagerung an Aerosolteilchen oder eine Deposition auf Oberflächen wirken aus demselben Grund an diesen Folgeprodukten am stärksten.

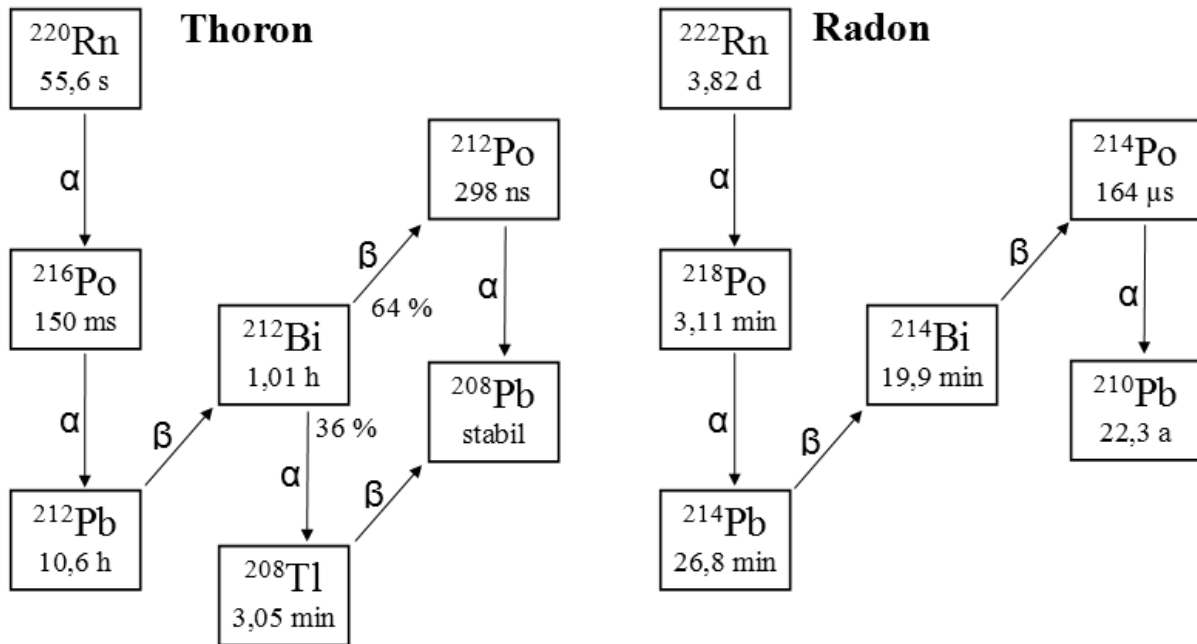


Abbildung 2.8.1: Schema der Zerfallsreihen von Thoron und Radon. Die wichtigsten Unterschiede für das Verhalten im Innenraum, für Messmethoden und für die Dosimetrie sind die deutlich kürzere Halbwertszeit des Thorons gegenüber der von Radon und die deutlich längeren Halbwertszeiten der Folgeprodukte von Thoron (vor allem ^{212}Pb) im Vergleich zu denen von Radon.

Primäres Ziel des Arbeitspakets ist die Abschätzung der Thoron-Exposition und des dadurch verursachten Beitrags zur Inhalationsdosis der Bevölkerung in Deutschland. Ausgehend vom Stand der Wissenschaft zu Beginn der Arbeiten wurden zur Erreichung dieses Ziels folgende Fragen beantwortet:

- In welchen Konzentrationen treten Thoron und seine Folgeprodukte in einer repräsentativen Auswahl einiger Häuser, in denen Lehm als Baustoff verwendet wird, auf?
- Reicht es für eine Bestimmung der Exposition gegenüber der Zerfallsreihe des Thorons so, dass daraus der Beitrag zur Inhalationsdosis berechnet werden kann, aus, die Konzentration des Thorons zu messen, oder müssen dafür die dosisverursachenden Folgeprodukte gemessen werden?
- Welche Faktoren beeinflussen die Exhalation von Thoron aus Lehmen?

2.8.2. Material und Methoden

2.8.2.1 Auswahl von Wohnhäusern

Durch persönliche Kontakte zu den Besitzern als auch nach Anfragen aus der Bevölkerung wurden 17 Gebäude in Bayern und Schleswig-Holstein für Messungen von Thoron und seinen Folgeprodukten ausgewählt (**Tabelle 2.8.1**). Die Mehrzahl der Gebäude sind Wohnhäuser. Die Auswahl der Häuser erfolgte alleine aufgrund ihrer Eigenschaft, dass in ihnen Lehm als

oberflächliches Baumaterial zumindest für einzelne Wände vorhanden war. Über diese bauliche Eigenschaft hinaus wurden also insbesondere keine Risikohäuser, in denen mit besonders hohen Konzentrationen hätte gerechnet werden müssen, ausgewählt. Mit Ausnahme des leerstehenden Haus A5, einem Fachwerk-Bauernhaus aus dem 18. Jahrhundert, wurden die Häuser während der Messungen von den Bewohnern bzw. Besitzern normal genutzt.

In diesen Häusern konnten verschiedene Messmethoden, von passiven Messungen von Thoron bis hin zu umfangreichen aktiven und passiven Messungen (auch zusammen mit AP 4.2) bei verschiedenen Bedingungen (Detailmessungen), angewendet werden.

Tabelle 2.8.1: Liste der Häuser (Alt- und Neubauten), in denen Messungen durchgeführt wurden. Die angewendeten Messmethoden umfassen passive Messungen von Thoron-Gas („Gas“), von Thoron-Folgeprodukten („Folgeprodukte“) und aktive und passive Messungen von Thoron und seinen Folgeprodukten bei verschiedenen Bedingungen („Detail“). In einem Haus wurde auch das Exposimeter, das in AP 4.2 entwickelt worden ist, eingesetzt („Exposimeter“).

Nr.	Bautechnik	Nutzung	Messmethoden
A1	Fachwerk	Wohnhaus	Gas und Folgeprodukte
A2	Fachwerk	Wohnhaus	Gas und Folgeprodukte
A3	Fachwerk	öffentliches Gebäude	Gas und Folgeprodukte
A4	Fachwerk	Wohnhaus	Gas und Folgeprodukte
A5	Fachwerk	Wohnhaus (leerstehend)	Detail, Exposimeter
A6	Lehmputz	Wohnhaus	Gas und Folgeprodukte
N1	Lehmputz	Wohnhaus	Gas und Folgeprodukte
N2	Lehmputz	Wohnhaus	Detail
N3	Lehmputz	Berghütte	Gas und Folgeprodukte
N4	Lehmputz	Wohnhaus	Gas
N5	Lehmputz	Wohnhaus	Gas
N6	Lehmputz	Wohnhaus	Gas
N7	Lehmputz	Wohnhaus	Gas
N8	Lehmputz	Wohnhaus	Gas
N9	Lehmputz	Geschäftsgebäude	Gas
N10	gemischt Lehmsteine, -putz, -bauplatten	Wohnhaus	Gas
N11	Lehmsteine	Geschäftsgebäude	Gas

2.8.2.2 Aktive Messung der Konzentration von Thoron-Folgeprodukten

Working-Level-Monitore WLM (ein Gerät Tracerlab, Köln und ein Prototyp; Peter, 1994; Meisenberg und Tschiersch, 2009) wurden für Messungen der Luftkonzentration der Folgeprodukte von Radon und Thoron gesamt und unangelernt verwendet. In diesen Geräten werden Aerosolteilchen auf einem Substrat bei einer Luftflussrate von 2,5 l/min gesammelt. Die Aktivitäten der Alphateilchen emittierenden Folgeprodukte auf dem Filter werden online in einem PIPS-Alpha-spektrometer bestimmt. Sie sind ein Maß für die Luftkonzentrationen der Nuklide.

Zur Messung der Gesamtkonzentration der Folgeprodukte wurde ein Membranfilter als Sammelsubstrat verwendet. Für die Messung der Konzentration unangelernter Folgeprodukte

wurde ein Drahtgitter mit einer Maschenweite von 635 μm verwendet; bei der gegebenen Luftflussrate ist die Abscheidewahrscheinlichkeit für Aerosolteilchen im Größenbereich der angelagerten Folgeprodukte vernachlässigbar, während sie im Größenbereich der unangelagerten Folgeprodukte bei etwa 40 % liegt.

2.8.2.3 Passive Messung der Konzentration von Thoron-Folgeprodukten, Optimierung und Test eines integrierenden Folgeprodukt-Messgeräts

Ausgehend von der Hypothese, für eine Abschätzung des Dosisbeitrags durch Inhalation von Thoron-Folgeprodukten sei eine Messung der Thoron-Konzentration nicht aussagekräftig, entstand der Bedarf an einem Messgerät für die Luftkonzentration von Thoron-Folgeprodukten, das für den Einsatz im Wohnumfeld geeignet ist. Im Laborumfeld übliche Messgeräte für Thoron-Folgeprodukte, nämlich Working-Level-Monitore, besitzen diese Eigenschaft nicht, weil sie durch den Einsatz einer Pumpe nicht geräuschlos arbeiten und eines regelmäßigen Austauschs des Sammelfilters bedürfen. Deshalb wurde am Helmholtz Zentrum München ein neuartiges, geeignetes Messgerät entwickelt.

In den letzten Jahren entwickelte passive Messgeräte für die Konzentration der Thoron-Folgeprodukte nutzen die natürliche Deposition von Aerosolteilchen auf Kernspurdetektoren durch Diffusion (Zhuo und Iida, 2000; Mishra und Mayya, 2008). Diese Geräte sind jedoch darauf angewiesen, dass die Depositionsgeschwindigkeit während der Messung die gleiche wie bei der Kalibrierung ist oder zumindest der Kalibrierfaktor auf die jeweilige Umgebungsbedingung hin korrigiert werden kann (Mishra et al., 2010). Um diesen Beitrag zur Messunsicherheit zu vermeiden, wurde die aktive Sammlung von Aerosolteilchen als Alternative gewählt:

Das sogenannte Unattended Battery-Operated Progeny Measurement Device (UBPM, wartungsfreies, batteriebetriebenes Folgeprodukt-Messgerät) sammelt Aerosolpartikel in einem elektrischen Feld (**Abbildung 2.8.2**). Dazu liegt zwischen dem Sammelsubstrat als Anode und einem geerdeten, halbkugelförmigen Drahtgitter als Kathode eine Hochspannung von 7 kV an. Als Substrat für die Sammlung der Aerosolteilchen werden vier Festkörper-Kernspurdetektoren des Typs CR39 verwendet. Diese sind von verschieden dicker Aluminiumfolie zur Abscheidung von Alphateilchen unterhalb einer bestimmten Energie bedeckt, sodass die Alphazerfälle verschiedener Radon- und Thoron-Folgeprodukte unterschieden werden können. Die Geräte beruhen auf Vorarbeiten von Bi et al. (2011) und sind in Gierl et al. (2013) im Detail beschrieben.

Das Gerät wurde zunächst bei Umgebungsbedingungen, die in Wohnhäusern üblich sind, gegen einen Working-Level-Monitor kalibriert. Als Kalibrierumgebung wurde das Thoron-Experimentierhaus am Helmholtz-Zentrum München genutzt (Tschiersch und Meisenberg, 2010). Weil die Kalibrierung des Working-Level-Monitors rückführbar ist, ist es auch die des UBPM.



Abbildung 2.8.2: Foto eines UBPM. Erkennbar sind das halbkugelförmige Drahtgitter zur Begrenzung des elektrischen Feldes und die mit Aluminiumfolien bedeckte Anode am Mittelpunkt des Drahtgitters.

2.8.2.4 Zeitauflösende Messung der Thoron-Konzentration mit aktiver Luftprobenahme

Konzentrationen von Thoron wurden zeitaufgelöst oder kurzzeitig mit dem aktiv sammelnden elektronischen Messgerät RAD7 (DurrIDGE, USA) gemessen. Dieses Gerät sammelt Luft mit einer Volumenflussrate von etwa 1 l/min von einem definierten Einlass in eine Messkammer. Dort werden die Folgeprodukte des Thorons, die durch den Rückstoß infolge des Alphazerfalls des Mutternuklids elektrisch geladen sind, in einem elektrischen Feld auf ein PIPS-Alpha-spektrometer abgeschieden. Aus den weiteren Zerfällen dieser Thoron-Folgeprodukte wird die Thoron-Konzentration in der Luft berechnet. Das Gerät wurde bei der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt rückführbar kalibriert.

2.8.2.5 Zeitauflösende Messung der Thoron-Konzentration mit passiver Luftprobenahme – Radon-Thoron-Exposimeter

Als neuartiges Gerät zur zeitauflösenden Messung von Thoron-Konzentrationen wurde das in AP 4.2 entwickelte Radon-Thoron-Exposimeter bei einer Messkampagne in Haus A5 eingesetzt. In diesem Gerät werden die Alphateilchen-Emissionen der Folgeprodukte, die in der Messkammer entstehen, spektrometrisch aufgezeichnet. Radon und Thoron gelangen in die Messkammer durch Diffusion. Das Gerät ist mit einer Masse von 150 g und Abmessungen von 11, 6,0 und 3,2 cm tragbar. Details sind in dem Teil des Abschlussberichts zu AP 4.2 enthalten.

2.8.2.6 Passive Messung der Thoron-Konzentration

Festkörper-Kernspurdetektoren des Typs CR39 wurden auch für passive, integrierende Messungen von Radon und Thoron verwendet: Ein 1 cm² großer CR39-Plättchen befindet sich auf dem Boden einer 3,6 cm tiefen Kunststoffdose. Die Messgeräte für Radon und Thoron besitzen mehrere Löcher im Schraubdeckel, die gegen den Eintritt der Folgeprodukte in die Dose mit einem Membranfilter und einem leitfähigen Schaumstoff bedeckt sind. Dagegen sind die Schraubdeckel der Messgeräte, die nur Radon messen, gasdicht; Radon kann jedoch durch das

Schraubgewinde in die Dose eindringen. Eine gleichzeitige Messung von Radon einerseits und Radon und Thoron andererseits erlaubt die Bestimmung der Konzentration von Thoron.

2.8.2.7 Messung der Exhalation von Thoron aus Baumaterial

Exhalationsraten von Thoron wurden in sogenannten Akkumulationskammern durchgeführt (Tuccimei et al., 2006). Zunächst wurden die Proben auf allen Seiten bis auf der, die die Wandoberfläche repräsentiert, in mehreren Schichten thorondicht lackiert. Nachdem eine Probe in eine solche gasdichte Kammer eingebracht worden war, reicherten sich Radon und Thoron darin bis zu Gleichgewichtskonzentrationen an. Diese Gleichgewichtskonzentrationen werden durch die Exhalationsraten der beiden Gase bestimmt. Die Konzentrationen der Gase wurden mit einem elektronischen Messgerät RAD7 (DurrIDGE, USA) bestimmt, das dafür in einem geschlossenen Kreislauf an die Kammer angeschlossen wurde.

2.8.2.8 Berechnung von Inhalationsdosen

Für die Häuser, in denen eine Aussage über die Konzentration der Thoron-Folgeprodukte gemacht werden konnte, wurde der Beitrag durch Inhalation der Thoron-Folgeprodukte zur jährlichen effektiven Dosis bestimmt. Das war in den Häusern der Fall, in denen die Folgeprodukte unmittelbar gemessen wurden oder in denen Thoron an ausreichend vielen Stellen gemessen wurde, um daraus die räumliche Verteilung und so auch die mittlere Konzentration des Thorons abzuschätzen. Zur Berechnung der Inhalationsdosis wurden Dosiskoeffizienten angewendet, die im Arbeitspaket 3.4 von Bi et al. (2010) bestimmt wurden. Ein täglicher Aufenthalt von 10 Stunden im jeweiligen Haus, d.h. ein Aufenthaltsfaktor von 40 %, wurde angenommen.

2.8.3 Ergebnisse

2.8.3.1 Detailmessung zur Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten: Fachwerkhaus

Im Fachwerkhaus A5 wurden über einen Zeitraum von zwei Wochen im Herbst 2012 aktive Messungen der Konzentrationen von Thoron und seinen Folgeprodukten und im Anschluss über etwa drei Monate passive Messungen in mehreren Räumen durchgeführt. Das Haus ist ein leerstehendes Gebäude aus dem 18. Jahrhundert mit Erdgeschoss, Obergeschoss und Dachboden. Das Erdgeschoss ist aus Natursteinen gemauert, während Obergeschoss und Dachboden in Fachwerktechnik ausgeführt sind. Das Obergeschoss ist durch das Treppenhaus in zwei Hälften geteilt. In einer Hälfte besitzen manche Innenwände Lehmoberflächen, bei den anderen Wänden sind andere Baustoffe vorhanden oder der Lehm ist überputzt worden. Außen- und Innenwände waren vor den Messungen aufgrund einiger kleinerer Löcher stark luftdurchlässig; mit Bauschaum und Kunststofffolien wurden jedoch vor Messbeginn die größten Öffnungen abgedichtet.

An mehreren Wänden wurde mit passiven Messgeräten die Thoron-Konzentration bei verschiedenen Abständen gemessen. **Abbildung 2.8.3** stellt die Ergebnisse dar. Die Wände a und b in Raum 1 und die Wand in Raum 2, an der eine Messung durchgeführt wurde, waren er-

kennbar Lehmwände. Die Räume 3 und 4 befinden sich ebenfalls in dem Teil des Obergeschosses, in dem einige Wände Lehm enthalten. Raum 5 befindet sich im anderen Teil des Obergeschosses, Raum 6 im Erdgeschoss.

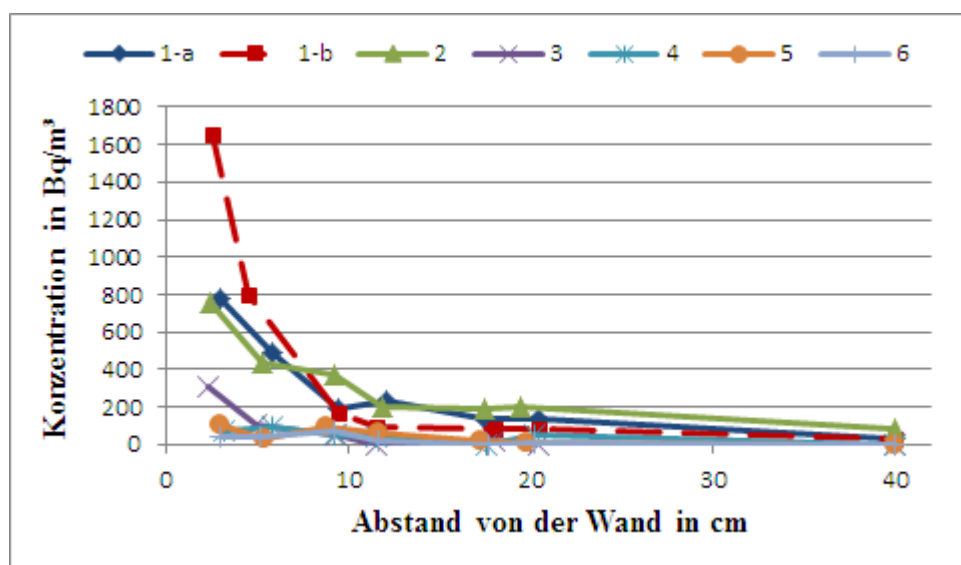


Abbildung 2.8.3: Thoron-Konzentrationsprofile an Wänden in verschiedenen Räumen in Haus A5 (Raum 1: Profile an den Wänden a und b)¹

Aus den gemessenen Konzentrationsprofilen wurde die mittlere Thoron-Konzentration \bar{c} im Raum abgeschätzt. Dazu wurde die Konzentration $c(d)$ als Funktion des Abstands von der der Wand d über das Volumen V des Raumes integriert:

$$\bar{c} = \frac{1}{V} \int_V c(\vec{r}) d\vec{r} = \frac{S}{V} \int_V c(d) dd .$$

Als Thoron-exhalierende Oberflächen S wurden in den Räumen 1 und 2 nur die Wände berücksichtigt, die erkennbar Lehm enthielten. Die gemessenen Profile wurden als repräsentativ für diese Wände angenommen (in Raum 1 für die Wände a und b getrennt). In den anderen Räumen wurde angenommen, dass die gemessenen Konzentrationsprofile für alle Wände im Raum gelten. Auf diese Weise konnten folgende mittlere Thoron-Konzentrationen berechnet werden (**Tabelle 2.8.2**).

Tabelle 2.8.2: mittlere Thoron-Konzentrationen in verschiedenen Räumen in Haus A5, berechnet aus der Integration der Konzentrationsprofile

Raum	mittlere Thoron-Konzentration in Bq/m ³
1	86 ± 22
2	130 ± 17
3	28 ± 13
4	< 40
5	< 27
6	< 25

¹ Alle Messunsicherheiten sind mit einem Erweiterungsfaktor von $k = 2$ angegeben.

Während der aktiven Messperiode wurde die Konzentration der Thoron-Folgeprodukte in verschiedenen Räumen gemessen. Dabei wurde mit dem Tracerlab-Gerät auch der Anteil der unangelagerten Folgeprodukte, der für die Berechnung des Thoron-Dosiskonversionsfaktors wichtig ist, bestimmt. Die Verläufe der Folgeprodukt-Konzentrationen sind in den **Abbildungen 2.8.4 und 2.8.5** dargestellt.

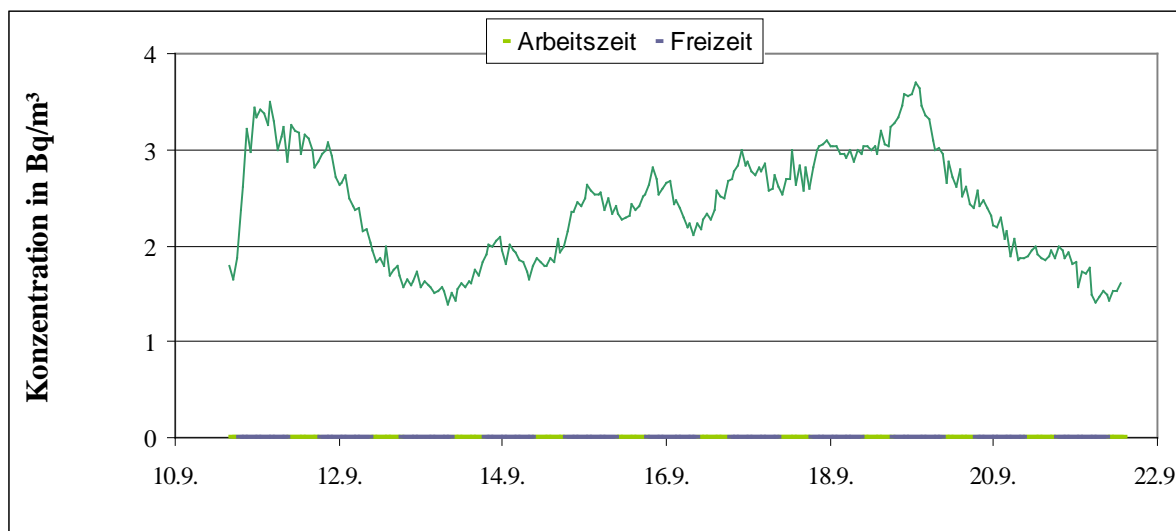


Abbildung 2.8.4: Konzentration der Thoron-Folgeprodukte in Raum 1, gemessen mit dem Prototyp-WLM. Auf der Rechtsachse sind die Zeiträume üblicher Arbeitszeit (täglich von 9 bis 18 Uhr, ohne Berücksichtigung des Wochenendes) und üblicher Freizeit (übrige Zeit) dargestellt; diese Unterscheidung ist für die Berechnung der Inhalationsdosis am Arbeitsplatz und zuhause wichtig.

Aus den Messungen von Thoron und seiner Folgeprodukten in den verschiedenen Räumen wurden die jährlichen Beiträge zur Inhalationsdosis berechnet. Für die Thoron-Messungen wurde auf die berechnete mittlere Konzentration ein Gleichgewichtsfaktor von $0,035 \pm 0,020$ angewendet. Außerdem wurde ein unangelagerter Anteil von $0,030 \pm 0,015$ angenommen, sofern die Konzentration der unangelagerten Folgeprodukte nicht gemessen wurde. Beide Werte wurden zusammengestellt aus UNSCEAR, 2006 und Meisenberg and Tschiersch, 2012. **Tabelle 2.8.3** enthält die berechneten Dosisbeiträge.

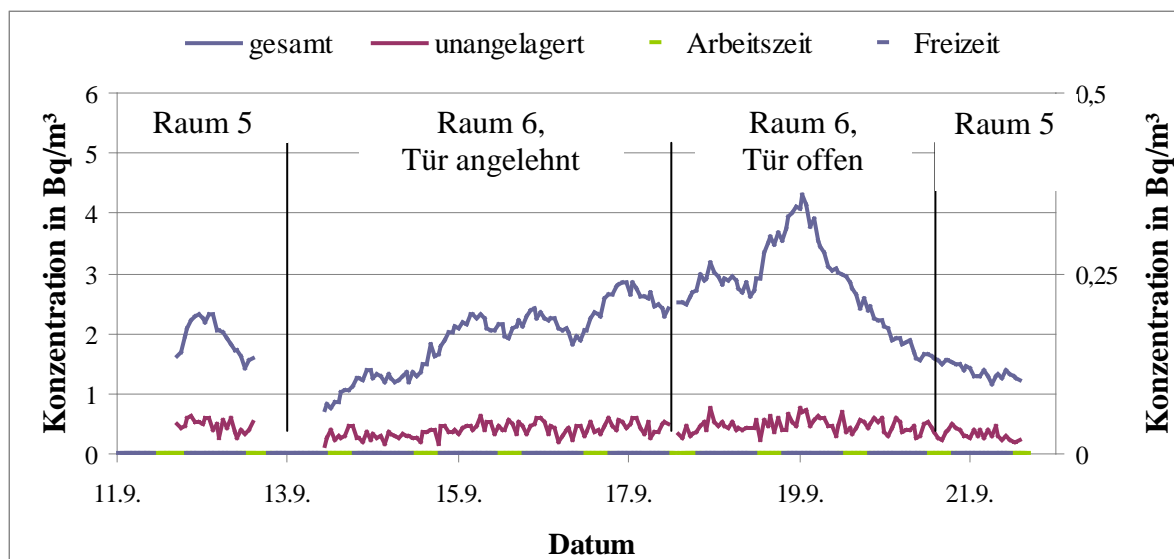


Abbildung 2.8.5: Konzentration der Thoron-Folgeprodukte (gesamt: linke Ordinate und unangelagert: rechte Ordinate) in den Räumen 5 und 6, gemessen mit dem Tracerlab-WLM.

Auffällig ist die deutliche Überschätzung des Dosisbeitrags, der auf Grundlage von Thoron-Messungen berechnet wurde, in Raum 1 und gleichzeitig die Überschätzung für die Räume 5 und vor allem 6. Wegen der undichten Bauweise des Hauses können die Thoron-Folgeprodukte zum einen das Haus zu einem großen Teil verlassen und zum anderen in andere Räume, in denen keine Thoron-Quellen vorhanden sind, gelangen. Beides führt zu einem besonders kleinen Gleichgewichtsfaktor in den Räumen mit Thoron-Quellen (hier unter anderem Raum 1) und einem Gleichgewichtsfaktor größer als eins in den Räumen ohne Thoron-Quellen (unter anderem Räume 5 und 6, vor allem bei offenstehender Tür). Eine Unterscheidung zwischen Arbeits-/Tageszeit und Freizeit/Nachtzeit ist in diesem Haus nicht erforderlich, sodass integrierende Messgeräte ohne Zeitauflösung in diesem Haus ein repräsentatives Ergebnis für die Exposition am Arbeitsplatz als auch im Wohnumfeld liefern würden. Die getrennte Messung der unangelagerten Folgeprodukte ergibt einen Dosisbeitrag, der nicht von dem auf Grundlage einer alleinigen Messung der Gesamtkonzentration abweicht; allerdings sorgt die Messung der unangelagerten Folgeprodukte für eine kleinere Unsicherheit, weil der große Unsicherheitsbeitrag des angenommen Standardwertes für den unangelagerten Anteil dann nicht in die Berechnung des Dosisbeitrags eingeht.

Um eine neuartige, einfachere Methode zur Bestimmung der Thoron-Konzentration in der Nähe Thoron-exhalierender Oberflächen zu entwickeln, wurde in dieser Messkampagne das Radon-Thoron-Exposimeter aus AP 4.2 eingesetzt. Es wurde dazu mit dem Lufteinlass unmittelbar an der Lehmwand 1-b befestigt. Die gemessene Thoron-Konzentration betrug im Mittel $4457 \pm 661 \text{ Bq/m}^3$ für einen einzelnen einstündigen Messpunkt, im Mittel über die gesamte Messzeit von etwa 200 h $4561 \pm 85 \text{ Bq/m}^3$ (**Abbildung 2.8.6**).

Tabelle 2.8.3: Beitrag durch Inhalation von Thoron-Folgeprodukten zur jährlichen effektiven Dosis, berechnet auf Grundlage verschiedener Messungen

Raum	Messmethode	Auswerteprotokoll	berechneter jährlicher Dosisbeitrag in mSv
1	Aktive Folgeprodukt-Messung (WLM)	Gesamtkonzentration, gesamte Zeit	1,19 ± 0,24
		Gesamtkonzentration, Arbeitszeit	1,13 ± 0,46
		Gesamtkonzentration, Freizeit	1,22 ± 0,50
	Passive Gasmessung (Passivdosimeter)		5,5 ± 1,1
2	Passive Gasmessung (Passivdosimeter)		6,2 ± 3,3
5	Aktive Folgeprodukt-messung (WLM)	getrennt unangela-gert/gesamt, gesamte Zeit	0,76 ± 0,28
		Gesamtkonzentration, gesamte Zeit	0,79 ± 0,32
	Passive Gasmessung (Passivdosimeter)		< 0,62
6	Aktive Folgeprodukt-messung (WLM)	getrennt unangela-gert/gesamt, gesamte Zeit	1,34 ± 0,50 (Tür offen) 0,82 ± 0,15 (Tür angelehnt)
		getrennt unangela-gert/gesamt, Arbeitszeit	0,80 ± 0,30 (Tür angelehnt)
		getrennt unangela-gert/gesamt, Freizeit	0,83 ± 0,30 (Tür angelehnt)
		Gesamtkonzentration, gesamte Zeit	1,43 ± 0,58 (Tür offen) 1,04 ± 0,42 (Tür angelehnt)
	Passive Gasmessung (Passivdosimeter)		< 0,38

Die mit integrierenden passiven Kernspurdetektoren an gleicher Stelle, jedoch zu anderer Zeit und in einigem Abstand von der Wand aufgezeichneten Konzentrationen können zur Wand hin extrapoliert werden. Damit kann die Konzentration direkt an der Wand zu etwa 1000 Bq/m³ geschätzt werden. Dieser und der deutlich größere mit dem Exposimeter bestimmte Wert sind aber nicht zwangsläufig diskrepant: Auch mit Kernspurdetektoren wurden dann, wenn das Gerät einen Teil der Wand bedeckte, Konzentrationen gemessen, die größer als der zur Wand hin extrapolierte Verlauf der Konzentrationen im Raum waren (zum Bei-

spiel in Messung N10-2 aus **Kapitel 2.8.3.4**). Möglicherweise stört eine Messung direkt an der Wand das Verhalten des Thorons nach der Exhalation in der Form, dass das meiste exhalierete Thoron in der Messkammer aufgefangen wird. Eine qualitative Aussage über eine erhöhte Thoron-Exhalation aus der Wand ist mit dieser Methode jedoch möglich.

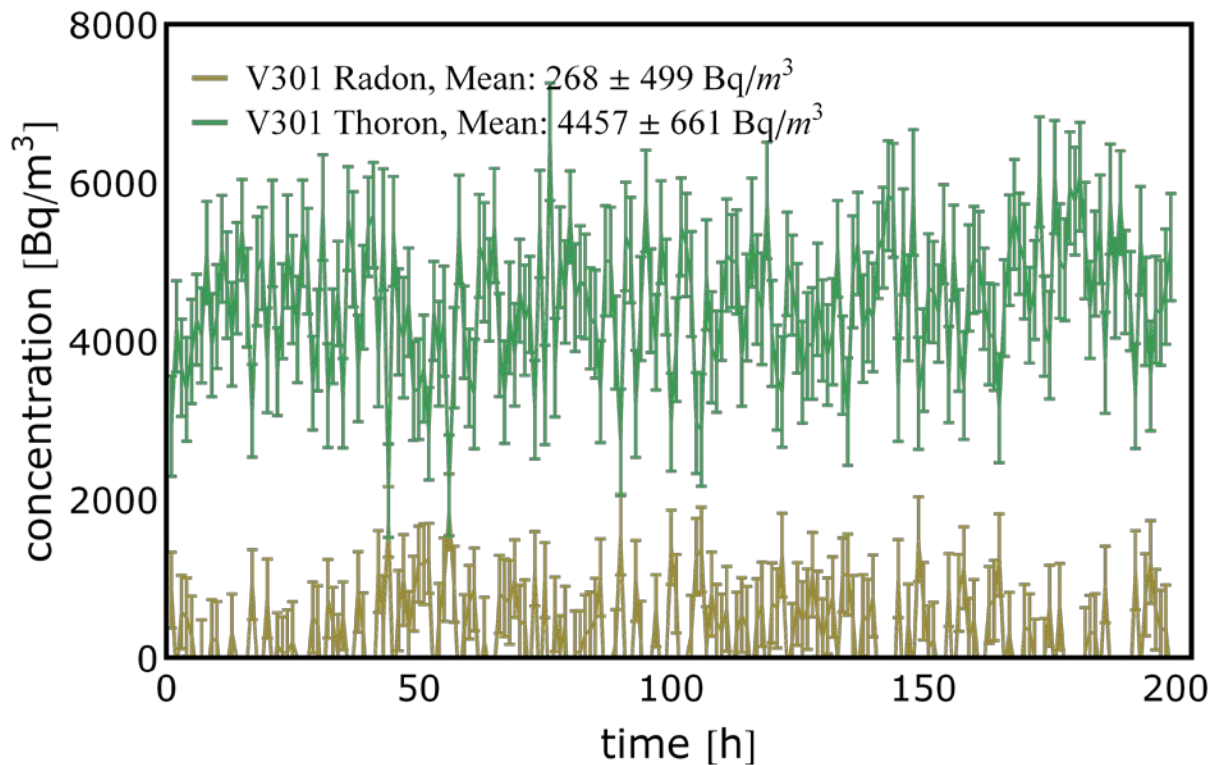


Abbildung 2.8.6: Radon- und Thoron-Konzentrationsverlauf unmittelbar an Wand 1-b, gemessen mit dem Radon-Thoron-Exposimeter aus AP 4.2.

2.8.3.2 Detailmessung zur Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten: modernes Lehmhaus

Im Winter 2014 konnten außerdem aktive und passive Messungen über einen Zeitraum von drei Monaten im modernen Haus N2 durchgeführt werden. Das Haus ist massiv aus Natursteinen gebaut. Alle Wände sind mit Lehm einer Dicke von bis zu 4 cm verputzt. Das Haus besteht aus Keller, Erdgeschoss und Obergeschoss. Es ist nach Gesichtspunkten der Energieeinsparung gebaut, besitzt eine Lüftungsanlage mit Ein- und Auslass im Treppenhaus und eine Wandheizung in manchen Wänden.

In einem 13 m² großen Gästezimmer im Keller wurde die Konzentration von Thoron in zwei etwa einen Meter voneinander entfernten Reihen an einer Wand gemessen. Die Tür des Raums zum belüfteten Treppenhaus war während der Messungen geschlossen; die Luftwechselrate des Raumes wurde mit CO₂ als Tracergas zu 0,07 h⁻¹ bestimmt. Gefunden wurden Konzentrationen bis etwa 120 Bq/m³, sogar in einem Abstand von 50 cm, und mit starken Schwankungen innerhalb weniger Zentimeter (**Abbildung 2.8.7**). Eine Berechnung der mittleren Konzentration im Raum war so nicht möglich.

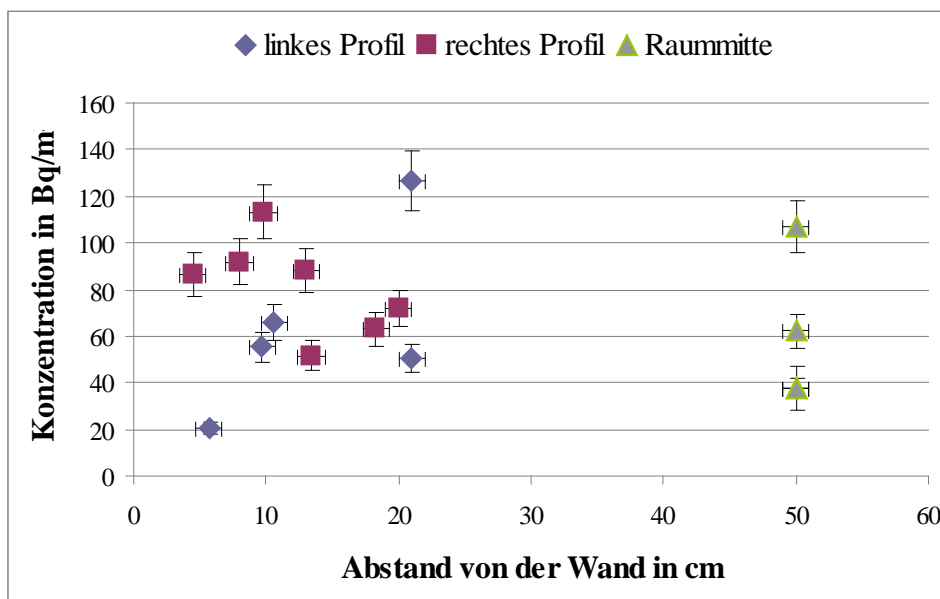


Abbildung 2.8.7: Konzentration von Thoron im Gästezimmer in Haus N2, gemessen in zwei Reihen vor einer Wand und in der Raummitte.

In dem Raum wurden außerdem die Konzentration der gesamten und der unangelagerten Thoron-Folgeprodukte gemessen (**Abbildung 2.8.8**). Der unangelagerte Anteil betrug etwa 6 %.

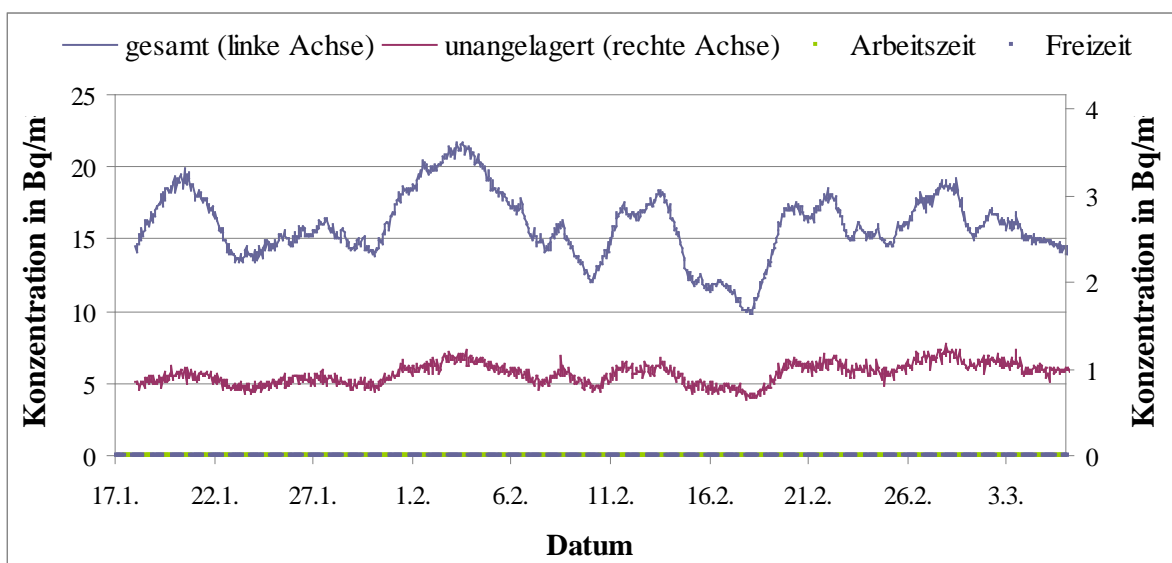


Abbildung 2.8.8: Konzentration der Thoron-Folgeprodukte (gesamt und unangelagert) im Gästezimmer in Haus N2

Auch im Wohnzimmer im Erdgeschoss wurde die Konzentration der Thoron-Folgeprodukte gemessen. Das Wohnzimmer ist zum Treppenhaus hin offen und wird so auch belüftet. Die Konzentrationen betragen auch bei schwacher Lüftung weniger als Drittel derer im geschlossenen Gästezimmer (**Abbildung 2.8.9**). Bei starker Lüftung war ein weiteres Sinken der Konzentration auf etwa 40 % der Konzentration bei schwacher Lüftung zu beobachten. Dieser Effekt wirkte jedoch nur auf die angelagerten Folgeprodukte, die Konzentration der unange-

lagerten Folgeprodukte blieb konstant. Der unangelagerte Anteil stieg dementsprechend von 2,8 auf 8 %.

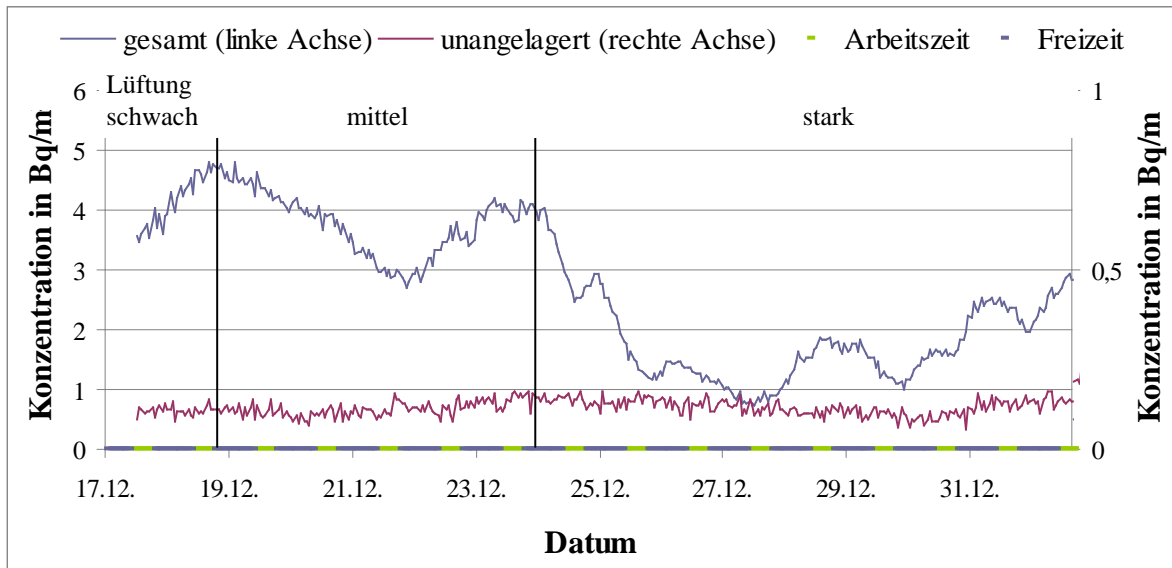


Abbildung 2.8.9: Konzentration der Folgeprodukte von Thoron (gesamt und unangelagert) im Wohnzimmer von Haus N2

Auch in diesem Haus wurden aus den verschiedenen Messwerten die Beiträge zur effektiven Dosis durch Inhalation der Thoron-Folgeprodukte berechnet (**Tabelle 2.8.4**). Der Einfluss der Lüftung ist deutlich zu erkennen. Eine Unterscheidung zwischen Arbeits- und Freizeit ist auch in diesem Haus nicht erforderlich.

2.8.3.3 Passive Messungen von Thoron-Gas und von seinen Folgeprodukten

In neun Häusern wurden im Frühling 2013 Thoron-Folgeprodukte mit dem UBPM passiv und zeitintegrierend gemessen wurden. Die Messung in Haus A5 wurde in Raum 1 durchgeführt (vgl. **Kapitel 2.8.3.1**). Die gemessenen Konzentrationen lagen etwa zwischen 1,5 und 10 Bq/m³ (**Abbildung 2.8.10**). Die zugehörigen Beiträge zur effektiven Dosis der Bewohner betragen etwa 0,5 bis 4 mSv pro Jahr. Ein Unterschied zwischen verschiedenen Altern und Bau-techniken der Häuser konnte nicht festgestellt werden: Sowohl die Teilmenge der vier Häuser, in denen Lehm nur als Putz vorhanden war (A6 und N1–3), als auch die der drei modernen Gebäude decken den Bereich von Konzentration und Dosis, der durch die größere Zahl der Fachwerk-Altbauten aufgespannt wird, ab.

Tabelle 2.8.4: Dosisbeiträge durch Inhalation von Thoron-Folgeprodukten in Haus N2, berechnet auf Grundlage verschiedener Messverfahren

Raum	Messmethode	Auswerteprotokoll	berechneter jährlicher Dosisbeitrag in mSv
Wohnzimmer im Erdgeschoss	Aktive Folgeproduktmessung (WLM)	getrennt unangela-gert/gesamt, gesamte Zeit	1,99 ± 0,72 (Lüftung schwach) 1,86 ± 0,66 (Lüftung mittel) 1,05 ± 0,37 (Lüftung stark)
		getrennt unangela-gert/gesamt, Arbeitszeit	1,45 ± 0,48 (gesamter Zeitraum)
		getrennt unangela-gert/gesamt, Freizeit	1,44 ± 0,48 (gesamter Zeitraum)
		Gesamtkonzentration, ge-samte Zeit	2,02 ± 0,82 (Lüftung schwach) 1,86 ± 0,76 (Lüftung mittel) 1,84 ± 0,38 (Lüftung stark)
Gästezimmer im Keller	Aktive Folgeproduktmessung (WLM)	getrennt unangela-gert/gesamt, gesamte Zeit	8,8 ± 2,8
		getrennt unangela-gert/gesamt, Arbeitszeit	8,9 ± 3,0
		getrennt unangela-gert/gesamt, Freizeit	8,7 ± 2,8
		Gesamtkonzentration, ge-samte Zeit	7,8 ± 3,2
	Passive Gasmessung (Passivdosimeter)		nicht möglich, weil das Profil nicht ana-lytisch beschrieben werden konnte

In Haus N3, einer Berghütte, trugen die Wände in nur einem Raum Lehmputz. Zwar wurde die Messung in diesem Raum durchgeführt, es herrschte jedoch ein Luftaustausch mit den anderen Räumen mit anderem Baumaterial. Diese Eigenschaft unterscheidet Haus N3 von den anderen untersuchten Häusern und kann ein Grund für die vergleichsweise kleine Konzentration der Thoron-Folgeprodukte sein.

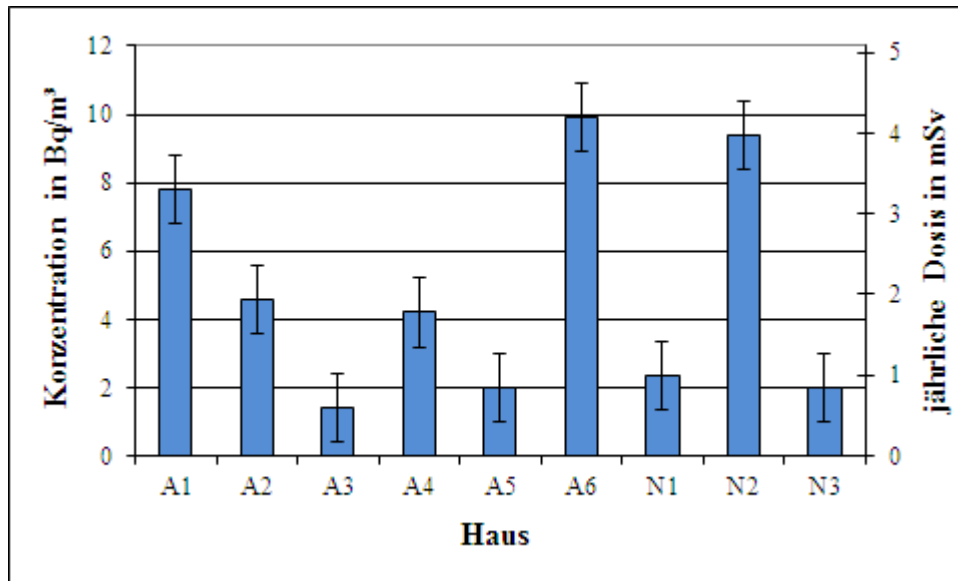


Abbildung 2.8.10: mittlere Konzentration der Thoron-Folgeprodukte während der Messzeit von etwa zwei Monaten im Frühling 2013.

In denselben Häusern wurde gleichzeitig die Konzentration von Thoron in einem Abstand von 20 cm zur Oberfläche einer Lehmwand mit passiven, zeitintegrierenden Messgeräten bestimmt. Dabei wurden Konzentrationen von unterhalb der Nachweisgrenze (bei etwa 20 Bq/m³ für A1 und 5 Bq/m³ für A4) bis zu etwa 130 Bq/m³ gefunden (**Abbildung 2.8.11**). Ein linearer oder auch anderer Zusammenhang mit der Konzentration der Thoron-Folgeprodukte konnte nicht hergestellt werden: Beispielsweise betrug in Haus A1 die Konzentration der Folgeprodukte einen der größten gemessenen Werte, während Thoron höchstens im Bereich der kleinsten sonst gefundenen Werte gemessen wurde.

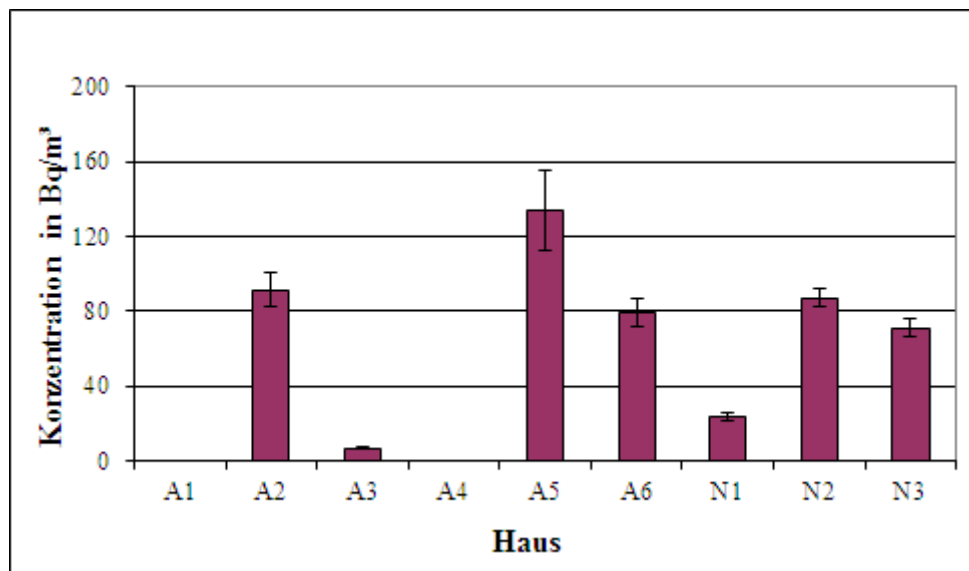


Abbildung 2.8.11: mittlere Konzentration von Thoron während derselben Zeit in denselben Häusern in einem Abstand von 20 cm von einer Lehmwand.

2.8.3.4 Passive Messungen von Thoron-Gas

In einigen weiteren Häusern konnten keine passiven Messgeräte für Thoron-Folgeprodukte aufgestellt werden. Jedoch wurden dort pro Haus zwischen 5 und 13 passive Messgeräte, in Haus N11 jedoch nur zwei Geräte, für Thoron-Gas an verschiedenen Stellen in einem Raum im Haus, d.h. vor den Oberflächen verschiedener Lehmwände und bei Abständen von 10 und 50 cm aufgestellt. So konnten Informationen zur räumlichen Verteilung des Thorons gewonnen werden. Gefunden wurden Konzentrationen in einem Bereich bis etwa 150 Bq/m^3 bei 10 cm Abstand (**Abbildung 2.8.12**). Eine lineare Interpolation zu 20 cm zeigt, dass die Konzentrationen im gleichen Bereich wie in den Häusern A1 bis N3 liegen.

Auffällig sind zwei Ergebnisse: Zum einen schwankten die Konzentrationen bei gleichem Abstand zur Wand vor verschiedenen Wänden bzw. Wandbereichen, obwohl ausschließlich an Lehmwänden gemessen wurde. Der größte relative Unterschied bei 10 cm Abstand, nämlich ein Faktor von 6, wurde in Haus N9 gefunden. Als Grund für diese Schwankung konnten unterschiedliche Putzdicken (5 mm bei der kleinsten Konzentration zu 45 mm bei der größten Konzentration) bestimmt werden; dieser bauliche Unterschied war im Haus jedoch nicht wahrnehmbar. Beispielsweise in Haus N5 (Faktor 3,6 zwischen der kleinsten und der größten Konzentration) konnten keine baulichen Unterschiede festgestellt werden.

Zum anderen waren die Gradienten der Konzentration zur Wand unterschiedlich steil: In Haus N9 war der Mittelwert der Messwerte bei 10 cm nur etwa doppelt so groß wie der bei 50 cm, in Haus N5 dagegen etwa 12-mal so groß. Ein Grund für diesen Unterschied konnte in den Häusern nicht festgestellt werden. Unterschiedliche Strömungsbedingungen der Luft zum Beispiel aufgrund eines Luftdurchzugs oder eines Temperaturgradienten, die zu advektivem Transport des Thoron führen, können jedoch zu größeren Konzentrationen in größerem Abstand von einer Thoron-exhalierenden Wand führen.

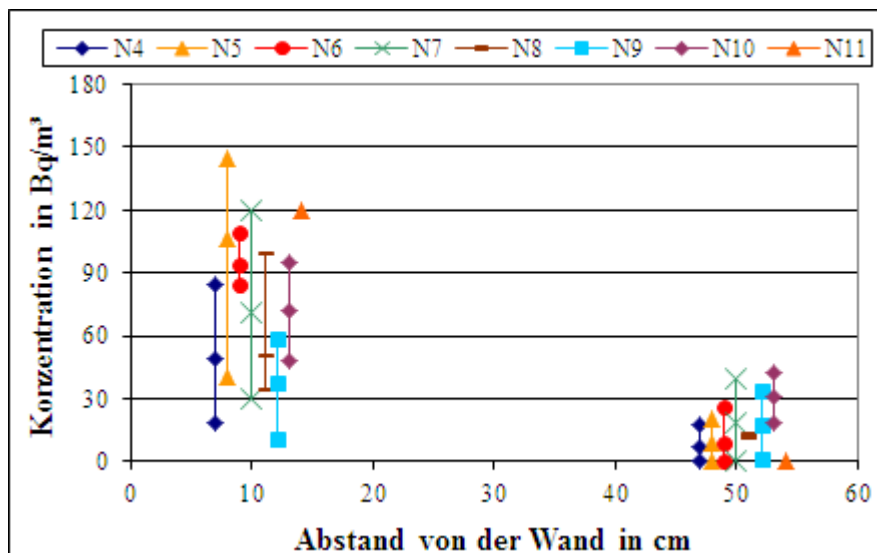


Abbildung 2.8.12: Konzentration von Thoron in den angegebenen Häusern in Abständen von 10 und 50 cm von der Oberfläche von Lehmwänden. Dargestellt sind Minimum, Maximum und Mittelwert der Messwerte an verschiedenen Stellen jeweils innerhalb desselben Raums.

Genauere Messungen der Thoron-Konzentration, nämlich in einer größeren Zahl an Abständen, konnten in den Häusern A5, N10 (in diesen Häusern zwei Reihen in einem Raum) und N11 (eine Reihe) durchgeführt werden. Auf diese Weise war es möglich, das Thoron-Konzentrationsprofil zumindest an diesen Stellen der Thoron-exhalierenden Wände nachzuvollziehen. In Haus A5 fanden diese Messungen vor der Abdichtung einiger Öffnungen in den Wänden, die für die Detailmessungen vorgenommen wurden, statt. Außerdem besaßen die Räume in dem Teil des Hauses, in dem die Messungen durchgeführt wurden, zu dem Zeitpunkt keine Türen. Der Zustand des Hauses unterschied sich deshalb von dem während der Detailmessungen. Die Messwerte sind in **Abbildung 2.8.13** dargestellt.

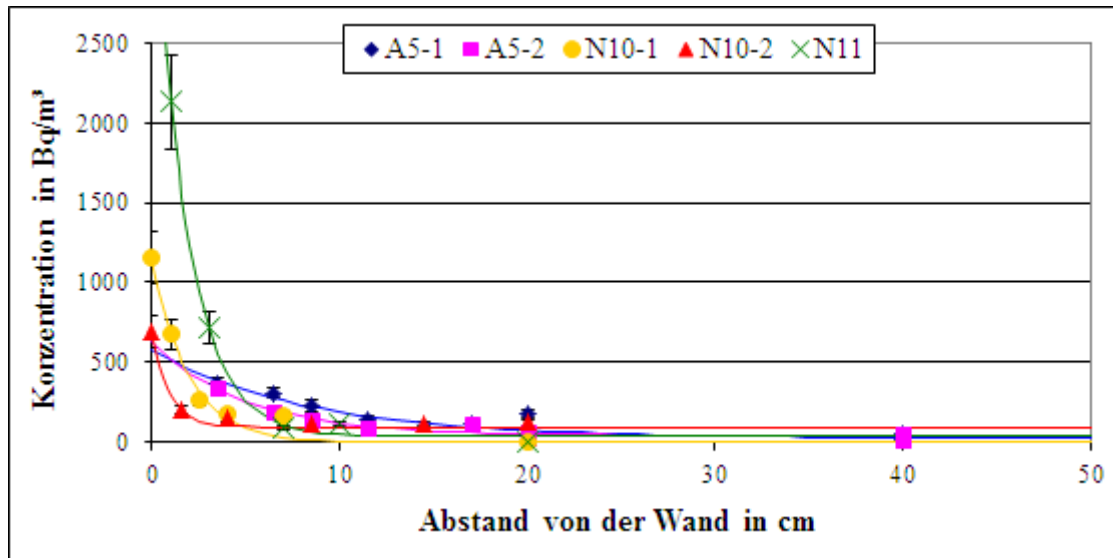


Abbildung 2.8.13: Konzentrationsprofile von Thoron an verschiedenen Stellen in den Häusern A5, N10 und N11. Messwerte und daran angepasste Exponentialfunktionen mit zusätzlichem homogenem Beitrag.

In dem Raum in Haus 10 unterscheiden sich die Konzentrationsprofile deutlich voneinander: Im Profil 1 wird zu einer etwa 1,9-fachen Konzentration direkt an der Wandoberfläche extrapoliert. In großem Abstand von der Wand wurde jedoch dort kein Thoron mehr gefunden, in Profil 2 wurden noch etwa 100 Bq/m³ gemessen. In der Mitte des Raumes müssen sich beide Profile jedoch aneinander angleichen. Der Halbwertsabstand, bei dem der inhomogen verteilte Anteil der Aktivität auf eine Konzentration von 50 % des Wertes direkt an der Wandoberfläche gefallen ist, ist bei Profil 1 etwa doppelt so groß wie bei Profil 2. Zumindest die größere Konzentration direkt an der Wand bei Profil 1 wird wahrscheinlich durch eine größere Thoron-Exhalation verursacht worden sein: Die Wand, an der das Profil 1 gemessen wurde, ist massiv aus Lehmsteinen gebaut, während an Profil 2 dünne Lehmbauplatten verwendet wurden. Die anderen Unterschiede, insbesondere die größere Konzentration bei größerem Abstand, lassen sich möglicherweise durch die Geometrie des Raumes erklären: Profil 1 wurde an einer senkrechten Wand, Profil 2 an einer Dachschräge gemessen.

In Haus A5 zeigen die beiden gemessenen Profile sehr ähnliche Verläufe. Beide Profile wurden an senkrechten, lehmverputzten Innenwänden gemessen. In Haus N11 wurde die Messung an einer lehmverputzten Wand aus Lehmsteinen durchgeführt.

Aus den gemessenen Konzentrationsprofilen wurde die mittlere Konzentration von Thoron in dem Raum abgeschätzt. Dazu wurde zunächst angenommen, dass die Profile repräsentativ für die gesamten Oberflächen der Lehmwände in dem Raum sind. Für den Raum in Haus A10 wurde angenommen, dass für die Thoron-Konzentration vor allen Wänden außer der Dachschräge das Profil 1 gilt. Die Thoron-Aktivitätsinventare in den Räumen konnten dann durch Integrierung der Konzentrationsprofile über Abstände von null bis zur Raummitte und über die gesamten Thoron-exhalierenden Oberflächen berechnet werden. Daraus ergaben sich durch Division durch das Raumvolumen die mittleren Aktivitäten. Die Werte sind **Tabelle 2.8.5** dargestellt. Durch Anwendung von Gleichgewichtsfaktoren wurden weiter die Konzentrationen der Thoron-Folgeprodukte abgeschätzt. Die Gleichgewichtsfaktoren wurden auf Grundlage der Luftwechselraten von 4 h^{-1} (gemessen) zu 1,5 % für das undicht gebaute Haus A5 und von $0,6 \text{ h}^{-1}$ (geschätzt, weil für moderne Häuser etwa üblich) zu 11 % für die Häuser N10 und N11 angenommen (Meisenberg und Tschiersch, 2011). Mit den Dosiskoeffizienten von Li et al. (2008) wurden die in Tabelle 5 enthaltenen jährlichen Beiträge zur effektiven Dosis durch Inhalation der Thoron-Folgeprodukte geschätzt. Der geringe Beitrag von etwa 0,3 mSv in Haus A5 liegt vor allem am kleinen Gleichgewichtsfaktor, der durch den starken Luftaustausch dort hervorgerufen wird.

Tabelle 2.8.5: Berechnung der Thoron-Konzentration gemittelt über die Raumluft aus dem Integral des Thoron-Konzentrationsprofils und durch Anwendung eines hausspezifischen Gleichgewichtsfaktors daraus abgeschätzte jährliche Inhalationsdosis durch Thoron-Folgeprodukte.

Haus Nr.	Volumen des Raums in m^3	Thoron-exhalierende Fläche in m^2	Thoron-Konzentration im räumlichen Mittel in Bq/m^3	Gleichgewichtsfaktor	Jährlicher Beitrag zur effektiven Dosis in mSv
A5	42	19	50 ± 13	1,5 %	$0,32 \pm 0,08$
N10	17	26	62 ± 26	11 %	$2,9 \pm 1,2$
N11	73	88	141 ± 67	11 %	$6,6 \pm 3,1$

2.8.3.5 Kurzzeitmessung in einem Lehmhaus mit geringer Thoron-Konzentration

In einem renovierten, aus Holz gebauten Wohnhaus aus dem 19. Jahrhundert wurden während etwa fünf Stunden Messungen der Thoron-Konzentration durchgeführt. Dieses Haus wurde von einem bedeutenden Hersteller von Lehmbauprodukten als Musterprojekt nach dem modernsten Stand der Bautechnik ausgebaut.

In einem Raum, in dem auf drei Wänden insgesamt 4 cm dicker Lehmgrundputz, -oberputz und -feinputz aufgebracht waren, wurden lediglich weniger als $20 \text{ Bq}/\text{m}^3$ Thoron (Nachweisgrenze) in einem Abstand von 4 cm von der Wandoberfläche gemessen. In Stichproben der verwendeten Putze wurden mit $22 \text{ Bq}/\text{kg}$ für Grund- und Oberputz und $18 \text{ Bq}/\text{kg}$ für den Feinputz allerdings spezifische Aktivitäten von ^{232}Th , die in einem für Lehmbaumaterialien üblichen Bereich liegen, gefunden. Der Grund dafür, dass Thoron in diesem Raum in einer Kon-

zentration deutlich unter denen aus anderen Räumen mit vergleichbarem Baumaterial vorkommt, konnte nicht identifiziert werden.

In einem anderen Raum war eine noch nicht verputzte Wand aus Lehmsteinen vorhanden. An dieser Wand wurde die Thoron-Konzentration in einem Abstand von 3 cm gemessen. Hier wurden an zwei Stellen, die etwa einen Meter voneinander entfernt waren, Konzentrationen von 300 Bq/m³ und von 50 Bq/m³ gemessen. Ein Lehmstein der gleichen Charge enthielt mit 35 Bq/kg zwar wesentlich mehr ²³²Th als die verwendeten Putze, allerdings lassen sich dadurch die unterschiedlichen gemessenen Thoron-Konzentrationen nicht erklären.

2.8.3.6 Einflüsse auf die Exhalation von Thoron

Natürlicher Lehm ist ein Gemisch aus Anteilen verschiedener Korngrößen, nämlich Ton (Korndurchmesser kleiner 2 µm), Schluff (2 bis 63 µm) und Sand (63 µm bis 2 mm). Der überwiegende Anteil des Tons wird dabei von Tonmineralen, die ein Teil der Schichtsilikate sind, gebildet; nach der Abfolge der Silikatschichten werden insbesondere Kaolinite, Montmorillonite und Illite unterschieden. Im modernen Lehmbau wird Lehm aus fettem, d.h. stark tonhaltigem Rohlehm und Sand oder aus Ton und Sand gemischt. Um die Quelle der Thoron-Exhalation innerhalb dieser Bestandteile zu bestimmen, wurde die Exhalation von Thoron an zwei Probenreihen, deren einzelne Proben sich in ihren Massenanteilen an Sand und Ton unterschieden, gemessen: In den zwei Probenreihen wurden der gleiche Ton, aber unterschiedliche Sande (einmal mit für Sande relativ großer spezifischer ²³²Th-Aktivität von 36 Bq/kg, einmal mit relativ kleiner Aktivität von 6,9 Bq/kg) verwendet.

Beide Probenreihen zeigten bei gleichen Sand-Ton-Massenanteilen gleiche Exhalationsraten innerhalb der Messunsicherheit (**Abbildung 2.8.14**). Bei größerem Sandanteil exhalierten die Proben beider Reihen weniger Thoron. Daraus kann geschlossen werden, dass die Exhalation von Thoron aus dem Lehm zumindest überwiegend durch den Tonanteil bestimmt wird und insbesondere unabhängig vom Beitrag des Sandes zur spezifischen Aktivität des Lehms ist.

Ausgehend von der Identifizierung des Tonanteils als Quelle des exhalierten Thorons wurden verschiedene Tonminerale auf ihren Einfluss auf die Exhalation getestet. Dabei wurde der erste Schritt der Exhalation, die mikroskopische Emanation des Thorons aus den Gesteinskörnern in den Porenraum, untersucht. Die Emanationsmessungen wurden unter anderem an mehreren Proben reiner Tonminerale durchgeführt. Aus der Emanationsrate und der spezifischen Aktivität von ²³²Th im Ton wurde der Emanationskoeffizient berechnet; er gibt den Anteil des im Material entstehenden Thorons an, der den Porenraum erreicht.

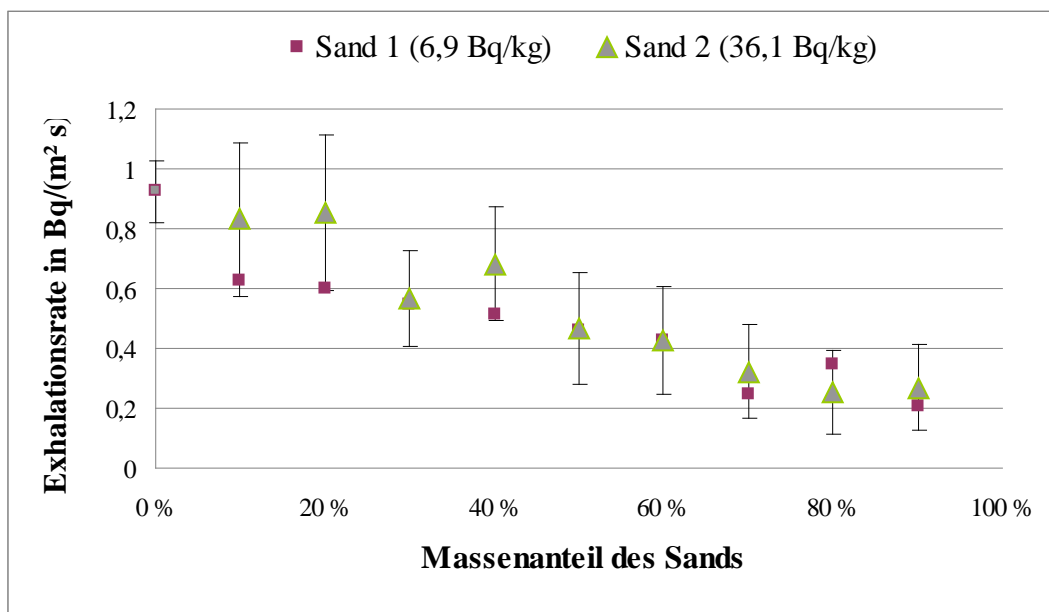


Abbildung 2.8.14: Exhalationsraten von Thoron, gemessen an Lehmputzen mit unterschiedlichen Anteilen von Sand und Ton und unterschiedlichen Sanden.

Gemessen wurden Emanationskoeffizienten von 40 bis 70 % an Montmorilloniten. Kaolinite zeigten deutlich kleinere Emanationskoeffizienten von 10 bis 20 % (**Abbildung 2.8.15**). Tone, deren mineralogische Zusammensetzung weniger genau definiert sind, besaßen mit der Ausnahme eines Tonmehls Emanationskoeffizienten zwischen denen der beiden reinen Tonminerale. Die Emanationskoeffizienten von Thoron in Kaoliniten liegen in der Größenordnung der Werte, die für Radon in anderen Materialien bestimmt wurden (z.B. 9,5 bis 16 % für Marmor, Misdaq und Amghar, 2005; 4,6 bis 41 % für verschiedene Gesteine, Sakoda et al., 2010).

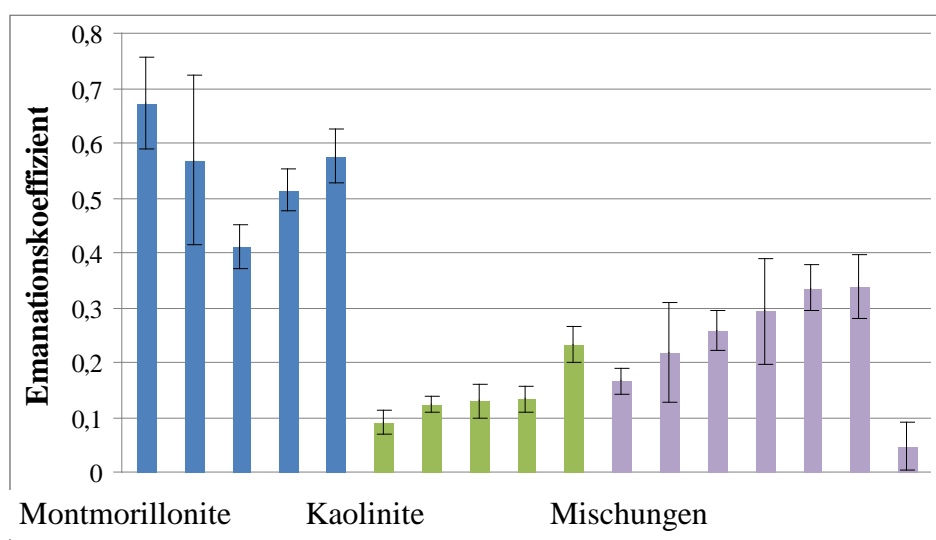


Abbildung 2.8.15: Emanationskoeffizienten von Thoron in verschiedenen reinen und natürlichen Tonmineralen.

An 42 Proben von Lehmputzen, die nach bautechnischen Gesichtspunkten hergestellt wurden und sich in der Gestaltung und Behandlung der Oberfläche unterschieden, wurde die Exhala-

tion von Thoron bestimmt, um praktisch umsetzbare Lehmbautechniken mit Wirkung in Richtung einer geringeren Exhalation zu identifizieren. Die gemessenen Exhalationsraten sind in **Abbildung 2.8.16** dargestellt.

Auffällig ist, dass eine Reihe von Proben, an denen verschiedene, im Lehm- bau übliche, konventionelle Techniken zur Oberflächenbehandlung wie Abreiben, Glätten mit Glättkelle, Versiegeln mit Wasserglas und Streichen mit Lehmfarbe (Proben 5–14) kaum unterschiedliche Exhalationsraten zeigten. Die Verwendung von Kalkputz oder Kalkglätte, die häufig verwendete Deckschichten auf Lehmunterputzen darstellen, senken die Exhalation gegenüber der unbedeckten Lehmputzschicht, nicht signifikant bis hin zu etwa 50 % (Proben 30–33 im Vergleich mit 1–6). Kalkputz und -glätte zeigen selbst zeigen kleinere Exhalationsrate von ungefähr 7 bis 20 %. Eine besonders große Schwächung der Thoron-Exhalation konnte erzielt werden durch die Verwendung einer Dispersionsfarbe, die nach den Angaben des Herstellers die gewünschte luftfeuchteregulierende Eigenschaft des Lehms erhält (auf 15 bis 30 %, Proben 20–22) und durch die Beimischung von Aktivkohle zum Oberputz (auf unter 5 bis 25 %, Proben 37–42).

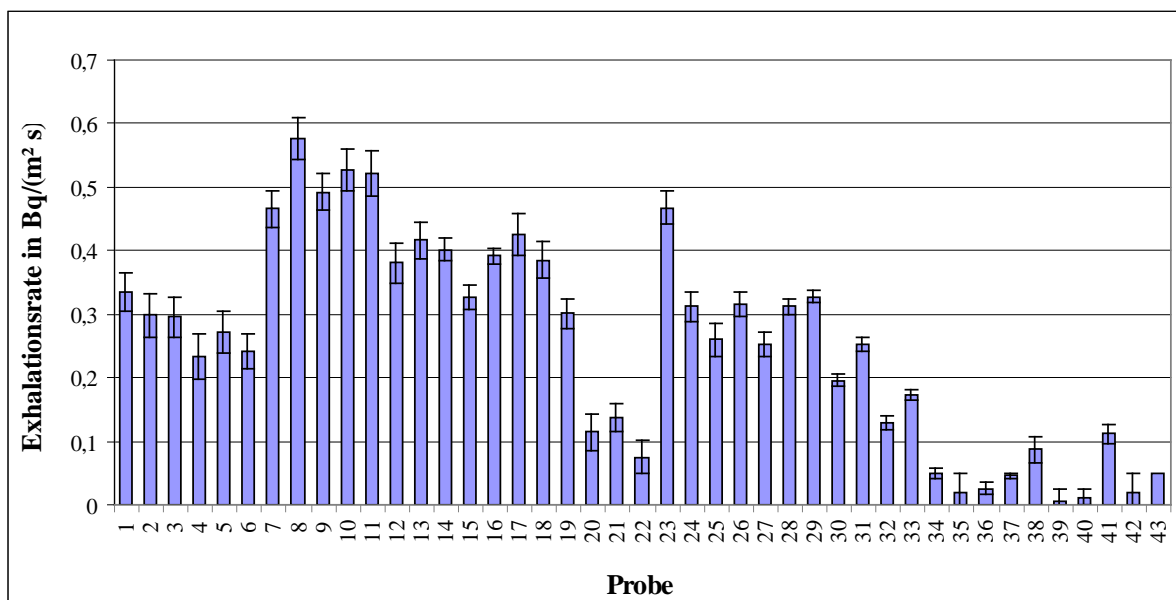


Abbildung 2.8.16: Exhalationsraten einer Reihe von Lehmputzproben mit verschiedener Gestaltung und Behandlung der Oberfläche.

Tabelle 2.8.6: Beschreibung der Lehmputzproben

Nr. Probe		Relevante Eigenschaft
1–6		nur eine Schicht Putz (1 cm)
	davon 4–6	nur eine Schicht Putz (1 cm), Oberfläche mit Wasserglas versiegelt
7–22		Unterputz (1 cm) und Basisputz als Oberputz (1 cm)
	davon...	
	7	Oberfläche nur abgerieben
	8–19	mit Glättkelle geglättet und verdichtet
	9–10 und 14–16	mit Wasserglas versiegelt (1- bzw. 2-mal)
	13–16	mit Lehmfarbe gestrichen (1- bis 3-mal)
	17–19	mit verschiedenen Lehmfarben mit Kreide und Cellulose gestrichen
	20–22	mit einer Blähglas-haltigen Dispersionsfarbe für Lehmuntergründe gestrichen
23–29		Unterputz (1 cm) und Feinputz als Oberputz (1 cm)
	davon...	
	23	Oberfläche unbehandelt
	24	Oberfläche nur abgerieben
	25–29	mit Glättkelle geglättet und verdichtet
	26 und 28	mit Wasserglas versiegelt
	27–28	mit Lehmfarbe gestrichen
	29	mit Dispersionsfarbe gestrichen
30–31		Lehmunterputz (1 cm) und Kalkputz (1 cm)
32–33		Lehmunterputz (1 cm) und Kalkglätte (1 cm)
34–36		nur Kalkputz (34 und 35) bzw. -glätte (36, je 1 cm)
37–42		Unterputz, Oberputz aus Lehm mit beigefügter Aktivkohle

2.8.4 Diskussion

In den Häusern, in denen die Bestimmung der Inhalationsdosis durch Thoron-Folgeprodukte möglich war, konnten mit einer Ausnahme signifikante Dosisbeiträge von 0,5 bis 4 mSv gefunden werden.

2.8.4.1 Generalisierung der Ergebnisse

Zusammengefasst zeichnen die Messwerte in den verschiedenen untersuchten Häusern, in denen Lehm großflächig als Baustoff verwendet wird, folgendes Bild: In den älteren wie in den neueren Gebäuden kommen Strahlendosen alleine durch die Inhalation von Thoron und seinen Folgeprodukten in der Höhe bis zu mehreren Millisievert pro Jahr vor. Vergleichsweise kleine Thoron-Expositionen, die zu Strahlendosen von weniger als einem Millisievert pro Jahr führen, können teilweise erklärt werden, zum Beispiel durch nur anteilige Verwendung von Lehm in Haus N3. Unter besonderen Bedingungen, zum Beispiel bei geringem Luftaus-

tausch bei gleichzeitig kleinem Raumvolumen wie im Gästezimmer von Haus N2 bei geschlossener Tür, können besonders große Konzentrationen und dementsprechend große Strahlendosen vorkommen.

Aus den gemessenen Expositionen und berechneten Strahlendosen alleine durch Thoron und seine Folgeprodukte mit etwa 80 % der Werte zwischen 1 und 4 mSv können ähnliche Werte für die etwa 2 Millionen Häuser in Deutschland, in denen Lehm als Baustoff verwendet wird, erwartet werden.

2.8.4.2 Erfordernis von Senkungsmaßnahmen

Die Weltgesundheitsorganisation empfiehlt eine Senkung der Konzentrationen von Radon und seinen Folgeprodukten ab einem jährlichen Dosisbeitrag von etwa 2,2 mSv (WHO, 2009; Marsh et al, 2010), zunächst durch wenig aufwändige Maßnahmen wie verstärktes Lüften. Durch Thoron und seine Zerfallsprodukte wird die gleiche jährliche Dosis in etwa der Hälfte der untersuchten Häuser verursacht. Lüften ist gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten noch wirksamer als gegenüber Radon (Meisenberg und Tschiersch, 2011). Angesichts des besseren Aufwand-Nutzen-Verhältnisses sollte eine solche Empfehlung bereits bei kleineren Dosisbeiträgen zur Senkung der Thoron-Exposition ausgesprochen werden.

Im modernen Lehm-bau kann eine weitere einfache Maßnahme zur Senkung der Exposition die Auswahl von Baustoffen sein, deren Thoron-Exhalation gering ist, ohne bei den baulichen und den übrigen wohngygienischen Eigenschaften Abstriche machen zu müssen. Magere Lehme, also solche mit geringem Tonanteil, wurden als schwächere Quelle für Thoron identifiziert und können deshalb innerhalb bautechnischer Grenzen ein Ziel der Anpassung der Baustoffherstellung an Gesichtspunkte des Strahlenschutzes darstellen. Im modernen Lehm-bau wird bereits aus baulichen Gründen der Rohlehm mit Sand abgemagert. Innerhalb der Tonminerale wurden Unterschiede in der Emanation von Thoron gefunden: Lehme, die wenig Montmorillonit als Tonmineral mit besonders großem Emanationskoeffizienten besitzen, sind Kandidaten für die Identifizierung nur schwach Thoron-exhalierender Lehme. Die spezifische Aktivität von ^{232}Th im Lehm als weiterem, linear wirkendem Einflussfaktor unterliegt bereits der Qualitätssicherung der Baustoffindustrie (z.B. DIN, 2013).

2.8.4.3 Anforderungen an Messungen

Aus vergleichenden Messungen von Thoron und seinen Folgeprodukten konnte die große Variabilität des Gleichgewichtsfaktors, also des Verhältnisses der beiden Konzentrationen, bestimmt werden. Eine Ableitung der Inhalationsdosis aus Messungen der Thoron-Konzentration war deshalb in den untersuchten Häusern nicht möglich, weder durch eine Thoron-Messung an einer Stelle in einem Haus noch durch eine Bestimmung des Thoron-Konzentrationsprofils. Für diesen stark schwankenden Zusammenhang zwischen den Konzentrationen von Thoron und seinen Folgeprodukten kann eine Reihe von Gründen verantwortlich sein:

– Die Exhalation von Thoron aus dem Baumaterial kann innerhalb eines Raums und eines Hauses inhomogen verteilt sein. Die Thoron-Konzentration vor einer Wandfläche wird nur

durch die Exhalation in der Umgebung bestimmt. Thoron-Folgeprodukte an einer Stelle im Haus können jedoch durch Thoron, das aus anderen Teilen der Wand, aus anderen Thoron-exhalierenden Wänden in demselben Raum und sogar aus anderen Räumen im Haus stammt, gebildet worden sein.

– Das Konzentrationsprofil von Thoron verläuft bei Turbulenzen der Raumluft oder bei advektivem Transport anders als im Idealfall bei reiner Diffusion. Dieser Verlauf kann durch unterschiedliche Strömungsbedingungen der Luft im Raum entlang der Thoron-exhalierenden Oberflächen inhomogen sein.

– Der Gleichgewichtsfaktor der Thoron-Zerfallsreihe ist wesentlich stärker von äußeren Bedingungen wie der Luftwechselrate abhängig, als es bei Radon der Fall ist (Meisenberg und Tschiersch, 2011).

Es wurde in den Messungen für die untersuchten Häuser gezeigt, dass eine Bestimmung der Inhalationsdosis durch Thoron-Folgeprodukte nur durch eine direkte Messung der Folgeprodukte, nicht durch eine Messung des Thoron-Gases möglich ist. Deshalb besteht ein Bedarf an Messgeräten für die Konzentration der Thoron-Folgeprodukte, die für die Verwendung im Wohnumfeld geeignet sind. Das entwickelte UBPM stellt ein solches Messgerät dar.

Für die Bestimmung der Inhalationsdosis durch Radon und seine Folgeprodukte ist dagegen die Messung der Konzentration des Gases üblich. Sie ist anwendbar, weil das Radon aufgrund seiner langen Halbwertszeit homogen im Raum verteilt ist und sich der Gleichgewichtsfaktor wegen der kurzen Halbwertszeit der dosisrelevanten Folgeprodukte von bis zu 27 min in den meisten Fällen in einem engen Rahmen bewegt. Oft werden passive Langzeit-Messgeräte für Radon aus praktischen Gründen in der Nähe einer Wand aufgestellt; dort können in Häusern mit Thoron-exhalierendem Baumaterial große Thoron-Konzentrationen herrschen. Deshalb ist es erforderlich, bei Radon-Messgeräten eine Querempfindlichkeit gegenüber Thoron auszuschließen oder die Thoron-Konzentration getrennt zu bestimmen. Die zweite Option wird in der Weiterentwicklung des aktiven Radon-Messgeräts in Arbeitspaket 4.2 verfolgt.

2.8.4.4 Entwicklung einer Standardmethode für die Bestimmung der Exposition

Einerseits ausgehend von den oben beschriebenen Anforderungen an die Messung der Thoron-Exposition, andererseits unter Berücksichtigung des unterschiedlich großen Aufwands der verschiedenen Messmethoden kann folgendes Vorgehen bei der Einschätzung der Thoron-Exposition in einem bereits bestehenden Haus sinnvoll sein:

– Zunächst aktive Messung der Konzentration von Thoron-Gas wenige Zentimeter vor Wänden, die als mögliche Thoron-Quelle verdächtig sind. Eine einzelne solche Messung kann angesichts der Größe relevanter Thoron-Konzentrationen in der Höhe von mehreren 100 Bq/m³ innerhalb von beispielsweise zwanzig Minuten durchgeführt werden; innerhalb weniger Stunden können mehrere Wände in einem ganzen Haus überprüft werden. Für diese Messungen ist auch das Radon-Thoron-Exposimeter, das in AP 4.2 entwickelt worden ist, geeignet; es bietet die Möglichkeit, bei geringen Kosten mit mehreren Geräten mehrere Wände gleichzeitig untersuchen zu können. Wichtig ist, möglicherweise Thoron-exhalierende Wände in allen Räumen, die durch Luftaustausch mit dem Raum von Interesse (Wohnraum, Schlaf-

raum u. Ä.) in Verbindung stehen, zu berücksichtigen. Als möglicherweise Thoron-exhalierend sollten dabei nach derzeitigem Wissensstand ungebrannte Tone und Lehme (auch überputzt, gestrichen oder tapeziert) und Baustoffe mit vermutlich großem Thorium-Gehalt (z. B. Baustoffe mit Schlacken aus der Erzverhüttung oder mit Flugasche; Europäische Kommission, 1999) angesehen werden. Bleiben alle Messungen ohne positiven Befund, sind eine Thoron-Quelle in dem Haus und damit eine erhöhte Konzentration der Thoron-Folgeprodukte unwahrscheinlich. Bei einem positiven Befund ist jedoch aufgrund des oben beschriebenen variablen Zusammenhangs zwischen Gas- und Folgeprodukt-Konzentration keine quantitative Aussage über die Thoron-Exposition möglich.

– Bei einem positiven Befund bezüglich des Vorkommens von Thoron-Gas in dem Haus Langzeit-Messung der Konzentration der Thoron-Folgeprodukte. Passive, integrierende Messgeräte können dafür eingesetzt werden, wenn in dem Haus Innenraum-Bedingungen (bezüglich der Aerosolkonzentration, der Luftfeuchte etc.) herrschen, wie sie bei der Kalibrierung der Geräte eingestellt wurden. Sollen während der Messung verschiedene Bedingungen eingestellt werden (zum Beispiel durch unterschiedliche Einstellung einer Lüftungsanlage), sind zwangsläufig zeitauflösende Messgeräte erforderlich. Angesichts der geringen Schwankung der Thoron-Folgeprodukt-Konzentration, die in den untersuchten Häusern gefunden wurde, dürfte eine Messzeit von einigen Tagen ausreichend sein.

In einem geplanten oder sich im Bau befindenden Gebäude kann die Messung der Exhalation von Thoron am Baumaterial einen groben Anhaltspunkt über zu erwartenden Thoron-Quellen geben. Dazu muss die Exhalation am Baumaterial, so wie es im Haus verwendet werden soll, also in gleicher Verarbeitung, Dicke etc. bestimmt werden. Eine quantitative Abschätzung der zu erwartenden Thoron-Exposition ist aufgrund der mangelnden Berücksichtigung der weiteren Einflüsse auf die Konzentration der Thoron-Folgeprodukte auf diese Weise aber nicht möglich.

2.8.5. Ausblick

Bislang ist der Schutz vor erhöhten Expositionen gegenüber radioaktiven Edelgasen in Deutschland im Wohnumfeld nicht und am Arbeitsplatz nur in bestimmten Risikobereichen gesetzlich geregelt. Die kürzlich neugefassten EURATOM-Grundnormen (EURATOM, 2013) zählen dagegen die Exposition gegenüber Thoron und seinen Folgeprodukten zu den bestehenden Expositionssituationen, für die die EU-Mitgliedsstaaten bei Überschreitung festzulegender Richtwerte Strategien zum Umgang mit der Situation entwickeln müssen.

Zur Bestimmung der Exposition der Bevölkerung in Deutschland gegenüber Thoron, auch angesichts der zu erwartenden strahlenschutzrechtlichen Regelung dieser Exposition, ist die Durchführung einer Übersichtsmesskampagne in einer Vielzahl von Gebäuden sinnvoll und wünschenswert. Beispielsweise wird in den Niederlanden im Verlauf des Jahres 2014 eine Messkampagne zur Konzentration von Thoron-Folgeprodukten im Umfang von 3000 Häusern durchgeführt (Dekkers et al., 2014). Angesichts der bisherigen Funde erhöhter Thoron-Expositionen in Lehmhäusern sollte bei solchen Übersichtsmessungen besonderes Augenmerk auf Häuser, in dem Lehm, Ton oder mineralogisch ähnliche Baustoffe verwendet wur-

den, und überhaupt auf die Dokumentation der in den Häusern verwendeten Baustoffe gelegt werden.

Für die wissenschaftliche Forschungstätigkeit im Labor kann die Identifizierung und Entwicklung von Lehm-Baustoffen, die den derzeit verwendeten in ihren baulichen und wohnhygienischen Eigenschaften nicht nachstehen, die aber eine geringere Thoron-Exhalation besitzen, ein Ziel sein. Durch die Entwicklung solcher Baustoffe könnten Senkungsmaßnahmen im bestehenden Haus, die meist auch die Mitwirkung der Bewohner erfordern und deshalb einen gewissen Aufwand bedeuten, zumindest für Neubauten an Bedeutung verlieren. Außerdem könnte mit solchen aus Sicht des Strahlenschutzes sicheren Baustoffen der Lehm-Bauindustrie eine Perspektive für gesundes Bauen, nach objektiven Kriterien und auch in der Bewertung durch die Kunden, geboten werden.

2.8.6. Referenzen

Bi L., Li W.B., Tschiersch J., Li J.L.: Age and sex dependent inhalation doses to members of the public from indoor thoron progeny. *Journal of Radiological Protection* 30 (2010) 639–658.

Bi L., Tschiersch J., Meisenberg O., Wielunski M., Li, J. L., Shang B.: Development of a new thoron progeny detector based on SSNTD and the collection by an electric field. *Radiation Protection Dosimetry* 145 (2011) 288-294.

Dekkers F., Blaauboer R., Slaper H: Thoron in the Netherlands – an unexpected exposure. In: *Proceedings IRPA 2014*. Genf, 23.–27.6.2014.

DIN 18947:2013-08. Lehmputzmörtel - Begriffe, Anforderungen, Prüfverfahren. Beuth Verlag, 2013.

EURATOM: Richtlinie 2013/59/Euratom des Rates vom 5. Dezember 2013 zur Festlegung grundlegender Sicherheitsnormen für den Schutz vor den Gefahren einer Exposition gegenüber ionisierender Strahlung und zur Aufhebung der Richtlinien 89/618/ EURATOM, 90/641/ EURATOM, 96/29/ EURATOM, 97/43/ EURATOM und 2003/122/ EURATOM, 2013.

Europäische Kommission: Radiation protection 112. *Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials*. Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, 1999.

Gierl S., Meisenberg O., Wielunski M., Tschiersch J.: An unattended device for high-voltage sampling of radon and thoron progeny. *Review of Science Instruments* 85 (2014) 022013.

ICRP: Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. ICRP Publication 66. *Annals ICRP* 24. Pergamon, 1994.

Li W.B., Tschiersch J., Oeh U., Hoeschen C.: Lung dosimetry of inhaled thoron decay products. *Proceedings IRPA 12*. Buenos Aires, 2008.

Marsh J. W., Harrison J. D., Laurier D., Blanchardon E., Paquet F., Tirmarche M.: Dose conversion factors for radon: recent developments. *Health Physics* 99 (2010) 511–516.

Meisenberg O., Tschiersch J.: Specific properties of a model of thoron and its decay products in indoor atmospheres. *Nukleonika* 55 (2010) 463–469.

Meisenberg O., Tschiersch J.: Thoron in indoor air: modeling for a better exposure estimate. *Indoor Air* 21 (2011) 240–252.

Misdaq M. A., Amghar A.: Radon and thoron emanation from various marble materials: impact on the workers. *Radiation Measurements* 39 (2005) 421–430.

- Mishra R., Mayya Y. S.: Study of a deposition-based direct thoron progeny sensor (DTPS) technique for estimating equilibrium equivalent thoron concentration (EETC) in indoor environment. *Radiation Measurements* 43 (2008), 1408–1416.
- Mishra R., Prajith R., Sapra B. K., Mayya Y. S.: Response of direct thoron progeny sensors (DTPS) to various aerosol concentrations and ventilation rates. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B* 268 (2010) 671–675.
- Sakoda A., Nishiyama Y., Hanamoto K., Ishimori Y., Yamamoto Y., Kataoka T., Kawabe A., Yamaoka K.: Differences of natural radioactivity and radon emanation fraction among constituent minerals of rock or soil. *Applied Radiation and Isotopes* 68 (2010) 1180–1184.
- Shang B., Chen B., Gao Y., Cui H., and Li Z.: Thoron levels in traditional Chinese residential dwellings. *Radiation and Environmental Biophysics* 44 (2005) 193–199.
- Shang B., Tschiersch J., Cui H., Xia Y.: Radon survey in dwellings of Gansu, China: the influence of thoron and an attempt for correction. *Radiation and Environmental Biophysics* 47 (2008) 367–373.
- Schreckenbach H.: *Lehmbau-Info, Verbraucherinformation*. Dachverband Lehm e. V., 2004.
- Sreenath Reddy M., Yadagiri Reddy P., Rama Reddy K., Eappen K. P., Ramachandran T. V., Mayya Y.S.: Thoron levels in the dwellings of Hyderabad city, Andhra Pradesh, India. *Journal of Environmental Radioactivity* 73 (2004) 21–28.
- Tschiersch J., Meisenberg O.: The HMGU thoron experimental house: a new tool for exposure assessment. *Radiation Protection Dosimetry* 141 (2010) 395–399.
- Tuccimei P., Moroni M., Norcia D.: Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: Influence of particle size, humidity and precursors concentration. *Applied Radiation and Isotopes* 64 (2006) 254–263.
- UNSCEAR: UNSCEAR 2006 Report: "Effects of ionizing radiation", Annex E „Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces“. Vereinte Nationen, 2006.
- Wiegand J., Feige S., Quingling X., Schreiber U., Wieditz K., Wittmann C., Xiarong L.: Radon and thoron in cave dwellings (Yan'an, China). *Health Physics* 78 (2000) 438–444.
- World Health Organization: *WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective*. World Health Organization, 2009.
- Zhou W., Iida T.: Estimation of thoron progeny concentrations in dwellings with their deposition rate measurements. *Journal of Health Physics* 35 (2000) 365–370.

3. Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit

Durch die Bearbeitung von radioökologischen, radiochemischen und biokinetischen Fragestellungen wurden sieben Studenten und fünf Nachwuchswissenschaftler auf dem Gebiet der Strahlenforschung weiterqualifiziert. Fünf Dissertationen, eine Masterarbeit und eine Bachelorarbeit wurden angefertigt. Ein wesentlicher Nutzen dieses Vorhabens ist in seinem Beitrag zum Kompetenzerhalt in der Strahlenforschung durch die Förderung des wissenschaftlichen Nachwuchses zu sehen.

In acht Arbeitspaketen mit spezifischer Aufgabenstellung wurden bedeutende wissenschaftliche Ergebnisse erzielt, die zu einem verbesserten Verständnis von radioökologischen und biokinetischen Prozessen führten. Die Arbeiten haben zu einer Verbesserung der Expositions- und Dosisabschätzung für spezielle Expositionsszenarien geführt. Insgesamt sind die Ergebnisse und Schlussfolgerungen im Endbericht, den Promotionsarbeiten, den Tagungsbeiträgen und den Veröffentlichungen in wissenschaftlichen Journalen für die Allgemeinheit und für Gremien wie die SSK, ICRP im Speziellen dokumentiert und zur weiteren Verwertung zur Verfügung gestellt. Im Einzelnen können sich folgende Verwertungsmöglichkeiten ergeben:

Die in *AP 1.1* entwickelte automatische Auswerteroutine kann, insofern die entsprechenden digitalen Karten im ATKIS Format vorhanden sind, zur automatischen Berechnung von Umgebungsfaktoren verwendet werden. Diese Umgebungsfaktoren ermöglichen anschließend eine genauere Interpolation zur Erstellung von Karten der Ortsdosisleistung nach nuklearen Zwischenfällen. Die entwickelte Methodik zur Ermittlung von Umgebungsfaktoren aus Satellitenbildern durch digitale Bildanalyse kann verwendet werden, um die Umgebungsfaktoren an den Messorten des IMIS Netzwerkes, oder an georeferenzierten Messorten von mobilen Messungen zu berechnen. Außerdem bestätigt die Auswertung der Messdaten aus der Fukushima Präfektur aus dem Sommer 2011 nach dem Zwischenfall im Fukushima Daiichi Kernkraftwerk und deren Vergleich mit aus Satellitenbildern ermittelten Umgebungsfaktoren, das Umgebungsfaktorprinzip.

Mit den in *AP 1.3* parametrisierten Washout-Koeffizienten liegen nun geeignete Parameter vor, mit denen die Radionuklidausbreitungsmodelle in europäischen Entscheidungshilfesystemen nach nuklearen Unfällen (z.B. ARTM, RODOS) verbessert werden können. Bisher wurde die Radionukliddeposition in den Modellen nur für Regen als Niederschlagsart, nicht für Schnee berechnet. Die Ergebnisse haben aber gezeigt, dass die Deposition mit Schnee abhängig ist von der Niederschlagsintensität, der Größe der Aerosolpartikel, an die sie gebunden sind und insbesondere von der Art des Niederschlags. Damit ist es möglich, nasse Depositionen von Radionukliden nach einer Freisetzung radioaktiver Stoffe in die Umwelt für unterschiedliche Niederschlagsarten zu prognostizieren. Die Ergebnisse der Tracerexperimente im Labor haben gezeigt, dass der Radionuklidtransport in der Schneedecke an den Transport des Flüssigwassers gebunden ist und erst einsetzt, wenn die Temperaturen oberhalb des Taupunkts liegen. Diese Informationen können zum einen genutzt werden, um rechtzeitig geeignete Gegenmaßnahmen zu veranlassen. Zum anderen können Prognosen über mögliche Kontaminationen in Oberflächengewässern gemacht werden.

Die in *AP3.1* erzielten wissenschaftlichen Ergebnisse führten zu einer Verbesserung der Expositions- und Dosisabschätzung für spezielle Expositionsszenarien (Ingestion von Uran aus Böden). Dies ist insbesondere für Strahlenschutzkommissionen von Interesse, da bislang die interne Strahlenbelastung beim Menschen eher für lösliches Uran aus Lebensmittel und Trinkwasser (und nicht für Böden) berücksichtigt ist. Die Ergebnisse sind interessant auch für alle Wissenschaftler, die sich allgemein mit der Biokinetik, Modellierung und Dosimetrie von Radionukliden befassen.

Das wichtigste in *AP3.3* erzielte Ergebnis besteht darin, dass ein Verfahren entwickelt wurde, mit in-vivo Messungen einer inkorporierten ²⁴¹Am-Aktivität in Schädelgeometrie erstmals probanden-spezifisch durchgeführt werden können. Dieses Verfahren ist allgemein gültig und kann auch von anderen Messlabors, die eine ähnliche apparative Ausstattung aufweisen, angewandt werden. Im Teilprojekt konnte zudem an zwei realen Fällen gezeigt werden, dass bei Anwendung des entwickelten Verfahrens die Bestimmung einer inkorporierten ²⁴¹Am Aktivität mittels in-vivo Messung um bis zu einem Faktor 2 genauer durchführbar ist. Dies bedeutet auch, dass die Dosisbestimmung entsprechend genauer ist. Schließlich zeigen die erzielten Ergebnisse, dass Teilkörperzähler mittels Voxelpantomen und Strahltransportrechnungen rechnerisch kalibriert werden können, und reale anthropomorphe Schädelphantome nicht unbedingt nötig sind.

Die in *AP 3.4* erzielten wissenschaftlichen Ergebnisse unterstützten die wissenschaftlichen Arbeiten und Erkenntnisse der kooperierenden Arbeitspakete. Die Arbeiten ermöglichten eine realistische Dosisabschätzung der einzelnen Expositionsszenarien und können in die Arbeit von nationalen und internationalen Gremien des Strahlenschutzes einfließen.

In *AP 4.1* wurde eine experimentelle Prozedur für die Datenaufbereitung zur Bestimmung von Inhalationsdosen von natürlichen Radionukliden (Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228) für Arbeiter von Geothermiekraftwerken aufgrund von Reinigungsarbeiten an Werkzeug/Einrichtungen dargestellt. Die Studie zeigt die Organisation von Ernährungsplänen, Reinigungsarbeiten, Ausscheidungssammlungen und Analysen der Targetnuklide in Lebensmittel, Getränken (HMGU) und Ausscheidungen (VKTA). Anhand der bei dieser Studie von zwei Instituten bestimmten Daten lassen sich Inhalationsdosen für diesen Arbeitsprozess berechnen. Es kann davon ausgegangen werden, dass die Nachfrage nach geothermischer Energie für die Energieversorgung von Deutschland in Zukunft ansteigen wird. Demzufolge wird ein größerer Personenkreis betroffen sein. Diese Modelstudie könnte maßgebend für Abschätzung der Exposition von Arbeitern in der Geothermie sein.

Die zu Beginn von *AP 4.2* bereits begonnenen Verhandlungen mit einem industriellen Partner konnten während der Laufzeit von *AP 4.2* erfolgreich abgeschlossen werden. Mittlerweile bietet die Firma Saphymo ein Gerät an („AlpHE“), das aus dem am ISS des HMGU entwickelten Prototypen des elektronischen Radon Exposimeters hervorgegangen ist. Dieselbe Firma hat bereits Interesse an den im Rahmen von *AP 4.2* erzielten Ergebnissen bekundet (Verbesserung der Empfindlichkeit um einen Faktor zwei in Bezug auf den Nachweis von Radon; Möglichkeit des Nachweises von Thoron durch Bestimmung der Energie der nachgewiesenen Alphateilchen; Optimierung des angewandten Nachweiskonzepts

unter Verwendung der mit GEANT4 erzielten Simulationsergebnisse). Die im Rahmen von AP 4.2 erzielten Ergebnisse könnten also langfristig zu einem verbesserten marktfähigen elektronischen Radonexposimeter führen, das auch für den Nachweis von Thoron geeignet ist.

Im Rahmen von AP 4.3 wurden Eigenentwicklungen von passiven Messgeräten für die Messung von Thoron und Thoron-Folgeprodukte eingesetzt und im praktischen Betrieb getestet. Insbesondere für das wartungsfreie, batteriebetriebene Folgeprodukt-Messgerät (UBPM) gibt es bisher am Markt keine vergleichbaren Systeme, die für einen Einsatz in nationalen Erhebungsprogrammen geeignet wären. Die Erfahrung in AP 4.3 mit diesem Gerät kann mittelfristig zu einem verbesserten marktfähigen Thoron Folgeprodukt-Messgerät führen. Durch Exhalationsmessungen von Lehmbaustoffen wurden Hinweise für Thoron armes Bauen erarbeitet. Diese Erkenntnisse in die Lehmbauwirtschaft kommuniziert, können zu Expositionsreduzierung in Lehmhäuser beitragen.

Die Anschlussfähigkeit der Studien konnte für die verschiedenen Arbeitsgebiete herausgearbeitet werden. Nach dem in Arbeitspaket 1.1 die Methodik der Ermittlung von Umgebungsfaktoren aus Satellitenbildern durch digitale Bildanalyse entwickelt wurde, kann sie verwendet werden, um die Umgebungsfaktoren an den Messorten des IMIS Netzwerkes, oder an georeferenzierten Messorten von mobilen Messungen zu berechnen. In der Radioökologie bei Schnee (AP 1.3) lag der Schwerpunkt bislang auf der Quantifizierung des Eintrags von Radionukliden, Akkumulation über den Winter und Freisetzung bei der Schneeschmelze im Frühjahr bedürfen noch verstärkter Forschung. Bei der Inkorporation von Radionukliden (AP 3.1 und AP 4.1) und der biokinetischen Modellierung (AP 3.4) sind die für einzelne Radionuklide die biokinetischen und radiochemischen Grundlagen gelegt. Sie gilt es zu verfeinern und auf weitere relevante Stoffgruppen auszudehnen. Die Entwicklung aktiver personengetragener Detektoren für Radon- und Thoronexpositionen (AP 4.2) hat funktionstüchtige Prototypen hervorgebracht, die noch zur Marktreife geführt werden müssen. In AP 4.3 konnte gezeigt werden, dass ein bestimmter Haustyp (Lehmbauweise) signifikante Thoron-Expositionen hervorrufen kann. Eine generelle Übersicht über die Thoronexposition in Deutschland, die auch andere Bauformen einschließt, steht noch aus.

4. Erfolge und geplante Veröffentlichungen

Die Veröffentlichungstätigkeit im den verschiedenen Arbeitspaketen war bereits rege, weitere Arbeiten sind bereits eingereicht oder in Planung. Besonders hervorzuheben sind die zahlreichen gemeinsamen Publikationen unterschiedlicher APs, was die gute Zusammenarbeit im Verbund dokumentiert.

Veröffentlichungen (peer reviewed, fett: gemeinsame Publikationen mit Co-Autoren anderer Arbeitspakete)

Bernauer, F., Hürkamp, K., Ries, L., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015. Below cloud scavenging for different types of precipitation. *in preparation.*

Bernauer, F., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015. On the consistency of 2D-video disdrometers in measuring microphysical parameters of solid precipitation. *Atmospheric Measurement Techniques* 8, 3251-3261, doi:10.5194/amt-8-3251-2015

Bernauer, F., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015. Snow event classification with a 2D-Video Disdrometer - a decision tree approach. Atmospheric Research, *submitted*.

Bi, L., Li, W.B., Tschiersch, J., Li, J.L., 2010. Age and Sex Dependent Inhalation Doses to Members of the Public from Indoor Thoron Progeny. Journal of Radiological Protection 30, 639-658.

Bi, L., Tschiersch, J., Meisenberg, O., Wielunski, M., Li, J. L., Shang, B., 2011. Development of a new thoron progeny detector based on SSNTD and the collection by an electric field. Radiation Protection Dosimetry 145, 288-294.

Brudecki, K., Li, W.B., Meisenberg, O., Tschiersch, J., Hoeschen, C., Oeh, U., 2014. Age-dependent inhalation doses to members of the public from indoor short-lived radon progeny. Radiation and Environmental Biophysics 53:535–549.

Chalupnik, S. ; Meisenberg, O. ; Bi, L. ; Wang, J. ; Skubacz, K. ; Tschiersch, J., 2010. Application of LSC and TLD methods for the measurement of radon and thoron decay products in air. Radiat. Prot. Dosim. 141, 390-394.

Dräxl, S., Müller, J., Li, W.B., Michalke, B., Scherb, H., Hense, B.H., Tschiersch, J., Kanter, U., Schäffner, A.R., 2013. Caesium accumulation in yeast and plants is selectively repressed by loss of the SNARE Sec22p/SEC22. Nature Communications 4, 2092.

Gierl, S.; Meisenberg, O.; Feistenauer, P.; Tschiersch, J., 2014. Thoron and thoron progeny measurements in German clay houses. Radiat. Prot. Dosim. 160, 160-163.

Gierl, S.; Meisenberg, O.; Haninger, T.; Wielunski, M.; Tschiersch, J., 2014. An unattended device for high-voltage sampling and passive measurement of thoron decay products. Rev. Sci. Instruments 85:022103

Hofmann, W.; Winkler-Heil, R.; Truta, L.A.; Tschiersch, J., 2014. Application of a Monte Carlo lung dosimetry code to the inhalation of thoron progeny. Radiat. Prot. Dosim. 160, 96-99.

Hürkamp, K., Tafelmeier, S., Shinonaga, T., Tschiersch, J., 2015. Laboratory tests of melting radioactively contaminated snowpacks. *in preparation*.

Hürkamp, K., Walther, C. et al., 2016. Transport of I-129 to Mt. Zugspitze. *in preparation*.

Irlinger, J., Trinkl, S., Wielunski, M., Rühm, W., 2015. Monte Carlo simulation of semiconductor detector response to ²²²Rn and ²²⁰Rn environments. *in preparation*.

Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., 2014. Thoron detection with an active radon exposure meter. *Review of Scientific Instruments*, 85(2):022106.

Li, W.B., Klein, W., Blanchardon, E., Puncher, M., Leggett, R.W., Oeh, U., Breustedt, B., Nosske, D., Lopez, M.A., 2015. Parameter Uncertainty Analysis of a Biokinetic Model of Caesium. Radiation Protection Dosimetry, 163 (1): 37-57.

Nogueira, P., Rühm, W., 2015. Person-specific Calibration of a Partial Body Counter. Physics in Medicine and Biology, *in preparation*.

Nogueira, P., Rühm, W., M.A. Lopez, T. Vrba, W. Buchholz, P. Fojtík, G. Etherington, D. Broggio, J. Huikari, O. Marzocchi, T. Lynch, A. Lebacqz, C. Li, J. Oško, I. Malátova, D. Franck, B. **Breustedt, D.** Leone, J. Scott, A. Shutt, B. Hauck, K. Capello, B. Pérez-López, J. F. Navarro-Amaro, T. Pliszczynski, K. Fantínová, S. Y. Tolmachev., 2015. EURADOS 241Am in vivo skull measurements intercomparison. Radiation Measurements, *submitted*.

Schelle, A., Staudt, C., Wieser, A., Kaiser, J.C., 2015. Location factors improve mappings of radioactive contamination, *in preparation*.

Schmidl, D., Hug, S., Li, W.B., Greiter, M.B., Theis, F.J. , 2012. Bayesian model selection validates a biokinetic model for zirconium processing in humans. *BMC Systems Biology*, 6:95.

Shinonaga T., Walther D., Li W.B. et al., 2015. Model experiment for dose estimation for workers at geothermal energy plants. *in preparation*.

Träber, S., Höllriegl, V., Li, W.B., Czelik, U., **Rühm, W., Oeh, U,** Michalke, B., 2014. Estimating the absorption of soil-derived uranium in humans. *Environmental Science and Technology*, 48, 14721-14727

Träber, S., Li, W.B., Höllriegl, V., Nebelung, K., Michalke, B., **Rühm, W., Oeh, U.** , 2015. Calculation of internal dose from ingested soil-derived uranium in humans - Application of a new method. *Radiat Environ Biophys* 54, 265–272.

Tschiersch, J., Meisenberg, O., Wang, J., 2012: Reducing the inhalation dose from radon decay products. *Science of the Total Environment* 435–436, 578–579.

Vrba, T., Broggio, D., Caldeira, M., Capello, K., Fantínová, K., Franck, D., Gómez-Ros, J. M., Hunt, J., Kinase, S., Leone, D., Lombardo, P. A., Manohar, M., Marzocchi, O., Moraleda, M., Nogueira, P., Oško, J., Arron, S., Suhl, S., Takahashi, M., Teles, P., Tremblay, M., Tymińska, K., Lopez, M. A., Tanner, R., 2015. EURADOS intercomparison exercise on MC modelling for the in-vivo monitoring of Am-241 in skull phantoms (Parts II and III), *Radiation Physics and Chemistry*, *submitted*.

Vrba, T., P. Nogueira, D. Broggio, M. Caldeira, K. Capello, K. Fantínová, C. de Sousa Figueira, J. Hunt, D. Leone, M. Murugan, O. Marzocchi, M. Moraleda, A. Shutt, S. Suh, M. Takahashi, K. Tymińska, M. A. Lopez, R. Tanner (2014) EURADOS intercomparison exercise on MC modeling for the in-vivo monitoring of Am-241 in skull phantoms (Part I), *Radiation Physics and Chemistry* (104), 10.1016/j.radphyschem.2013.12.010

Wang, J., Meisenberg, O., Chen, Y., Karg, E., Tschiersch, J., 2011: Mitigation of radon and thoron decay products by filtration. *Science of the Total Environment* 409, 3613-3619.

Wang, J., Meisenberg, O., Chen, Y.H., Bi, L., Tschiersch, J., 2012: Mitigation of thoron exposure by application of wallpaper as a diffusion barrier. *Radiation Protection Dosimetry* 152, 94-97.

Veröffentlichungen (sonstige)

Bernauer, F., 2012. Rain and snow event dependent determination of washout coefficients for particle bound radionuclides in free atmosphere experiments. 2. UFS Workshop, Oberpfaffenhofen, 26.-27.09.2012.

Bernauer, F., 2015. Atmospheric washout of radioactive aerosol for different types of precipitation events. Dissertation LM Universität München.

Bernauer, F., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2014. Ground Based In-situ Measurements of Snowfall with a 2D-Video Distrometer on Mt. Zugspitze, Germany. American Geophysical Union Fall Meeting, San Francisco, USA, 15.-19.12.2014.

Bernauer, F., Hürkamp, K., Shinonaga, T., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015. Atmospheric washout of radioactive aerosols in case of snow. Seminar of the Department of Radiation Sciences, Helmholtz Zentrum München, 13.04.2015.

Bernauer, F., Hürkamp, K., Tschiersch, J., 2013. Determination of washout coefficients for particle bound radionuclides in rain and snow events. 9th Summer School on Atmospheric Aerosol Physics, Measurement, and Sampling, Hyytiälä, Finland, 4.-10.05.2013.

Bernauer, F., Hürkamp, K., Tschiersch, J., 2013. Washout Coefficients for Particle Bound Radionuclides in Rain and Snow Events. *Verhandlungen der DPG (VI)*, 48, 4.

Bernauer, F., Ries, L., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2014. Scavenging of Ultra Fine Particles in Different Types of Snowfall Events. *International Aerosol Conference*, Busan, Korea, 28.08.-02.09.2014

Bernauer, F., Schwinzerl, M., Hürkamp, K., Rühm, W., Tschiersch, J., 2015. Ground Based In-situ Measurements of Snow Fall with a 2D-Video Disdrometer on Mt. Zugspitze, Germany. *Verhandlungen der DPG (VI)*, 50, 4.

Dieter A., 2015: Method Development and Validation for the Quantification of Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 in foods and drinking water. Dissertation, TUM München, *in preparation*.

Dieter A., Shinonaga T., Hampe, D., 2012: Determination of low-level naturally occurring radionuclides in food reference standard materials, IAEA-414 and NIST SRM 4359. 13th International Symposium on Biological and Environmental Reference Materials (BERM 13), IAEA, Vienna, Austria, 25-29 June, 2012

Hürkamp, K., 2012. Radioecological investigations of the behavior and transport of radionuclides for the pathway from snow to water. 2. UFS Workshop, Oberpfaffenhofen, 26.-27.09.2012.

Hürkamp, K., Bernauer, F., Ries, L., Tschiersch, J., 2014. Washout of particle-bound radionuclides for characterised rain and snow events on Mt. Zugspitze, Germany. *International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity*, Barcelona, Spain, 7.-12.09.2014.

Hürkamp, K., Bernauer, F., Schiestl, E.-M., Ries, L., Tschiersch, J., 2015. Radionuclide deposition with snow on Mt. Zugspitze, Germany: Washout and release to surface water. *ENVIRA 2015, International Conference on Environmental Radioactivity*, Thessaloniki, Greece, 21-25 September 2015.

Hürkamp, K., Bernauer, F., Tafelmeier, S., Tschiersch, J., 2012. Radioökologie bei Schnee. *UFS Scientific Results 2011/2012*, 33-34.

Hürkamp, K., Bernauer, F., Tschiersch, J., 2015. Washout von aerosolgebundenen Radionukliden mit Schnee. *UFS Scientific Results 2013/2014*.

Irlinger, J., 2015. Development of an electronic monitor for the determination of individual radon and thoron exposure. Ludwigs Maximilian Universität München, <http://edoc.ub.uni-muenchen.de/18342/>.

Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., 2012. Bhabha Atomic Research Centre, Introduction to the HMGU individual radon and thoron exposure monitor, principle and development, BARC, Mumbai, October 2012.

Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., 2012. The HMGU Personal Radon and Thoron Exposure Meter, *WE- Heraeus Advance Physics School on Ionizing Radiation and Protection of Man and his Environment*, Bad Honnef, Germany, August 2012.

Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., 2013. The HMGU Personal Radon and Thoron Exposure Meter, *7th Conference of Protection against Radon at Home and at Work*, Prague, Czech Republic, September 2013.

Irlinger, J., Wielunski, M., Rühm, W., 2013. The HMGU Personal Radon and Thoron Exposure Meter, Bayerisches Landesamt für Umwelt, 2. *Bayerisches Radon-Netzwerk-Treffen*, München, Germany, September 2013.

Kaiser, J.C. & A. Schelle, 2013. Automatic calculation of location factors for mapping of ground contamination; Joint International Workshop on Off-site Gamma Dose Rate and Ground Contamination Measurements, Invited talk, Freiburg i. Breisgau, Mai 2013

Lopez, M. A., J. Navarro Amaro, B. Pérez López, T. Navarro Bravo, P. Nogueira, T. Vrba, 2013. Acción EURADOS para la determinación de mericio en cráneo mediante medidas in-vivo y simulación Monte Carlo (Spanish), 3 Congreso Conjunto SEFM 19 – SEPR 14, Cáceres.

Meisenberg, O.; Gierl, S.; Tschiersch, J., 2013: Measurement of thoron and its progeny in traditional and modern earthen buildings in Germany – methodology and results. Proceedings Int. AARST Symposium, Springfield IL, 45-53.

Nogueira, P., Rühm, W., 2011. EURADOS Am-241 Skull measurements intercomparison - progress report I, EURADOS WG7 plenary meeting, Gent Belgium, September 2011. 126 Scientific publications

Nogueira, P., Rühm, W., 2011. Partial body counter of the Institute of Radiation Protection, WE- Heraeus Advanced Physics School on Ionizing Radiation and the Protection of Man and his Environment, Bad Honnef, Germany, May 2011.

Nogueira, P., Rühm, W., 2012. EURADOS Am-241 Skull measurements intercomparison - progress report II, EURADOS Annual meeting, Vienna Austria, February 2012.

Nogueira, P., Rühm, W., 2012. Monte Carlo Simulation of the real activity distribution pattern in a skull voxel phantom, ICRS-12 & RSPD-2012 - 12th International Conference on Radiation Shielding & 17th Topical Meeting of the Radiation protection and Shielding Division of ANS, Nara, Japan, September 2012.

Nogueira, P., Rühm, W., 2013. EURADOS 241Am Skull measurements intercomparison – preliminary results, EURADOS Annual meeting, Barcelona Spain, February 2013.

Pan, Y.; Qiu, R.; Li, J.; Bi, L.; Shang, B.; Tschiersch, J., 2013: Integrating high voltage electric field detector for ^{220}Rn progeny. Journal of Tsinghua University (Qinghua Daxue Xuebao) 53, 1380-1384 (in Chinese).

Schelle, A., Kaiser, J.C., 2012. Mapping radioactive contamination with location factors, International Conference of the International Radiation Protection Association, Glasgow, Scotland.

Tafelmeier, S., 2012. Deposited radionuclides in snow: Laboratory tracer experiments to determine their migration and retention in snow columns. 2. UFS Workshop, Oberpfaffenhofen, 26.-27.09.2012.

Tafelmeier, S., 2013. Abgelagerte Radionuklide im Schnee: Migration und Verbleib. Masterarbeit am Helmholtz Zentrum München.

Träber, S., Höllriegl, V., Li, W.B., Czeslik, U., Feistenauer, P., Michalke, B., Oeh, U., Rühm, W., 2013. Improving the Internal Dose Estimation for Ingested Soil-Derived Uranium. Poster Präsentation HEIR 2013 Conference, 13.-17. Okt. 2013, Berkeley, USA.

Tschiersch, J., 2013. Radioökologie bei Schnee. Eingeladener Vortrag 58. Radiometrisches Seminar Theuern, 18.10.2013.

Tschiersch, J., 2014. Strahlenexposition durch Thoron in Innenräumen. Eingeladener Vortrag Radioökologie-Ausschuss der SSK, Bonn, 10.10.2014.

Tschiersch, J., 2014. Thoron – Das neue Radon? Eingeladener Vortrag BfS, Berlin, 17.2.2014

Tschiersch, J., 2015. Radon und Thoron im Innenraum: ein unterschätztes Strahlenrisiko? Eingeladener Vortrag, Schleißheimer Forum, Bayerisches Landesamt für Gesundheit und Lebensmittelsicherheit, Oberschleißheim, 22.04.2015.

Tschiersch, J., 2015. Radon und Thoron-Emanation aus Böden und Baumaterial. Eingeladener Vortrag Geowissenschaftliches Kolloquium, Friedrich Schiller Universität Jena, 22.06.2015.

Tschiersch, J., 2015. Thoron im Innenraum. Eingeladener Vortrag 1. Radonfachtag des Berufsverband Deutscher Baubiologen (VDB), München, 23.04.2015.

Tschiersch, J., Bernauer, F., Ries, L., Hürkamp, K., 2015. Radionuclides in snow: Scavenging and transfer to surface and drinking water. ICRR2015, 15. International Conference of Radiation Research, Kyoto, Japan, 25.-29.05.2015, **Excellent Poster Award**.

Unger, A., Hürkamp, K., Rühm, W., 2014. Ganz oben. Helmholtz Perspektiven, 4, 24-27.


Filmbeitrag

BR BAYERISCHES FERNSEHEN

BR.de > Fernsehen > Bayerisches Fernsehen > Auf höchstem Niveau

Auf höchstem Niveau

Ausbildung rund um die Zugspitze



Donnerstag, 30.01.2014
17:00 bis 17:30 Uhr

[▶](#)

Bayerisches Fernsehen

[▶ Ganze Sendung in der Mediathek ansehen](#)

Dem Schnee auf der Spur - Die Reihe "Auf höchstem Niveau - Ausbildung rund um die Zugspitze" begleitet junge Menschen, die rund um Deutschlands höchstem Berg in die Lehre oder Fortbildung gehen.

Knapp 200 Meter unterhalb des Zugspitzgipfels forscht Felix Bernauer 2650 Meter über Normalnull im Schneefernerhaus für seine Doktorarbeit. 60 Jahre lang war das Gebäude ein Berghotel. Vor 1997 wurde der Gastbetrieb eingestellt und das Schneefernerhaus nach einem 16 Millionen Mark teuren Umbau zu Deutschlands höchstgelegener Umweltforschungsstation ernannt. Seit eineinhalb Jahren ist Felix Bernauer mindestens einmal die Woche hier oben. Der 30-Jährige Physiker arbeitet für das Helmholtz-Zentrum München - und interessiert sich in erste Linie für: Schnee.

Redaktion: Petra Renner

5. Zusammenfassung

In dem Verbundprojekt „Strahlung und Umwelt II: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ wurde durch die Ausbildung und den Einsatz junger Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler ein Beitrag zum Kompetenzerhalt in der ökologischen Strahlenforschung und zu einem verbesserten Verständnis von radioökologischen, radiochemischen und biokinetischen Prozessen geleistet. Die Arbeiten hatten insgesamt das Ziel, zu einer Verbesserung der Quantifizierung der Strahlenexposition und der Strahlendosis der Menschen zu führen, die durch Radionuklide in der Umwelt ionisierender Strahlung in verschiedenster Weise ausgesetzt sind. In acht Arbeitspaketen mit spezifischer Aufgabenstellung wurden in interdisziplinärer Zusammenarbeit die im Folgenden zusammengefassten Ergebnisse erzielt.

Die in *AP 1.1* entwickelte automatische Methode zur Berechnung von Umgebungsfaktoren aus digitalen Karten ermöglicht eine schnelle und reproduzierbare Korrektur von einer Vielzahl von Messungen der γ -Dosisrate (GDR). Dadurch können genauere Kontaminationskarten erstellt werden, da Fluktuationen in dem verwendeten Datensatz reduziert werden. Zusätzlich können entsprechende Karten mit höherer Auflösung erstellt werden, wobei die Kontamination auch auf einer linearen, anstelle einer logarithmischen Skala dargestellt werden kann.

Die Erstellung der automatischen Routine hat allerdings auch einige Schwachstellen aufgezeigt. Die hier vorgestellten Methoden berücksichtigen lediglich zweidimensionale Effekte auf die Berechnung der Umgebungsfaktoren. Reale Umgebungen beinhalten hingegen dreidimensionale Objekte wie die Landschaftsform, Bäume oder Gebäude. Aus diesem Grund sind die Auflösung und der Informationsgehalt von kommerziell verfügbaren Karten für eine automatische Auswertung möglicherweise ungenügend.

Als alternative Auswertemethode wurde eine manuelle Auswertung von Satellitendaten von Messorten in der Fukushima Präfektur mit digitaler Bildanalyse im Rahmen des Arbeitspaketes durchgeführt. Da diese Auswertemethode sowohl eine höhere Auflösung von Landschaftsformen als eine topographische Karte ermöglicht, als auch einen Vergleich mit aktuellen Satellitendaten zulässt, können die Umgebungsfaktoren zuverlässig berechnet werden. Diese Zuverlässigkeit konnte durch einen Vergleich von empirischen aus GDR und Kontaminationsdaten berechneten Umgebungsfaktoren, und aus Satellitendaten berechneten theoretischen Umgebungsfaktoren im Falle von Messorten in der Fukushima Präfektur demonstriert werden.

In *AP 1.3* wurden Parameter erhoben, die die Auswascheffizienz von Regen, Schnee und Schneeregen charakterisieren und so aufbereiten, dass sie in die gängigen Radionuklidenausbreitungsmodelle integriert werden können. Besonderes Augenmerk wurde dabei auf die Auswascheffizienz verschiedener Arten von Schneekristallen gerichtet und auf den Einfluss meteorologischer und schneemikrophysikalischer Parameter. Damit wird die Beschreibung der nassen Deposition als einer der wichtigsten Prozesse für den Eintrag von aerosolgebundenen Stoffen (z.B. Radionukliden) in Ökosysteme um den Auswaschprozess durch Schnee erweitert.

Ein 2D-Video Distrometer wurde für die Charakterisierung der Niederschlagsereignisse eingesetzt und für die Auswertung von Schnee mussten computergestützte Routinen neu entwickelt werden. Regen-, Schnee- und Schneeregenereignisse mit Hydrometeorgrößen über 0,5 mm können damit nun zuverlässig bestimmt und Schnee zwischen drei verschiedenen Kristalltypen und drei verschiedenen Bereifungsgraden unterschieden werden. An einem erhobenen Datensatz mit 74 % Schnee-, 19 % Schneeregen- und 7 % Regenereignissen wurden Scavenging-Koeffizienten zwischen $(5,0 \pm 0,7) \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ und $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ berechnet, die eine deutliche Abhängigkeit vom Kristalltyp, vom Aerosolpartikeldurchmesser und von der Niederschlagsintensität zeigten. Je komplexer und wassergesättigter die Schneeflocken, desto größer die Effizienz des Auswaschprozesses durch Schnee.

Für die Implementierung in Entscheidungshilfesystemen für nukleare Notfälle wurde der Scavenging-Koeffizient mit Hilfe des bereits integrierten Potenzgesetzes $\Lambda = A (I/I_0)^B$ in Abhängigkeit von der Niederschlagsrate I parametrisiert. Es liegen nun Parameter (Konstanten A und B) für verschiedene Typen von Niederschlagsereignissen mit Intensitäten zwischen 0,1-4,0 mm h⁻¹. Bei Niederschlagsraten unter 1,5 mm h⁻¹ hat Schnee höhere Washout-Effizienzen als Regen. Besonders bei Niederschlagsereignissen mit schwachen Intensitäten um die 0,5 mm h⁻¹ kann der Auswaschprozess durch Schneefall etwa achtmal effizienter als der durch Regen sein.

In Tracerexperimenten mit auf Schneesäulen aufgetragenen künstlichen Radionukliden wurden zudem das Migrationsverhalten der radioaktiven Stoffe in der Schneedecke und die Freisetzung mit dem Schmelzwasser untersucht. Ein Transport der partikelgebundenen Nuklide findet nur konvektiv bei Vorhandensein von flüssigem Wasser statt und orientiert sich an präferentiellen Fließbahnen. Der diffusive und dispersive Transport bei Temperaturen unter dem Gefrierpunkt ist vernachlässigbar. Eine Freisetzung der radioaktiven Stoffe mit dem Schmelzwasser aus der Schneedecke erfolgt aber erst nach vollständiger Wassersättigung der basalen Schneeschicht, so dass eine lang existente geschlossene Schneedecke die Freisetzung extrem verzögern kann. Mit dem ersten Schmelzwasser erfolgt die Abgabe der Radionuklidfracht dann aber relativ rasch und in hoher Konzentration. 80 % der Radioaktivität waren in den Versuchen in den ersten 20 % des Schmelzwassers enthalten, so dass eine mögliche Kontamination des Oberflächenwassers und daran gebundene Trinkwasserreservoirs gut prognostizierbar wird und die Strahlenexposition der Bevölkerung entsprechend vermindert werden kann.

Ein Ziel von AP 3.1 war es, zunächst die Aufnahme von Uran aus Böden beim Menschen abzuschätzen. Hierzu wurde ein *in vitro* Löslichkeitsexperiment zusammen mit einer Humanstudie unter Verwendung eines spezifischen essbaren Bodens (Heilerde) mit niedrigen Urangehalten verwendet. Die durchschnittliche Löslichkeit des Urans aus diesem Boden in einem künstlich hergestellten Magen-Darmsaftgemisch betrug 7,7% mit einer Standardabweichung von 0,2%. Die entsprechende Bioverfügbarkeit des Urans war log-normal verteilt und hatte einen geometrischen Mittelwert von 0,04% mit 95% Konfidenzintervall zwischen 0,0049% und 0,34%. Beide Ergebnisse (der Löslichkeit und Bioverfügbarkeit) wurden verwendet, um den Faktor f_A^{sol} zu berechnen, der die Beziehung zwischen der Löslichkeit und der Bioverfügbarkeit des Urans aus dem Boden beim Menschen beschreibt. Das geometrische Mittel von f_A^{sol} betrug 0,53%, mit einem 95%-Konfidenzintervall von 0,06% bis 4,43%. Basierend darauf ist es möglich, mehr realistische

Werte über die Bioverfügbarkeit von Uran aus hochkontaminierten, uranhaltigen Böden beim Menschen alleine durch Durchführen des Löslichkeitstests zu erhalten. Am Beispiel zweier hochbelasteter Böden aus ehemaligen Uranabbaugebieten in Deutschland (mit 460 mg/kg bzw. 550 mg/kg ^{238}U) wurden für diese Bodenproben Bioverfügbarkeitswerte von 0,18% bzw. 0,28% (geometrisches Mittel) ermittelt, mit einem 95%-Konfidenzintervall von 1,48% bzw. 2,34% sowie mit einem 2,5%-Konfidenzintervall von 0,02% bzw. 0,03%.

Ein weiteres Ziel dieser Arbeit war die Bestimmung der internen Dosis nach Aufnahme von Uran aus hochkontaminierten, uranhaltigen Böden. Dazu wurde die Bioverfügbarkeit von Uran für zwei hochbelastete Böden (und einem uranhaltigen Phosphatdünger) bestimmt. Anschließend wurden die Ergebnisse in das Biokinetikmodell von Uran integriert und die interne Dosis abgeschätzt. Es ist davon auszugehen, dass eine exemplarische Aufnahme von täglich 10 mg dieser hochbelasteten Böden (oder Dünger) über ein Jahr kein wesentliches Strahlenrisiko für die Bevölkerung darstellt. Die berechnete jährliche Dosis zeigte mit 0,6 μSv vergleichbare Werte wie die jährliche effektive Folgedosis für natürliches Uran aus Lebensmittel und Trinkwasser (0,5 μSv).

Am-241 ist ein Radionuklid von besonderem Interesse, weil es Kalzium in der Knochenstruktur ersetzen kann und weil die bei seinem Zerfall emittierten Alphateilchen ihre Energie über eine kurze Strecke an das umgebende Gewebe wie zum Beispiel das Knochenmark abgeben. Direkte Messungen mit einem Teilkörperzähler bestehend aus Detektoren, welche außerhalb des Körpers angeordnet sind, stellen ein typisches Verfahren dar, um inkorporiertes ^{241}Am über den Nachweis von den beim Zerfall ebenfalls emittierten 60 keV Photonen zu quantifizieren. Im Rahmen von AP 3.3 wurde der am Helmholtz-Zentrum München (HMGU) betriebene Teilkörperzähler (Partial Body Counter - PBC) für eine Schädelgeometrie mit drei verschiedenen Phantomen, einem Schädelphantom des US Transuranium and Uranium Registries (USTUR Case 102), einem des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) und einem des National Radiation Protection Institut (CSR), kalibriert. Um diese Kalibrierung zu validieren, wurde im Rahmen von AP3.3 ein internationaler Vergleich organisiert, an dem elf auf in-vivo Messungen spezialisierte Labore aus Europa und Nordamerika teilnahmen. Ein Vergleich der erzielten Messergebnisse zeigte eine hervorragende Übereinstimmung zwischen den HMGU-Messungen und den Messungen der anderen elf Teilnehmer dieses Ringvergleiches mit relativen Unterschieden von weniger als 10% für alle Messungen.

Parallel dazu wurde einer der im PBC verwendeten Ge-Detektoren unter Verwendung einer Punktquellen-Geometrie rechnerisch kalibriert. Dazu wurde das am CERN entwickelte Monte-Carlo-Programm GEANT4 verwendet und die Ergebnisse durch einen Vergleich mit Simulationen mit dem Monte-Carlo-Programm MCNPX überprüft. Durch einen Vergleich mit Messungen wurde dann das für die Simulationen verwendete Detektormodell angepasst. Danach wurde der Einfluss von kritischen Körperparametern, welche Schädelmessungen betreffen (z.B. Schädelform und -größe, Dicke der Kopfhaut), mit Hilfe von GEANT4 untersucht. Es zeigte sich, dass, je nach der ^{241}Am Verteilung im Schädelknochen, die Nachweiseffizienz in Abhängigkeit vom Abstand zwischen dem Detektor und der Phantomoberfläche sich um bis zu 9% änderte. In Abhängigkeit von der Zeit zwischen der Aufnahme in den Körper und der Messung ergab sich eine Verringerung der Nachweiseffizienz um bis zu 28%. Bei einer typischen Dicke der Kopfhaut im Bereich

zwischen 3.6 und 6.0 mm ändert sich die Nachweiseffizienz um bis zu 10%. Die Nachweiseffizienz für einen kleinen Kopfradius (81.8 cm) ist um den Faktor 2 größer als die für einen großen Kopfradius (105.5 cm). Die Monte-Carlo-Ergebnisse wurden dann verwendet, um "Korrekturfaktoren" für die Nachweiseffizienz als Funktion der jeweiligen kritischen Körperparameter zu berechnen. Diese Faktoren wurden schließlich genutzt, um erstmals eine "individuelle" Kalibrierung des HMGU Teilkörperzählers durchzuführen. Ein wesentliches Ergebnis dieser Untersuchung war, dass für zwei reale Inkorporationsfälle die auf der Basis von Teilkörpermessungen geschätzten ^{241}Am -Aktivitäten im Skelett 1.6 und 1.9 mal größer sind als die, die man ohne Anwendung der hier entwickelten Korrekturfaktoren erzielt hätte. Dies demonstriert die Wichtigkeit der in AP 3.3 entwickelten Korrekturverfahren.

Das Hauptziel von AP 3.4 war die Unterstützung anderer Arbeitspakete (3.1, 3.3, 4.1, 4.3) im Verbundprojekt bei der Berechnung und Bewertung der internen Strahlendosen nach Aufnahme von Radionukliden aus der Umwelt. Die dabei angewendete Methode ist die biokinetische Modellierung und Unsicherheits- bzw. Sensitivitätsanalytik. Dabei wurden jeweils die in den einzelnen Arbeitspaketen experimentell ermittelten Daten als Grundlage genommen. Die experimentellen Daten reichten von Aktivitätsabschätzungen der einzelnen Radionuklide hinsichtlich deren Aufnahme, deren Gehalt im Knochen bis hin zu deren Ausscheidung. Mit Hilfe der biokinetischen Modellierung ließen sich so für die einzelnen Fragestellungen Rückschlüsse auf die resultierende Folgedosis von inkorporierten Radionukliden und somit auf die gesundheitlichen Folgen ziehen. Neben der Ermittlung der Strahlendosis an sich wurden zudem die Unsicherheiten ermittelt, die durch die Verwendung der experimentellen Daten bis hin zu den biokinetischen und dosimetrischen Modellen in die Dosisberechnung einfließen. Dies ergibt insgesamt die Möglichkeit, die interne Strahlendosis nach Aufnahme von Radionukliden und damit das tatsächliche Risiko für den Menschen realistischer einzuschätzen.

Im Einzelnen wurden folgende Themen bearbeitet: In Kooperation mit AP 3.1 wurde mithilfe von experimentellen Daten basierend auf einer Probandenstudie mit Heilerde und durch biokinetische Modellierung die resultierende Strahlendosis für ^{238}U und ^{232}Th abgeschätzt. Zusammen mit AP 3.3 wurde biokinetische Modellierung eingesetzt, um bei einer gegebenen ^{226}Ra -Kontaminationen die durchzuführenden in vivo- und in vitro-Messungen zu optimieren. So wurde in diesem Zusammenhang konkret für zwei Fallbeispiele einer unfallbedingten ^{226}Ra -Kontamination die Zufuhr und interne Dosis anhand von Teilkörper- und Exkretions-Messungen mittels biokinetischer Modellierung abgeschätzt. Zudem wurden Daten zur Retention und Exkretion für ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{228}Ra , ^{228}Th und ^{210}Po im menschlichen Körper modelliert und die Ergebnisse den Arbeitspaketen 3.3 und 4.1 für die jeweiligen Fragestellungen zur Verfügung gestellt. Mit AP 4.3 wurden altersabhängige Inhalations-Dosiskoeffizienten für Thoron- und Radon-Zerfallsprodukte auf Basis von experimentell bestimmten Parametern modelliert und berechnet. Die Ergebnisse können nun benutzt werden, um die interne Dosis nach Inhalation von Radon und Thoron abzuschätzen. Auf Grundlage eigener biokinetischer Experimente zur Validierung des Biokinetikmodells von Zirkonium weiterführende statistische Methoden (Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen) durchgeführt. Dadurch wurden die Modellparameter ermittelt, die den größten Einfluss auf das Ergebnis, nämlich auf die berechnete Strahlendosis, ausüben.

In *AP 4.1* wird eine Methode demonstriert und erklärt, die zur Bestimmung von Inhalationsdosen von Arbeitern von Geothermieranlagen bei Reinigungsarbeiten führt, bei denen NORM/TENORM eine Rolle spielt. Die Arbeit dieses Projektes beinhaltet: Organisation der Teilnehmer, des Ernährungsprogramms, der Reinigungsarbeiten, die Sammlung von Ausscheidungen, Rn-222 Messungen und die Analyse von Radionukliden in Nahrungsmitteln, Getränken, Urin und Stuhl; Methodvalidierung der Analyse von Radionukliden in Nahrungsmitteln, Getränken, Urin und Stuhl. Abschätzung der minimalen effektiven Folgedosis durch Ingestion von Radionukliden mit der Ernährung der Teilnehmer, Abschätzung der Rn-222 Jahresdosis der Teilnehmer und die zusätzliche Dosis während der Reinigungsarbeiten. Folgende Schlussfolgerungen können gezogen werden:

Die Aktivitätskonzentration der analysierten Radionuklide in den meisten Nahrungsmitteln war $< 500 \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ bzw. L^{-1} . Mehr als $1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ an Ra-226 wurde nur in Rollenbutter und Schokolade mit Werten von $(3440 \pm 1650) \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ und $(3950 \pm 1820) \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ gefunden. Die minimale totale Menge an aufgenommener Radioaktivität durch die 6-Tage-Diät der Teilnehmer reichte von 2200 bis 4600 mBq.

Die Unterschiede in der effektiven Folgedosis (CED) durch Ingestion bestimmt vom Tag der Geburt bis Ende 2014 unter den Teilnehmer sind sehr gering. Deshalb wurden keine beachtenswerten Unterschiede der CED zwischen der Gruppe der Arbeiter und der Referenzgruppe erkannt.

Rn-222 Jahresdosen bestimmt für die Arbeiter und die Referenzpersonen liegen zwischen 0,3 und 3,5 mSv. Unter Berücksichtigung der großen Unsicherheiten in den Messungen und Abschätzungen sind diese Werte mit der gemittelten Innenraum-Radon-Dosis von $0,9 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ in Deutschland vergleichbar. Die zusätzliche Dosis, die von den Arbeitern durch die Arbeitsmikroumgebung erhalten werden kann, reicht von 0,04 bis $0,4 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$.

Das dargestellte Modellexperiment kann zur Bestimmung von Inhalationsdosen für Arbeiter von realen Geothermiekraftwerken angewendet werden. Die erhaltenen Ergebnisse dieser Studie zeigen Beispiele für effektive Dosen von Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 und Th-228 durch Ernährung, Jahresdosen durch Rn-222 in der Umwelt und zusätzliche Rn-222 Jahresdosen aufgrund von Reinigungsarbeiten. Diese Daten können zusammen mit den Analyseergebnissen der Ausscheidungen zur Bestimmung der Inhalationsdosen von Arbeitern von realen Geothermiekraftwerken bei Reinigungsarbeiten genutzt werden. Diese weiterführende Studie könnte in einem zukünftigen Projekt bearbeitet werden.

Im Rahmen von *AP 4.2* wurde ein verbessertes elektronisches Radonexposimeter entwickelt, das zwischen Radon und Thoron unterscheiden kann, das sich durch eine geringe Größe, ein geringes Gewicht und einen minimalen Stromverbrauch auszeichnet, und das die Bestimmung von Radon- und Thoronkonzentrationen in Echtzeit ermöglicht. Das Design des Geräts basiert auf dem Diffusionskammern-Prinzip. Es verwendet die Technik der Alpha-Teilchen-Spektroskopie, um Aktivitätskonzentrationen von Radon und Thoron über die bei deren Zerfall emittierten Alphateilchen und deren Energien zu messen. Das Gerät wurde mittels eines neuen Konzepts für Einlass-Löcher und Filterauswahl für eine hohe Thoron-Diffusion optimiert. Kalibriermessungen zeigten eine ähnliche Empfindlichkeit des Messgeräts für Radon und Thoron, mit Kalibrierfaktoren von $cf_{\text{Rn-222}} = 16,2 \pm 0,9 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}/\text{cph}$ und $cf_{\text{Rn-220}} = 14,4 \pm 0,8 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}/\text{cph}$. Somit wurde die Radon Empfindlichkeit des Messsystems im Vergleich zu einem vorherigen Prototyp wie geplant etwa um den Faktor 2 verbessert.

Ferner wurden mit verschiedenen Programmen, einschließlich GEANT4, Monte Carlo Simulationen durchgeführt, um den Einfluss von Detektionsvolumen und sich verändernden Umweltparametern auf den Kalibrierfaktor des neuen Geräts zu untersuchen. Die Simulationen zeigten eine deutliche Auswirkung von Umgebungsparametern wie Temperatur und Luftdruck auf die gemessenen Spektren und dementsprechend auf den Kalibrierfaktor. Daher wurde der Kalibrierfaktor als eine Funktion von relativer Luftfeuchte, Temperatur und Luftdruck sowie des Kammervolumens quantifiziert. Bei Geräten mit größerer Diffusionskammer war ein größerer Einfluss der Luftdichte festzustellen als bei Geräten mit kleinerer Diffusionskammer, wobei Luftdruck-Änderungen (entsprechend einer Höhe über dem Meeresspiegel von 0 bis 5.000 m) und Temperaturänderungen von -25 bis 35 °C simuliert wurden. Dabei war eine Änderung der Empfindlichkeit für Radon und Thoron von bis zu 32% zu beobachten. Dagegen änderte sich für Geräte mit dem kleineren Standardgehäuse die Empfindlichkeit nur um bis zu 4%. Bei Vergrößerung der Diffusionskammer im Vergleich zu dem üblich verwendeten Standardgehäuse um mindestens einen Faktor vier wurde eine maximale Zunahme der Empfindlichkeit von etwa 20% gefunden, allerdings auf Kosten der Tragbarkeit des Geräts. Im Gegensatz dazu ergab sich bei einer Verringerung der Höhe der Diffusionskammer um 10 mm, was einem ca. 40% geringeren Volumen entspricht, eine Abnahme der Empfindlichkeit um 30% und 41% für Radon bzw. Thoron.

Schließlich wurden die Geräte unter verschiedenen natürlichen Bedingungen, zum Beispiel in einem Salz-Bergwerk, einem Radon-Heilstollen und in Wohnungen mit gemischten Rn-222 und Rn-220 Umgebungen erfolgreich getestet.

In AP 4.3 wurde die Innenraumexposition in Deutschland durch Thoron (Rn-220) untersucht, dessen potentieller Beitrag zur Strahlenexposition des Menschen in den letzten Jahren stärkere Beachtung fand. Erhöhte Thoron-Konzentrationen wurden besonders in Häusern gefunden, die aus ungebranntem Lehm gebaut sind. In Deutschland wurde Lehm traditionell vor allem in Fachwerkhäusern zur Ausfüllung der Gefache in einer Holzständerkonstruktion verwendet. Im modernen Lehmbau werden häufig Lehmputze oder Lehmbauplatten auf einer tragenden Konstruktion aus anderen Baustoffen aufgetragen. In diesen beiden Lehmbautypen wurde Thoron und dessen Folgeprodukten gemessen.

Bedingt durch die kurze Halbwertszeit von Thoron (56 s) ist Thoron nicht homogen im Innenraum verteilt und deshalb zur Expositionsabschätzung nicht geeignet. Die direkte Messung der langlebigen Folgeprodukte wird daher favorisiert durchgeführt, u.a. mit einem selbst entwickelten passiven Folgeproduktmonitor. Zusammengefasst zeichnen die Messwerte in den 17 untersuchten Häusern, in denen Lehm großflächig als Baustoff verwendet wird, folgendes Bild: In den älteren wie in den neueren Gebäuden kommen Strahlendosen alleine durch die Inhalation von Thoron und seinen Folgeprodukten in der Höhe bis zu mehreren Millisievert pro Jahr vor. Unter besonderen Bedingungen, zum Beispiel bei geringem Luftaustausch bei gleichzeitig kleinem Raumvolumen, können besonders große Konzentrationen auftreten. Die aus den gemessenen Expositionen berechneten Strahlendosen für Thoron und seine Folgeprodukte liegen für etwa 80 % der Werte zwischen 1 und 4 mSv/a. Ähnliche Werte sind für die etwa zwei Millionen Häuser in Deutschland, in denen Lehm als Baustoff verwendet wird, zu erwarten.

Natürlicher Lehm ist ein Gemisch aus Anteilen verschiedener Korngrößen, nämlich Ton, Schluff und Sand. Die Exhalation von Thoron aus dem Lehm wird überwiegend durch den Tonanteil bestimmt und ist insbesondere unabhängig vom Beitrag des Sandes zur spezifischen Aktivität des Lehms. Verschiedene Tonminerale wurden auf ihren Einfluss auf die Exhalation getestet. Gemessen wurden Emanationskoeffizienten von 40 bis 70 % an Montmorilloniten. Kaolinite zeigten deutlich kleinere Werte von 10 bis 20 %. Andere Tone besaßen in der Regel Emanationskoeffizienten zwischen denen der beiden reinen Tonminerale. Proben von Lehmputzen wurden auf ihre Exhalationsraten untersucht und wiesen nur geringe Unterschiede auf. Die Verwendung von Kalkputz oder Kalkglätte, die häufig verwendete Deckschichten auf Lehmunterputzen darstellen, senken die Exhalation gegenüber der unbedeckten Lehmputzschicht bis zu etwa 50%. Kalkputze selbst zeigen kleinere Exhalationsraten von ungefähr 7 bis 20 %. Eine besonders große Schwächung der Thoron-Exhalation konnte erzielt werden durch die Verwendung einer luftfeuchteregulierenden Dispersionsfarbe und durch die Beimischung von Aktivkohle zum Oberputz.

6. Summary

The network programme “Radiation and Environment II: radionuclides in the environment, their transport in food chains to and in humans” was contributing to the preservation of competence in ecological radiation research by education and training of young scientists in research projects. The projects were dedicated to enhance the knowledge of radio-ecological, radio-chemical and biokinetic processes. The investigations have had the common goal to improve the exposure and dose assessments for humans which are exposed to ionizing radiation in their environs in various ways. In eight work packages (WP) with specific tasks the following summarized results were achieved in interdisciplinary collaboration.

The presented automated methodology of *WP 1.1* facilitates the correction of a large number of γ -dose rate (GDR) measurements in a fast and reproducible manner. Contamination maps can be produced more accurately since fluctuations in input data are reduced. It is expected that with this improvement pertinent maps can be generated with higher spatial resolution, and the contamination can be represented on a linear scale rather than on a logarithmic scale.

The exclusive consideration of two-dimensional effects for areas, which actually contains three-dimensional objects, limits the effectiveness of the presented method. For example, in inner cities with high rise buildings, shielding effects are important which are not included in the calculation algorithm. Due to this, the resolution and the information content of commercially available maps may not be sufficient for an automated calculation of location factors.

As an alternative, a manual analysis of location factors with digital image analysis of satellite images was done in this work package. The analysis method allows for a higher resolution analysis of the measurement locations in comparison to standard topographic maps. In addition to this, changes in the environment may be more up to date in satellite images compared to digital maps. The comparison of the theoretical and empirical methods of location factor calculation shows a good agreement between the two methods and confirms the methodology.

In *WP 1.3* parameters were measured for characterization of below cloud scavenging of liquid and solid phase precipitation events that can be easily implemented in decision support systems for spread of contamination. Special emphasis was laid on the determination of washout efficiencies for different types of snow crystals and the influence of meteorological and snow-microphysical parameters. The description of the wet deposition as one of the most relevant processes for input in terrestrial ecosystems was enlarged by the washout by snow.

A 2D-video disdrometer was adapted for the detection of mixed and solid phase hydrometeors. Using a new matching algorithm, solid, mixed and liquid phase hydrometeors with a maximum dimension larger than 0.5 mm could be detected reliably. A classification algorithm, which differentiates between three classes of crystal types and three classes of riming, was developed. For a total data set consisting of 74 % solid, 19 % mixed and 7 % liquid phase events below cloud scavenging coefficients were calculated in a range from $(5.0 \pm 0.7) \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ und $(1.0 \pm 0.2) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ and showed a clear dependency on snow crystal type, aerosol particle diameter and precipitation intensity.

For the implementation of data in decision support systems the scavenging coefficient Λ was parameterised as a function of precipitation rate I using the equation $\Lambda = A (I/I_0)^B$, as already introduced for rain with fixed constants. Parameters A and B were determined for different types of hydrometeors with precipitation rates from 0.1-4.0 mm h⁻¹. If the water equivalent precipitation rate is below 1.5 mm h⁻¹ snow has larger Λ than rain. The scavenging coefficients can differ by a factor of eight for precipitation rates smaller than 0.5 mm h⁻¹.

In tracer experiments with artificial radionuclides added to snow columns the migration in the snowpack and its release to meltwater was investigated. A transport of particle-bound radionuclides only occurs convectively if liquid water is existent and is geared to preferential flow paths. The diffusive and dispersive transport at ambient temperatures below 0°C is negligible. The release of radionuclides with snowmelt is delayed until the lowermost snow layers are fully saturated with liquid water. This is why long existing snow covers can extremely delay the time of release. However, with the first meltwater the disposal of radionuclides happens very fast and in high concentrations. 80 % of radioactivity was contained in the first 20 % of snowmelt in the experiments. Nevertheless, this makes possible a prognosis of potential contamination of surface waters and related drinking water reservoirs and helps to minimize radiation exposure.

One aim of *WP 3.1* was to improve the estimation of soil-derived uranium absorption in humans. For this purpose, an in vitro solubility assay was combined with a human study by using a specific edible soil low in uranium. The mean bioaccessibility of the soil-derived uranium, determined by the solubility assay in artificial gastrointestinal fluid, was found to be 7.7% with a standard deviation of 0.2%. The corresponding bioavailability of the soil-derived uranium in humans was assumed to be log-normal distributed with a geometric mean of 0.04% and a 95% confidence interval ranging from 0.0049% to 0.34%. Both results were used to calculate a factor, denoted as f_A^{sol} , describing the relation between the bioaccessibility and the bioavailability of soil-derived uranium. The geometric mean of f_A^{sol} was determined to be 0.53% with a 95% confidence interval ranging from 0.06% to 4.43%. Based on f_A^{sol} , it is possible to estimate more realistic values on the bioavailability of uranium for highly uranium contaminated soils in humans by just performing the applied solubility assay. As an example, the bioavailability for two soils from former uranium mining sites in Germany (containing 460 mg/kg and 550 mg/kg ²³⁸U) were determined. The corresponding bioavailability data were found to be 0.18% and 0.28% (geometric mean), with a 95% confidence interval of 1.48% and 2.34%, and with a 2.5% confidence interval of 0.02% and 0.03%, respectively.

The results can be further used to obtain more reliable results on the internal dose assessment of ingested highly uranium-contaminated soils. For that, the results of the bioavailability of the two soils from mining sites (and of one fertilizer) were integrated into the biokinetic model of uranium, and the committed effective doses were calculated. The annual internal dose assessment for adults after ingestion of these highly contaminated uranium-bearing soils or fertilizer amounted to be 0.6 µSv which is comparable to the annual committed effective dose for natural uranium from food and drinking water (0.5 µSv). It is assumed that by an exemplary daily intake of 10 mg over a year neither the used uranium-mining soil nor the fertilizer represented a significant radiation risk for the population.

Am-241 is a radionuclide of special concern due to its ability to replace calcium in the bone structure, and its emitted alpha particles which will deposit their energy on a short distance resulting in damage to the surrounding tissues, such as the bone marrow. Direct measurements using detectors placed externally to the body are a typical method used to quantify protracted incorporations of ^{241}Am , as it allows a rapid determination of the radionuclide incorporated. In *WP 3.3*, the Helmholtz Center Munich (HMGU) partial body counter (PBC) dedicated to detect incorporated low-energy “bone seeking” radionuclides has been calibrated for skull geometries using three different phantoms, the USTUR case 102 phantom, the BfS phantom, and the CSR phantom. To validate these calibrations an international intercomparison with world-wide internal dosimetry reference laboratories was organized, through the European Radiation Dosimetry Group (EURADOS) network. The intercomparison results analysed in the frame of this work, showed an excellent agreement between the HMGU measurements and the other eleven participants of the intercomparison, with relative differences less than 10% for all measurements.

To fully understand the detection efficiency of low energy gammas one of the HMGU PBC detectors was simulated using the GEANT4 Monte Carlo code, and verified by comparison with an identical computational set-up in the MCNPX Monte Carlo code. The experimental results using several point radiation sources were then used to improve the computational detector model and validate it. Using this set-up for the first time all critical body parameters concerning skull measurements were studied systematically using GEANT4, and the following results were obtained. Changes in the detection efficiency of up to 9% were found depending on the distance between the detector and the phantom surface and the activity distribution in the bone. A reduction of the detection efficiency up to 28% depending on the time between the exposure and the measurement were determined. Calculations showed that for a typical thickness range between 3.6 and 6.0 mm of the soft tissue of the skull, the detection efficiency changes up to 10%. The results revealed that the detection efficiency for a small head radius is a factor of 2 larger than that for a big head radius. The Monte Carlo results were then used to calculate “correction factors” for the detection efficiency as a function of the critical body parameters. These factors were then used to provide “individual-specific” calibrations for two recent cases of human incorporation of ^{241}Am . As a result, estimated incorporated activities are 1.6 and 1.9 times larger than those estimated using the BfS anthropomorphic phantom without applying any correction for person-specific parameters.

The main objective of *WP 3.4* is to connect and network biokinetic modelling with the experimentally measured biokinetic data, such as excretions, radioactivity in bone and organs, and to validate and improve biokinetic models currently used in radiation protection, and to find out uncertainties that may be occurred in the biokinetic measurement and modelling. Combining modelling with biokinetic investigations, the internal dose can be much more precisely assessed and therefore providing a reliable risk assessment to radiation exposure. Finally, members of the public and occupational workers can be better protected from radiation exposure. In this *WP 3.4*, the age-dependent inhalation doses of thoron and radon progeny were calculated based on the real measured parameters provided by *WP 4.3*, those dose coefficients can be used to quantitatively estimate the inhalation doses to the public, especially children and women, exposed to radon and thoron progeny. Together with *WP 3.1*,

biokinetic modelling and internal doses of ^{238}U and ^{232}Th from soil by ingestion based on experimental data in humans were performed. Excretions and retention of ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{228}Ra , ^{228}Th and ^{210}Po in human body after ingestion were modelled and were provided to WP 4.1 and WP 3.3 for an experimental design of biokinetic investigation in humans. Regarding to two real human contamination cases of ^{226}Ra , based on the in-vivo measurement and average excretion data in Germany, the intake and internal doses were estimated for these two persons. In addition, a statistical method - uncertainty and sensitivity analysis in biokinetic models was established and was applied to the systemic biokinetic Cs model proposed by the ICRP. By applying the uncertainty and sensitivity analysis, the most influential parameters in biokinetic models can be identified, thus more efforts might be invested to obtain much precise parameters and consequently reduce uncertainties in internal dose assessment.

In *WP 4.1* a method is demonstrated and introduced for inhalation dose estimation for workers at geothermal plants during cleaning work of scale which contains NORM/TENORM. The work of project includes: organization of participants, diet program, cleaning work, excretions collection, Rn-222 measurements, and analysis of radionuclides in foods, drinks, urine and feces; method validation of analysis of radionuclides in foods, drinks, urine and feces; assessment of minimum committed-effective ingestion-dose by radionuclides through diet for the participants; assessment of Rn-222 annual dose for the participants, and additional dose during the cleaning work. The following conclusions can be drawn:

Activity concentration of analyzed radionuclides in most foods was $< 500 \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ or L^{-1} . More than $1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ of Ra-226 was found only in butter roll and chocolate as $(3440 \pm 1650) \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ and $(3950 \pm 1820) \text{ mBq}\cdot\text{kg}^{-1}$, respectively.

Minimum total amounts of ingested radioactivity through 6-day diet by each participant range from 2200 to 4600 mBq.

Differences of committed effective doses (CED) by ingestion estimated from the day of birth till the end of 2014 among participants are, however, very small. Thus, no remarkable difference of CED between the worker-group and the reference-group was observed.

Rn-222 annual doses estimated for the workers and the references range from 0.3 to 3.5 mSv. Taking into account the large uncertainties in the measurement and estimation, these values are comparable to the average indoor radon dose, $0.9 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ in Germany. The additional dose ranged from 0.04 to $0.4 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$, which might be received by the workers due to the working micro-environment.

The presented model experiment can be applied for inhalation dose estimation for workers at real geothermal energy plants. The results obtained in this study indicate one of the examples for effective doses by Ra-226, Pb-210, Po-210, Ra-228 and Th-228 through diet, annual dose by Rn-222 exposure in the environment and additional annual dose by Rn-222 exposure due to cleaning work. Those data can be used for the final goal, namely, inhalation dose estimation for workers due to cleaning work at geothermal energy plants together with the analytical results of excretions. This further study might be assigned in a future project.

In the framework of *WP 4.2* an improved electronic radon exposimeter was developed, which allows to distinguish between radon and thoron. The new device is small, light and the power consumption is low. It allows continuous online measurement of individual radon and thoron concentrations.

More specifically, the sensitivity of the new radon exposimeter was improved by about a factor two compared to the previous prototype. In order to improve the sensitivity and allow the discrimination of Rn-222 and Rn-220, a new amplifier and digital circuit for alpha particle spectroscopy was developed, and larger Si-diodes were employed. The electronics feature low power consumption resulting in a life time of up to one month when running on battery. The sensitivity of the newly developed device for thoron was determined to be in the same range as that for radon when using an appropriate filter and diffusion chamber design, and the calibration factors for radon and thoron were $cf_{\text{Rn-222}} = 16,2 \pm 0,9 \text{ Bq}\times\text{m-3/cph}$ und $cf_{\text{Rn-220}} = 14,4 \pm 0,8 \text{ Bq}\times\text{m-3/cph}$, respectively.

The high energy resolution of the applied alpha particle spectroscopy technique allowed studying the effects of changing air density or housing dimension on the spectral shape of the detected signals. For this, both an analytic and a Geant4 based Monte-Carlo simulation was developed, and the simulated alpha spectra were compared with those actually measured with the devices. With Geant4, the dependence of the calibration factors for both Rn-222 and Rn-220 on environmental parameters such as relative humidity, ambient temperature and pressure was studied. The results obtained revealed that a device with small housing dimension is not much affected (i.e., be less than 4%) by air density changes (corresponding to altitudes between 0 m and 5000 m above sea level) and temperature changes (-25 bis 35 °C). In contrast, for a larger housing the calibration factor changes can be up to 32%, and thus environmental conditions have to be considered. Additionally, simulations to investigate the calibration factor as a function of the housing dimensions were used to identify the optimal housing size. A decrease in the height of the housing would result in a decrease in the sensitivity by 30% and 41% for radon and thoron, respectively.

Finally, the developed devices were tested successfully in different environmental conditions, in a salt mine, a radon healing cave, and in houses with mixed radon and thoron atmospheres.

In *WP 4.3* the indoor exposure by thoron (Rn-220) in German dwellings was investigated. Its potential contribution to the radiation exposure attracted attention in the recent years. Increased thoron concentrations were detected specially in houses built with unfired clay. In Germany clay (loam) is used traditionally in half-timbered houses to fill the partition in the wood frame construction. In modern buildings clay is used as indoor plaster or building board fixed on the carrying construction material. In both types of dwellings thoron and its decay products were measured.

Thoron is not distributed homogenously indoors due to its short half-life (56 s), and therefore it is not suited for dose assessment. Direct measurement of the decay products is favored, e.g. with our self-constructed decay product monitor. In summary, the measurements in 17 investigated clay buildings let conclude the following: Inhalation doses of thoron and its decay products occur in the height of several mSv per year in the old as well as in the new buildings. About 80% of the determined doses range between 1 and 4 mSv/a. High progeny concentrations are measured particularly in rooms with low air exchange rate and small volume.

Natural loam is a mixture of different grain sizes, namely clay, silt and sand. The exhalation of thoron is determined mainly by the clay part and is independent from the contribution of sand to the specific activity of the loam. Several clay minerals were tested on their influence on the exhalation. Montmorillonites showed emanation coefficients in the range 40 to 70%,

kaolinites significantly smaller values in the range 10 to 20%. Other clay minerals had emanation coefficients between these two pure minerals. Samples of loam plaster were examined on their exhalation rates and proved to have only little difference. The use of lime plaster, which is often used as upper layer above loam, reduced the exhalation up to about 50%. A notably large reduction of the thoron exhalation could be achieved by painting with a dispersion colour, which was regulating air humidity, and by the admixture of activated charcoal to the upper plaster.