

Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft



**Fachorgan für Wirtschaft und Wissenschaft
Amts- und Mitteilungsblatt der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin**

124. Jahrgang, Heft 1, März 2014

Inhalt

Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft

- Vorwort 3
- *Herbert Wershofen*: 50 Jahre Spurenmessung in der PTB 5
- *Reimund Stapel*: Bedeutung der Spurenmessung im Rahmen der Regelungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität 12
- *Jacqueline Bieringer, Clemens Schlosser*: Spurenanalyse im BfS: Leitstelle und Messaufgaben 16
- *Axel Dalheimer, Hubert Glaab, Thomas Steinkopff*: Die Aufgaben des Deutschen Wetterdienstes 23
- *Clemens Walther, Herbert Wershofen*: Radioökologische Beobachtungen bei der Spurenmessung und dosimetrische Bewertung radioaktiver Spuren in der Luft 27
- *Herbert Wershofen*: Die Geschichte der Spurenmessstelle 35
- *Herbert Wershofen*: Aufgaben und Arbeitsablauf im Routinebetrieb und im Intensivbetrieb 39
- *Herbert Wershofen*: Radiochemische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden 47
- *Herbert Wershofen*: Nicht alltägliche Messergebnisse 56
- Glossar 61
- Danksagung 64

Technology Transfer Announcements

- Force Metrology 65
- Improving microfabrication by monitoring airborne molecular contamination 66
- Large Volume Metrology in Industry 67

Recht und Technik

- Vollversammlung für das Eichwesen 2013 68

Amtliche Bekanntmachungen (eigenes Inhaltsverzeichnis) 70

Impressum

Die PTB-Mitteilungen sind metrologisches Fachjournal und amtliches Mitteilungsblatt der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, Braunschweig und Berlin. Als Fachjournal veröffentlichen die PTB-Mitteilungen wissenschaftliche Fachaufsätze zu metrologischen Themen aus den Arbeitsgebieten der PTB. Als amtliches Mitteilungsblatt steht die Zeitschrift in einer langen Tradition, die bis zu den Anfängen der Physikalisch-Technischen Reichsanstalt (gegründet 1887) zurückreicht. Die PTB-Mitteilungen veröffentlichen in ihrer Rubrik „Amtliche Bekanntmachungen“ unter anderem die aktuellen Geräte-Prüfungen und -Zulassungen aus den Gebieten des Eich-, Prüfstellen- und Gesundheitswesens, des Strahlenschutzes und der Sicherheitstechnik.

Verlag

Fachverlag NW in der
Carl Schünemann Verlag GmbH
Zweite Schlachtpforte 7
28195 Bremen
Internet: www.schuenemann.de
E-Mail: info@schuenemann-verlag.de

Herausgeber

Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB),
Braunschweig und Berlin
Postanschrift:
Postfach 33 45, 38023 Braunschweig
Lieferanschrift:
Bundesallee 100, 38116 Braunschweig

Redaktion/Layout

Presse- und Öffentlichkeitsarbeit, PTB
Imke Frischmuth
Sabine Siems
Dr. Dr. Jens Simon (verantwortlich)
Dr. Herbert Wershofen (wissenschaftlicher Redakteur)
Gisela Link
Telefon: (05 31) 592-82 02
Telefax: (05 31) 592-30 08
E-Mail: gisela.link@ptb.de

Leser- und Abonnement-Service

Karin Drewes
Telefon (0421) 369 03-56
Telefax (0421) 369 03-63
E-Mail: drewes@schuenemann-verlag.de

Anzeigenservice

Karin Drewes
Telefon (0421) 369 03-56
Telefax (0421) 369 03-63
E-Mail: drewes@schuenemann-verlag.de

Erscheinungsweise und Bezugspreise

Die PTB-Mitteilungen erscheinen viermal jährlich. Das Jahresabonnement kostet 55,00 Euro, das Einzelheft 16,00 Euro, jeweils zzgl. Versandkosten. Bezug über den Buchhandel oder den Verlag. Abbestellungen müssen spätestens drei Monate vor Ende eines Kalenderjahres schriftlich beim Verlag erfolgen.

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil dieser Zeitschrift darf ohne schriftliche Genehmigung des Verlages vervielfältigt oder verbreitet werden. Unter dieses Verbot fällt insbesondere die gewerbliche Vervielfältigung per Kopie, die Aufnahme in elektronische Datenbanken und die Vervielfältigung auf CD-ROM und in allen anderen elektronischen Datenträgern.

Printed in Germany ISSN 0030-834X



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt, das nationale Metrologieinstitut, ist eine wissenschaftlich-technische Bundesoberbehörde im Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie.

SPURENSUCHE: RADIOAKTIVE STOFFE IN DER LUFT

Vorwort

Herbert Janßen*

„Radioaktive Stoffe in der Luft“ – das war ein Thema von erheblichem öffentlichen Interesse zur Zeit des kalten Krieges, als die damals als „Atom-Mächte“ bezeichneten Staaten in der Atmosphäre ihre Waffen testeten und damit auch ihr militärisches Potenzial demonstrierten. Die internationale Gemeinschaft erkannte jedoch, dass die ungezügelte Fortsetzung solcher Tests die Atmosphäre auf Dauer mit Spalt- und Aktivierungsprodukten radioaktiv verseuchen würde. Trotz aller politischen Gegensätze konnte der auch als „Moskauer Abkommen“ bezeichnete „Vertrag über das Verbot von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, im Weltraum und unter Wasser“ 1963 in Kraft gesetzt werden. Das war die Zeit, als die Spurenmessstelle der PTB ihre regelmäßigen Messungen aufnahm, die zunächst im Rahmen von Forschungsprojekten durchgeführt wurden. Das öffentliche Interesse an radioaktiven Stoffen – schon gar an nur Spuren – schien parallel mit dem Abklingen der Kontamination aus den Kernwaffen zu sinken. Es wurde jedoch auf drastische Weise wieder erweckt, als nach dem Unfall im Kernkraftwerk in Tschernobyl 1986 weite Teile Europas erneut mit Spalt- und Aktivierungsprodukten kontaminiert wurden. In der Folge wurde in Deutschland das Strahlenschutzvorsorgegesetz erlassen, auf dessen Basis ein umfassendes Messnetz zur Messung radioaktiver Stoffe in allen Umweltmedien eingerichtet wurde. Eine der Aufgaben des Bundes ist die „großräumige“ Überwachung der Atmosphäre. In dieses Messnetz sind die Spurenmessstellen des Deutschen Wetterdienstes (DWD), der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) und des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) integriert.

In diesem Heft stellen Vertreter aller an der im Integrierten Mess- und Informations-System (IMIS) mit der Spurenmessung radioaktiver Stoffe in der bodennahen Luft beteiligten Institutionen ihre Sicht der Bedeutung der Spurenmessstellen vor.

Im Beitrag des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) wird deutlich, dass neben den berechtigten Ansprüchen der Bevölkerung auch bilaterale und internationale Verpflichtungen der Bundesrepublik Deutschland erfüllt werden. Im Bereich Spurenmessung sind das Aufgaben nach Artikel 35 und Artikel 36 des EURATOM-Vertrages, die die regelmäßige Messung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und die Berichterstattung der Messergebnisse an die Öffentlichkeit fordern.

Messungen radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre, das geht nicht ohne den Deutschen Wetterdienst (DWD), der schon 1955 mit der Überwachung von Luft und Niederschlag beauftragt wurde. Damals standen jedoch der Kernwaffen-Fallout und der nukleare Notfallschutz im Vordergrund. Nach 1986 wurden einige der im DWD-Messnetz betriebenen Stationen zur Überwachung der bodennahen Luft für Zwecke des IMIS zu Spurenmessstellen ausgebaut, die im Sinn der Strahlenschutzvorsorge möglichst empfindlich und mit hoher zeitlicher Auflösung messen müssen. Im Beitrag des DWD werden die Aufgaben des DWD beschrieben und dessen Werkzeuge vorgestellt, die es erlauben, die Ausbreitung frisch freigesetzter radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre abzuschätzen. Damit ist der DWD in der Lage, schnell die Prognosedaten bereitzustellen, die für die Dosisabschätzung in Not- oder Katastrophenfällen benötigt werden. Am Beispiel der Freisetzung beim Kernkraftwerkunfall von Fukushima im März 2011 wird gezeigt, welche Information der DWD bereitstellen kann.

Die Messergebnisse aller Spurenmessungen werden in der Leitstelle beim Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg zusammengeführt, dort abschließend geprüft und vor der Weiterleitung an den BMUB radiologisch bewertet. Die Leitstelle und die Einbindung der eigenen Spurenmessstelle in Freiburg stellt der Beitrag des BfS vor. Neben

* Dr. Herbert Janßen,
Abteilung „Ionisierende Strahlung“,
E-Mail:
herbert.janssen@
ptb.de

den Aufgaben im Rahmen des IMIS erfüllt das BfS auch Messaufgaben im Rahmen der Überwachung des „Umfassenden Atomwaffen Teststopp Abkommens“, das seit 1995 zur Ratifizierung vorliegt. Eine wichtige Aufgabe der Leitstellen ist die im IMIS geforderte regelmäßige Qualitätssicherung, die durch die Organisation und Durchführung von Ringversuchen gekennzeichnet ist. Da es für Luftstaub derzeit kein zertifiziertes Referenzmaterial gibt, greift die Leitstelle auf die Möglichkeit zurück, reale Luftstaubproben, die von Spurenmessstellen der Teilnehmer stammen, mit genau bekannten Aktivitäten geeigneter Radionuklide zu dotieren. Dafür stellt die PTB Aktivitätsnormale bereit, sodass die Forderung der „Rückführbarkeit“ auf „Staatliche Primärnormale“, die in den einschlägigen internationalen Normen gefordert ist, sichergestellt wird.

Welche radioökologischen Fragestellungen mit empfindlichen Messungen radioaktiver Stoffe in der Luft untersucht werden können, zeigt der Beitrag aus dem Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS) der Leibniz Universität Hannover. Am Beispiel des langlebigen Spaltproduktes Iod-129 lässt sich durch systematische und empfindliche Messungen, die über den in der IMIS-Routine erfolgenden Aufwand deutlich hinausgehen, das Verhalten dieses Radionuklides in der Umwelt darstellen. Möglich wird das durch die Zusammenführung und Bewertung von Messergebnissen aus möglichst allen relevanten Umweltmedien, z. B. Meer, Sedimenten, Böden und Luft – am besten aus verschiedenen Höhen und von vielen Spurenmessstellen. Von der Radioökologie ist es ein nur kurzer Weg zur Dosimetrie. Daher wird im Beitrag des IRS versucht, die berechnete und oft gestellte Frage der Öffentlichkeit nach dem

Gefährdungspotenzial verständlich zu beantworten. Dazu wird der Gang der Abschätzung ausgehend von einer vorliegenden „Aktivität“ bis zum Risiko einer erhaltenen Strahlendosis skizziert. Das ist allerdings nicht ganz ohne die Nennung der grundlegenden Fachbegriffe möglich. Zur Einschätzung der „Gefährlichkeit“ wird dem Leser der Vergleich mit der natürlichen Strahlendosis ermöglicht.

In den weiteren Beiträgen werden neben der Historie der Spurenmessstelle der PTB und den bisher vorliegenden Messreihen auch die Arbeitsabläufe in der Spurenmessstelle vorgestellt. Die Probenahmeverfahren für radioaktive Edelgase und Luftstaubproben, die „schnellen“ Verfahren wie die Gammaskpektrometrie, die im Routinebetrieb und besonders im Intensivbetrieb des IMIS zum Einsatz kommen. Wie personal- und zeitaufwendig die radiochemischen Verfahren für die Bestimmung von Alphastrahlen oder Betastrahlen emittierenden Radionukliden sind, wird schon am vereinfachten Blockschema des radiochemischen Trennungsganges deutlich. Schließlich wird im abschließenden Beitrag „Nicht alltägliche Messergebnisse“ auch über radiologisch unbedeutende Messwerte berichtet, die im Verlauf der vergangenen 50 Jahre auftraten. In der öffentlichen Wahrnehmung stehen „große“ Ereignisse wie Kernwaffentests, Tschernobyl oder Fukushima im Vordergrund. Im Mess-Alltag einer Spurenmessstelle tauchen jedoch viele andere, manchmal auch kuriose Emissionsquellen auf, deren Ermittlung, auch im Zusammenwirken der im „Ring of Five“ zusammen arbeitenden Spurenmessstellen aus ganz Europa, nicht immer gelingt.

Welche Emissionsquellen das sind? Lassen Sie sich überraschen!

50 Jahre Spurenmessung in der PTB

Herbert Wershofen*

Die Spurenmessstelle der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt

Seit Oktober 1963 beobachten Wissenschaftler der PTB regelmäßig radioaktive Stoffe in der Luft. Anfangs galt das radioökologische Interesse besonders den **Spalt- und Aktivierungsprodukten** aus den Kernwaffentests, die weltweit in der Atmosphäre verteilt wurden und zu Beginn der 1960er-Jahre ihren Höhepunkt erreichten. Nach dem Abkommen zur Einstellung der atmosphärischen Kernwaffenversuche 1962 sanken die Aktivitätskonzentrationen dieser **Radionuklide**. Mehr und mehr gerieten nun die natürlichen radioaktiven Stoffe in der Luft in den Fokus der Wissenschaftler, sowie jene, die bei der friedlichen Nutzung der Kernenergie freigesetzt werden. Besondere öffentliche Bedeutung bekamen die Messungen nach dem Unfall im Kernkraftwerk in Tschernobyl 1986.

Die Messungen wurden zunächst als Arbeiten in Forschungsprojekten durchgeführt. Heute sind sie eine Daueraufgabe zur Strahlenschutzvorsorge. Im **Integrierten Mess- und Informations-System (IMIS)**, das 1987 nach dem Unfall von Tschernobyl zur Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt eingerichtet wurde, werden die Spurenmessungen an den in Bild 2 gezeigten Orten gemeinsam mit dem Bundesamt für Strahlenschutz und dem Deutschen Wetterdienst im Auftrag des Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit durchgeführt. Als eine von vier Stationen berichtet die PTB ihre Messergebnisse an die Europäische Kommission. Der Vergleich der an verschiedenen Orten gemessenen **Aktivitätskonzentrationen** ermöglicht zusammen mit meteorologischen Daten u. a. Rückschlüsse auf die Herkunft der Radionuklide und auf atmosphärische Ausbreitungs- und Mischungsprozesse.

* Dr. Herbert Wershofen,
Arbeitsgruppe
„Umweltradioaktivität“,
E-Mail:
herbert.wershofen@
ptb.de



Bild 1:

Atomwaffentests, wie dieser auf dem Bikini-Atoll in Mikronesien 1946, erhöhten zwischen den 1940er- und 1960er-Jahren die Menge radioaktiver Stoffe in der Luft. Mit dem internationalen Abkommen zum Stopp atmosphärischer Atomwaffentests 1962 sanken die Aktivitätskonzentrationen dieser Radionuklide wieder.

Foto: wikimedia commons / United States Department of Defense

Nach der Bundestagswahl vom 19. Oktober 2013 wurden die Aufgaben des damaligen "Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit" um den Bereich des Bauwesens erweitert, verbunden mit einer entsprechenden Namensänderung des Ministeriums. Daher erscheint der im Oktober 2013 veröffentlichte Vorabdruck hier in einer redaktionell überarbeiteten Fassung.

Blau markierte Begriffe finden sich erklärt im Glossar ab Seite 61.

Die messtechnisch-analytische Aufgabe der Spurenmessstellen ist die Beobachtung vorliegender „alter“ Kontaminationen. Ihre **radioökologisch** erklärbaren Veränderungen müssen erfasst und bei Bedarf die aktuellen „Nullpegel“ bestimmt werden. Nullpegel sind die zu Beginn eines „frischen“ Eintrags noch vorliegenden „alten“ Kontaminationen. Sie werden bei der Abschätzung der radioökologischen Folgen des „frischen“ Eintrags nicht mehr berücksichtigt.

Internationale Zusammenarbeit

Ändert sich das Wetter, insbesondere der Wind, innerhalb einer Woche häufig, lassen sich die Kontaminationen der Luft auf dem Niveau von Spuren nicht immer eindeutig einer bestimmten Emissionsquelle zuordnen. Oft kann ein Emissionsort nur eingegrenzt werden, wenn zusätzliche Informationen verfügbar sind. Daher ist ein schneller Informationsaustausch zwischen möglichst vielen Spurenmessstellen hilfreich, wenn an einer Spurenmessstelle geringe Spuren gemessen werden. Zur schnellen gegenseitigen Information hat sich ein europaweites Netzwerk etabliert, das anfangs auf der Nutzung der dienstlichen und – für freie

Bild 2:
Spurenmessstellen im IMIS und im EU-„Sparse Net“

- IMIS-Spurenmessstelle
- * EU- und IMIS-Spurenmessstelle

BfS = Bundesamt für Strahlenschutz
DWD = Deutscher Wetterdienst
PTB = Physikalisch-Technische Bundesanstalt



Tage – der privaten Telefon- und Telefaxnummern der Wissenschaftler von fünf Instituten in Dänemark, Deutschland, Finnland, Norwegen und Schweden beruhte. Daher nennt sich das Netzwerk noch heute „Ring of Five“, obwohl sich derzeit ca. 90 Wissenschaftler aus etwa 30 europäischen Instituten beteiligen. Darüber hinaus werden auch Wissenschaftler in internationalen Organisationen wie der Internationalen Atomenergie-Organisation (IAEA), der Organisation des Vertrages über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization, CTBTO) und Wetterdiensten in Übersee informiert.

Nicht alltägliche Messergebnisse

Besondere Ereignisse fallen meistens bei Messungen der wöchentlichen Proben auf. In Braunschweig finden sich nur wenige „große“ Ereignisse, wie die kerntechnischen Unfälle in Tschernobyl oder Fukushima. Mehrheitlich sind es kurzzeitige oder nur in geringen Spuren aufgetretene Kontaminationen. Hier einige Beispiele:

- Zur Jahreswende 1970/1971 gelang der Nachweis frischer Spaltprodukte von einem am 16.12.1970 in Nevada (USA) durchgeführten unterirdischen (d. h. nicht atmosphärischen) Kernwaffenversuch.
- Im Februar 1977 wurde erstmalig Selen-75 (Se-75) in Braunschweig gefunden. Die Quelle war vermutlich ein Krematorium in Süd-Niedersachsen, in dem ein Toter eingäschert wurde, der zuvor nuklearmedizinisch mit Se-75 behandelt worden war.
- Im November 1983 wurden erstmals im norwegischen Skibotn, später auch in Braunschweig und in Berlin, bei Ostwind-Wetterlagen Spuren von Zirkon-95 (Zr-95) und Niob-95 (Nb-95) gemessen. Das Aktivitätsverhältnis Nb-95/Zr-95 war meist typisch für Reaktor-Korrosionsprodukte.
- Die ersten Spaltprodukte aus Tschernobyl wurden in Braunschweig bereits am Nachmittag des 29. April 1986 nachgewiesen, nachdem der Reaktor kurz nach Mitternacht am 26. April explodiert war.
- Von 1988 bis 1996 wurde mehrmals Lanthan-140 (La-140) ohne sein Mutternuklid Barium-140 (Ba-140) nachgewiesen. Zwischenzeitlich stellte sich heraus, das La-140 für die Dekontaminationsausbildung im militärischen Bereich verwendet wurde.
- Viele Spurenmessstellen in Mittel- und Nordeuropa haben im Herbst 2011 Spuren von Iod-131 (I-131) gemessen, das als Folge eines Defektes der Filteranlagen in einer Produktionsanlage für nuklearmedizinische Präparate in Budapest emittiert wurde.



Bild 3:
Der Hochvolumen-Luftstaubsammler auf dem Gelände der PTB in Braunschweig.

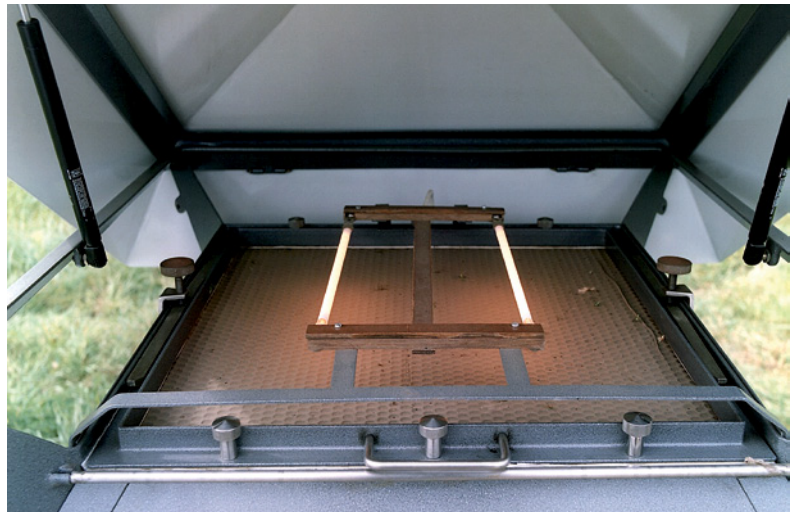


Bild 4:
Blick auf den Filter des Luftstaubsammlers bei geöffnetem Deckel.

Wie gefährlich sind die Spuren-Kontaminationen?

Oft wird von Besuchern oder besorgten Bürgern gefragt: „Und wie gefährlich ist das nun?“ Rein fachlich hilft schon ein Vergleich der Messreihen: Die kurzfristigen Einträge künstlicher Radionuklide, die wir heute beobachten, liegen so weit unter den Pegeln der immer in der Luft natürlich vorhandenen Radionuklide, dass ihr Beitrag zur Strahlenexposition vernachlässigbar ist. Beispielsweise überstieg die gemessene Aktivitätskonzentration von I-131 nach dem Reaktorunfall in Fukushima nur an einem einzigen Tag die des immer in der Luft vorhandenen natürlichen Radionuklids Beryllium-7 (Be-7). Die **Dosisrelevanz** der als Folge der atmosphärischen Kernwaffenversuche freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte war

aber immerhin so groß, dass es bereits 1962 zum Internationalen Vertrag über das Verbot von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, dem Meer und im nahen Weltraum gekommen ist, damit keine Fallout-Radionuklide mehr freigesetzt werden.

Wie von der Aktivität eines Radionuklids auf dessen „Gefährlichkeit“ geschlossen wird, ist ein recht langer und komplizierter Weg, der hier nur vereinfacht dargestellt werden kann: Sind die Aktivität des Radionuklids und die chemische Form, in der es vorliegt, bekannt, wird die Art seiner Strahlung (Alpha-, Beta-, Gamma- oder Neutronenstrahlung) bewertet und zunächst die Energiemenge ermittelt, die auf z. B. menschliches Gewebe übertragen wird. Jetzt stellt sich das Problem, dass die verschiedenen Gewebe unterschiedlich empfindlich auf Strahlung reagieren. Das wird durch **Gewebewichtungsfaktoren** bei der weiteren Abschätzung berücksichtigt. Die so für alle Gewebe ermittelten Strahlendosen werden zur gesamten Körperdosis aufsummiert. Mit dieser **effektiven Dosis** wird schließlich das Risiko abgeschätzt, das der anfangs gemessenen Aktivität entspricht. Das heißt nun aber noch nicht, dass der mit einem bestimmten **Risiko**, im Alltagssprachgebrauch also einer „Gefährlichkeit“, bewertete Schaden, z. B. eine Krebserkrankung, dann auch tatsächlich eintritt. Es erhöht sich jedoch die statistische Wahrscheinlichkeit.

Arbeitsablauf

Ein Hochvolumen-Luftstaubsammler, wie er auf dem Gelände der PTB in Braunschweig steht, ist im Prinzip ein dicker Staubsauger. Er soll im Routinebetrieb wöchentlich möglichst viel Staub auf einem Filter abscheiden. Im Intensivbetrieb wird sein Filter jedoch täglich gewechselt und untersucht, auch am Wochenende und an Feiertagen. Je mehr Staub in der Probe ist, desto höher ist die daran haftende Aktivität eines Radionuklids. Nach der Entnahme des Filters aus dem Sammler wird er einer ersten Messung mit einem Gammaskpektrometer unterzogen, damit eine Kontamination so früh wie möglich entdeckt wird. Zur Steigerung der Messempfindlichkeit, fachlich spricht man von einer Senkung der Nachweisgrenze, wird diese Messung nach etwa einem halben Tag wiederholt. Dann sind natürliche Radionuklide, die die Messempfindlichkeit beeinträchtigen, zerfallen, und es werden Nachweisgrenzen von wenigen $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ für Iod-131 (I-131) und Caesium-137 (Cs-137) erreicht. Damit ist die Forderung des IMIS nach einer „Nachweisgrenze unter $100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ “, die die Spurenmessungen von Notfallmessungen abgrenzt, erfüllt. Notfall-Messsysteme sind unempfindlicher, aber schneller, um im Notfall innerhalb von ein bis zwei Stunden auch kurzfristige Änderungen zu erkennen, die für die Bewältigung einer Notsituation wichtig sind.

Messungen für die Europäische Kommission

Für die Berichterstattung der Spurenmessstellen an die Europäische Kommission gemäß Art. 35 und Art. 36 des EURATOM-Vertrages ist dagegen gefordert, „repräsentativ“ und „so empfindlich wie möglich“ zu messen. Damit sollen „alte“ Kontaminationen auch europaweit möglichst lange beobachtbar bleiben und für die Nullpegel-Ermittlung nach einer „frischen“ Kontamination bereitstehen. Dazu wird der Luftstaub nach der Messung der Filter zunächst über 1,5 Tage verascht. Die Asche, derzeit 0,5 g bis 1,5 g pro Woche aus ca. $150\,000 \text{ m}^3$ Luft, wird zu Tabletten gepresst und mit einem der hochempfindlichen Bohrloch-Detektorsysteme untersucht. Nach einer Messdauer von einer Woche lässt sich eine Nachweisgrenze von $10 \text{ nBq}/\text{m}^3$ für die typischen Gammastrahlen emittierenden Radionuklide erreichen.



Bild 5:
Bei der Veraschung des Filters entstehen 0,5 g bis 1,5 g Asche.



Bild 6:
Flüssig-Flüssig-Extraktion von Plutonium aus einer Luftstaubprobe.

Messungen von Alpha- und Beta-Strahlen emittierenden Radionukliden

Für IMIS werden monatliche Analysen von Americium-241 (Am-241), Strontium-90 (Sr-90), Uran- und Plutonium-Isotopen verlangt. Am-241 kann mit den hochempfindlichen Gammaskpektrometern der PTB sogar direkt in den wöchentlichen Aschen gemessen werden, und der Monatsmittelwert wird aus diesen Messwerten berechnet. Das ist bei den anderen Radionukliden nicht möglich, weil sie keine leicht messbare Gammastrahlung aussenden. Daher müssen sie einer aufwendigen und langwierigen radiochemischen Abtrennung und Reinigung unterzogen werden. Erst danach kann ein geeignetes Messpräparat zur Messung der Alphastrahlung (Uran und Plutonium) und Betastrahlung (Sr-90) hergestellt werden. Die folgenden Messungen dauern von einigen Tagen (U, Sr-90) bis zu mehreren Wochen (Pu). Im Routinebetrieb werden die Aschen eines Monats zusammen verarbeitet, sodass bei Luftvolumen von bis zu 750 000 m³ und der hohen Messempfindlichkeit der Messplätze typische Nachweisgrenzen von wenigen nBq/m³ für Sr-90 und unter 0,1 nBq (U und Pu) erreicht werden.

Berichterstattung

Sowohl die im Routinebetrieb ermittelten wöchentlichen Ergebnisse der gammaskpektrometrischen Messungen als auch die Ergebnisse der monatlichen radiochemischen Analysen und die im Intensivbetrieb tägliche Mitteilung der gammaskpektrometrischen Ergebnisse werden über einen „PC-Client“, der über eine geschützte Leitung mit der zentralen Datenbank beim Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) verbunden wird, in die dort vorliegenden, bundesweit gemessenen Datensätze übertragen. Nach dem Unfall in Fukushima wurde die Leitstelle im BfS jedoch direkt per E-Mail informiert, weil bundesweit betrachtet nur relativ wenige tägliche Messwerte berichtet werden mussten. Damit konnten die Datenaufbereitung und deren radiologische Bewertung durch das BfS deutlich schneller erfolgen, sodass die Veröffentlichung der ersten Messwerte im Internet schon nach wenigen Stunden möglich wurde.

Alle Messergebnisse der deutschen Spurenmessstellen werden zentral von der Leitstelle bewertet und sowohl für den jährlich erscheinenden Bericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ zusammengefasst als auch an die EU weitergeleitet. Die EU wiederum veröffentlicht die europaweiten Messergebnisse regelmäßig in Berichten der Europäischen Kommission. Neben diesen Übersichtsberichten erscheint regelmäßig der Bericht der Leitstellen „Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland, Daten, Bewertung

und Methoden“, in dem nicht nur besondere Messergebnisse, sondern z. B. auch aktuelle Ergebnisse von Forschungs- oder Entwicklungsprojekten näher beschrieben werden.

Qualitätssicherung

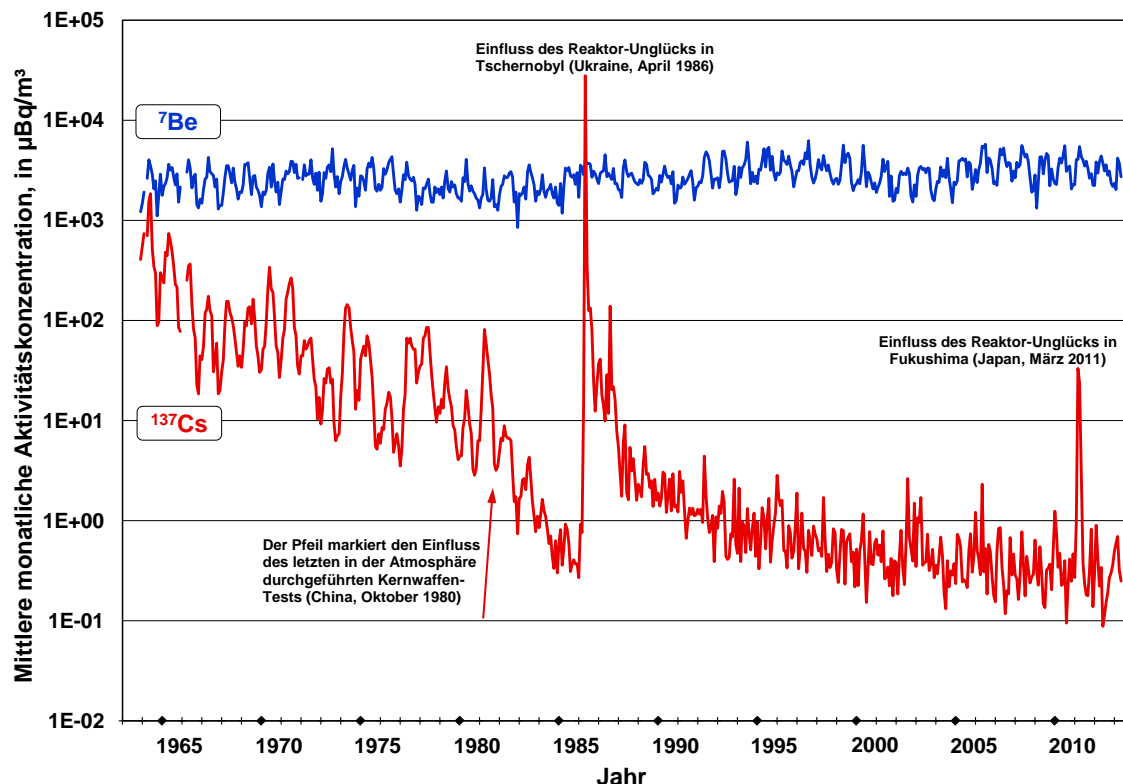
Wichtiger Teil der vom IMIS geforderten Qualitätssicherung sind Vergleichsmessungen, an denen mehrere Spurenmessstellen teilnehmen. Zu diesem Zwecke stellen Mitarbeiter der PTB-Spurenmessstelle **dotierte Luftstaub-Referenzfilter** zur Verfügung. Dafür fertigt die Arbeitsgruppe „Aktivitätseinheit“ der PTB zuerst eine genau bekannte Lösung der gewünschten Radionuklide mit bekannten Aktivitätskonzentrationen an. Diese Lösung wird anschließend gleichmäßig auf ein Filter getropft, das vorher während einer Routine-Probenahme mit realem Luftstaub beladen wurde. Anschließend werden die Referenzfilter an die an dem Ringvergleich teilnehmenden Spurenmessstellen zurückgeschickt. Dort werden die üblichen Messungen durchgeführt – gegebenenfalls nach vorhergehenden radiochemischen Analysen.

Die erhaltenen Messergebnisse werden mit den vorgegebenen Referenzwerten, den „Sollwerten“, verglichen. Treten deutliche Abweichungen auf, werden die möglichen Ursachen ermittelt und Lösungsvorschläge für z. B. verfahrensbedingte Abweichungen erarbeitet.

Messreihen

Die PTB hat von unterschiedlichen natürlichen und künstlichen Radionukliden unterschiedlich lange Messreihen an verschiedenen Standorten aufgezeichnet. Beispiele sind natürliche Radionuklide **terrestrischen Ursprungs** wie Kalium-40 (K-40, ab 1980), Blei-210 (Pb-210, ab 1971), Uran-Isotope (1970 bis 1974, ab 1989) und Thorium-Isotope (1970 bis 1974). Auch natürliche Radionuklide **kosmogenen Ursprungs** wie Be-7, Natrium-22, (Na-22, 1970 bis 1976, ab 1983), Phosphor-Isotope (P-32 und P-33, 1971/1972) und Schwefel-35 (S-35, 1970 bis 1973 sowie 1977 bis 1979) wurden gemessen. Messungen künstlicher Radionuklide erfolgen z. B. für Plutonium-Isotope (1970 bis 1974, ab 1989) oder Strontium-90 (Sr-90, ab 1990). Die radioaktiven Edelgase Krypton-85 (Kr-85) und Xenon-133 (Xe-133) werden nicht in der PTB gemessen, sondern die Spurenmessstelle führt seit 1987 die Probenahme und eine Vorreinigung der Edelgase durch. Danach werden die Proben zur Messung zum Bundesamt für Strahlenschutz nach Freiburg geschickt. Im Intensivbetrieb geschieht auch dies täglich.

Bild 7:
Das natürlich vorkommende Beryllium-7 ist stets in der Atemluft vorhanden. Seine Aktivitätskonzentration liegt, bis auf eine Ausnahme, deutlich über der des aus Waffentests und Reaktorunfällen stammenden Cesium-137.



Radioökologischer Unterschied von Beryllium-7 und Cesium-137

Das natürliche Be-7 ist immer in einer Aktivitätskonzentration von einigen mBq/m^3 in der Atemluft enthalten. Die Konzentration steigt im Frühsommer an, weil die Tropopause erwärmt und so für feinen Staub aus der Stratosphäre durchlässiger wird. An diesen Staub ist das durch die kosmische Höhenstrahlung entstandene Be-7 gebunden, und es erreicht durch atmosphärische Mischungsvorgänge (Wind und Wetter) den Erdboden. In der Messreihe des überwiegend aus den atmosphärischen Kernwaffentests stammenden Cs-137 sieht man diesen Effekt auch, weil es durch die bis in die Stratosphäre aufgestiegenen Atompilze dort eingetragen wurde und sich dort wie Be-7 am Staub anlagerte. Der Effekt wird überlagert durch Kernwaffentests, die trotz des Internationalen Abkommens zum Verbot von Kernwaffentests in der Atmosphäre von Nicht-Unterzeichnerstaaten durchgeführt wurden. Bis 1986 war die Aktivitätskonzentration des Cs-137 auf einige zehntel $\mu\text{Bq/m}^3$ gesunken. Sie stieg infolge des Eintrages aus Tschernobyl kurzzeitig auf die des Be-7 an und sank langsam wieder auf den Pegel von vor dem Unfall. Der stratosphärische Eintrag von Cs-137 ist jedoch nicht mehr sichtbar. Er wird von Cs-137 aus Tschernobyl überdeckt, das an Bodestaub gebunden ist. Der wiederum wird von Wind und Wetter und durch menschliche Aktivitäten wie z. B. Landwirtschaft oder Verkehr aufgewirbelt. Im weiteren Verlauf ist der Einfluss des Reaktorunfalls

in Fukushima 2011 deutlich sichtbar. Er lag bei einem Tausendstel bis einem Zehntausendstel des in Braunschweig beobachteten Eintrags aus Tschernobyl und war nur einige Wochen lang messbar. Das war erkennbar am gleichzeitigen Vorliegen des kurzlebigen Schwesterisotopes Cs-134, das nur aus einer frischen Freisetzung stammen konnte.

Trenderkennung und kurzfristige Änderungen bei Kalium-40

Radioökologische Beobachtungen zeigen sich auch bei K-40, das überall dort in der belebten und unbelebten Natur vorkommt, wo das Spurenelement Kalium auftritt. Die Aktivitätskonzentration von K-40 in der Luft, das in Bodestaub, Pflanzenstaub oder auch im Flugstaub von Heizkraftwerken und fossil befeuerten Gebäudeheizungen enthalten ist, sank als Folge der allgemeinen Luftreinhaltung seit den 1980er-Jahren deutlich ab. In der Messreihe der Monatsmittelwerte liegt ein langfristiger Trend vor, der trotz der vielen monatlichen Schwankungen erkennbar ist. Dagegen treten in den wöchentlichen Messergebnissen kurzfristige Änderungen sehr viel deutlicher hervor. Bild 8 zeigt die Messreihe der Wochenmittelwerte in Braunschweig seit 1998. Die höchsten dort sichtbaren Aktivitätskonzentrationen stammten vom Rauch der Silvesterfeuerwerke. In Feuerwerkskörpern werden kaliumhaltige Oxidationsmittel verwendet, die beim Abbrennen in den Rauch gelangen. Beson-

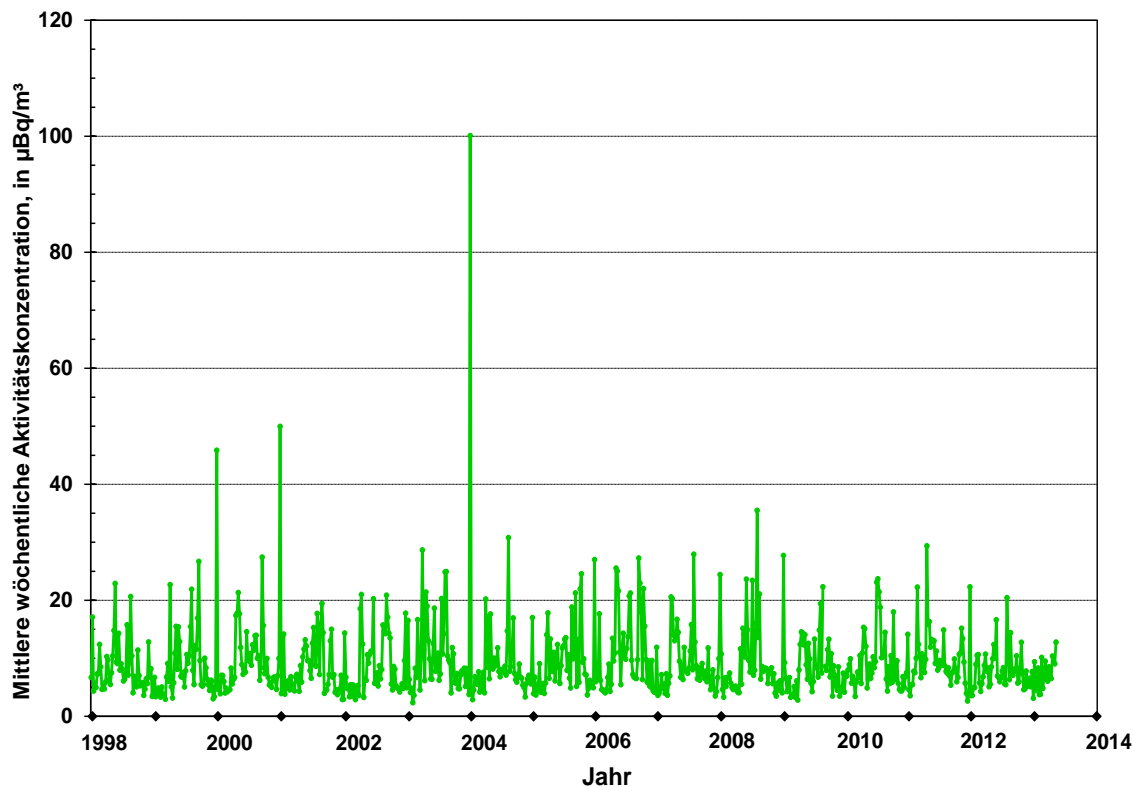


Bild 8:
Die Aktivitätskonzentration des natürlichen Radionuklids Kalium-40 schwankt im Jahresverlauf. Sie wird unter anderem durch landwirtschaftliche Aktivitäten und Feuerwerke beeinflusst.

ders ausgeprägt ist der Effekt, wenn es an Silvester nicht schneit oder regnet und ein schwacher Wind aus Braunschweig über die PTB weht.

durchsatzes der Staubprobensammler auf derzeit $900 \text{ m}^3/\text{h}$ möglich. ■

Die Technik – von den Anfängen bis heute

Seit Oktober 1963 werden in der PTB regelmäßig und ohne Unterbrechung Messungen der an Luftstaub gebundenen Radionuklide durchgeführt. Zur Probenahme dienen Staubprobensammler verschiedener Bauart, deren Leistung und Zuverlässigkeit ständig verbessert wurden. Die Filter zur Staubabscheidung bestanden anfangs aus Glasfasern, wurden jedoch durch Materialien aus Kunststoff ersetzt. Die zu Beginn noch sehr begrenzte Energieauflösung der Detektoren machte es bis 1970 erforderlich, die Staubproben einem radiochemischen Trennungsgang zu unterziehen. Anschließend wurden die gereinigten Fraktionen in einem **Nal(Tl)-Bohrloch-Szintillationsspektrometer** gemessen. Die Nachweisgrenze lag bei etwa 1 µBq/m^3 . 1971 wurde das erste Gammaskpektrometer mit einem **Ge(Li)-Bohrloch-Detektor** in Betrieb genommen, das eine deutlich bessere Energieauflösung bot, sodass die meisten Radionuklide direkt gemessen werden konnten. Mit Gammaskpektrometern der darauffolgenden Generation mit **HPGe-Bohrloch-Detektoren**, sehr guter Energieauflösung und geringerer **Eigenaktivität** konnte die Nachweisgrenze bis auf 10 nBq/m^3 verbessert werden. Diese enorme Steigerung der Messempfindlichkeit wurde nicht zuletzt auch durch die Erhöhung des Luft-



Bild 9:
Luftstaubsammler 1983.

Bedeutung der Spurenmessung im Rahmen der Regelungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität

Reimund Stapel*

Entwicklung der Überwachung der Umweltradioaktivität

Durch die Inbetriebnahme von Forschungsreaktoren in der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1957 und 1958 und den späteren Betrieb von Kernkraftwerken zur Energiegewinnung wurde es erforderlich, die Radioaktivität in der unmittelbaren Umgebung kerntechnischer Anlagen zu überwachen. Die rechtlichen Verpflichtungen dazu leiten sich aus dem Atomgesetz und der Strahlenschutzverordnung ab und werden sowohl von den Betreibern der Anlagen selbst als auch von unabhängigen Messstellen der Länder umgesetzt. Die Messaufgaben sind seit 1993 in der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) festgelegt.

Die Notwendigkeit einer großräumigen Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt ergab sich dagegen schon früher aus den oberirdischen Kernwaffenversuchen ab 1945, die Radioaktivität in die Atmosphäre freisetzen und damit einen nicht vernachlässigbaren Beitrag zur [Strahlenexposition](#) der Bevölkerung verursachten. Daher wurden schon in den 1950er-Jahren von der Bundesrepublik Deutschland Messsysteme zur Umweltüberwachung aufgebaut, u. a. wurde 1955 der Deutsche Wetterdienst (DWD) gesetzlich verpflichtet, die Atmosphäre auf „radioaktive Beimengungen“ zu untersuchen und deren Ausbreitung zu überwachen.

Im europäischen Rahmen verpflichtet Artikel 35 des Vertrages zur Gründung der Europäischen Atomgemeinschaft (EURATOM) vom 25. März 1957 die Mitgliedstaaten, die notwendigen Einrichtungen zur ständigen Überwachung des Radioaktivitätsgehaltes von Luft, Wasser und Boden sowie zur Überwachung der Einhaltung der Strahlenschutz-Grundnormen zu schaffen.

Ein wesentlicher Schritt in der Weiterentwicklung der großräumigen Überwachung der Umweltradioaktivität wurde in Deutschland durch den Reaktorunfall von Tschernobyl am 26. April 1986 ausgelöst. Am 19. Dezember 1986 wurde das Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) [1]

verabschiedet, dessen Ziel es ist, zum Schutz der Bevölkerung die Radioaktivität in der Umwelt zu überwachen und im Falle von Ereignissen „mit möglichen nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen“ die radioaktive Kontamination in der Umwelt und die Strahlenexposition des Menschen durch angemessene Maßnahmen so gering wie möglich zu halten. Das Gesetz regelt u. a. die Zuständigkeiten für die Überwachung der Umweltradioaktivität neu. Es grenzt die Aufgabenzuständigkeit zwischen Bund und Ländern ab. Die großräumige Überwachung der Luft und des Wassers sowie die Ermittlung der Gamma-[Ortsdosisleistung](#) sind Einrichtungen des Bundes zugewiesen. Die Überwachung der anderen Umweltmedien wird dagegen von Messstellen der Länder wahrgenommen. Die Ermittlung der Daten, die Datenhaltung, -bereitstellung und -aufbereitung erfolgen im Rahmen des [Integrierten Mess- und Informationssystems](#) zur Überwachung der Umweltradioaktivität (IMIS), dessen Aufbau und Betrieb ebenfalls im Strahlenschutzvorsorgegesetz festgeschrieben und in der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Umwelt (AVV-IMIS) [2] näher geregelt sind.

Rolle der Überwachung im Normalfall und im Notfall

Als Anhänge zur AVV-IMIS sind insbesondere die Messprogramme für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm) und für den so genannten Intensivbetrieb (Intensivmessprogramm) im kerntechnischen oder radiologischen Notfall aufgeführt. Gegenstand dieser Messprogramme sind [Radionuklide](#) künstlichen Ursprungs, die infolge von Tätigkeiten des Menschen in die Umwelt gelangen und so zu einer erhöhten Strahlenexposition führen können.

Insbesondere sind die Programme so ausgelegt, dass sie die langfristigen Auswirkungen von Kernwaffenexplosionen und die großräumigen und globalen Folgen des Betriebes von kerntechnischen Anlagen im In- und Ausland erfassen. Aufgrund

* Dr. Reimund Stapel,
Bundesministerium
für Umwelt, Natur-
schutz, Bau und
Reaktorsicherheit,
E-Mail:
reimund.stapel@
bmub.bund.de

der großräumigen Überwachung werden zum Teil auch Veränderungen der Radioaktivität in der Umwelt durch Anwendung von Radioisotopen in Medizin, Forschung und Industrie miteingefasst. Das Routine-Messprogramm enthält verbindliche Vorgaben für die Durchführung der routinemäßigen Überwachungsmaßnahmen durch die zuständigen Behörden des Bundes und der Länder und stellt ein bundeseinheitliches Vorgehen sicher. Bei Hinweisen auf eine nennenswerte Zunahme der Kontamination infolge erhöhter Freisetzung radioaktiver Stoffe in die Umwelt müssen besondere Programme durchgeführt werden. Für diese Fälle ist das Intensivmessprogramm vorgesehen, das unterschiedlichen Szenarien gerecht wird.

Die Messungen des Routinemessprogramms dienen unter anderem der Gewinnung von Referenzwerten, um im Falle eines Ereignisses mit möglichen, nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen die Konsequenzen für Mensch und Umwelt beurteilen zu können. Im Umweltbereich Luft liefern unter normalen Umständen die automatisch und kontinuierlich durch Monitore durchgeführten nuklidspezifischen Messungen der Luftaktivität lediglich die Aussage, dass die **Aktivitätskonzentration** künstlicher Radionuklide unterhalb der **Nachweisgrenze** liegt. Die Spurenmessungen dienen hier mit Hilfe empfindlichster Methoden der Ermittlung der tatsächlichen Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden in der Luft, um kurz- und langfristige Änderungen auf niedrigstem Aktivitätsniveau verfolgen zu können. Hierdurch wird einerseits eine Art Nullpegel bestimmt und andererseits wegen der hohen Empfindlichkeit eine Frühwarnfunktion wahrgenommen. Selbst kleinste Ereignisse im Ausland, wie das Einschmelzen einer radioaktiven Quelle bei der Schrottverarbeitung oder die Freisetzung von Iod-131 (I-131) durch Fabriken zur Herstellung radioaktiver Isotope für medizinische Zwecke können erkannt werden. Letzteres war z. B. Ende Oktober/Anfang November 2011 nach einer Freisetzung von I-131 durch eine ungarische Isotopenfabrik der Fall, die nur durch entsprechende Ergebnisse von Spurenmessungen in mehreren europäischen Staaten bekannt wurde.

Die EU-Kommission fordert neben einem engmaschigen Überwachungsnetz, das ihr die Bildung regionaler Mittelwerte erlaubt und dessen Anforderungen durch das Routinemessprogramm abgedeckt sind, auch ein weitmaschiges Überwachungsnetz, in dem an wenigen, regional repräsentativen Orten hochempfindliche Messungen durchgeführt werden, die ein klares Bild der tatsächlichen Niveaus und Trends der Aktivitätswerte ausgewählter Radionuklide vermitteln. Nach dem IMIS-Routinemessprogramm durchgeführte Spurenmessungen der Luftaktivitätskonzentration von den Probenahme- und Messstellen Braunschweig der PTB, Berlin bzw. Potsdam und Offenbach des

DWD sowie Schauinsland des BfS sind Bestandteil der weitmaschigen Überwachung der Umweltraadioaktivität durch die EU für das Umweltmedium Luft. Weitere Spurenmessungen mit internationalem Bezug werden vom BfS im Rahmen des Vertrags über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty, CTBT) durchgeführt. Das System zur Überprüfung der Einhaltung des Vertrags umfasst u. a. weltweit 80 Spurenmessstellen für Radioaktivität in Luft. Das BfS ist im Auftrag des Auswärtigen Amtes für die Radionuklidmesstechnik und Bewertung von Radionuklidaten der Vertragsorganisation CTBTO auf nationaler Ebene zuständig. Es ist für den Betrieb der deutschen Radionuklidstation der CTBTO auf dem Schauinsland bei Freiburg, der einzigen in Mitteleuropa, verantwortlich und in Zusammenarbeit mit der CTBTO an der Weiterentwicklung der Messtechnik und Optimierung des Verifikationssystems beteiligt. Dort sind seit 2003 automatische Messsysteme mit hoher Empfindlichkeit sowohl für den Nachweis von schwebstoffgebundener Radioaktivität als auch für den Nachweis der radioaktiven Xenonisotope Xe-135, Xe-133m, Xe-133 und Xe-131m in Betrieb.

Im Intensivbetrieb finden gegenüber dem Normalbetrieb insbesondere zeitliche und räumliche Verdichtungen statt. Für die Spurenmessungen der Luftaktivität bedeutet dies eine Verkürzung des Probeentnahmezeitraums von einer Woche im Normalbetrieb auf 24 Stunden. Dies ist zwar mit einer Herabsetzung der Empfindlichkeit verbunden, jedoch sind im Intensivbetrieb auch die zu messenden Aktivitäten erhöht und die höhere zeitliche Auflösung ist prioritär für die Lagebewertung. Eine wesentliche Funktion dieser Messungen im Intensivbetrieb besteht in der Bestimmung von Luftaktivitätskonzentrationen der Radionuklide Strontium-89 (Sr-89) und Strontium-90 (Sr-90) sowie alphastrahlender Radionuklide der Elemente Uran, Plutonium und Americium, die eine besondere Bedeutung für die Strahlenexposition haben. Diese Radionuklide werden nicht durch die Monitoreinrichtungen erfasst, die automatisch, kontinuierlich und nuklidspezifisch die Luftaktivitätskonzentration in hoher zeitlicher Auflösung (alle zwei Stunden im Intensivbetrieb) bestimmen. Das gleiche gilt für radioaktive Edelgase. Tatsächlich werden alle diese speziellen Radionuklide durch die Spurenmesseinrichtungen nicht nur im Intensivbetrieb, sondern auch im Normalbetrieb untersucht. Im Intensivbetrieb tragen diese Messungen dazu bei, die betroffenen Gebiete zu ermitteln, die Strahlenexposition abzuschätzen und die Radionuklidzusammensetzung zu bestimmen. Aufgrund ihrer höheren Empfindlichkeit lassen sie erkennen, ob noch Luftmassen mit erhöhter Radioaktivität über deutschem Gebiet vorhanden sind.

Berichtspflichten

Sowohl national als auch gegenüber der EU-Kommission bestehen für das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) Berichterstattungspflichten hinsichtlich der Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt.

Das Strahlenschutzvorsorgegesetz sieht die jährliche Berichterstattung an den Deutschen Bundestag und den Bundesrat über die Entwicklung der Radioaktivität in der Umwelt vor. Dazu werden die zur Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung erhobenen Daten vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) zusammengefasst, aufbereitet und dokumentiert.

Schon seit 1958 werden die von den amtlichen Messstellen gemessenen Werte der Radioaktivität in der Umwelt in Form von Vierteljahresberichten, seit 1968 in Jahresberichten veröffentlicht. Diese Jahresberichte „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ des BMUB beinhalten neben den Ergebnissen der Überwachung der Umweltradioaktivität Angaben über die Strahlenexposition der Bevölkerung durch natürliche und künstliche Quellen und enthalten gegenüber dem Bericht an Parlament und Bundesrat ausführlicheres Datenmaterial [3]. In diese Berichte finden auch die Messwerte aus Spurenmessungen radioaktiver Stoffe in Luft einschließlich einer Kommentierung und Bewertung Eingang.

Artikel 36 des Euratom-Vertrags verlangt, dass der EU-Kommission von den zuständigen Behörden regelmäßig Informationen über die in Artikel 35 genannten Überwachungsmaßnahmen übermittelt werden, damit sie ständig über den Gehalt an Radioaktivität unterrichtet ist, dem die Bevölkerung ausgesetzt ist. Zu diesem Zweck werden die Daten aus dem engmaschigen und aus dem weitmaschigen Messnetz durch das BfS an die EU-Kommission übermittelt. Der aktuelle Bericht deckt die Jahre 2004 bis 2006 ab und ist der 33. seiner Art [4]. Bild 1 zeigt aus diesem Bericht Zeitreihen für die schwebstoffgebundene Luftaktivitätskonzentration, die an den Spurenmessstationen in Risø, Berlin und Wien gemessen wurden.

Fukushima

Seit dem Aufbau des IMIS nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahr 1986 ist das System anlässlich des Reaktorunfalls von Fukushima im März 2011 erstmals außerhalb von Übungen in Teilen nach dem Intensivmessprogramm betrieben worden. Durch die große Entfernung zum Quellort und die damit verbundene Verdünnung war die nach Deutschland verfrachtete Menge radioaktiven Materials nur mit empfindlichen Methoden messbar. Um Messergebnisse mit hoher zeitlicher Auflösung zu erhalten, wurde wie im Intensivmessprogramm vorgesehen der Zeittakt für die Probeentnahme der schwebstoffgebunde-

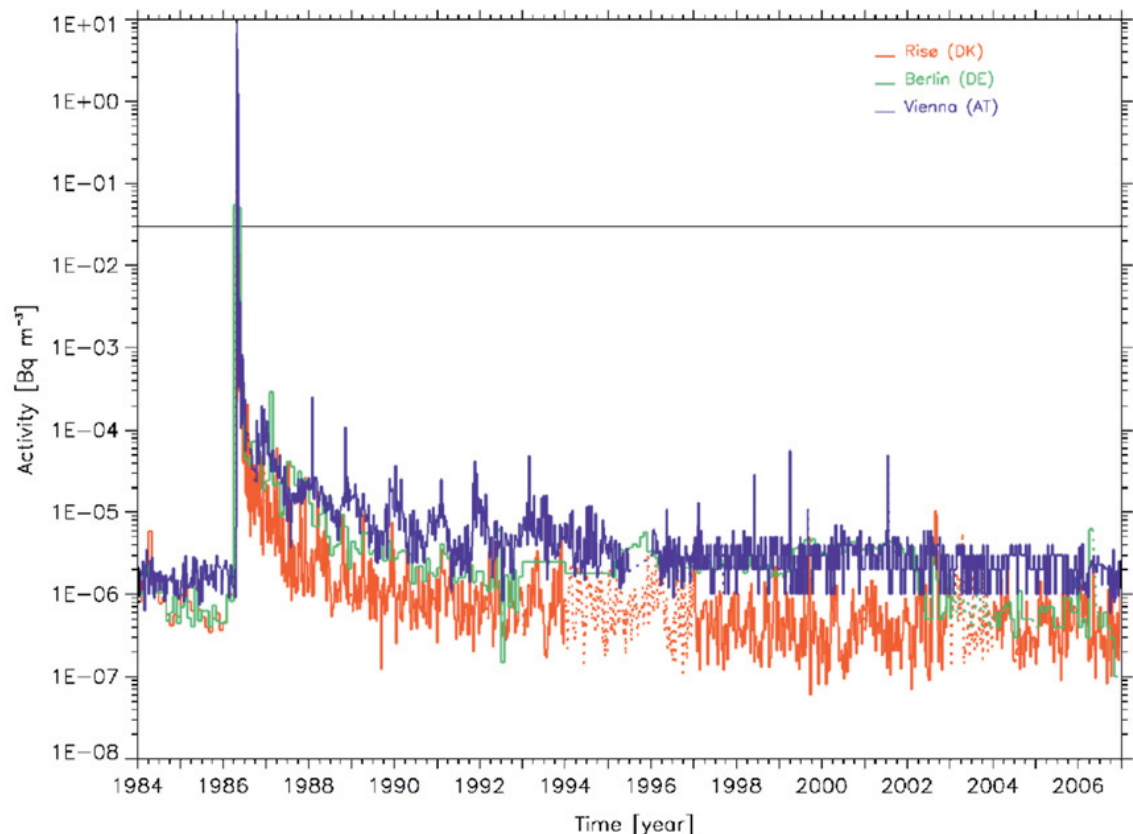


Bild 1:
Zeitreihen für die
schwebstoffgebun-
dene Aktivitäts-
konzentration von
Cs-137 in Luft.

nen Radionuklide an den vier Spurenmessstellen, die auch Bestandteil des weitmaschigen Netzwerks der EU sind, ab dem 23.03.2011 von wöchentlicher auf tägliche Probeentnahme umgestellt. Über den zeitlichen Versatz im Auftreten des ersten Aktivitätsanstiegs an den vier Stationen manifestierte sich die Zugrichtung der radioaktiven Luftmassen von Nordwesten nach Südosten. Die gemessenen Luftaktivitätskonzentrationen insbesondere von I-131, Caesium-137 (Cs-137) und Caesium-134 (Cs-134) belegten, dass keinerlei gesundheitliche Gefährdung für die Bevölkerung in Deutschland bestand.

Fazit

Die in den Jahresberichten „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ des BMUB dokumentierten und kommentierten Messungen der Spurenmessstellen für Luftaktivitätskonzentrationen nach dem Routinemessprogramm sowie die Messungen während des Fukushima-Ereignisses nach dem Intensivmessprogramm belegen, dass das Konzept der Spurenmessstellen sinnvoll und tragfähig ist. ■

Literatur

- [1] Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz – StrVG) vom 19. Dezember 1986 (BGBl. I S. 2610), zuletzt geändert durch Artikel 1 des ersten Gesetzes zur Änderung des Strahlenschutzvorsorgegesetzes vom 8. April 2008 (BGBl. I S. 686)
- [2] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS) vom 13. Dezember 2006 (BAnz. 2006, Nr. 244a)
- [3] Jahresbericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ 2011, Herausgeber: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, URN: nbn:de:0221-2013090511044
- [4] Environmental Radioactivity in the European Community 2004–2006, ISSN 1018-5593, ISBN 978-92-79-12984-1

PRÜFMITTELMANAGEMENT



Prüfen • Messen • Kalibrieren
Prüfmittelmanagement
Fertigungsmesstechnik
3-D Messtechnik

PMK - GmbH (Prüfen+Messen+Kalibrieren)
 Lilienthalstraße 146 | Gebäude 11 | 34123 Kassel
info@pmk-kassel.de | www.pmk-kassel.de





ATEMBERAUBEND.

Ultrapräzise Positioniersysteme
 auch für den Einsatz in Vakuum und Tieftemperatur.



PI

MOTION CONTROL
www.pimicos.com

Spurenanalyse im Bundesamt für Strahlenschutz: Leitstelle und Messaufgaben

Jacqueline Bieringer¹, Clemens Schlosser²

Geschichte der Spurenmessungen am Bundesamt für Strahlenschutz

Bereits kurz nach dem 2. Weltkrieg begann im Jahre 1946 eine Arbeitsgruppe des Physikalischen Instituts der Albert-Ludwigs-Universität in Freiburg unter Leitung von Prof. Wolfgang Gentner und Dr. Albert Sittkus damit, im Schwarzwald auf dem Schauinsland Experimente zur Charakterisierung der kosmischen Höhenstrahlung durchzuführen. Im Frühjahr 1953 gelang den Forschern zum ersten Mal in Niederschlagsproben der Nachweis vom Fallout eines Kernwaffentests. Als Folge wurde für die zeitlich lückenlose und langfristige Überwachung der Atmosphäre auf künstliche und natürliche Radioaktivität auf dem Schauinsland (1200 m NN) eine feste Messstation gebaut, die 1957 ihren Betrieb aufnahm.

In den Folgejahren gewann die Überwachung der Umwelt auf radioaktive Stoffe – aufgrund der zunehmenden militärischen sowie zivilen Nutzung der Kernenergie – immer mehr an Bedeutung. Es wurden neue Verfahren zur nuklidspezifischen Messung der an den Luftstaub gebundenen radio-

aktiven Stoffe und der radioaktiven Edelgase in der Luft entwickelt. Eines dieser Systeme ist seit 1957 immer noch im kontinuierlichen Betrieb. Die aktuellen Daten werden im Internet unter www.bfs.de/de/ion/imis/luftueberwachung.html wöchentlich bereitgestellt. Bis ins Jahr 1980 wurden mehrfach radioaktive Stoffe von oberirdischen Kernwaffentests an der Station nachgewiesen, zuletzt der von Lop Nor, China. Von 1958 bis 1982 gehörten die Messstation und das Freiburger Laboratorium als „Außenstelle Freiburg-Schauinsland“ zum Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg. Als „Institut für Atmosphärische Radioaktivität“ (IAR) wurden die Einrichtungen 1982 Bestandteil des Bundesamtes für Zivildschutz (BZS).

Die radioaktive Wolke der Reaktorkatastrophe in Tschernobyl wurde auch an der Messstation auf dem Schauinsland nachgewiesen. In der Folge der Reaktorkatastrophe wurden 1989 die Freiburger Forschergruppe und die Messstation in das neu gegründete Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) integriert und das Aufgabenspektrum kontinuierlich um den Bereich „Notfallschutz“ erweitert. Damit verbunden war auch eine stetig wachsende Zusammenarbeit mit anderen Staaten in den Bereichen der Messnetze, des Datenaustausches und der Entwicklung gemeinsamer Strategien für den Ereignisfall. Hinzu kamen im Bereich der Spurenanalyse Luftstaubsammler mit hohem Luftdurchsatz, Verfahren zur nuklidspezifischen Bestimmung geringster Mengen von α -, β - und γ -Strahlern in der bodennahen Luft sowie automatische Systeme für hochempfindliche Luftstaub- und Edelgasmessungen.

Die kontinuierlichen Messungen – nicht nur auf dem Schauinsland sondern weltweit – gewannen mit den Jahren immer mehr an Bedeutung. Heute ist die Messstation eingebunden in nationale (Integriertes Mess- und Informationssystem, IMIS) und internationale Messnetze (Comprehensive Nuclear-Test-Ban-Treaty, CTBT, „Sparse Network“ nach Art. 35/36 EURATOM). Neben den hochempfindlichen Messeinrichtungen zur Spurenanalyse verfügt sie über eine Vielzahl von Messapparaturen, mit denen online Messwerte im Rahmen des Notfallschutzes erhoben werden.

¹ Jacqueline Bieringer
Bundesamt für Strahlenschutz,
E-Mail:
jbieringer@bfs.de

² Dr. Clemens
Schlosser,
Bundesamt für Strahlenschutz,
E-Mail:
cschlosser@bfs.de



Bild 1:
Messstation des BfS auf dem Schauinsland.

Zurzeit werden die Aufgaben im Bereich der Spurenanalyse in der Dienststelle Freiburg des BfS im Fachgebiet „Atmosphärische Radioaktivität und Spurenanalyse“ mit neun Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern wahrgenommen. Von hier aus wird auch die Messstation auf dem Schauinsland mit ihren Messeinrichtungen betreut.

Aerosol- und Edelgasmessungen national und international

Die Messergebnisse dienen auch heute noch zur allgemeinen Überwachung der künstlichen Radioaktivität in der Atmosphäre und werden für die Verfolgung der Langzeitentwicklung von **Aktivitätskonzentrationen** in der bodennahen Luft, zur Abschätzung der Strahlenbelastung des Menschen im nuklearen Ereignisfall sowie in den Umweltwissenschaften zum Studium atmosphärischer Transportprozesse verwendet [1]. Um die Qualität der in den SpurenanalySELaboratorien des BfS durchgeführten Untersuchungen auch nach außen hin zu belegen, werden zurzeit ausgewählte Analyseverfahren gemäß DIN EN/ISO IEC 17025 akkreditiert.

Edelgasmessungen

Mit der kontinuierlichen Messung der Aktivitätskonzentrationen der radioaktiven Edelgase Krypton-85 (Kr-85) und Xenon-133 (Xe-133) wurde 1972 bzw. 1976 in Freiburg begonnen. Es folgte der Aufbau eines globalen Messnetzes mit derzeit elf Probenahmestationen für Kr-85 und Xe-133 und einem Zentrallaboratorium in Freiburg.

Sieben der acht deutschen Sammelstationen sind Bestandteil der Messprogramme nach der „Allgemeinen Verwaltungsvorschrift IMIS“ (AVV-IMIS). Die Wochenproben werden vor Ort in Zusammenarbeit mit Partnerinstitutionen genommen (z. B. DWD, PTB), die die Luftproben an das BfS zur Analyse senden. Die Proben werden gaschromatographisch aufgetrennt und die **Aktivität** mit Hilfe integraler Beta-Messung in Proportionalzählrohren bestimmt. Im BfS-Labor werden jährlich mehr als 1000 Luftproben auf ihre Kr-85- und Xe-133-Aktivitätskonzentrationen analysiert. Damit stehen einzigartige Langzeitmessreihen zur Verfügung, mit denen, neben der Überwachung der Umweltradioaktivität, auch der Einfluss nukleartechnischer Anlagen auf die Aktivitätskonzentrationen dieser Radionuklide sowie deren globale Verteilung in der Atmosphäre studiert werden kann. Aufgrund ihrer chemischen Eigenschaften breiten sich Edelgase in der Atmosphäre über große Distanzen aus und können daher auch noch an weiter entfernten Stationen nachgewiesen werden. Die einzige Senke ist der radioaktive Zerfall.

Kr-85 ist auch ein Indikator für die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen, die von 1944 bis in

die 70er-Jahre überwiegend militärisch zur Produktion von waffenfähigem Plutonium-239 (Pu-239) eingesetzt wurden. Das derzeitige Kr-85 in der Atmosphäre stammt hauptsächlich aus der zivilen Wiederaufarbeitung von Brennstäben. Zurzeit ist die Aufbereitungsanlage in La Hague, Frankreich, die weltweit größte Emissionsquelle. In Bild 2 ist der Zeitverlauf der Kr-85-Aktivitätskonzentration an der Station Schauinsland abgebildet. Durch radioaktiven Zerfall, seine **Halbwertszeit** ($T_{1/2}$) beträgt 10,8 Jahre, nimmt das atmosphärische Inventar jährlich um 6,4 % ab. Diese Reduktionsrate wurde lange Zeit von den globalen Freisetzungsraten von Kr-85 übertroffen, was zu einem kontinuierlichen Anstieg des atmosphärischen Untergrundpegels führte. In der letzten Dekade ist eine Stabilisierung bei einer Konzentration von etwa 1,45 Bq/m³ in Mitteleuropa zu beobachten, bedingt durch die Abnahme der Emissionen der Wiederaufbereitungsanlage in La Hague. Der Untergrundpegel ist überlagert von kurzzeitigen Erhöhungen. Diese entstehen bei den kurzzeitigen Freisetzungen von Kr-85 im Aufarbeitungsprozess der Brennelemente, wenn die Probenahmestelle in der Abluftfahne einer solchen Emission liegt.

Radioaktive Xenonisotope werden, wie Kr-85, überwiegend bei der Kernspaltung erzeugt. Mögliche Quellen sind Leistungs- und Forschungsreaktoren, radiopharmazeutische Produktionsanlagen, Krankenhäuser und auch Kernwaffenexplosionen. In der bodennahen Luft wird derzeit hauptsächlich das Isotop Xe-133 ($T_{1/2} = 5,24$ Tage) nachgewiesen. In den letzten 15 Jahren wird der globale Xenonuntergrund durch die Entlässe an Radioxenon bei der Produktion von Molybdän-99 (Mo-99)/Technetium-99 (Tc-99)-Quellen für die Nuklearmedizin global dominiert.

Im zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentration von Xe-133 (Bild 3) sind die auf die Reaktorkatastrophen von Tschernobyl und Fukushima zurückzuführenden, kurzzeitigen Erhöhungen deutlich zu erkennen.

An den anderen deutschen Spurenmessstellen wird qualitativ das gleiche zeitliche Verhalten der Kr-85- und Xe-133-Aktivitätskonzentrationen beobachtet.

Aerosolmessungen

Sowohl an der Messstation des BfS auf dem Schauinsland als auch in Freiburg werden Hochvolumensammler vom Typ Snow White [2] zur Überwachung partikelgebundener Radionuklide betrieben. Die Überwachung von radioaktiven Spuren in der Atmosphäre ist u. a. ein Bestandteil der Messprogramme zur AVV-IMIS. Die Messreihen ermöglichen die Untersuchung von Trends über längere Zeiträume und den Einfluss verschiedener Quellen auf die Messergebnisse. Während

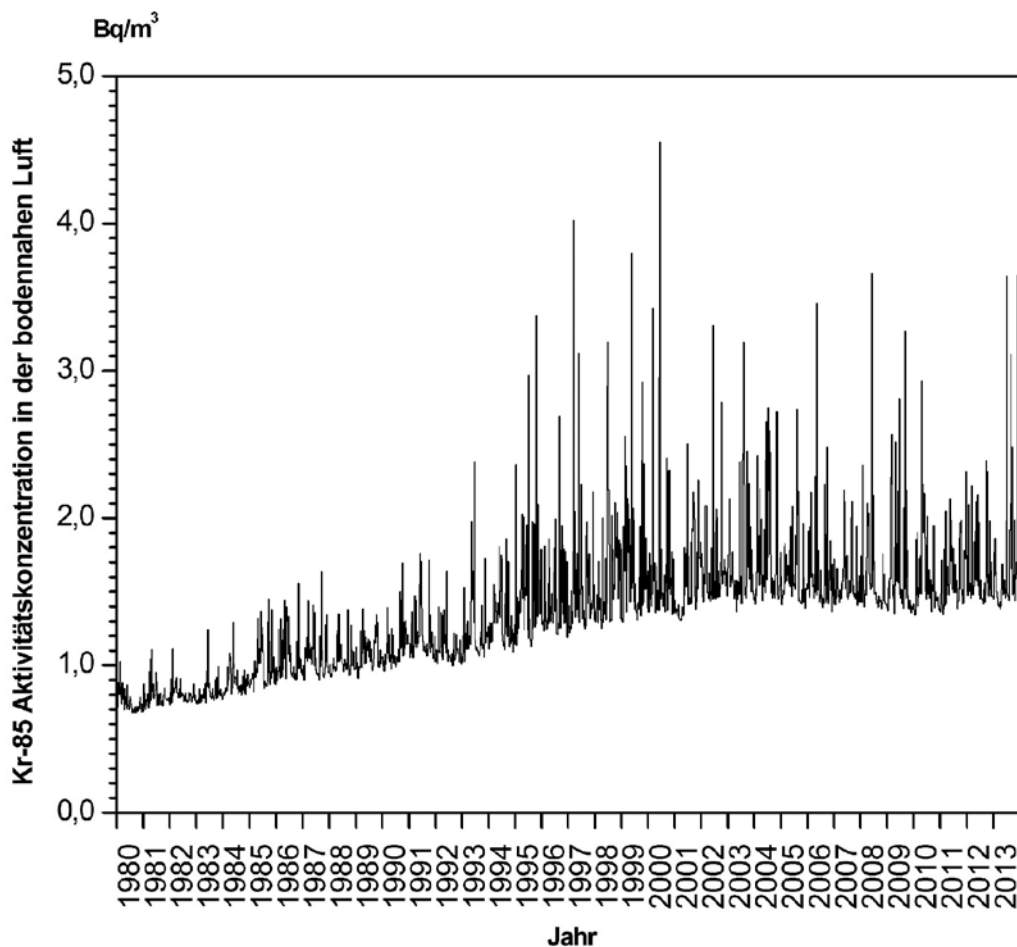


Bild 2:
Langzeitmessreihe der
Kr-85-Aktivitätskonzentrationen an der Station Schauinsland.

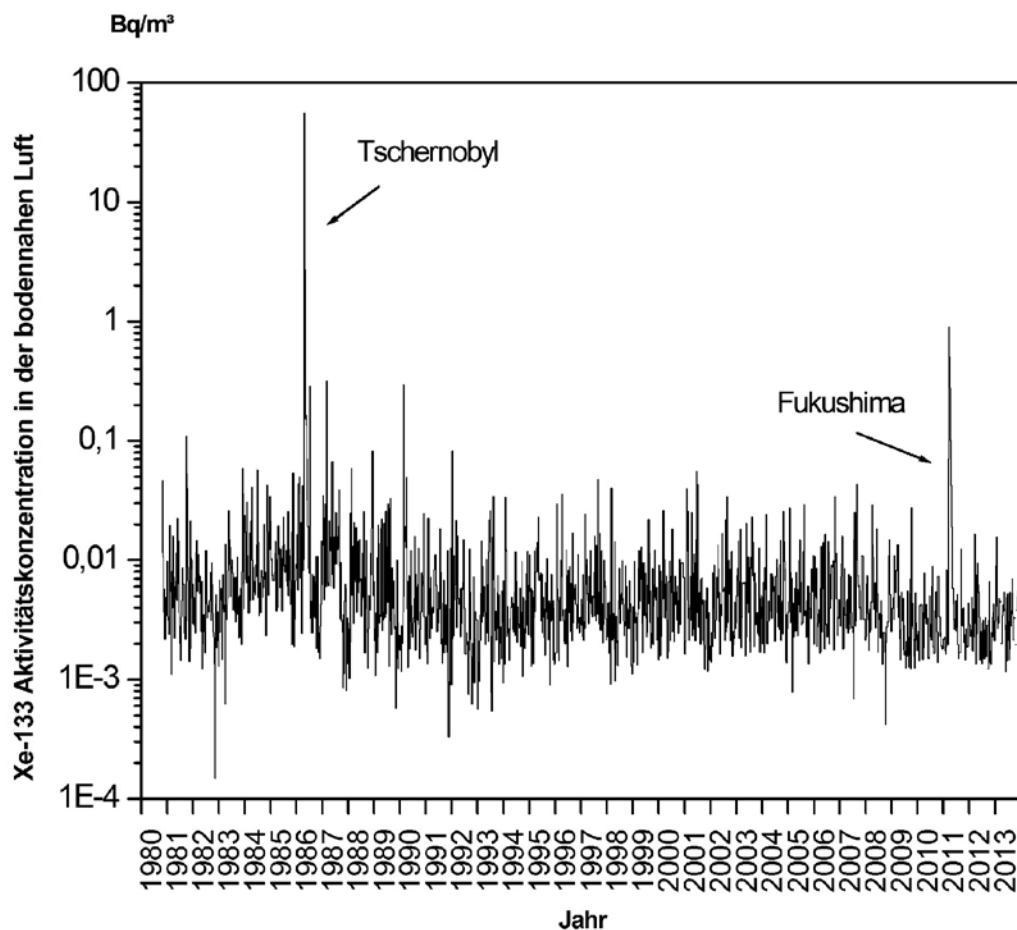


Bild 3:
Xe-133-Aktivitätskonzentrationen, Langzeitmessreihe von Wochenproben an der Station Schauinsland.

der Sammler auf dem Schauinsland hauptsächlich unter dem Einfluss globaler Luftmassen steht, ist der Sammler in Freiburg öfter der Luft aus dem Rheintal und lokalen Einflüssen ausgesetzt. Mögliche Quellen und deren Beiträge können, unter Zuhilfenahme von Messergebnissen anderer Spurenmessstellen, in einigen Fällen durch atmosphärische **Ausbreitungsrechnungen**, Atmosphärisches Transport Modell (ATM), identifiziert werden.

Die Aerosolfilter werden in der Routine über eine Woche mit einem Luftdurchsatz von ca. 700 m³/h bis 800 m³/h besaugt. Die Staubpartikel mit den anhaftenden Radionukliden werden mit hoher Effizienz auf dem Filter abgeschieden. Nach Beendigung der Probennahme wird die nuklidspezifische Aktivitätskonzentration der Gammastrahlung emittierenden Radionuklide bestimmt. Für die Station Schauinsland sind die Aktivitätskonzentrationen von Beryllium-7 (Be-7) und Caesium-137 (Cs-137) in Bild 4 dargestellt.

Während die Aktivitätskonzentrationen des **kosmogenen** Be-7 lediglich jahreszeitlichen Schwankungen unterliegen, zeigen die des Cs-137 kurzzeitige Erhöhungen. Diese sind häufig durch Resuspension zu erklären. Deutliche Erhöhungen haben andere Ursachen, wie z. B. Waldbrände in der Gegend um Tschernobyl, die Freisetzung von Cs-137 aus einem Stahlwerk in Spanien oder – im Jahr 2011 – die Katastrophe von Fukushima. Auf den Filtern, die von den Luftmassen aus Fukushima beeinflusst waren, konnten neben Cs-137 weitere Caesium-, Tellur- und Iodisotope nachgewiesen werden.

In Freiburg werden vermehrt lokale Einflüsse sichtbar. Dies sind z. B. vereinzelt auftre-

tende Nachweise für I-131, das vermutlich aus dem medizinischen Bereich stammt sowie mit der Heizperiode korrelierte Erhöhungen der Cs-137-Konzentration.

Neben der Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen der Gammastrahler werden seit 2003 auch diejenigen der reinen Betastrahler Strontium-89 (Sr-89), Strontium-90 (Sr-90) und seit Anfang 2007 die der Radionuklide Uran-234 (U-234), Uran-235 (U-235) und Uran-238 (U-238) sowie Plutonium-(239+240) (Pu-(239+240)) an diesen Luftfilterproben bestimmt. Dafür werden die Filter monatsweise zusammengefasst, radiochemisch aufgearbeitet und die Aktivitäten durch Messungen mit einem Proportionalzählrohr (Strontium) bzw. durch Alpha-Spektrometrie (Uran und Plutonium) bestimmt.

Die mittlere Aktivitätskonzentration für Sr-90 liegt bei 0,07 µBq/m³, für die Uran-Isotope bei etwa 0,05 µBq/m³. Die gemessenen Isotopenverhältnisse entsprechen innerhalb der Messunsicherheiten denjenigen von natürlichem Uran.

Messungen für die Überwachung des Kernwaffenteststoppabkommens

Für die Überwachung des Vertrages über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen [3] wird ein internationales Messnetz (International Monitoring System, IMS) aufgebaut, welches derzeit zu etwa 80 % fertiggestellt ist. Bestandteil des IMS sind 80 Stationen mit Systemen zur Messung aerosolgebundener Radionuklide. An 40 dieser Stationen sollen zusätzlich Messsysteme zum Nachweis von radioaktivem Xenon installiert

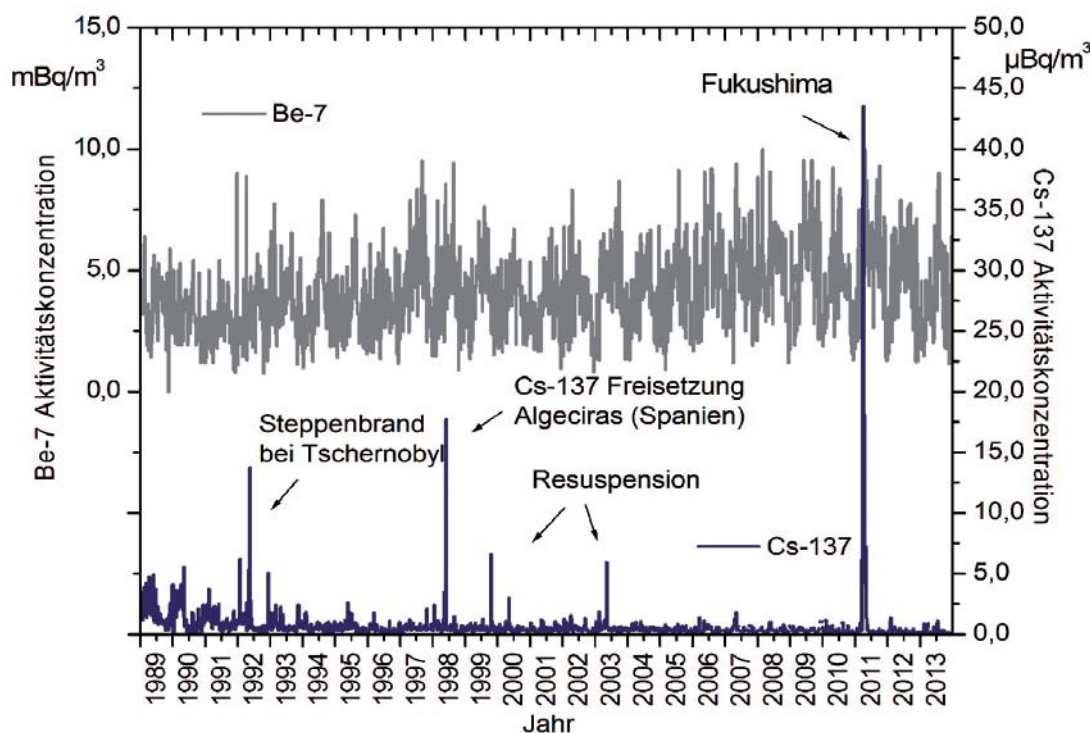


Bild 4:
Zeitverlauf der Aktivitätskonzentrationen von Be-7 und Cs-137 an der Messstation Schauinsland.

werden. Zur Qualitätssicherung werden die 80 Stationen durch 16 Radionuklidlaboratorien ergänzt, welche Re-Analysen von Proben der Messstationen durchführen.

Da aufgrund ziviler Emissionen an vielen Stationen ein permanenter Untergrundpegel an radioaktiven Xenonisotopen messbar ist, muss man zwischen Emissionen aus zivilen Quellen und aus Kernwaffentests unterscheiden können. Dies erfolgt auf Basis der Isotopenverhältnisse, der Kenntnis des stationsspezifischen Untergrundpegels, als auch über mögliche Emissionsquellen und deren Einfluss auf die Messdaten der einzelnen Stationen.

Ende der 90er-Jahre wurde die Station Schauinsland als einzige Radionuklidmessstation (RN 33) in Mitteleuropa Bestandteil des Messnetzes. Hierzu werden auf dem Schauinsland vollautomatische Messsysteme für Aerosole (RASA) und Edelgase (SPALAX) mit einer zeitlichen Auflösung von 24 Stunden betrieben. Beide Systeme sind mittlerweile nach den Vorgaben der CTBTO zertifiziert und liefern kontinuierlich Daten in hoher Qualität an das internationale Datenzentrum in Wien und an die Signatarstaaten des Vertrags. Im Vergleich zu den manuellen Systemen des BfS wird durch die kürzere Zeittaktung eine bessere Quellenlokalisierung ermöglicht, jedoch beeinflusst diese Verkürzung die Nachweisempfindlichkeit. Die zeitlich hochauflösenden Messungen des Edelgasmesssystems haben wesentlich dazu beigetragen, die Isotopenproduktionsanlage in Fleurus, Belgien, als eine der dominanten Emissionsquellen zu identifizieren. Eine Reduktion der Entlässe dieser Anlagen und damit des Xenonuntergrunds ist Voraussetzung, um die Sensitivität des Edelgasmessnetzes zum Nachweis von unterirdischen Kernwaffentests weiter zu verbessern. Möglichkeiten zur Reduktion werden derzeit mit den Betreibern erarbeitet.

Zu den Aufgaben des BfS im Rahmen der Überwachung des Kernwaffenteststoppabkommens gehören außerdem:

- die Auswertung, Zusammenfassung und Bewertung von Daten aus dem Radioaktivitäts-Messnetz der CTBTO,
- die Berichterstattung gegenüber der deutschen Vertretung bei der CTBTO in Wien und dem Auswärtigen Amt (in Kooperation mit der Bundesanstalt für Geologie und Rohstoffe als nationales Datenzentrum) und anderen Behörden sowie
- die Unterstützung der CTBTO bei Maßnahmen der Qualitätssicherung (Support Labor).

Diese Aufgaben ähneln denen der Leitstelle, sodass hier eine enge Zusammenarbeit besteht.

Aufgaben der Leitstelle

Spurenanalytische Verfahren werden in Deutschland u. a. zur Überwachung der Umweltradioaktivität in der Luft nach StrVG §2 (1) Nr. 1a

und § 11 (1) Nr. 2 durchgeführt. Darüber hinaus sind diese Untersuchungen auch Bestandteil der Berichterstattung gegenüber der EU gemäß Art. 35/36 des EURATOM-Vertrags.

Die von den Spurenmessstellen in Deutschland erhobenen Daten fließen in das [Integrierte Mess- und Informationssystem \(IMIS\)](#) ein, in dem alle Daten der Überwachung der Umweltradioaktivität gesammelt und für das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) bereitgestellt werden. Die dort vorliegenden Messergebnisse werden z. B. in einem nuklearen Ereignisfall zur Empfehlung entsprechender Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung herangezogen. Art und Umfang der durchzuführenden Analysen und Messungen sind in den Messprogrammen zur AVV-IMIS festgelegt. In diesem Zusammenhang wurden für die einzelnen Umweltmedien auch die „Leitstellen“ eingerichtet, die in verschiedenen Bundesbehörden angesiedelt sind.

Nähere Informationen zu den verschiedenen Leitstellen und ihren Aufgaben sind unter [4] zu finden.

Generell ist die Qualitätssicherung und Plausibilitätsprüfung von Messergebnissen unerlässlich. Insbesondere ist die Vergleichbarkeit von Messergebnissen unterschiedlicher Datenerzeuger eine grundlegende Forderung. Die Ereignisse von Fukushima haben erneut gezeigt, wie wichtig qualitätsgesicherte und vergleichbare Daten auch auf internationaler Ebene sind. Die Leitstelle „Spurenanalyse“, die im BfS im Fachgebiet „Atmosphärische Radioaktivität und Spurenanalyse“ angesiedelt ist, unterstützt in einer internationalen Arbeitsgruppe hierbei den Erfahrungsaustausch zwischen den Spurenmessstellen, die Harmonisierung von Analyse- und Messverfahren und somit die Qualitätssicherung der verfügbaren Daten.

Zu den Aufgaben der Leitstelle „Spurenanalyse“ gehören:

- die Datenprüfung der Spurendaten in IMIS,
- die Zusammenfassung aller zur Verfügung stehenden Daten für BMUB- und Leitstellenberichte,
- Festlegung von Probennahme-, Analyse-, Mess- und Berechnungsverfahren,
- die Abstimmung zwischen den Spurenmessstellen und dem BMUB bei ggf. notwendiger Änderung des Zeittaktes der Probenentnahme,
- die Aufbereitung der Daten für den BMUB, ggf. für die elektronische Lagerdarstellung (ELAN) und weitere Nutzer (z. B. IAEA),
- die Bereitstellung von gemeinsamen Daten für die Öffentlichkeit sowie
- der Informationsaustausch mit anderen Spurenmessstellen und
- die Organisation und Durchführung von Ringvergleichen.

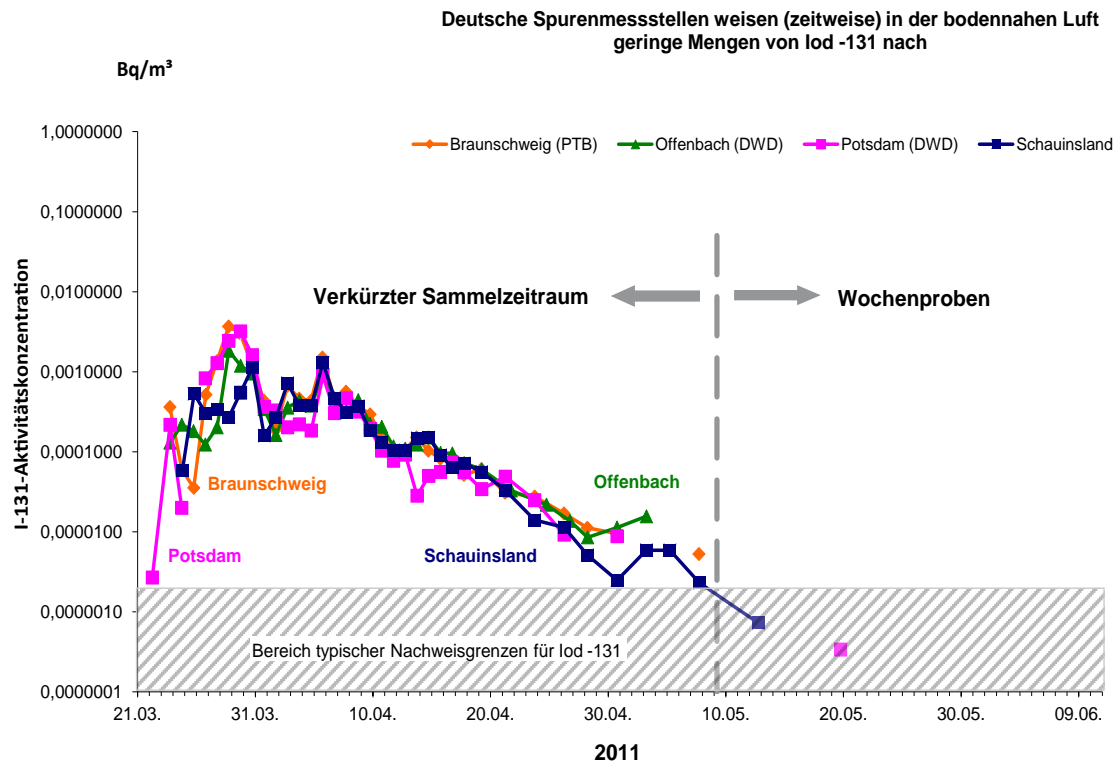


Bild 5:

Zeitverlauf der Aktivitätskonzentrationen von I-131 an den vier deutschen Spurenmessstellen des EU Sparse Network.

Alle Messdaten, die nach der AVV-IMIS erhoben werden, durchlaufen grundsätzlich eine zwei-stufige Plausibilitätskontrolle, die eine Prüfung sowohl beim Datenerzeuger – in diesem Fall der jeweiligen Spurenmessstelle – als auch durch die Leitstelle beinhaltet. Während der Datenerzeuger eine Prüfung der Daten auf technische Fehlermöglichkeiten durchführt, überprüft die Leitstelle die Daten u. a. auf der Grundlage radiologischer Zusammenhänge, wobei z. B. Zeitverläufe, Messungen benachbarter Spuren- oder Luftmessstellen und auch Messdaten aus anderen Umweltbereichen herangezogen werden.

Abläufe bei Ereignissen am Beispiel „Fukushima“

Durch die Reaktorkatastrophe in Fukushima Daichii als Folge des Erdbebens am 11.03.2011 in Japan war nach der Freisetzung von Radionukliden in die Atmosphäre zu erwarten, dass die internationalen (Messnetz der CTBTO, Sparse Network nach Art. 35/36 EURATOM) und nationalen Überwachungssysteme (IMIS) die zu erwartenden Radionuklide mit Nachweisempfindlichkeiten bis in den Bereich von Mikrobecquerel pro Kubikmeter erfassen würden [5].

Aufgrund der Messergebnisse aus dem Messnetz der CTBTO und der regelmäßig durchgeführten Ausbreitungsrechnungen war es möglich, das Eintreffen der kontaminierten Luftmassen in Europa für Mitte/Ende der 12. Kalenderwoche recht

präzise vorherzusagen. Die Nutzung dieser Daten war von großer Bedeutung für die Einschätzung der radiologischen Lage in Europa und Deutschland sowie zur Information der Entscheidungsträger und der Öffentlichkeit.

Neben dem BfS betreiben die PTB und der DWD Systeme zur Spurenanalyse. Vier dieser Probeentnahmestellen sind zudem Bestandteil des Sparse Network der EU:

- Braunschweig (PTB) – „Deutschland-Nord“,
- Potsdam (DWD) – „Deutschland-Ost“,
- Offenbach (DWD) – „Deutschland-Mitte“ und
- Schauinsland (BfS) – „Deutschland-Süd“.

Von der Leitstelle „Spurenanalyse“ koordiniert, wurde der Zeittakt für die Probenentnahme an diesen vier Spurenmessstellen ab dem 23.03.2011 von wöchentlicher auf tägliche Probenentnahme der aerosolgebundenen Radionuklide umgestellt, um Ergebnisse mit hoher zeitlicher Auflösung zu erhalten (Bild 5). Ab dem 21.04.2011 wurde der Probenentnahmezeitraum in Absprache mit dem BMUB schrittweise wieder auf wöchentliche Probenentnahme (Normalbetrieb) umgestellt, da die beobachteten Aktivitätskonzentrationen für I-131 nahe den **Nachweisgrenzen** bzw. zeitweise schon darunter lagen.

Die Messergebnisse wurden von der Leitstelle Spurenanalyse zusammengefasst und an das BMUB, die IAEA sowie an die EU berichtet und zentral auf den Internetseiten des BfS veröffentlicht.

Eine umfassende, schnelle gegenseitige Information über die Kontamination des europäischen Luftraums wurde insbesondere möglich über ein internationales informelles Netz von Laboratorien zur Spurenmessung, dem „Ring of Five“ (Ro5) [6].

Eine ausführliche Darstellung über die Messungen in Deutschland wurde im Bericht der Leitstellen „Umweltradioaktivität in Deutschland, Stand 2011“ [7] veröffentlicht.

Qualitätssicherung durch Ringvergleiche

Die Spurenmessstellen wenden teilweise unterschiedliche Analyse- und Messverfahren an, diese müssen auf ihre Eignung, Vergleichbarkeit und Zuverlässigkeit hin überprüft werden. Ringvergleichen kommt daher eine zentrale Bedeutung zu, da sie die Möglichkeit bieten, die Anwendung der Analysemethoden mit solchen Radionukliden zu überprüfen, die nur im Falle eines nuklearen Ereignisses in messbaren Mengen auftreten.

Dazu organisiert die Leitstelle in regelmäßigen Abständen Ringvergleiche, zu deren Teilnahme die Spurenmessstellen nach AVV-IMIS verpflichtet sind. Da aber im internationalen Rahmen ein großes Interesse an derartigen Ringversuchen im Bereich der Spurenanalyse besteht, wurde der Teilnehmerkreis inzwischen erweitert.

Bei den Ringvergleichen in der Spurenanalyse stellen die Teilnehmer ein Aerosolfilter ihres Hochvolumensammlers zur Verfügung. Diese Filter werden möglichst homogen mit einer bekannten Menge radioaktiver Stoffe dotiert und wieder an die Teilnehmer gesandt. Hierbei ist die genaue Kenntnis der verwendeten Aktivitäten wichtig. Dieses aufwendige Herstellungsverfahren wurde bisher bei der PTB durchgeführt. Zurzeit ist die Entwicklung einer Automatisierung des Verfahrens in Vorbereitung.

In den jeweiligen Laboratorien werden die dotierten Filter mit den dort angewendeten Methoden analysiert und die Ergebnisse der Leitstelle übermittelt, die den Ringversuch auswertet.

Für die Messungen der radioaktiven Edelgase Kr-85 und Radioxenon sind Ringvergleiche wesentlich schwerer durchzuführen. Da bis heute rückführbare Referenzmaterialien mit stabilen Edelgasbeimengungen (zertifizierte Aktivitätskonzentrationen) fehlen, werden beim BfS zur Prüfung der Richtigkeit der Untersuchungen Vergleichsmessungen mit anderen Laboratorien durchgeführt.

Die CTBTO implementiert zurzeit ein Qualitätssicherungssystem für ihr Edelgasmessnetz. Hierbei hat das BfS Edelgaslaboratorium die Rolle des „Support Laboratory“ für die CTBTO übernommen. Das BfS erarbeitet derzeit zusammen mit der Vertragsorganisation Konzepte für Vergleichsmessungen von Edelgasproben zwischen den Laboratorien mit Edelgasmesstechnik und nimmt selbst

mit seinen Xenonmesssystemen an den Ringversuchen teil. Ein Ziel ist die Herstellung von Proben mit zertifizierten Aktivitätskonzentrationen von Xenon-Isotopen. Bisher wurden bereits einige Vergleichsmessungen mit vielversprechenden Ergebnissen zwischen den Edelgaslaboratorien durchgeführt.

Ebenso wichtig wie die Ringvergleiche ist der fachliche Austausch der Spurenmessstellen untereinander. Dies geschieht auf Konferenzen und auf speziellen Spurenmessstellentreffen, auf denen sowohl die Ergebnisse der Ringvergleiche diskutiert als auch neue Methodenentwicklungen vorgestellt werden.

Fazit

Die Spurenanalyse ist ein wichtiger Bestandteil der allgemeinen Überwachung der Umwelt auf radioaktive Stoffe. Ihr Potenzial hat sie in den letzten Jahrzehnten bei dem Nachweis von Ereignissen – auch solchen, die radiologisch nicht relevant sind – unter Beweis gestellt. Die Einbindung und Vernetzung im internationalen Rahmen ist von zunehmender Bedeutung für die Interpretation von Messergebnissen und die Bereitstellung von Informationen für Entscheidungsträger und Öffentlichkeit. Die Leitstelle übernimmt dabei die wichtige Aufgabe der Qualitätssicherung, Zusammenführung von Daten und Berichterstattung. ■

Literatur

- [1] Bieringer, J.; Schlosser, C.: Monitoring ground-level air for trace analysis: methods and results. *Analytical and Bioanalytical Chemistry* **379**, 2; (2004), 234–241
- [2] Bezugsquelle: www.senya.fi/snowwhite.php
- [3] Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT), www.ctbto.org
- [4] Link zum Internetauftritt der Leitstellen des Bundes: www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/leitstellen-zur-ueberwachung-der-umwelt-radioaktivitaet/
- [5] Bieringer, J.; Katzlberger, C.; Steinkopff, T.; Steinmann, P.; Wershofen, H.: Weiträumige Ausbreitung von Radioaktivität als Folge des Störfalls von Fukushima Daiichi. *Strahlenschutz Praxis*, Heft 3 (2011), S. 34, G13638, ISSN 0947-434 X
- [6] Masson, O. et al.: Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks, *Environmental Science and Technology* **45** (2011), 7670–7677, DOI: 10.1021/es2017158.(Z)
- [7] Umweltradioaktivität in Deutschland, Stand 2011 (ISSN 1864-2810), www.bfs.de/de/bfs/publikationen/berichte/umwelt-radioaktivitaet/Lb_archiv.html

Die Aufgaben des Deutschen Wetterdienstes

Axel Dalheimer¹, Hubert Glaab², Thomas Steinkopff³

Der Deutsche Wetterdienst (DWD) ist laut Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) [1] seit 1986 für die ständige großräumige Überwachung der Radioaktivität in der Luft, die großräumige Überwachung der Radioaktivität in Niederschlägen und für die ortsfeste Ermittlung der Radioaktivität auf dem Boden (*in-situ-Messung*) zuständig.

Bereits 1955 war der DWD auf der Basis des Gesetzes über den Deutschen Wetterdienst (DWD-Gesetz) [2] für die Überwachung der Atmosphäre auf radioaktive Spurenstoffe und deren Verfrachtung zuständig und hatte mit dem Aufbau eines Radioaktivitätsmessnetzes begonnen. Zum Zeitpunkt des Reaktorunfalls von Tschernobyl wurde an zwölf Messstellen im Zweistundentakt die Gesamt-Betaaktivität in der Luft und täglich im Niederschlag gemessen. Einzelne *Radionuklide* wurden radiochemisch nur für den Standort Offenbach analysiert.

Mit dem neuen Strahlenschutzvorsorgegesetz wurden das Radioaktivitätsmessnetz und das Messprogramm neuen Vorgaben angepasst und mit dem damaligen Institut für Atmosphärische Radioaktivität (heute BfS), dem BMUB und der PTB abgestimmt. Die resultierenden Messprogramme wurden in der Verwaltungsvorschrift AVV-IMIS [3] vorgegeben. Danach wird zwischen dem Routinemessprogramm und dem Intensivmessprogramm unterschieden. Die Anzahl der Messstationen orientierte sich an den komplexen orographischen Strukturen in Deutschland. Heute umfasst das Messnetz des DWD 48 Messstellen, davon acht automatische Stationen. Die Weichen für eine weitere Automatisierung sind bereits gestellt.

An 41 personell besetzten Standorten des DWD werden die aerosolpartikelgebundene künstliche Alpha- und Betaaktivität, die aerosolpartikelgebundenen gammastrahlenden Radionuklide, gasförmiges radioaktives Iod und die auf Oberflächen deponierten Radionuklide automatisch gemessen. Ziel ist die frühzeitige Erkennung künstlich erzeugter Radionuklide in geringsten Spuren. Mit den Monitorverfahren können *Aktivitätskonzentrationen* in der Größenordnung von einigen $100 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ bis zu $0,5 \cdot 10^6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ erfasst werden. Die erreichbare Nachweisgrenze liegt für

die mittlere künstliche Alpha-Aktivitätskonzentration bei $0,1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ bezogen auf ein halbstündiges Messintervall und eine mittlere Aktivitätskonzentration der Radonfolgeprodukte von $2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. Für die mittlere künstliche Beta-Aktivitätskonzentration resultiert unter den gleichen Annahmen eine *Nachweisgrenze* von etwa $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$. Mit den nuklidspezifisch, d. h. gammaspektrometrisch, messenden Luftmonitoren werden innerhalb von zwei Stunden Aktivitätskonzentrationen für Iod-131 (I-131) in der Größenordnung von $10 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$ erfasst.

Die Messeinrichtungen des DWD sind einerseits ausgerichtet auf die kontinuierliche Überwachung der Luft und der Bodendeposition und zum anderen auf die Messung geringster Aktivitätskonzentrationen in der Luft. Daher erfüllt der DWD an 20 Messstellen Aufgaben von Spurenmessstellen. Die Standorte Potsdam und Offenbach sind als EU-Spurenmessstellen benannt. Diese sind Teil eines Messverbunds mit dem BfS und der PTB. An den Spurenmessstellen Offenbach (DWD), Potsdam (DWD), Braunschweig (PTB) und Freiburg/Schauinsland (BfS) werden anhand von Wochenproben mit Luftdurchsätzen von ca. $1000 \text{ m}^3/\text{h}$ extrem niedrige Aktivitätskonzentrationen von $0,5$ bis $10 \text{ } \mu\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ gemessen, also etwa um einen Faktor 1000 niedriger als die automatischen Monitorsysteme.

Auch eine hochkomplexe Analyse-Apparatur zur Messung der radioaktiven Edelgase Krypton-85 (Kr-85) und Xenon-133 (Xe-133) wurde vor zehn Jahren in den Messbetrieb eingeführt und seither werden regelmäßige Messungen am Standort Offenbach durchgeführt.

In der oberen Atmosphäre gilt es gleichermaßen innerhalb von zwölf Stunden mittels flugzeuggestützter Messungen Informationen über die herans transportierten Radionuklide zu sammeln.

Der Deutsche Wetterdienst hat in seiner Funktion als Leitstelle für die Messverfahren im Umweltbereich „Luft und Niederschlag“, wie sie im Rahmen der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) und der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) gefordert sind, entsprechende Messverfahren für die Umweltbereiche „Luft und

¹ Dr. Axel Dalheimer,
E-Mail:
(axel.dalheimer@
dwd.de)

² Dr. Hubert Glaab,
E-Mail:
(hubert.glaab@
dwd.de)

³ Dr. Thomas Steinkopff,
E-Mail:
(thomas.steinkopff@
dwd.de)
alle Deutscher
Wetterdienst,
Offenbach

Niederschlag“ in den Messanleitungen des Bundes veröffentlicht [4].

Ein spezielles Messprogramm auf der Zugspitze dient besonderen wissenschaftlichen Zwecken. Der Deutsche Wetterdienst beteiligt sich umfassend an dem „Global Atmospheric Watch Programm, GAW“ der World Meteorological Organization (WMO). Hier sind auch kontinuierliche Messungen der Radionuklide Beryllium-7 (Be-7), Blei-210 (Pb-210), Radon-222 (Rn-222) und der Radonfolgeprodukte gefordert, um Informationen über die Herkunft und Bewegung von Luftmassen abzuleiten [5].

Ausbreitungsrechnungen

Zur Früherkennung werden mittlerweile auch Simulationsprogramme zur Konzentrationsprognose eingesetzt [6]. Die Konzentration in der Luft und im Niederschlag lässt sich so bereits nach 30 Minuten abschätzen, bevor diese noch gemessen werden kann. Dazu braucht es allerdings Angaben über die freigesetzte Aktivitätsmenge. Flugzeuggestützte Messungen sollen zur Verbesserung der Prognosen beitragen. Die Prognosen und Messungen des Deutschen Wetterdienstes sind Grundlage zur Berechnung der zu erwartenden Dosisbelas-

tung der Bevölkerung. Dies fällt in die Kompetenz des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS).

Da bei Unfällen die Schadstoffe meistens an nur einem Ort freigesetzt werden (Punktquelle), kommen für die Ausbreitungsrechnung Modelle vom Lagrange'schen Typ infrage, die zudem in der Lage sind, räumlich und zeitlich veränderliche Strömungsfelder zu berücksichtigen.

Der mit Trajektorienrechnungen ermittelte Pfad eines Luftvolumens liefert in der Regel die erste und schnellste Information. Die Trajektorien stellen eine gute Näherung für die zeitliche und räumliche Verlagerung einer möglichen radioaktiven Wolke dar und erlauben zumindest grobe Aussagen über die Gefährdung umliegender Regionen und Länder um einen Unglücksreaktor.

Das Bild 1 zeigt beispielhaft die errechneten Trajektorienbahnen ausgehend vom havarierten Reaktor in Fukushima. Danach war abzuleiten, dass kontaminierte Luftmassen innerhalb von ca. 10 Tagen über die Polarbreiten nach Europa transportiert würden.

Die Symbole an den Trajektorien markieren jeweils den Ort, bis zu dem das Luftpaket nach der entsprechenden Anzahl von Stunden gelangen könnte. Da auch die Höhe, bis in welche Schadstoffe am Unglücksort freigesetzt werden,

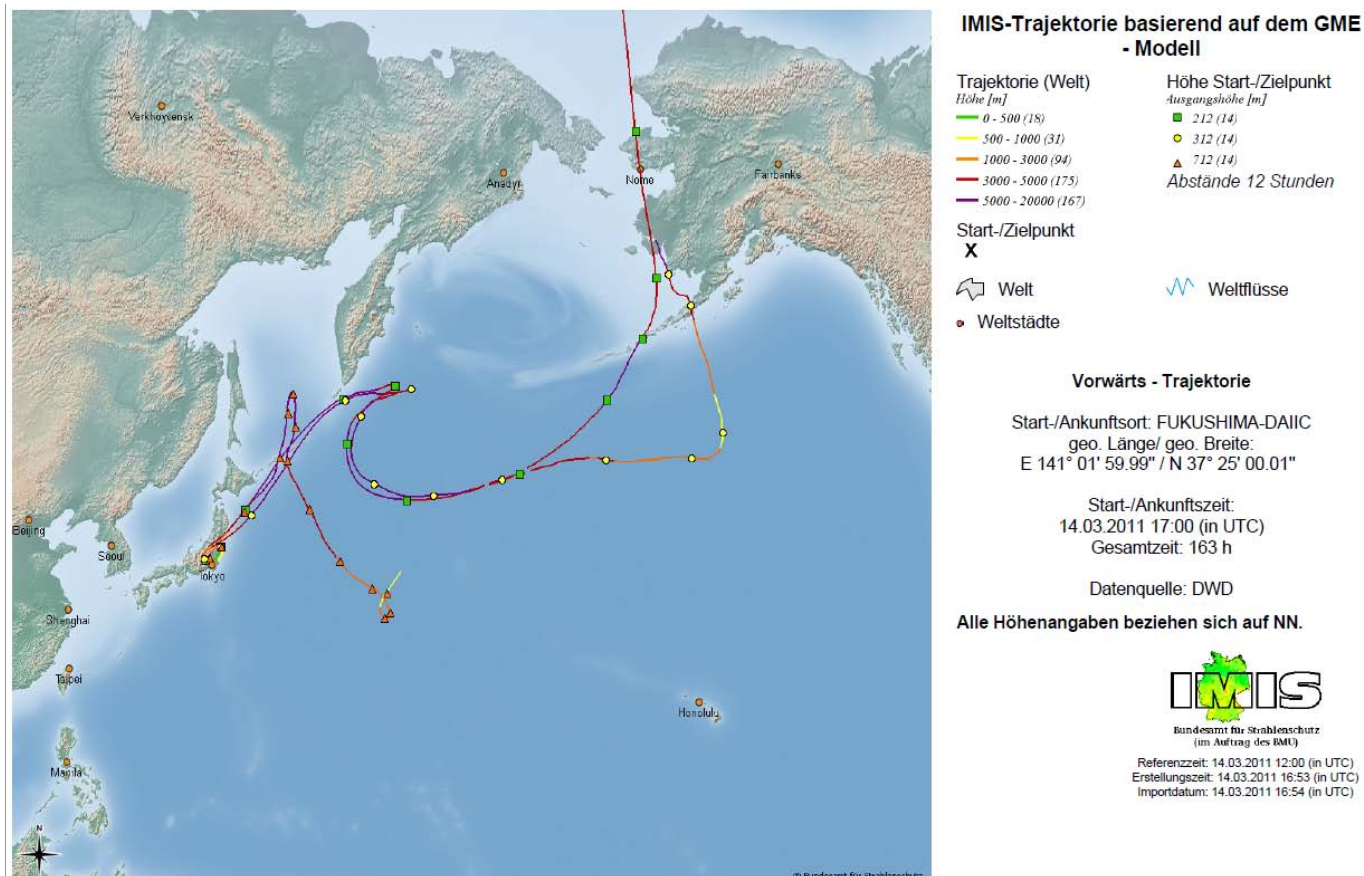


Bild 1:
Errechnete Trajektorienbahnen ausgehend vom havarierten Reaktor in Fukushima.

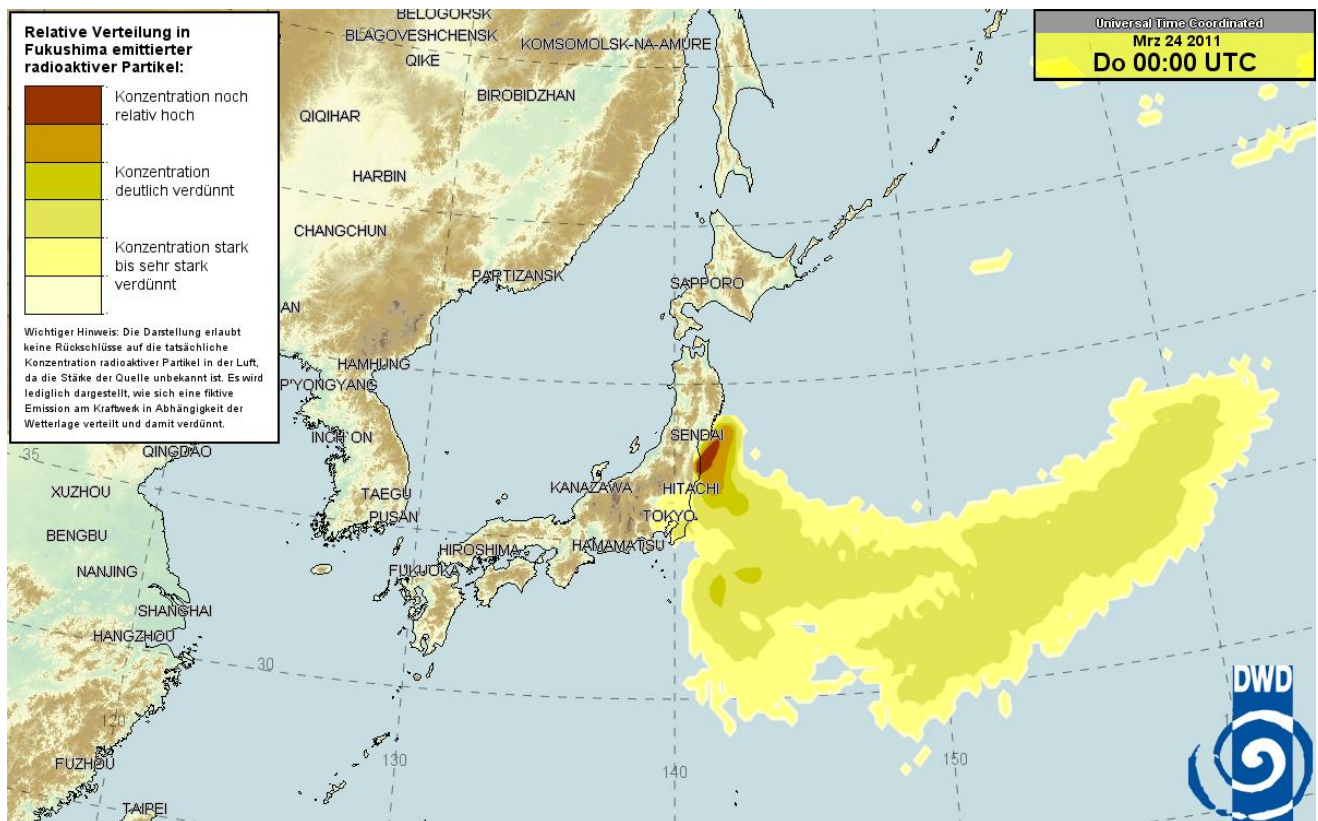


Bild 2:
Simulationsrechnungen für einen Vorhersagezeitraum von 72 Stunden ausgehend vom Standort Fukushima.

eine Rolle spielt, stehen mehrere Trajektorien mit unterschiedlichen Ausgangsniveaus zur Verfügung. Die Höhenänderung des Luftpakets durch vertikale Bewegungsvorgänge in der Strömung kann farblich markiert angezeigt werden.

Vollständigere und bessere Informationen liefert ein Lagrange'sches Partikel-Dispersions-Modell (LPDM), bei dem eine Vielzahl von Einzelpartikeln freigesetzt werden, die – angetrieben von der mittleren Luftströmung sowie der Turbulenz – unterschiedlichen Luftbahnen folgen können.

Alle Ausbreitungsmodelle benötigen eine meteorologische Datenbasis, die im DWD von den numerischen Wettervorhersagemodellen GME (global) und COSMO-EU (Europa und Nordatlantik) bzw. COSMO-DE (Deutschland regional mit besserer räumlicher Auflösung) bereitgestellt wird.

Bild 2 zeigt Simulationsrechnungen für einen Vorhersagezeitraum von 72 Stunden ausgehend ebenfalls vom Standort Fukushima. Die Grafik zeigt die errechnete Konzentrationsverteilung und bezieht sich nicht auf einen konkreten Quellterm.

Der Reaktorunfall von Fukushima im März 2011 hat, wie 25 Jahre zuvor in Tschernobyl, zu einer Freisetzung von Radioaktivität geführt. Bereits elf Tage später waren einzelne Radionuklide wie I-131 in einer Größenordnung von wenigen 100 Mikro-becquerel pro Kubikmeter Luft oder Xe-133 mit wenigen Becquerel pro Kubikmeter

Luft an den EU-Spurenmessstellen Offenbach und Potsdam des Deutschen Wetterdienstes messbar. Für das Radionuklid Xe-133 werden im Normalbetrieb nur ca. 20 mBq/m³ gemessen. Flugzeugmessungen wurden gemeinsam mit einem Forschungsflugzeug des Deutschen Luft- und Raumfahrtzentrums durchgeführt. In Abstimmung mit dem BMUB wurden meteorologische Prognosen und später auch Messergebnisse täglich auch auf der Internetseite des DWD publiziert. An allen europäischen Spurenmessstellen zeigten sich vergleichbare Messwerte [7]. ■

Literatur:

- [1] Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz – StrVG) vom 19. Dezember 1986 BGBl. I S. 2610; zuletzt geändert durch Artikel 1 G. vom 08.04.2008 BGBl. I S. 686 StrVG
- [2] Gesetz über den Deutschen Wetterdienst (DWD-Gesetz) vom 10. September 1998 (BGBl. I, S. 2871)
- [3] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS) vom 13. Dezember 2006, BAnz. 244a vom 29.12.2006

- [4] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit. Messanleitungen für die „Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“. www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/messanleitungen/
- [5] T. Steinkopff, G. Frank and J. Salvamoser: Measurement of radionuclides within the Global Atmospheric Watch Programm of WMO, *Kerntechnik* Vol. 7, No. 3, Carl Hanser Verlag, 2012
- [6] T. Steinkopff, B. Fay, H. Glaab, I. Jacobsen, A. Klein, M. Mirsch: Early emergency response by means of dispersion forecasting – emergency management of the Deutscher Wetterdienst in the context of national and international agreements, *Kerntechnik* **72**, 172–175, Carl Hanser Verlag, 2007
- [7] O. Masson, A. Baeza, J. Bieringer, K. Brudecki, S. Bucci, M. Cappai, F. P. Carvalho, O. Connan, C. Cosma, A. Dalheimer, G. Depuydt, L. E. De Geer, A. De Vismes, L. Gini, F. Groppi, K. Guðnason, R. Gurriaran, D. Hainz, Ó. Halldórsson, D. Hammond, K. Holý, Zs. Homoki, A. Ioannidou, K. Isajenko, C. Katzlberger, M. Kettunen, R. Kierepko, R. Kontro, P. J. M. Kwakman, M. Lecomte, A.-P. Leppänen, B. Lind, G. Lujanienė, P. Mc Ginnity, C. Mc Mahon, H. Malá, S. Manenti, M. Manolopoulou, A. Mattila, A. Mauring, J.W. Mietelski, B. Møller, S. P. Nielsen, R. M. W. Overwater, S. E. Pálsson, C. Papastefanou, I. Penev, M. Pham, P. P. Povinec, H. Ramebäck, M. C. Reis, W. Ringer, A. Rodriguez, P. Rulík, P. R. J. Saey, V. Samsonov, C. Schlosser, G. Sgorbati, B. V. Silobritiene, C. Söderström, R. Sogni, L. Solier, M. Sonck, G. Steinhauser, T. Steinkopff, P. Steinmann, S. Stoulos, I. Sýkora, N. Tooloutalaie, L. Tositti, J. Tschiersch, A. Ugron, E. Vagena, A. Vargas, H. Wershofen, O. Zhukova: Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks, *Environ. Sci. Technol.* **45** (2011), pp. 7670–7677 [dx.doi.org/10.1021/es2017158](https://doi.org/10.1021/es2017158)

Radioökologische Beobachtungen bei der Spurenmessung und dosimetrische Bewertung radioaktiver Spuren in der Luft

Clemens Walther¹, Herbert Wershofen²

Was ist „Radioökologie“?

Die Radioökologie befasst sich als Teilgebiet der Ökologie mit dem Verhalten von **Radionukliden** in der gesamten Umwelt. Ein wesentlicher Aspekt ist die Ermittlung der **Strahlenexposition** des Menschen und der belebten Natur. Dazu müssen die relevanten **Expositionspfade** ermittelt werden, wofür Transport-, Transfer- und Anreicherungsprozesse von natürlichen und künstlichen Radionukliden in der Umwelt von wesentlicher Bedeutung sind. Radioökologische Kenntnisse bilden die Grundlage für die Bewertung der Auswirkungen in die Umwelt freigesetzter künstlicher Radionuklide, wenn es z. B. nach einer unfallbedingten Freisetzung darum geht, möglichst schnell eine zuverlässige Prognose der zu erwartenden Strahlendosis der Bevölkerung zu erstellen und die dann erforderlichen Vorsorge- oder Schutzmaßnahmen zu treffen.

Je nach Fragestellung werden an radioökologische Messreihen unterschiedliche Anforderungen gestellt. Liegt das Interesse auf kurzfristigen Beobachtungen oder Veränderungen innerhalb von Wochen oder Monaten? Werden langfristige Trends gesucht? Benötigt z. B. ein Krisenstab einen aktuellen „Nullpegel“, wenn eine „frische“ Kontamination in der Umwelt beobachtet wurde? Wie werden Radionuklide in der Umwelt verteilt, wenn sie Wind und Wetter ausgesetzt sind? Wie beeinflussen ganz normale menschliche Aktivitäten wie die Landwirtschaft oder der Straßenverkehr die Ausbreitungswege und die Verteilung von Radionukliden in der Umwelt?

Liegen regelmäßige Messergebnisse über die in Umweltmedien wie Luft, Wasser oder Boden enthaltenen Radionuklide vor, können diese zur Beantwortung weitergehender Fragen genutzt werden. Wie schnell und wie tief gelangt ein Radionuklid in den Erdboden, nachdem es über die Luft oder den Niederschlag eingetragen wurde? Gelangt es in das Grundwasser und, falls ja, wie viel und nach welcher Zeit aus dem Grundwas-

ser ins Trinkwasser? Wie viel eines Radionuklides wird über die Wurzel aus dem Boden in eine Pflanze aufgenommen? Wie viel aus dem Grundwasser oder über die Bewässerung z. B. mit Oberflächenwasser oder Flusswasser? Wie groß ist der Anteil eines Radionuklides in einer Nahrungsmittelpflanze, der in die essbaren Teile gelangt und auf diesem Weg in den Menschen? Die Antworten auf solche Fragen sind immer wichtig, wenn es um das Umweltverhalten von Radionukliden geht, egal, ob natürliche Radionuklide oder künstliche. Natürliche Radionuklide können durch industrielle oder technische Vorgänge in Endprodukten oder in den Produktionsabfällen oder -reststoffen angereichert werden. Fällt das Stichwort „künstliche Radionuklide“, denken die meisten Menschen zuerst an die Kernenergieerzeugung oder an die Endlagerung radioaktiver Abfälle. Darüber hinaus werden künstliche Radionuklide aber zu Mess- und Prüfwegen in der konventionellen Technik eingesetzt. In der Medizin kommen sie in Diagnostik und Therapie zum Einsatz. Auch Wissenschaft und Forschung nutzen Radionuklide in vielfältiger Weise. In allen Bereichen sind radioökologische Fragen zu beantworten, wobei die zu betrachtenden Zeitskalen von kurz bis hin zu den bekannt langfristigen bei der Endlagerung radioaktiver Stoffe reichen.

Die Radioökologie wird derzeit auch aus einem weiteren Grund bedeutsamer. Das international anerkannte und insgesamt bewährte Konzept des Strahlenschutzes konzentrierte sich bisher auf den Schutz des Menschen vor den schädlichen Wirkungen ionisierender Strahlung. Das Konzept besagte, dass auch die Umwelt geschützt ist, wenn der Mensch geschützt ist. Dieses Konzept wird auf den Schutz der „nicht menschlichen Arten“ in der belebten Umwelt erweitert. Die Internationale Strahlenschutzkommission hat dafür eine Empfehlung erarbeitet, die von der Europäischen Union in die aktuellen Strahlenschutz-Grundnormen übernommen wurde. Die EU Mitgliedsstaaten müssen diese Grundnormen bis 2017 in die nationalen

¹ Dr. Clemens Walther, Leibniz Universität Hannover, Institut für „Radioökologie und Strahlenschutz“, E-Mail: walther@irs.uni-hannover.de

² Dr. Herbert Wershofen, Arbeitsgruppe „Umweltradioaktivität“, E-Mail: herbert.wershofen@ptb.de

Strahlenschutzregelungen übernehmen. Es leuchtet unmittelbar ein, dass es unmöglich ist, den Schutz aller Arten durch Messprogramme zu realisieren. Daher wurden Referenzorganismen gewählt, deren Strahlendosis unter den bestimmten Umständen (bestehende Exposition, geplante Exposition und Notfall-Exposition) abgeschätzt werden muss. Die Internationale Strahlenschutzkommission hat diese zwölf Referenztiere und -pflanzen (Reference Animals and Plants, RAPs) als Repräsentanten für typische Organismengruppen empfohlen [1]. Bleiben die für diese Referenztiere und -pflanzen mithilfe von radioökologischen Modellrechnungen abgeschätzten Strahlendosen unter einem festgelegten Referenzwert (engl. „derived consideration reference level“, DCRL), gilt der Schutz der Umwelt als gesichert. Im Unterschied zum Konzept des Strahlenschutzes des Menschen, bei dem der Schutz des Individuums im Vordergrund steht, geht es beim Schutz der Umwelt um den Schutz und den Erhalt der Arten, wobei allerdings Schäden für einzelne Individuen dieser Arten toleriert werden.

Wöchentliche Messung von Cs-137 und K-40

Wird in einer der wöchentlichen Luftstaubproben eine erhöhte **Aktivitätskonzentration** von Caesium-137 (Cs-137) gemessen, so stellt sich die Frage, ob es sich um einen Eintrag von „frischem“ Cs-137 handelt, oder ob die Erhöhung durch eine Variation der „alten“ Kontamination ausgelöst wurde. Deshalb vergleichen wir die Aktivitätskonzentration des Cs-137 immer mit der des Kalium-40 (K-40). Das ist berechtigt, weil sich die Alkali-elemente chemisch ähnlich genug verhalten.

Durch Berechnung des Aktivitätsverhältnisses $A(\text{Cs-137})/A(\text{K-40})$ in den wöchentlichen Luftstaubaschen und mithilfe der während der Probenentnahme herrschenden Wind- und Wetterdaten lassen sich Rückschlüsse ziehen, ob das gemessene Cs-137 eher aus örtlichem Bodestaub stammt oder von fern herangetragen wurde. Infrage kommt hier Bodestaub, der aus den durch den Tschernobyl-Unfall höher kontaminierten Gegenden in Osteuropa stammt. Ein derartiger Eintrag kann zu einer Erhöhung des Aktivitätsverhältnisses führen. Auf der anderen Seite ist es möglich, Einträge von K-40 zu erkennen, die durch das Ausbringen von Düngemitteln auf die benachbarten Felder hervorgerufen werden oder aus sonstigen Quellen z. B. dem Silvesterfeuerwerk stammen.

Das örtlich im Boden vorliegende Aktivitätsverhältnis wurde im Sommer 2002 in der <0,2 mm-Siebfraktion des Ackerbodens der benachbarten Felder ermittelt. Der Wert beträgt $0,029 \pm 0,001$. Dieses einmalig ermittelte Verhältnis dient als Vergleichswert, um festzustellen, ob frische Einträge vorliegen. In Zeiten mit schwachem Wind, der Luftstaub nur über kurze Entfernungen transportiert, kann ein Messergebnis in dieser Größe erwartet werden. In der Praxis liegt das Aktivitätsverhältnis im Bereich von 0,03 bis 0,05, weil die Zusammensetzung des Luftstaubs nicht zuletzt auch von der Windrichtung abhängt. Der Wert steigt bei stärkerem Ostwind und trockener Wetterlage auf ca. 0,1 bis 0,25. Der bei dieser Wetterlage bisher beobachtete Höchstwert betrug 0,41 und trat 2003 in der Woche 38 auf. Die größten Abweichungen in die andere Richtung werden

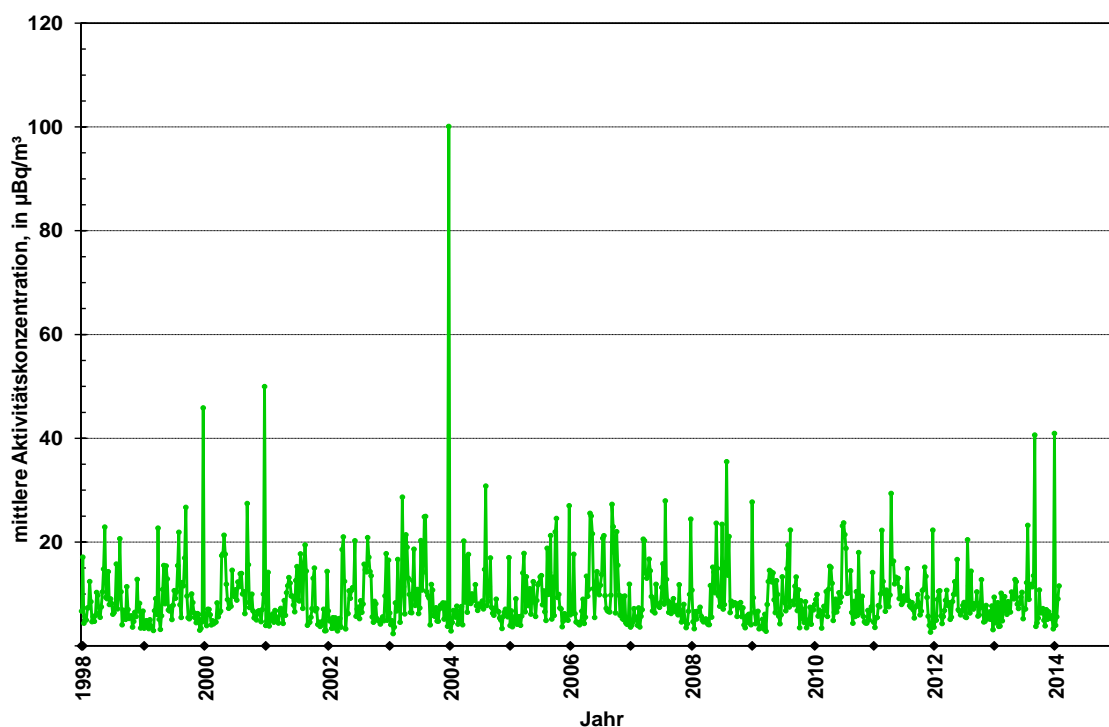


Bild 1:
Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentration von K-40 in wöchentlich entnommenen Luftstaubproben der PTB seit 1998.

in einer Silvesterwoche beobachtet. Das Verhältnis sinkt dann auf 0,01 bis 0,02, weil aus den im Silvesterfeuerwerk enthaltenen Oxidationsmitteln (z. B. Kaliumperchlorat, KClO_4) K-40 eingetragen wird. Der seit 1998 stärkste auf diesem Weg erfolgte Eintrag ereignete sich in der Silvesterwoche 2003/2004, als eine Inversionswetterlage mit schwachem Wind herrschte, und zu einem Wert von nur 0,004 für das Aktivitätsverhältnis führte.

In der Vegetationsperiode können auch Beiträge aus Düngemitteln oder Pflanzenschutzmitteln zur K-40-Aktivitätskonzentration beitragen. Generell gilt, dass bei einer Probenahmedauer von einer Woche praktisch immer wechselnde Windrichtungen herrschen. Oft ist deswegen eine eindeutige Zuordnung von Einträgen zu einer einzigen Quelle nicht möglich, weil mehrere Quellen beigetragen haben können, die in verschiedenen Richtungen und Entfernungen zur PTB liegen. Vor diesem Hintergrund ist es ein Vorteil, auf den Fahrten zur und von der Arbeit den Stand der Vegetation zu beobachten, zu verfolgen, welche Arbeiten die Landwirte auf den Feldern erledigen oder zu wissen, wo es gerade größere Baustellen in der näheren Umgebung gibt. Dazu drei Beispiele: Im Frühjahr steigt die Aktivitätskonzentration des K-40 regelmäßig an, wenn die Bäume blühen. Der Pollenstaub enthält wie alles biologische Material Kalium, das mit dem angesaugten Pollenstaub in die Luftstaubprobe gelangt und zum beobachteten Anstieg führt. In dieser Zeit kann auch der Gehalt der Luft an Cs-137 ansteigen, weil im Pollenstaub der Fichten nicht nur K-40 enthalten ist, sondern auch Cs-137 angereichert wird [2]. Ein Anstieg der K-40-Messwerte wird oft auch in der Erntezeit gemessen, wenn der Erntestaub über die

Luftstaubsammler zieht. Ähnliche Erhöhungen sind messbar, wenn die Landwirte bei trockenem Spätsommerwetter die Bodenbearbeitung zur Vorbereitung der Wintersaat durchführen. Als die Autobahn A392, die in knapp einem Kilometer Entfernung am Luftstaubsammler verläuft, 2006 saniert wurde, stiegen die Gehalte der Luft an K-40 ebenfalls deutlich an. Hier war die Quellenzuordnung allerdings sehr einfach: Schon der erste Blick auf das Filter zeigte eine dicke Staubschicht. Wir hatten so viel Staub, dass diese Menge nicht mehr in das übliche Messgefäß passte. Das war auch in der 36. Woche 2013 so, als deutlich sichtbar sehr viel Staub durch landwirtschaftliche Bodenbearbeitung Richtung PTB gezogen war. Als Folge lag die Aktivitätskonzentration des K-40 in jener Woche bei $40,6 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Auch um den Jahreswechsel 2013/2014 lag der Wert in fast gleicher Höhe bei $40,9 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Ursache hierfür war jedoch nicht die Bodenbearbeitung sondern das Silvesterfeuerwerk.

Langzeit-Messreihen

Bild 2 zeigt im Überblick die in der PTB vorliegenden Messwerte künstlicher und natürlicher Radionuklide seit 1963. Die Zeitreihen der natürlichen Radionuklide sind in Bild 3 und die der künstlichen in Bild 4 separat dargestellt.

Allgemein sinkt nach der Inkraftsetzung des Atomwaffen-Teststopp-Abkommens von 1963 die Aktivitätskonzentration künstlicher Radionuklide in der bodennahen Luft. Der Einfluss des bisher letzten atmosphärischen Kernwaffentests in China 1980 wird im Sommer 1981 sichtbar (siehe Pfeil). Im linken Teil der Darstellung fallen die Mess-

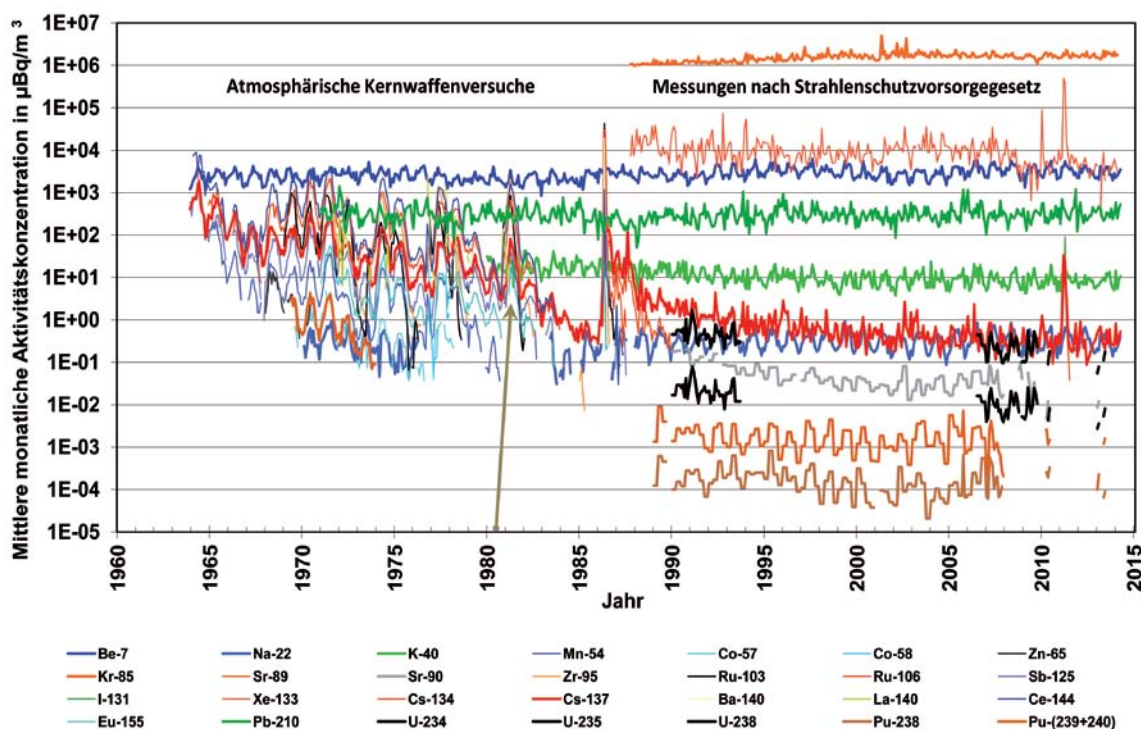


Bild 2:
Alle Langzeit-Messreihen der PTB seit Oktober 1963.

reihen von 13 der vielen kurzlebigen **Spalt- und Aktivierungsprodukte** auf, die bei Kernwaffentests entstehen. Ihre Aktivitätskonzentration sank aufgrund ihrer kurzen **Halbwertszeit** relativ rasch nach jedem Kernwaffentest wieder ab. Nur Cs-137 mit einer Halbwertszeit von 30,1 Jahren blieb leicht messbar. Die radioökologischen Unterschiede im Verhalten der beiden Radionuklide sind im Kapitel „50 Jahre Spurenmessung in der PTB“ beschrieben.

Nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl wurde das „**Integrierte Mess- und Informations-System**“ (IMIS) des Bundes zur Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt geschaffen. Seither misst die PTB gemeinsam mit den Spurenmessstellen des DWD und des BfS möglichst empfindlich in der bodennahen Luft enthaltene Radionuklide. Neben der Messung Gammastrahlen aussendender Radionuklide erweiterte sich das Aufgabenspektrum um regelmäßige Messungen von Radionukliden, die Alphastrahlung aussenden – das sind Uran- und Plutonium-Isotope – und von Strontium-Isotopen, die nur Betastrahlung emittieren. Das sind Strontium-89 (Sr-89) und Strontium-90 (Sr-90). Sr-89 hat eine Halbwertszeit von 50,6 Tagen und ist nur nach frischen Freisetzungen zu erwarten, während Sr-90 mit einer Halbwertszeit von 28,8 Jahren noch in Spuren messbar ist.

Im rechten Teil des Diagramms sind außerdem die Ergebnisse der Messung der radioaktiven Edelgase Krypton-85 (Kr-85) und Xenon-133 (Xe-133) dargestellt. Für diese Messungen führt die PTB die wöchentliche Probenahme und eine Vorreinigung der Edelgase durch, während die eigentliche Messung beim Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg erfolgt.

Natürlich radioaktive Nuklide

Die Messreihen der natürlich radioaktiven Nuklide (Bild 3) beginnen zu unterschiedlichen Zeitpunkten. Die Hauptgründe sind einerseits die geringen Aktivitätskonzentrationen einiger Radionuklide und zum anderen analytische und messtechnische Verbesserungen, die im Kapitel „Die Geschichte der Spurenmessstelle“ genannt sind.

Blei-210 (Pb-210) ist eines der natürlichen Radionuklide aus der radioaktiven Zerfallsreihe des Urans. Es ist als Folgeprodukt des Uran-238 (U-238) in den mineralischen Anteilen des Luftstaubs enthalten und entsteht auch aus dem immer in der bodennahen Luft enthaltenen natürlich radioaktiven Radon-222 (Rn-222), das ebenfalls in der Uran-Zerfallsreihe auftritt. Deshalb ist die Aktivitätskonzentration des Pb-210 stark von der Staubkonzentration der Luft abhängig. Sie liegt in einem etwa gleichbleibenden Bereich. Kurzfristig kann sie sich jedoch sehr stark ändern, wenn sich die Wind- und Wetterverhältnisse ändern – beispielsweise bei einsetzendem Regen oder Schneefall, bei Frost, bei einer Schneebedeckung des Bodens oder bei trocken-windigen Wetterlagen. Aber auch menschliche Aktivitäten, die eine Staubentwicklung hervorrufen, wie z. B. der Straßenverkehr oder die landwirtschaftliche Bodenbearbeitung, haben einen messbaren Einfluss auf die Aktivitätskonzentration des Pb-210 in der bodennahen Luft.

Wie Pb-210 ist auch das K-40 immer im Luftstaub enthalten. Es ist wie das U-238 oder Thorium-232 (Th-232) ein „primordiales Radionuklid“, das seit seiner gemeinsamen Entstehung mit den übrigen chemischen Elementen vor etwa vier bis fünf Milliarden Jahren noch nicht zerfallen ist. Seine Halbwertszeit beträgt ca. 1,3 Milliarden Jahre.

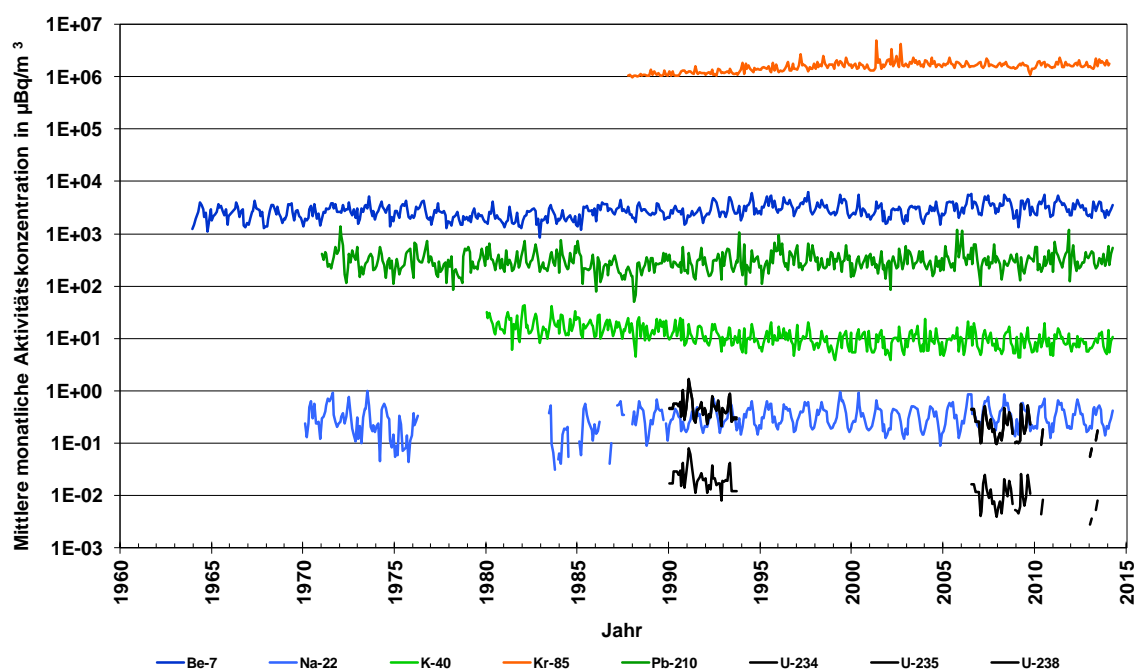


Bild 3:
Aktivitätskonzentration künstlicher Radionuklide in der Luft in Braunschweig.

K-40 ist praktisch überall in der unbelebten und belebten Natur vorhanden. Die Aktivitätskonzentration des K-40 sinkt seit dem Ende der 1980er-Jahre ab, was durch die allgemeinen Anstrengungen zur Luftreinhaltung und durch die Modernisierung von Industrieanlagen und Heizanlagen erklärbar ist. Seit einigen Jahren werden in Haushalten wieder vermehrt mit Holz befeuerte Kamine und Kaminöfen benutzt. Ob sich der damit verbundene Ausstoß von Flugasche, der an manchen Tagen in den Übergangsjahreszeiten deutlich zu riechen ist, auf den genannten Trend auswirken wird, werden die zukünftigen Beobachtungen zeigen.

Künstliche radioaktive Nuklide

Streng genommen sind diese Radionuklide nicht künstlich erzeugt, da die Natur sie bei der Entstehung der Elemente alle schon einmal erzeugt hatte. Sie waren lediglich zerfallen, bevor sie vom Menschen wieder in die Umwelt eingebracht wurden. Fachlich spricht man daher auch von anthropogenen oder zivilisatorischen Radionukliden. Die von der Spurenmesstelle der PTB gemessenen Zeitreihen künstlicher Radionuklide zeigt Bild 4.

Weil Alphastrahlung und Betastrahlung schon in der Luftstaubprobe absorbiert werden, können sie nicht direkt gemessen werden. Sie müssen vor der Messung mit den in Kapitel „Radiochemische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden“ erläuterten Verfahren, die in der PTB nach der Übernahme der IMIS-Aufgaben zunächst eingerichtet werden mussten, abgetrennt und gereinigt werden. Die Bestimmung von Plutonium, die in den 1970er-Jahren im Rahmen von Forschungsprojekten erfolgte, musste wieder neu eingerichtet werden.

Uran-Isotope wurden zwischen 1990 und 1993 im Rahmen von Forschungsarbeiten gemessen, bevor ab Januar 2007 das IMIS-Messprogramm um regelmäßige Uranmessungen erweitert wurde. Bei der Einführung eines neuen radiochemischen Trennungsganges konnten nach der Überwindung radiochemischer Probleme, die auf die ständig wechselnde Zusammensetzung des Luftstaubes zurückzuführen waren, 2013 die regelmäßigen Messungen wieder aufgenommen werden. Die dadurch ab etwa 2007 entstandene Messlücke bei Uran, Plutonium und Strontium wird derzeit durch Analyse noch verfügbarer Luftstaubproben geschlossen.

Kr-85 und Xe-133

Die in der Kurve gezeigten Messwerte für Xe-133 liegen im Bereich der erreichbaren Nachweisgrenzen von wenigen Milli-Becquerel pro Kubikmeter (mBq/m^3). Wegen seiner kurzen Halbwertszeit von 5,3 Tagen ist es ein Indikator für eine Freisetzung aus einer Quelle, in der eine Kernspaltung abläuft oder bis kurz vor der Freisetzung abgelaufen ist. Der Eintrag aus dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima ist daher deutlich sichtbar.

Dagegen ist Kr-85 ein Radionuklid, das sowohl in der Natur entsteht als auch durch menschliche Aktivitäten freigesetzt wird. Es entsteht auf natürliche Weise aus der kosmischen Höhenstrahlung und aus der Spontanspaltung des Urans. Künstlich entsteht es durch Kernspaltung in Kernwaffen oder Kernreaktoren. Seine Halbwertszeit beträgt 10,6 Jahre. Es ist das einzige derzeit regelmäßig überwachte künstliche Radionuklid, dessen Aktivitätskonzentration nicht abnimmt,

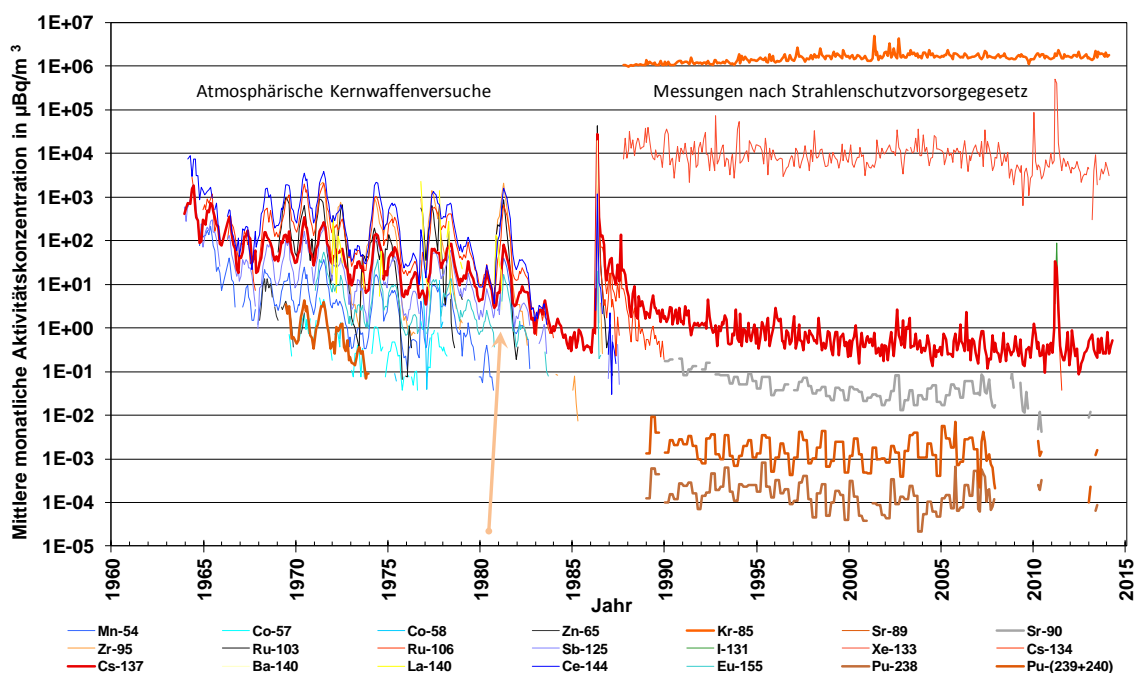


Bild 4: Aktivitätskonzentration künstlicher Radionuklide in der Luft in Braunschweig.

sondern wegen seiner Freisetzung bei der Wiederaufbereitung abgebrannter Kernbrennstoffe langsam anstieg. Spitzen werden meistens dann in der Zeitreihe sichtbar, wenn die Abluft der Wiederaufbereitungsanlage von La Hague länger über Braunschweig weht. Seit 2000 bis 2005 scheint die Freisetzung etwa so groß zu sein wie sein radioaktiver Zerfall, sodass sich ein neuer, gegenüber der „vornuklearen Zeit“ leicht erhöhter, konstanter Pegel eingestellt hat.

Die Beiträge der in der Luft enthaltenen radioaktiven Edelgase Kr-85 und Xe-133 zur **Ortsdosisleistung** liegen in ihrer Summe unter 30 Nano-sievert pro Jahr (nSv/a). Das ist im Vergleich zur mittleren jährlichen Strahlenbelastung, der eine Person aus der allgemeinen Bevölkerung ausgesetzt ist, vernachlässigbar.

Sr-90, Cs-137 und Pu-Isotope

Diese künstlichen Radionuklide stammen im Wesentlichen aus zwei Quellen. In der Zeit vor 1986 wurden Sr-90, Cs-137 und Pu-(239 + 240), aber nur wenigen Prozent Pu-238, durch die in der Atmosphäre durchgeführten Kernwaffenversuche freigesetzt. Weitere, vergleichsweise geringe Mengen von Pu-238 stammen aus Abstürzen von Satelliten, die eine Pu-238-Isotopenbatterie zur Stromversorgung an Bord hatten. Die beiden Einträge von Cs-137 aus Tschernobyl und aus Fukushima sind deutlich erkennbar (vgl. Bild 7 in Kapitel „50 Jahre Spurenmessung in der PTB“).

Die Angabe Pu-(239 + 240) bedeutet, dass es sich um eine Mischung der beiden Pu-Isotope Pu-239 und Pu-240 handelt. Mit der Alphaspektrometrie lassen sich diese Isotope nur schwer oder gar nicht unterscheiden. Das Alphaspektrum zeigt nur die Summe der beiden Aktivitäten. Massenspektrometrische Verfahren erlauben deren getrennte Bestimmung, sie werden im Rahmen von IMIS jedoch nicht routinemäßig eingesetzt. Mit massenspektrometrischen Verfahren lassen sich allgemein diejenigen Radionuklide besser bestimmen, deren Halbwertszeit sehr lang ist, deren Strahlung eine sehr geringe Intensität hat oder sehr schlecht nachweisbar ist. Ein Paradebeispiel ist Iod-129 (I-129) dessen radioökologisches Verhalten aktuell an der Universität Hannover untersucht wird, wobei die Massenspektrometrie einen wesentlichen Beitrag liefert.

Radioökologie des I-129

I-129 ist ein Isotop des Iods mit einer Halbwertszeit von 15,7 Millionen Jahren, das in der Natur durch Wechselwirkung kosmischer Strahlung mit Xenon-Kernen in der Atmosphäre erzeugt wird. Die Produktionsraten sind allerdings so klein, dass im natürlichen Gleichgewicht ein I-129-Kern 1000 Milliarden stabilen Iod-Kernen gegenüber-

steht. Iod-Isotope werden aber auch als Produkt bei der Spaltung von Uran-Kernen erzeugt. Neben dem stabilen Iod-127 (I-127) werden das kurzlebige I-131 (Halbwertszeit 8 Tage) und das oben erwähnte langlebige I-129 erzeugt. Im Normalbetrieb eines Kernreaktors wird es trotz seiner Flüchtigkeit praktisch nicht freigesetzt, da es in den gasdichten Hüllrohren der Brennstäbe zurückgehalten wird. Öffnet man diese allerdings zum Zwecke der Wiedergewinnung von Uran und Plutonium aus abgebranntem Kernbrennstoff, wie dies in den Wiederaufbereitungsanlagen in La Hague und Sellafield im großtechnischen Stil gemacht wird, so kann das Iod mit der Abluft und dem Abwasser entweichen und gelangt in die Umwelt. Im Falle von Sellafield und La Hague geschieht dies seit rund 20 Jahren mit in etwa gleichbleibender Intensität und zwar zu mehr als 90 Prozent über das Abwasser in die Nordsee bzw. in die Irische See. Der vergleichbar geringe Rest gelangt durch atmosphärischen Austrag in die Umgebungsluft. Durch diese Emissionen hat sich das Isotopenverhältnis so stark geändert, dass nun in der Nordsee die I-129-Werte – gegenüber dem natürlichen Verhältnis – eine Million Mal höher liegen. Bild 5 zeigt die nach einer Messfahrt von August 2005 bestimmten Aktivitätskonzentration von I-129 im Oberflächenwasser der Nordsee und des Ärmelkanals, in mBq/m³.

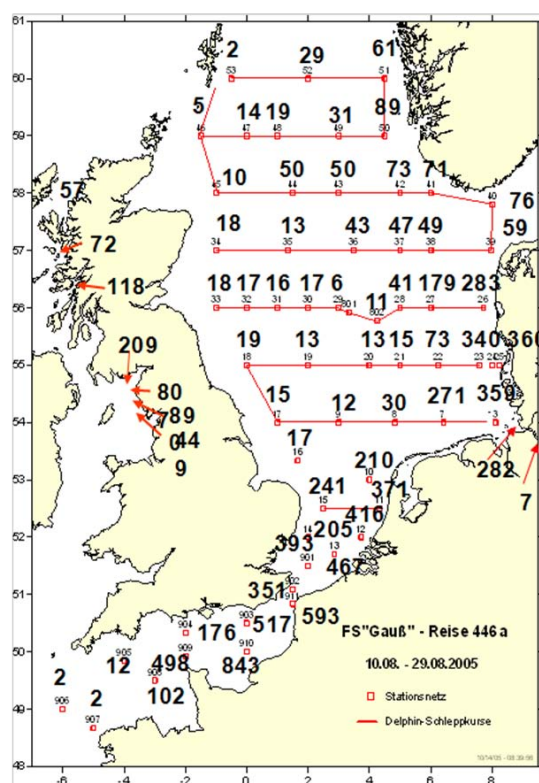


Bild 5:
Aktivitätskonzentration von I-129 im Oberflächenwasser der Nordsee und des Ärmelkanals, in mBq/m³.

Das Iod verteilt sich bis in den Nordatlantik und das Polarmeer. Die Verbreitung beschränkt sich aber nicht auf die Meere. Gebunden an kleine Partikel (Aerosole) oder organische Moleküle gelangt das Iod aus dem Meerwasser in die Atmosphäre und wird viele hunderte Kilometer über die Landmassen transportiert. Zwar nimmt die Konzentration mit zunehmender Entfernung von der Nordsee nach Süden und Osten hin ab, jedoch ist es problemlos noch auf der Zugspitze nachweisbar. Im Gegensatz zu den Messungen mittels Kernstrahlungsdetektion kommt in diesem Fall die sehr empfindliche Beschleuniger-Massenspektrometrie zum Einsatz.

Aufgrund seiner Mobilität, aber auch seiner Biophilie (also dem leichten Einbau in organisches Material), verbreitet sich das in der Umgebungsluft enthaltene Iod in Biosphäre, Böden, Flüssen und Seen. Nun klingt eine Erhöhung um den Faktor eine Million sehr dramatisch. Wie auch bei den in Deutschland messbaren Freisetzungen aus z. B. Tschernobyl oder Fukushima ist es aber wichtig, die Belastung durch das I-129 mit der natürlichen Umgebungsstrahlung zu vergleichen. Eine Abschätzung der Radiotoxizität ergibt ein (noch) sehr geringes radiologisches Risiko. Selbst in den am höchsten kontaminierten Regionen rund um La Hague beträgt die Dosis aufgrund der Aufnahme von I-129 in den menschlichen Körper nur ein Millionstel der natürlichen Strahlendosis. Es muss jedoch berücksichtigt werden, dass sich Iod sehr effektiv anreichert: In Schilddrüsen mehr als 1:1000, in Seetang und anderen Pflanzen wurden Werte bis zu 1:100 000 berichtet.

Solange die Emission aus den beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen nicht gesenkt wird, wird sich auch die Menge radioaktiven Iods in der Umwelt Mitteleuropas kontinuierlich erhöhen, und es ist nötig, dies zu beobachten. Neuere Erkenntnisse deuten an, dass trotz der geringen absoluten Freisetzung über die Fortluft das I-129 sehr effizient und mit erstaunlich wenig Verdünnung über weite Strecken transportiert werden kann. Weitere derzeitige radioökologische Forschungsarbeiten beschäftigen sich mit den Ausbreitungswegen und der Chemie des Iods in der Umwelt, seinen Aufenthaltszeiten sowie Anreicherungen in bestimmten Umweltmedien, insbesondere in Nahrungsmitteln und in Trinkwasserreservoirs.

Dosimetrische Bewertung radioaktiver Spuren in der Luft

Oft wird von Besuchern oder besorgten Bürgern gefragt: „Und wie gefährlich ist das nun?“ Schon ein Blick auf die Messreihen zeigt, dass die Einträge künstlicher Radionuklide, die wir heute beobachten, in den meisten Fällen so weit unter den Pegeln der immer in der Luft vorhandenen

natürlichen Radionuklide liegen, dass ihr Beitrag zur Strahlenexposition vernachlässigbar ist. Die Dosisrelevanz der, als Folge der atmosphärischen Kernwaffenversuche, freigesetzten Spalt- und Aktivierungsprodukte war jedoch immerhin so groß, dass es bereits 1962 zum Internationalen Vertrag über das Verbot von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, dem Meer und im nahen Weltraum gekommen ist, damit keine Fallout-Radionuklide mehr freigesetzt werden.

Wie von der Aktivität eines Radionuklids auf dessen „Gefährlichkeit“ geschlossen wird, ist ein recht langer und komplizierter Weg: Sind die Aktivität des Radionuklids und die chemische Form, in der es vorliegt, bekannt, wird zunächst die Energiemenge ermittelt, die auf menschliches Gewebe übertragen wird. Dies ist aber noch kein ausreichendes Maß für die Zellschädigung, da unterschiedliche Strahlenarten (Alpha-, Beta-, Gamma- oder Neutronenstrahlung) Zellen sehr unterschiedlich schädigen. Alphastrahlen (das sind Helium-Atomkerne) bewirken eine räumlich sehr engbegrenzte Energiedeposition. Die gesamte Energie wird in wenigen Zellen deponiert, und diese werden stark geschädigt. Häufig brechen beide Stränge der DNA – ein Fehler, der für die Zelle nur schwer reparabel ist. Beta- und Gammastrahlen (also Elektronen und Photonen) hingegen sind sogenannte locker ionisierende Strahlen. Sie deponieren pro Zelle wenig Energie, dringen dafür aber sehr viel weiter in Materie ein als Alphastrahlung. Diesem Umstand trägt man mit dem sogenannten „Strahlungswichtungsfaktor“ Rechnung. Die im Gewebe deponierte Energie wird im Fall der stark lokal schädigenden Alphastrahlung mit dem Wichtungsfaktor 20 bewertet, für Beta- und Gammastrahlung hingegen nur mit 1.

Nun sind die verschiedenen Organe des menschlichen Organismus unterschiedlich empfindlich gegen ionisierende Strahlung. Als Daumenregel gilt, dass Zellen, die sich schnell und häufig erneuern, am empfindlichsten reagieren. Dies betrifft in besonderem Maß die blutbildenden Zellen im Knochenmark. Die Zellen der Knochenoberfläche oder aber auch die Zellen der äußeren Hautschichten sind viel resistenter. Zur Berücksichtigung dieser Unterschiede wurde der Gewebewichtungsfaktor eingeführt. Er ist für das Knochenmark zwölfmal größer als für die Haut. Multipliziert man die in einem Organ deponierte Energie (die „Energiedosis“) sowohl mit dem Strahlungswichtungsfaktor als auch mit dem Gewebewichtungsfaktor, so erhält man als relevante Größe die sogenannte effektive Dosis (E_{eff}). Diese Größe zieht man heran, um stochastische Strahlenschäden zu quantifizieren. Das Wort stochastisch bringt zum Ausdruck, dass die Wirkung vom Zufall bestimmt wird. Für eine Schädigung existiert also immer nur eine bestimmte Wahr-

scheinlichkeit. Eines der bekanntesten Beispiele eines stochastischen Strahlenschadens ist Schilddrüsenkrebs nach der Aufnahme radioaktiven Iods (z. B. I-131). Die Wahrscheinlichkeit, diese Krankheit zu entwickeln, steigt proportional mit der effektiven Dosis der Schilddrüse. Trotzdem ist der Anteil der exponierenden Personen, die Krebs entwickeln, in den meisten Fällen gering. Erst bei sehr hohen Dosen – hier zieht man die Energiedosis als Bewertungsgröße heran – kommt es zu deterministischen Strahlenschäden (z. B. akutes Strahlensyndrom). Das ist vergleichbar mit der Tatsache, dass ein zu langer Aufenthalt in der Sonne mit Sicherheit zum Sonnenbrand führt. Für das Hervorrufen deterministischer Strahlenschäden sind aber Strahlendosen nötig, wie sie im hier betrachteten umweltrelevanten Bereich nicht annähernd vorkommen.

Wichtig ist auch, ob die Strahlung von außen auf den Körper einwirkt (so genannte Submersion), von innen nach dem Einatmen (Inhalation) oder durch Aufnahme mit der Nahrung (Ingestion). Nach der obigen Diskussion der verschiedenen Strahlungsarten ist es einsichtig, dass die kurzreichweitige Alphastrahlung in den obersten (unempfindlichen) Hautschichten absorbiert wird und nicht bis ins Körperinnere gelangt. Wird dagegen ein Alphastrahler mit der Nahrung oder Atemluft aufgenommen, so verursacht er starke Schädigungen. Wird er in ein Organ eingebaut, wie z. B. Plutonium in Knochen, so wirkt er dort u. U. lebenslänglich. Betastrahlung und in noch stärkerem Maße Gammastrahlung wirken zusätzlich auch von außen auf den Körper ein.

Um das Risiko durch ionisierende Strahlung zu quantifizieren, muss also über die Art des Radionuklides und der Strahlung hinaus noch vieles über die Lebens-, Aufenthalts- und Ernährungsgewohnheiten eines Menschen bekannt sein. In sogenannten Verwaltungsvorschriften (z. B. AVV zu §47 der StrSchV) werden hierzu Annahmen getroffen, die eine obere Abschätzung des Risikos – bei bewusst unrealistisch gewählten, also ungünstigen Lebensgewohnheiten – erlauben. Hierbei definiert man sogenannte Transferfaktoren, die angeben, welcher Anteil einer Kontamination von Radionukliden zum Beispiel vom Boden in eine Pflanze aufgenommen wird, die dem menschlichen Verzehr dient oder der Transfer von der Nahrung in die Muttermilch und von dort zum Säugling.

Schließlich ist noch eine weitere wichtige Strahlenschutzgröße zu betrachten, die zur Bewertung der Aktivitätskonzentration des radioaktiven Edelgases Radon in Luft benutzt wird. Das ist der

Dosiskonversionsfaktor, der besagt, bei welcher Radionuklidkonzentration welche effektive Dosis (oder Organdosis) zu erwarten ist. Er berücksichtigt unter anderem, dass nicht nur das Radon selbst einen Dosisbeitrag liefert, sondern auch die bei seinem Zerfall entstehenden Tochternuklide, die ebenfalls radioaktiv sind. Die Tochternuklide sind allerdings kein chemisch reaktionsträges Edelgas mehr, sondern lagern sich sehr schnell zu einem gewissen Anteil an Luftstaubteilchen an. Deshalb müssen diese Aktivitätsanteile bei einer Dosisabschätzung anders bewertet werden als gasförmig in der Luft enthaltene Anteile.

Etwa die Hälfte der mittleren natürlichen Strahlendosis wird durch Radon verursacht, dessen Aktivitätskonzentration in der Außenluft in Norddeutschland im Bereich zwischen 10 Bq/m^3 und 20 Bq/m^3 liegt. Ausgedrückt in der bei Spurenmessungen gebräuchlicheren Einheit sind das 10 Millionen $\mu\text{Bq/m}^3$ bis 20 Millionen $\mu\text{Bq/m}^3$. Die Strahlendosis aus allen natürlichen Quellen summiert sich in Deutschland im Mittel zu einer jährlichen Dosis von $0,0021 \text{ Sv}$ ($2,1 \text{ mSv/a}$), wobei erhebliche lokale Unterschiede, z. B. zwischen Norddeutschland und Süddeutschland, auftreten. Dieser Mittelwert entspricht einer stündlichen Dosis von ca. $0,2$ Millionstel Sv ($0,2 \mu\text{Sv}$ oder 200 nSv/h). Dieser Mittelwert wird sich in Kürze auf ca. $0,3 \text{ mSv}$ pro Jahr erhöhen. Nicht, weil sich etwa die Aktivitätskonzentration des Radons in der Luft plötzlich erhöht hätte, sondern, weil als Folge neuer strahlenbiologischer Forschungsergebnisse die Dosisrelevanz des Radons für die Abschätzung der Lungendosis verdoppelt wurde.

Die vom Menschen durch Freisetzen verursachten zusätzlichen Dosen müssen mit der unabwendbar vorhandenen natürlichen Strahlenexposition verglichen werden. ■

Literaturverzeichnis

- [1] Internationale Strahlenschutzkommission, International Commission on Radiological Protection (ICRP), Environmental Protection – the Concept and Use of Reference Animals and Plants. ICRP Publication **108**, Ann. ICRP **38** (4–6), 2008
www.icrp.org/publication.asp?id=ICRP%20Publication%20108
- [2] K. Bunzl, H. Hötzel, R. Winkler: Spruce Pollen as a Source of Increased Radiocesium Concentrations in Air, *Naturwissenschaften* **80**, (1993), 173–74, Springer-Verlag 1993

Die Geschichte der Spurenmessstelle

Herbert Wershofen*

Die Motivation

Seit Oktober 1963 beobachteten Wissenschaftler der PTB regelmäßig radioaktive Stoffe in der Luft. Anfangs galt das [radioökologische](#) Interesse besonders den [Spalt- und Aktivierungsprodukten](#) aus den Kernwaffentests, die weltweit in der Atmosphäre verteilt wurden und zu Beginn der 1960er-Jahre ihren Höhepunkt erreichten. Doch vor der Aufnahme der regelmäßigen Messungen mussten im damaligen Laboratorium für Strahlenschutz die Staubprobensammler entwickelt bzw. verbessert sowie die radiochemischen Trenn- und Reinigungsverfahren eingerichtet werden. Diese Vorarbeiten wurden in einer erfolgreichen und auf guten persönlichen Kontakten basierenden Zusammenarbeit mit Kollegen in den skandinavischen Ländern und in anderen Instituten in Deutschland erledigt, in denen schon früher begonnen wurde, die aerosolgebundene [Aktivitätskonzentration](#) radioaktiver Stoffe in der bodennahen Luft nuklidspezifisch zu bestimmen.

Die Geräte und Verfahren

Zur Probenahme dienten Staubprobensammler verschiedener Bauart, deren Leistung und Zuverlässigkeit im Laufe der Jahre ständig verbessert wurden. Das Luftvolumen wurde anfangs mit Drehkolben-Gaszählern, später mit Flügelradzählern (Typ „Quantometer“) gemessen. Heute sind Volumemessgeräte mit einer Prandtl'schen Staurohrsonde im Einsatz. Die Großflächenfilter (Bild 1), mit denen der Luftstaub aus der Luft gesammelt wurde, bestanden anfangs aus Glasfasern. Später wurden Filter aus organischen Materialien eingesetzt, die zusammen mit dem abgeschiedenen Luftstaub verascht wurden. Anschließend musste die Asche vollständig aufgeschlossen und einem radiochemischen Trennungsgang unterzogen werden. Dabei wurden die einzelnen chemischen Elemente voneinander getrennt und gereinigt, sodass schließlich radiochemisch reine einzelne Fraktionen vorlagen. Bis 1970 wurden die darin enthaltenen [Radionuklide](#) mithilfe eines [NaI\(Tl\)-Bohrloch-Scintillationsspektrometers](#) gemessen. Dieser Typ von Gammaskpektrometern hat ein im Vergleich zu den heutigen Detektoren

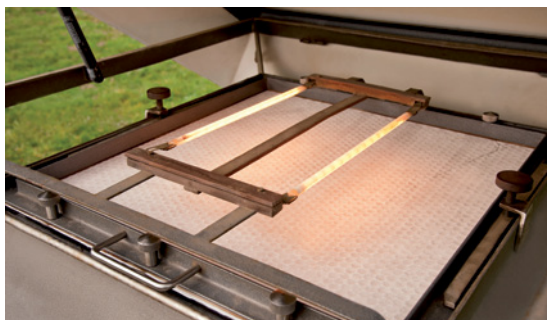


Bild 1:
Großflächenfilter im Staubprobensammler der Spurenmessstelle.

nur mäßiges Energieauflösungsvermögen. Das führt dazu, dass in Gammaskpektren mit vielen Linien keine ausreichende Linientrennung möglich ist, wie sie für die Erkennung Gammastrahlen emittierender Radionuklide erforderlich ist. Durch die vorangehende radiochemische Abtrennung der Elemente wurde die Zahl der Linien in den Spektren verringert. Die dabei erreichte [Nachweisgrenze](#) lag in der Größenordnung von $1 \mu\text{Bq/m}^3$. Ein Nachteil dieses Verfahrens ist, dass die bei radiochemischen Prozeduren unvermeidlichen Verluste von Probenmaterial bei der Berechnung der Messergebnisse zu berücksichtigen sind. Dazu müssen die elementspezifischen Ausbeuten bestimmt werden, und die in einem Messpräparat gemessene [Aktivität](#) um die festgestellten Verluste korrigiert werden. Diese Situation wurde nach der Inbetriebnahme eines Spektrometers mit [Ge\(Li\)-Bohrloch-Detektor](#) im Jahre 1971 verbessert. Einen neueren Bohrloch-Detektor der Spurenmessstelle zeigt Bild 2. Mit diesem Spektrometertyp konnten die meisten der zu bestimmenden Radionuklide direkt analysiert werden. Die langwierige und aufwendige Radiochemie konnte entfallen. Es genügte, den Filter mit dem darauf abgeschiedenen Luftstaub zu veraschen, die Asche in ein passendes Messgefäß zu füllen und im Bohrloch des Detektorsystems zu messen. Die Nachweisgrenze konnte Anfangs der 1980er-Jahre deutlich verbessert werden, als der Einsatz von HPGe-Detektoren mit hohem Energie-Auflösungsvermögen und geringer [Eigenaktivität](#) möglich wurde. Unter günstigen Bedingungen (Wochenprobe, wenig natürliche Radionuklide im Staub,

* Dr. Herbert Wershofen,
Arbeitsgruppe
„Umweltradioaktivität“,
E-Mail:
herbert.wershofen@
ptb.de

Bild 2:
Luftstaub-Ascheprobe
und Bohrloch-
Detektor.



längere Abklingzeit vor der Messung) können Nachweisgrenzen von bis zu 10 nBq/m^3 für künstliche Radionuklide wie Cobalt (Co-60) oder Caesium (Cs-137) erreicht werden. Im Routinebetrieb liegen die Nachweisgrenzen meist mit 30 nBq/m^3 etwas höher.

Der Beitrag der Gammastrahlung, die aus der Erde, den Baumaterialien des Gebäudes und aus dem Weltraum stammt und im Gammaspektrum stört, wurde verringert, indem die Gammaspektrometer in einer begehbaren Kammer aus strahlungsarmem Blei betrieben wurden (siehe Bild 3), die ursprünglich für Ganzkörpermessungen am Menschen gebaut worden war. Die aus der Luft und der Einrichtung der Kammer stammende Gammastrahlung wurde durch eine weitere Bleiabschirmung unterdrückt, die dicht am Detektor aufgebaut und noch mit gasförmigem Stickstoff gespült wurde. Der aus dem Kühlsystem des Spekt-

rometers ausströmende Stickstoff verdrängt das radioaktive Edelgas Radon aus der Messkammer. Die Mess- und Auswertelektronik befand sich in einem Nebenraum, um elektromagnetische Störeinflüsse auf die Detektoren zu verringern. Das Bild 4 gibt einen Eindruck des Standes der Mess- und Auswertetechnik zur Mitte der 1980er-Jahre. Die begehbare Bleikammer wurde 1997 abgebaut, als die Spurenmessstelle vom Elster-Geitel-Bau in den sanierten Otto-Hahn-Bau umzog. Das Blei wurde dort zum Aufbau der dicht am Detektor befindlichen Abschirmungen, die jeweils aus ca. 2000 kg Blei bestehen, genutzt. Mit einer Wandstärke von 20 cm gelingt es, die aus den Wänden der Kellerräume stammende Gammastrahlung von 1461 keV des Kalium (K-40) so weit abzuschirmen, dass auch geringste Spuren dieses Radionuklids noch zuverlässig messbar sind. Das Bild 5 zeigt einen Blick in den Gammaspektrometrie-Mess-

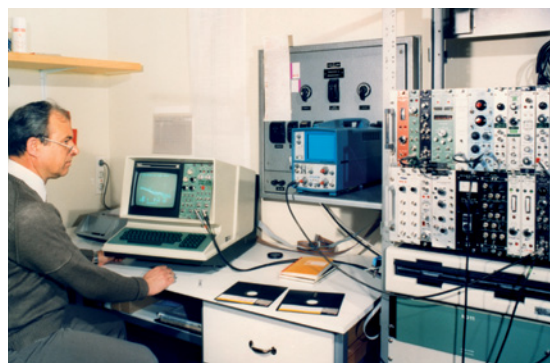


Bild 4:
Gammaspektrometrie-Messtechnik in der Mitte der
1980er-Jahre.



Bild 3:
Die bis 1997 von der Spurenmessstelle
genutzte Bleikammer aus Blei mit geringer
Eigenaktivität.



Bild 5:
Heutiger Gammaspektrometrie-Messraum.

raum, der Platz für 10 Gammaskpektrometer bietet.

Zur Senkung der Eigenaktivität eines Detektorsystems, die im Wesentlichen durch die in seinen Komponenten enthaltenen natürlichen Radionuklide der Zerfallsreihen von Uran und Thorium sowie von K-40 bestimmt wird, hat die PTB in langjähriger enger Zusammenarbeit mit den Herstellern zu Beginn Detektoreigenbauten entwickelt. Für den Bau der Detektorendkappe wurden teilweise Materialien wie Beryllium oder Magnesium eingesetzt. In Zusammenarbeit mit Aluminiumherstellern wurde strahlungsarmes Aluminium gefunden, das heute neben Carbonfasermaterialien im Detektorbau eingesetzt wird. Mittlerweile sind solche „Low-level (LL)-Detektoren“ bei allen Herstellern in unterschiedlichsten Ausführungen erhältlich. Gleichzeitig mit der Verbesserung der Gammaskpektrometer wurden die Staubprobensammler laufend optimiert. Besondere Aufmerksamkeit galt der Erhöhung des Luftdurchsatzes, der schließlich ca. 1000 m³/h erreichte. Dabei ist zu bedenken, dass dieser Wert für ein frisch aufgelegtes Filter gilt. Im Verlauf der Probenahme setzt sich das Filter notwendigerweise mit Staub, der ja möglichst vollständig gesammelt werden soll, zu. Daher ist gegen Ende der Probenahme der Volumenstrom deutlich geringer. In seltenen Fällen, wenn der Staubgehalt der Luft sehr hoch ist, kann das Filter sogar verstopfen. Inzwischen sind auch kommerzielle Hochvolumen-Luftstaubsammler verfügbar, deren Luftvolumenstrom je nach Bauart zwischen einigen Hundert bis zu 1000 m³/h liegen. Die Staubsammler der PTB (siehe Bild 1 auf Seite 41) werden im Dauerbetrieb mit einem Volumenstrom von 900 m³/h betrieben.

Messziele im Wandel der Zeiten

Nach dem internationalen Abkommen von 1962 zur Einstellung der oberirdischen und der Kernwaffenversuche im Meer sanken die Aktivitätskonzentrationen der dabei in die Atmosphäre freigesetzten Radionuklide. Im Wesentlichen blieb das Cs-137, das eine Halbwertszeit von 30 Jahren hat, wegen seiner Gammastrahlung noch lange relativ leicht messbar. Mehr und mehr gerieten nun die in der Luft enthaltenen natürlichen radioaktiven Stoffe in den Fokus der Wissenschaftler sowie die künstlichen Radionuklide, die durch die friedliche Nutzung der Kernenergie freigesetzt werden.

Die Messungen der Spurenmessstelle der PTB wurden zunächst als Arbeiten in Forschungsprojekten, z. B. im Rahmen des vom damaligen „Bundesministeriums des Inneren“ geförderten Forschungsvorhabens St.Sch. 593, durchgeführt. Im Verlauf der Arbeiten wurden zeitweise weitere Staubprobensammler in Skandinavien betrieben. Der gleichzeitige Betrieb entfernt voneinander liegender Stationen erlaubte den Vergleich der

Aktivitätskonzentrationen in Norddeutschland und Skandinavien. Dadurch ließ sich die Herkunft jener künstlichen Radionuklide bestimmen, die nicht einer der Kernwaffenexplosionen zuzuordnen waren.

Die folgende Tabelle gibt die Standorte der von der PTB betriebenen Stationen und die jeweilige Betriebsdauer an.

Tabelle 1:

Station	Koordinaten	Betriebsdauer
Braunschweig	52°18'N, 10°28'E	1963–1990
Tromsø	69°39'N, 18°57'E	1970–1980
Skibotn	69°21'N, 20°20'E	1974–1990
Berlin	52°25'N, 13°08'E	1983–1990
Vardö	70°21'N, 31°02'E	1988–1990

Der Vergleich an verschiedenen Orten gemessener Aktivitätskonzentrationen ermöglicht zusammen mit meteorologischen Daten nicht nur Rückschlüsse auf die Herkunft der Radionuklide, sondern auch auf atmosphärische Ausbreitungs- und Mischungsprozesse. Messergebnisse, die bei großräumigen Kontaminationen gemessen werden, wurden im Gegenzug auch zur Überprüfung (Validierung) der meteorologischen Ausbreitungsmodelle herangezogen. Inzwischen haben diese Ausbreitungsmodelle eine sehr hohe Qualität erreicht und liefern Aktivitätskonzentrationen, die gut mit den gemessenen übereinstimmen.

Die Messergebnisse der Spurenmessstelle aus dem Zeitraum von 1963 bis 1990 wurden in einer Zusammenfassung veröffentlicht [1]. Darunter sind die Messergebnisse natürlicher Radionuklide, die zeitweilig neben den Spalt- und Aktivierungsprodukten analysiert wurden. Als **terrestrische** Radionuklide sind das K-40 (seit 1980) und Pb-210 (seit 1971) sowie die **kosmogenen** Radionuklide Be-7 (seit 1963), Na-22 (von 1970 bis 1976 und seit 1983), P-32 und P-33 (um 1971/72). Das ebenfalls kosmogene S-35 wurde in Braunschweig und Tromsø (von 1970 bis 1973) und nochmals in Tromsø und Skibotn (von 1977 bis 1979) in der Luft bestimmt.

Seit 1987 sind die regelmäßigen Messungen der PTB eine Daueraufgabe im Rahmen der nationalen Strahlenschutzvorsorge. Im **Integrierten Mess- und Informationssystem (IMIS)** [2, 3], das 1987 nach dem Unfall von Tschernobyl zur Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt eingerichtet wurde, werden die Spurenmessungen an den in Bild 2 „50 Jahre Spurenmessung in der PTB“ auf Seite 6 gezeigten Orten gemeinsam mit dem Bundesamt für Strahlenschutz und dem Deutschen Wetterdienst im Auftrag des Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) durchgeführt. Ziel ist die Beobachtung der derzeit vorhandenen Aktivitätskonzentrationen und die Erkennung deren Trends, also eher allgemeine Umweltbeobachtung oder

Radioökologie. Messziele im engeren Sinn der Strahlenschutzvorsorge sind die „mögliche Vorwarnzeit“ für vorbereitende Maßnahmen in Fällen, in denen mit Hilfe von Spuren charakteristischer künstlicher Radionuklide eine heranziehende, stärker kontaminierte Wolke sehr früh erkennbar wird sowie die Bereitstellung von „Nullpegeln“, die im Fall einer frischen Kontamination für die Abschätzung und deren Folgen erforderlich sind.

Seit 2001 betreibt die Europäische Union ein EU-weites „ausgedünntes Messnetz“ (engl.: sparse network) für empfindliche Radionuklidmessungen in der Umwelt. Das geschieht an wenigen, für die jeweiligen Regionen der Mitgliedstaaten „repräsentativen“ Messstationen der nationalen Messnetze. Eine der vier in Deutschland hierzu betriebenen Spurenmessstellen zur Luftüberwachung ist die Station der PTB in Braunschweig. Damit trägt die PTB zur Erfüllung der Pflichten der Bundesrepublik Deutschland gemäß der Artikel 35 und Artikel 36 des EURATOM Vertrages bei.

Zusammenfassung

Die grundlegenden Methoden zur Luftstaubprobenahme und zur nuklidspezifischen Bestimmung radioaktiver Spurenstoffe in der bodennahen Luft wurden bereits in der Mitte des letzten Jahrhunderts entwickelt, als die berechnete Besorgnis über die zunehmende Kontamination der Atmosphäre durch oberirdisch durchgeführte Kernwaffenexplosionen systematische Messungen notwendig machte. Ständige Verbesserungen analytischer und messtechnischer Art ermöglichen es heute, Aktivitätskonzentrationen im Bereich von nBq/m^3 oder noch darunter zu messen. Das Interesse an solch empfindlichen Messungen verlagerte sich im Verlauf der Zeit von Strahlenschutzaspekten auf radioökologische Fragen sowie den Bereich der Strahlenschutzvorsorge. Die Spurenmessung radioaktiver Stoffe in der Luft ist Bestandteil von Deutschlands internationalen Verpflichtungen, die z. B. im EURATOM-Vertrag festgelegt sind. ■

Literaturverzeichnis

- [1] W., Kolb: Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden in der bodennahen Luft Norddeutschlands und Nordnorwegens im Zeitraum 1963 bis 1990. Report PTB-Ra-29, PTB, Braunschweig, Germany, ISSN 0341-6747, ISBN 3-89429-162-1
- [2] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, www.bmub.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/allgemeine-umweltueberwachung/
- [3] Bundesamt für Strahlenschutz, www.bfs.de/de/ion/imis

Aufgaben und Arbeitsablauf im Routinebetrieb und im Intensivbetrieb

Herbert Wershofen*

Unsere Aufgaben

Die Spurenmessstelle hat die Aufgabe, radioaktive Spurenstoffe in der bodennahen Luft zu messen. Das geschieht zur Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) [1]. Auftraggeber ist das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB). Mit der Organisation und Durchführung ist das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) beauftragt. Das Messprogramm wird in zwei Betriebsarten durchgeführt, die in einer Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum [Integrierten Mess- und Informationssystem \(IMIS\)](#), der AVV-IMIS [2] im Einzelnen geregelt sind. Der normale Betrieb wird „Routinebetrieb“ genannt, während der Messbetrieb im Fall einer großräumigen Kontamination der Umwelt als „Intensivbetrieb“ bezeichnet wird. Die Messprogramme sind in Anhängen zur AVV-IMIS detailliert vorgegeben [3, 4]. Dort sind auch die Aufgaben der Spurenmessstellen des Deutschen Wetterdienstes (DWD), des BfS und der PTB festgelegt. Im IMIS wird „Spurenmessung“ auch als „Spurenanalyse“ bezeichnet und durch die Forderung definiert, dass bei den Messungen eine „[Nachweisgrenze](#) unter $100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ “ erreicht wird. Diese Angabe gilt für das künstliche [Radionuklid](#) Cobalt (Co-60) als Bezugspunkt. Für andere Radionuklide können die erreichbaren Nachweisgrenzen wegen deren abweichender Zerfallseigenschaften deutlich höher liegen.

Messstrategie bei der Spurenmessung

Grundsätzlich wird im IMIS eine möglichst gute Vergleichbarkeit der Messergebnisse angestrebt, weil sie für die realistische Beurteilung einer radiologischen Lage nötig ist. So muss sichergestellt sein, dass alle [Aktivitätskonzentrationen](#) künstlicher Radionuklide in der Luft für denselben Zeitraum gelten. Dieser Zeitraum ist im Routinebetrieb die Kalenderwoche mit bundeseinheitlichem Filterwechsel am frühen Montagmorgen. Im Intensivbetrieb ist grundsätzlich eine tägliche Probenahme vorgesehen. Das Messprogramm erlaubt allerdings auch eine flexible Anpassung der

Probenahmedauer und der Art und Häufigkeit der Messungen in Abhängigkeit vom Ereignis und von der Entwicklung der radiologischen Lage.

So wurde nach dem Unfall des Kernkraftwerkes Fukushima Daiichi kein eigentlicher Intensivbetrieb ausgelöst, da in Deutschland außer der Luft keines der übrigen Umweltmedien direkt betroffen war. Für die Beobachtung der von weit her mit der Luft herangetragenen Kontamination wurde daher nur die Spurenmessstellen in einen „intensivierten Betrieb“ versetzt. Im Verlauf der Messungen wurde von täglicher auf Probenahme über mehrere Tage umgestellt (vgl. Kapitel „Radioökologische Beobachtungen bei der Spurenmessung und dosimetrische Bewertung radioaktiver Spuren in der Luft“), als keine kurzfristigen Änderungen mehr zu erwarten waren. Radioaktive Edelgase wurden nur im BfS Freiburg gemessen. Radiochemische Analysen zur Bestimmung von Alpha- oder Betastrahlen emittierenden Radionukliden waren in Deutschland nicht erforderlich.

Messungen für das Integrierte Mess- und Informationssystem des Bundes

Neben der Messung künstlicher Radionuklide im Luftstaub messen die Spurenmessstellen die Aktivitätskonzentration der radioaktiven Edelgase Krypton-85 (Kr-85) und Xenon-133 (Xe-133). Die Proben werden zeitgleich mit den Luftstaubproben entnommen. Kr-85 und Xe-133 entstehen auf natürliche Weise durch Kernreaktionen der kosmischen Höhenstrahlung mit Atomen der Luft- und aus der Spontanspaltung des in Boden und Gestein enthaltenen Urans. Der natürliche Pegel des Kr-85 in der Luft liegt bei $1 \text{ Bq}/\text{m}^3$ und der des Xe-133 in der Nähe der Nachweisgrenze von wenigen mBq/m^3 . Die Beobachtung dieser Radionuklide ist daher zwar keine Spurenmessung im eigentlichen Sinn des IMIS, dennoch ist die Aufgabe notwendig, weil die beiden Edelgasisotope bei der friedlichen Nutzung der Kernenergie freigesetzt werden. Die Spurenmessstellen des DWD und der PTB führen die Probenahme und eine Probenvorreinigung durch. Alle weiteren Arbeiten und die Messungen erfolgen zentral im Bundesamt für Strahlenschutz in Freiburg.

* Dr. Herbert Wershofen,
Arbeitsgruppe
„Umweltradioaktivität“,
E-Mail:
herbert.wershofen@
ptb.de

Messungen für die Europäische Kommission

Für die Berichterstattung der Spurenmessstellen an die Europäische Kommission gemäß Art. 35 und Art. 36 des EURATOM-Vertrages ist für die Messzwecke des ausgedünnten EU-Messnetzes (engl.: sparse net) gefordert an ausgewählten Orten „repräsentativ“ für die zugehörige Region des EU-Mitgliedslandes und „so empfindlich wie möglich“ zu messen. Damit sollen „alte“ Kontaminationen auch europaweit möglichst lange beobachtbar bleiben und für die Nullpegel-Ermittlung nach einer „frischen“ Kontamination bereitstehen. Die Messergebnisse von Be-7 und Cs-137 werden mit den übrigen Messergebnissen an die Leitstelle übermittelt und von dort an die Europäische Kommission weitergeleitet.

Die Messziele

Eine wöchentliche Beprobung der Luft reicht zur Beobachtung des Langzeitverhaltens der gegenwärtig messbaren Radionuklide sowie zur Nullpegelbestimmung vollkommen aus. Im Intensivbetrieb liegt jedoch das Hauptinteresse auf der Erkennung kurzfristiger Änderungen, weshalb dann eine tägliche Probenahme gefordert ist. Somit kann schnell und flexibel auf eine sich verändernde Lage reagiert werden. Die gleiche Überlegung gilt auch für alle anderen im IMIS erfassten Umweltbereiche sowie für die im IMIS betriebenen Notfall-Messsysteme.

Die IMIS-Forderung „Nachweisgrenze unter $100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ “ grenzt die Spurenmessungen in der Luft von den Notfall-Messungen ab. Die Notfall-Messsysteme messen bewusst etwas unempfindlicher, um schnell, d. h. innerhalb von ein bis zwei Stunden, auch kurzfristige Änderungen zu erkennen, die für die Bewältigung einer Notsituation wichtig sind. Bei der automatischen Messung der Gamma-Ortsdosisleistung (γ -ODL) an bundesweit derzeit ca. 1800 Stationen sind Messzyklen von einigen Minuten möglich, die bedarfsgerecht zu Stundenmittelwerten oder Zweistundenmittelwerten zusammengefasst werden. Die im γ -ODL-Messnetz erhobenen Messergebnisse sind im Internet öffentlich verfügbar [5]. Diese Ergebnisse geben i. Allg. keinen Aufschluss über die Nuklidzusammensetzung der γ -ODL verursachenden Radionuklide, sodass gerade im Fall einer Kontamination der Luft mit Spuren künstlicher Radionuklide die nuklidspezifischen Messungen der Spurenmessstellen benötigt werden.

Informationen über IMIS und weiterführende Links sind auf der Homepage des BMUB [6] und des BfS [7] verfügbar.

Standortauswahl

Für eine gute Vergleichbarkeit der Messergebnisse von verschiedenen Probenentnahmeorten in Deutschland wäre es theoretisch notwendig, an allen Standorten ideale Bedingungen vorzuhalten, die jedoch in der Realität meist nicht gegeben sind. Ideal wäre eine freie Anströmung der Luft aus allen Richtungen, keine Wälder oder Gebäude in der näheren Umgebung und eine Entnahmhöhe der Aerosole in ca. 1,5 m bis 1,8 m über dem Erdboden. Das entspricht etwa der Höhe, in der die Menschen ihre Atemluft einatmen. Wegen der notwendigen Energieversorgung, der Bedienung durch Fachpersonal und zum Schutz vor unbefugtem Zugriff oder gar Vandalismus stehen die Aerosolsammler jedoch auf umzäunten Geländen von Instituten oder Behörden. Dadurch sind gewisse Unterschiede in den Anströmungsverhältnissen der Luft nicht zu vermeiden.

Geographisch bedingte Unterschiede der Luftmassen (Küste, Stadt, Land, Gebirge, Industrieregion usw.), die den Staubgehalt bestimmen, sind unvermeidbar. Damit die Staubpartikel möglichst vollständig auf dem Filter abgeschieden werden, müssten alle Aerosolsammler technisch gleich sein und identische Abscheideeigenschaften für den Luftstaub besitzen. Die Abscheideeigenschaften sind allerdings auch von der Probe selbst abhängig, nämlich u. a. von der Luftfeuchtigkeit oder von der Korngrößenverteilung des Staubes. Außerdem verringert sich die Strömungsgeschwindigkeit der Luft innerhalb des Filters mit wachsender Staubmenge im Verlauf der Probenahme. Trotz dieser Einschränkungen ist die Vergleichbarkeit der Messergebnisse für die Zwecke des IMIS mehr als ausreichend. Für weitergehende wissenschaftliche oder radioökologische Untersuchungen müssen technische oder standortspezifische Unterschiede jedoch berücksichtigt werden.

Luftstaub-Probenahme

Ein Hochvolumen-Luftstaubsammler, wie er auf dem Gelände der PTB in Braunschweig steht, ist im Prinzip ein „dicker Staubsauger“. Er soll möglichst viel Staub auf einem Filter abscheiden. Je mehr Staub in der Probe ist, desto höher ist die daran haftende Aktivität eines Radionuklids. Je größer die Aktivität, desto leichter und zuverlässiger ist sie messbar. Oder mit anderen Worten: Bei der bauartbedingten Messempfindlichkeit der eingesetzten Detektorsysteme werden die erreichbaren Nachweisgrenzen besser (= kleiner!), je mehr Luftstaub in der Probe enthalten ist. Folglich gilt es bei der Spurenmessung bei größtmöglichem Luftvolumen möglichst viel Staub, und zwar den lungengängigen Anteil, möglichst verlustfrei zu sammeln. Zu diesem Zweck werden Filtermaterialien benutzt, die sonst im Atemschutz eingesetzt sind.

Das Bild 1 zeigt den Standort der Aerosol-sammler am Rand des PTB-Geländes auf einer halbkreisförmigen Lichtung, die von der Luft aus östlicher Richtung über freie Felder erreichbar ist. Im Westen ist die Wiese von einem niedrigen Wald umgeben, der aus Umweltschutzgründen nicht weiter gerodet werden darf. Details der Luftstaubsammler sind in Bild 3 und Bild 4 im Artikel „50 Jahre Spurenmessung in der PTB“ am Anfang dieses Heftes gezeigt. Der Volumenstrom von ca. $900 \text{ m}^3/\text{h}$ wird bei üblichen Staubgehalten der Luft über eine gesamte Woche annähernd konstant gehalten. Der mit steigender Staubbelegung des Filters steigende Strömungswiderstand wird durch eine parallel dazu steigende Saugleistung der Turbine ausgeglichen. Nur in wenigen Fällen muss innerhalb einer Woche ein frisches Filter aufgelegt werden. Diese Situation tritt z. B. auf, wenn die Luft bei der Getreideernte sehr viel Staub enthält oder bei winterlichen Inversionswetterlagen der Flugstaub aus den Holzöfen und -heizungen in Wohnhäusern spürbar wird.

Edelgas-Probenahme

Die radioaktiven Edelgase werden an einem tiefgekühlten Aktivkohleabsorber gesammelt. Wegen der chemischen Reaktionsträgheit der Edelgase kann die Saugleitung bis zum Adsorber lang sein, sodass der Edelgassammler nicht im Freiland betrieben werden muss. In der PTB steht er in einem Keller-raum, wohin die in etwa einem Meter Höhe über dem Erdboden entnommene Außenluft durch einen Kunststoffschlauch geleitet wird. Dieser Typ Edelgassammler hat sich gut bewährt und wird schon seit Jahrzehnten vom BfS sogar weltweit eingesetzt [8]. Zur Kühlung der Aktivkohle auf 77 °K wird flüssiger Stickstoff eingesetzt, in den der Adsorber eingetaucht ist. Mit dem vom BfS entwickelten Aktivkohleabsorber werden Krypton und Xenon aus 10 m^3 Luft quantitativ zurückgehalten. Wasserdampf und Kohlendioxid werden im oberen Teil des Adsorbers selektiv ausgefroren und gelangen praktisch nicht in die Aktivkohle. Das Verfahren ist daher nicht nur eine reine Probenahme, sondern stellt bereits einen ersten Anreicherungsschritt dar. Bei einer Sammelzeit von einer Woche beträgt der Durchfluss etwa 60 Liter pro Stunde.

Probenvorbehandlung

Auch vor einer direkten radiometrischen Messung oder einer radiochemischen Analyse ist eine Vorbehandlung der frisch vom Staubsammler entnommenen Luftstaubproben erforderlich. Sie hängt von der Art der anschließenden Messung oder der vorgesehenen radiochemischen Verfahren ab. Für Luftstaubfilter ist die Vorbehandlung je nach den messtechnischen Vorgaben oder den angewandten



Bild 1:
Staubprobensammler der PTB-Spurenmessstelle.

analytischen Verfahren bei den Spurenmessstellen des BfS, des DWD und der PTB unterschiedlich. Es ist üblich, ein Filter entweder zu einer zylinderförmigen „Tablette“ zu pressen oder es in ein ringförmiges Messgefäß zu füllen. Gegebenenfalls muss das Filter vorher an der Luft getrocknet werden, bevor die gammaspektrometrische Messung erfolgt.

Die radioaktiven Edelgase, die an einem tiefgekühlten Aktivkohleabsorber gesammelt wurden, werden durch fraktionierte Desorption von abgeschiedenem Wasser, Kohlendioxid, Sauerstoff und Stickstoff getrennt (s. Bild 2). Dieser Teil der Arbeiten erfolgt bereits in der PTB. Die vorgereinigte Edelgasfraktion wird in einer Aluminium-Druckdose zum BfS nach Freiburg geschickt. Dort erfolgt eine weitere Reinigung sowie die Auftrennung in die Kr-Fraktion und die Xe-Fraktion. Die getrennt gemessenen Aktivitäten von Kr-85 und Xe-133 werden schließlich als Aktivitätskonzentrationen in der Luftprobe in Bq/m^3 berichtet.

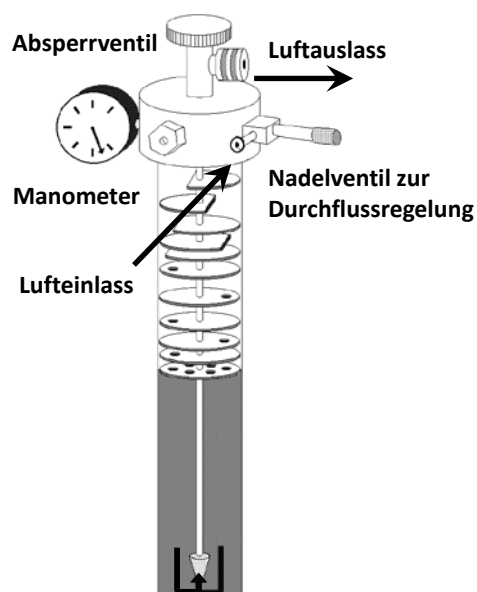


Bild 2 :
Aufbau des Edelgas-adsorbers mit Aktivkohlebett (unten, 77 °K) und Prallblechen zur Abscheidung von Wasser und Kohlendioxid im oberen Teil.
(Quelle: BfS, Freiburg)

Gammaspektrometrische Messungen am Luftstaub

In der PTB wird ein mit Staub beladenes Filter nach der Entnahme vom Sammler möglichst schnell einer ersten Messung mit einem Gammaspektrometer unterzogen, damit eine frische Kontamination mit künstlichen Radionukliden so früh wie möglich entdeckt wird. Zur Steigerung der Messempfindlichkeit, fachlich: „Senkung der Nachweisgrenze“, wird diese Messung nach etwa einem halben Arbeitstag wiederholt. Dann sind die kurzlebigen natürlichen Radionuklide, die die Messempfindlichkeit beeinträchtigen, schon zu einem größeren Teil zerfallen. Mit dieser Messung, die bis zum frühen Morgen des folgenden Tages dauert, werden Nachweisgrenzen von wenigen $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ für Iod-131 (I-131) und Caesium-137 (Cs-137) erreicht. Damit ist die Forderung des IMIS von „Nachweisgrenze unter $100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ “, die die Spurenmessungen von Notfallmessungen abgrenzt, deutlich erfüllt.

Im nächsten Schritt, der zur Erhöhung der Messempfindlichkeit beiträgt, entweichen die Iod-Isotope wegen der Flüchtigkeit des Iods aus der Aerosolprobe. Daher kann dieser Schritt erst nach der

Messung der Iod-Isotope erfolgen. Es wird eine Veraschung des staubbeladenen Filters bei einer Temperatur von etwa 400°C bis 450°C durchgeführt. Die Temperaturbegrenzung auf 450°C verhindert mögliche Verluste bei den übrigen Radionukliden. Die nach etwa einem Tag erhaltene Asche wird zu Tabletten gepresst, die anschließend in einem Bohrloch-Reinstgermaniumspektrometer gammaspektrometrisch gemessen werden. Nach einer Messdauer von meist einer Woche erreichen wir mit dieser Methode Nachweisgrenzen von weniger als $5 \cdot 10^8 \text{ Bq}/\text{m}^3$, also unter $50 \text{ nBq}/\text{m}^3$ für die meisten Gammastrahler.

Als Beispiel für die höhere Messempfindlichkeit der Asche-Messung im Vergleich zu der Filter-Messung der Luftstaubprobe vom 23. März 2011, in der erstmalig in Braunschweig frische Spaltprodukte aus dem Kernreaktor in Fukushima Daiichi messbar waren, zeigt Bild 3 einen Ausschnitt des Gamma-spektrums des Luftstaub-Filters. Der entsprechende Ausschnitt des Luftstaub-Aschespektrums, das etwa drei Wochen nach dem ersten Spektrum gemessen wurde, ist in Bild 4 gezeigt. Im Filter-Spektrum ist die Gammalinie des I-131 bei $364,5 \text{ keV}$ bereits deutlich zu sehen, während die Gammalinie des

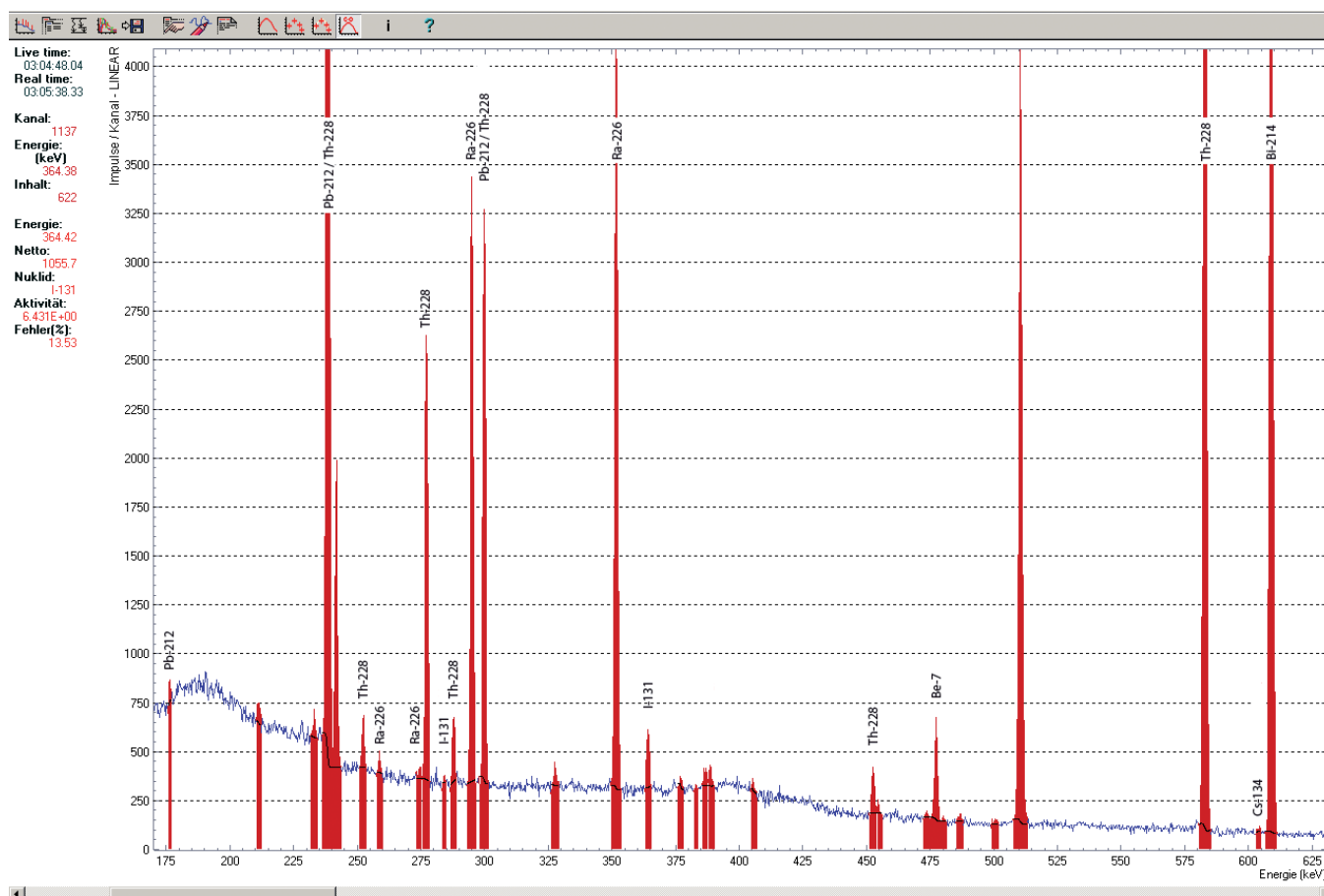


Bild 3:
Ausschnitt aus dem Luftstaub-Filterspektrum der Tagesprobe vom 23. März 2011 mit dem ersten Fukushima-Fallout (Messdauer ca. 3 h).

Cs-134 bei 604,7 keV neben der großen Linie des natürlichen Bi-214 bei 609,3 keV kaum zu erkennen ist. Wegen der übrigen hohen Linien der natürlichen Radionuklide sind nur wenige weitere künstliche Linien erkennbar. Nach der Veraschung ist I-131 bis auf etwa ein Prozent verdampft (und wegen seiner kurzen Halbwertszeit von acht Tagen auch deutlich zerfallen), sodass es nur noch aufgrund der langen Messdauer im Aschespektrum sichtbar ist. Die Linie des kurzlebigen Bi-214 ist dagegen fast verschwunden. An dieser Stelle im Spektrum dominiert nun die Linie des Cs-134. Neben den genannten Linien werden im Asche-Spektrum auch Linien weiterer Spaltprodukte sichtbar, z. B. die des Tellur-132 (Te-132). Die Aktivitätskonzentrationen dieser Radionuklide waren in der Luftstaub-Filtermessung unterhalb der Nachweisgrenzen.

Alpha- und Betastrahlen emittierende Radionuklide

Für die Bestimmung von Plutonium- und Uranisotopen sowie des reinen Betastrahlers Strontium-90 (Sr-90) im Luftstaub werden in der PTB die wöchentlichen Luftstaubaschen zu einer

Monatsmischprobe vereinigt, die einer aufwendigen radiochemischen Abtrennung und Reinigung unterzogen wird. Im Kapitel „Radiochemischer Trennungsgang“ werden diese Arbeiten und die daran anschließenden radiometrischen Messungen beschrieben. Für Plutonium-Isotope lassen sich mit einer alphaspektrometrischen Messung in Monatsmischproben Nachweisgrenzen um etwa $5 \cdot 10^{-10} \text{ Bq/m}^3$ erreichen. Für Sr-90 liegt sie meist bei $5 \cdot 10^{-9} \text{ Bq/m}^3$.

Überblick „Routinebetrieb“ und „Intensivbetrieb“

Die Schemata zeigen die Abfolge der in der Spurenmessstelle erforderlichen Arbeitsabläufe für den Routinebetrieb und den Intensivbetrieb. Dabei ist zu beachten, dass die radiochemischen Arbeiten im Gegensatz zu den übrigen Messungen nicht in jedem Fall täglich erledigt werden müssen. Häufigkeit und Art der radiochemisch zu bearbeitenden Proben (z. B. tägliche, mehrmals in der Woche oder einmal wöchentlich) wird je nach der Art des eingetretenen Ereignisses und nach aktueller Lage vom BMUB entschieden.

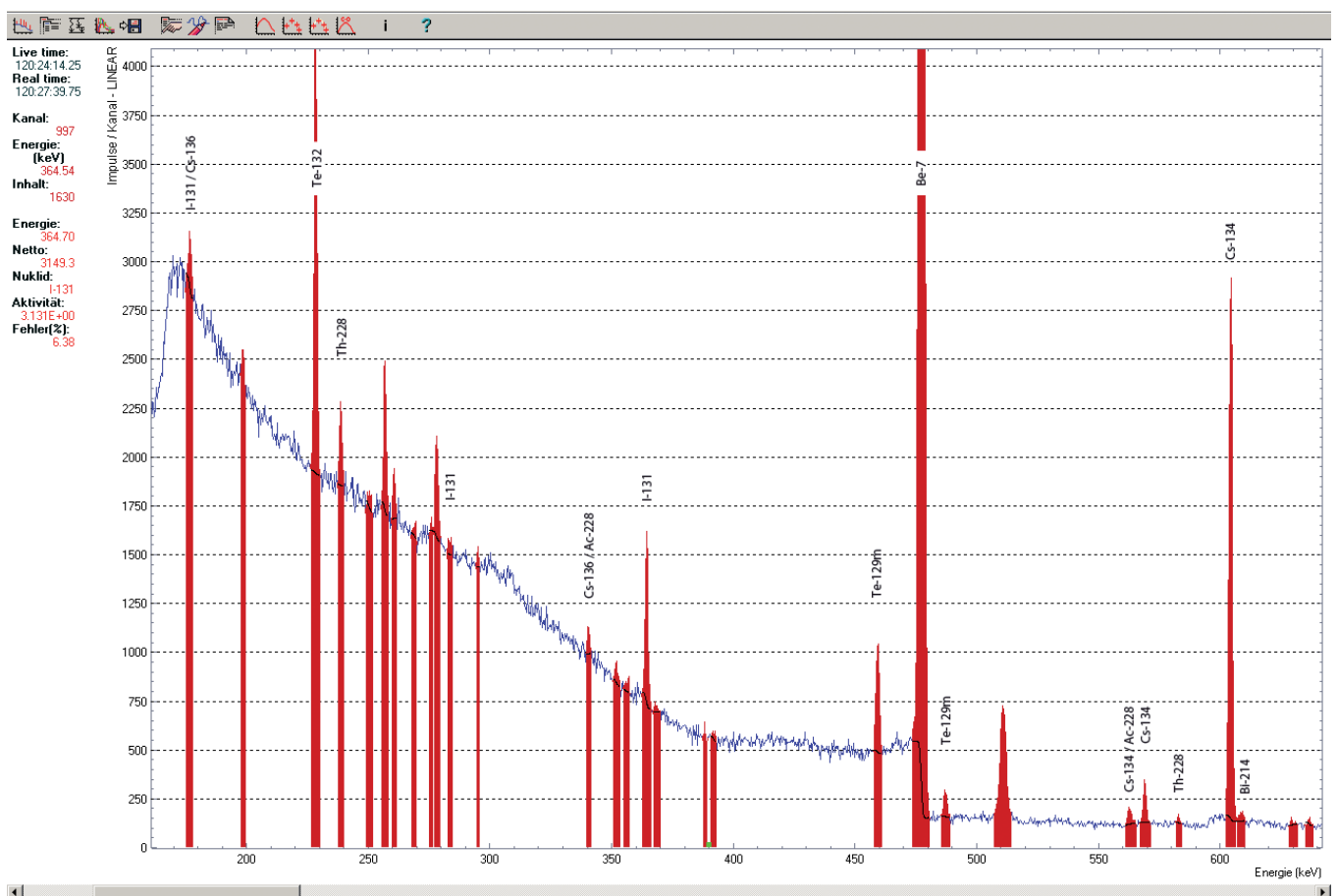


Bild 4:
Ausschnitt aus dem Luftstaub-Aschespektrum der Tagesprobe vom 23. März 2011 mit dem ersten Fukushima-Fallout (Messdauer ca. 120 h).

Prozesskette der Spurenmessstelle im Routinebetrieb

(Stand Januar 2014)

Montag	<p>7:00 Uhr bis 8:00 Uhr Luftstaub-Filterwechsel Edelgas-Adsorberwechsel und -Probenvorbehandlung</p> <p>ca. 9:30 Uhr Start der ersten, orientierenden γ-Messung des Luftstaub-Filters (Messdauer 4 h bis 6 h, NWG für I-131 ca. 10 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, für Co-60 ca. 5 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)</p> <p>ca. 12:30 Uhr bis 13:30 Uhr Express-Versand der Edelgasprobe zum BfS, Freiburg</p> <p>ca. 12:00 Uhr bis 13:00 Uhr Auswertung der Luftstaub-Filtermessung</p> <p>16:00 Uhr Start der empfindlichen I-131 Messung (Messdauer: ca. 15 h bis 16 h, NWG für I-131 <5 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, für Co-60 <2 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)</p>														
Dienstag	<p>ca. 7:30 Uhr bis 8:30 Uhr Auswertung der Filtermessung Veraschung des Luftstaub-Filters (400 °C bis 450 °C, O₂-Unterschuss, ca. 1 d)</p>														
Mittwoch	<p>zu Dienstbeginn: Herstellung der Asche-Tabletten (7 mm Durchmesser, 0,5 bis 2 g Asche, Höhe zwischen 2 mm und 30 mm)</p> <p>Start der γ-Messung der Luftstaub-Asche Bohrlochdetektor (Messdauer = 7 d, NWG für Co-60 und Cs-137 <0,05 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)</p> <p>Auswertung der γ-Messung der vorherigen Luftstaub-Asche</p>														
Anschließend	<p>Qualitätssicherung/Plausibilitätsprüfung der Ergebnisse, Dokumentation, Erfassung/Berichterstattung im IMIS IT-System und an den „Ring of Five“</p>														
Monatlich	<p>Herstellung der Monatsmischprobe aus den Luftstaub-Aschen des jeweiligen Kalendermonats, (2,5 g bis 10 g Asche; ca. 5 · 10⁵ m³ bis 7 · 10⁵ m³ Luft)</p> <p>Radiochemische Aufarbeitung der Monatsmischprobe (gemeinsamer radiochemischer Analysengang zur Abtrennung, Reinigung und Bestimmung von U-, Sr- und Pu-Isotopen)</p>														
Immer	<p>Dokumentation (EXCEL®, Laborprotokolle und Datenbank), berücksichtigte Beiträge zur Standardunsicherheit (ISO GUM):</p> <table> <tr> <td>Abscheideeffektivität der Filter:</td><td>ca. 4 %</td></tr> <tr> <td>Messung des Betriebsvolumens:</td><td>ca. 0,5%</td></tr> <tr> <td>Korrektur auf Bezugsvolumen:</td><td>ca. 1,5 %</td></tr> <tr> <td>Veraschungsausbeute:</td><td>ca. 1,5 %</td></tr> <tr> <td>Pu-242-Tracer (NIST):</td><td>0,7 %</td></tr> <tr> <td>Sr-85-Tracer (PTB):</td><td>1,0 % bis 1,5 % (je nach Charge)</td></tr> <tr> <td>U-232-Tracer (NIST):</td><td>1,3 %</td></tr> </table>	Abscheideeffektivität der Filter:	ca. 4 %	Messung des Betriebsvolumens:	ca. 0,5%	Korrektur auf Bezugsvolumen:	ca. 1,5 %	Veraschungsausbeute:	ca. 1,5 %	Pu-242-Tracer (NIST):	0,7 %	Sr-85-Tracer (PTB):	1,0 % bis 1,5 % (je nach Charge)	U-232-Tracer (NIST):	1,3 %
Abscheideeffektivität der Filter:	ca. 4 %														
Messung des Betriebsvolumens:	ca. 0,5%														
Korrektur auf Bezugsvolumen:	ca. 1,5 %														
Veraschungsausbeute:	ca. 1,5 %														
Pu-242-Tracer (NIST):	0,7 %														
Sr-85-Tracer (PTB):	1,0 % bis 1,5 % (je nach Charge)														
U-232-Tracer (NIST):	1,3 %														

Prozesskette der Spurenmessstelle im Intensivbetrieb

(Stand Januar 2014)

Täglich	<p>7:00 Uhr bis 8:00 Uhr Luftstaub-Filterwechsel Edelgas-Adsorberwechsel und -Probenvorbehandlung</p> <p>ca. 9:30 Uhr Start der ersten γ-Messung des Luftstaub-Filters (Messdauer 3 h bis 4 h, NWG für I-131 ca. 90 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, für Co-60 ca. 90 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)</p> <p>ca. 12:30 Uhr bis 13:30 Uhr Express-Versand der Edelgasprobe zum BfS, Freiburg</p> <p>ca. 11:00 Uhr (12:00 Uhr, MESZ) Auswertung der Luftstaub-Filtermessung</p> <p>ca. 12:00 Uhr (13:00 Uhr, MESZ) Qualitätssicherung, Dokumentation, Erfassung im IMIS bzw. Berichterstattung an Leitstelle im BfS und den „Ring of Five“*, (radiologische Bewertung und Veröffentlichung der aktuellen Ergebnisse zentral durch das BfS, anschließend Veröffentlichung der jeweils eigenen Messergebnisse des DWD und der PTB)</p> <p>ca. 12:30 Uhr bis 13:30 Uhr Express-Versand der Edelgasprobe zur Messung von Kr-85 und Xe-133 im BfS in Freiburg</p> <p>16:00 Uhr Start der empfindlichen γ-Messung des Luftstaub-Filters Messung (Messdauer: ca. 15 h bis 16 h, NWG für I-131 <50 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, für Co-60 ca. 90 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$)</p>
Nächster Tag:	<p>ca. 7:30 Uhr (8:30 Uhr, MESZ) Auswertung der Filtermessung (Start am Vortag, 16:00 Uhr) Qualitätssicherung, Dokumentation, Erfassung im IMIS bzw. Berichterstattung an Leitstelle und den „Ring of Five“</p>
Auf Anforderung:	<p>Herstellung von Mischproben aus einer geforderten Anzahl von Tagesproben; Extraktion (Königswasserauszug statt Veraschung) und radiochemische Abtrennung und Reinigung von U-, Sr- und Pu-Isotopen. Messung mit Alphaspektrometer (U, Pu) bzw. Proportionalzählrohr (Sr)</p>

* Der „Ring of Five“ ist ein informelles Netzwerk Europäischer Spurenmessstellen zur schnellen gegenseitigen Information über einen E-Mail-Server, wenn an einer Station auffällige Messwerte auftreten.

Zusammenfassung

Die beschriebenen Arbeiten der Spurenmessstelle zeigen, wie in der Routine die heute noch messbaren geringen Kontaminationen der Luft mit künstlichen Radionukliden aus früheren Kontaminationen, z. B. dem Kernwaffenfallout, in geringsten Spuren gemessen werden. Die Beobachtung des Verlaufes der Aktivitätskonzentrationen erlaubt die Feststellung der „Nullpegel“ im Fall einer erneuten Kontamination. Die Anforderungen des IMIS an die Spurenmessstellen im Fall einer frischen Kontamination zielen primär darauf ab, durch tägliche gammaspektrometrische Messungen schnell etwaige Veränderungen sowohl in der Höhe der Kontamination als auch in der Nuklidzusammensetzung festzustellen. Dann sind die Arbeiten nicht auf eine hohe Empfindlichkeit ausgelegt, sondern auf eine höhere Zeitauflösung. Über Art und Umfang wesentlich aufwendigerer und langwierigerer radiochemischer Analysen wird situationsangepasst entschieden. ■

Literaturverzeichnis

- [1] Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz),
www.gesetze-im-internet.de/aktuell.html
- [2] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS),
www.verwaltungsvorschriften-im-internet.de/bsvwvbund_13122006_RSII5114349.htm
- [3] AVV-IMIS, Anhang 1, Messprogramm für den Routinebetrieb (Routinemessprogramm),
www.verwaltungsvorschriften-im-internet.de/BMU-RS-20061213-KF-A001.htm
- [4] AVV-IMIS, Anhang 2, Messprogramm für den Intensivbetrieb (Intensivmessprogramm),
www.verwaltungsvorschriften-im-internet.de/BMU-RS-20061213-KF-A002.htm
- [5] Bundesamt für Strahlenschutz, γ -ODL Messnetz,
www.imis.bfs.de/odlinfo/?lang=DE
- [6] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit,
www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/allgemeine-umweltueberwachung/
- [7] Bundesamt für Strahlenschutz,
www.bfs.de/de/ion/imis/imis_uebersicht.html
- [8] Stockburger, H., Sartorius, H., Sittkus, A.: Messung der Krypton-85 und Xe-133-Aktivität der atmosphärischen Luft. Zeitschrift für Naturforsch. **32** (1977), 12391253

Radiochemische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden

Herbert Wershofen*

Notwendigkeit und Grundprinzipien

Im Gegensatz zu Gammastrahlung, die ein bekannt hohes Durchdringungsvermögen durch Materie hat und daher relativ leicht gemessen werden kann, bleibt die in einer Umweltprobe enthaltene Alphastrahlung oder Betastrahlung schon weitgehend in der Probe selbst stecken. Der Anteil, der die Probe verlässt, gelangt nicht direkt zu einem Detektor, sondern wird auf dem Weg dorthin vom Messgefäß, der Umgebungsluft und ggf. von Bauteilen des Messgerätes geschwächt. Zudem liegen die Energien der Alpha- und Betastrahlen in einem relativ engen Bereich, sodass sie sich im Spektrum überlagern. Dadurch wird die Zuordnung der Linien zu bestimmten Radionukliden erschwert oder sogar unmöglich. Damit ist eine direkte, rein physikalische Messung von Alpha- oder Betastrahlung emittierenden Radionukliden auf dem Pegel von Spurenmessungen praktisch unmöglich. Hier hilft dann die Radiochemie weiter, die zu Beginn der Messung radioaktiver Stoffe in der Umwelt auch vor den gammaspektrometrischen Messungen mit den damaligen NaI(Tl)-Detektoren unverzichtbar war.

Radiochemie – das Prinzip ist einfach

Das chemische Element, dessen radioaktive Isotope Alpha- oder Betastrahlen aussenden, wird aus einer Umweltprobe mit chemischen Verfahren abgetrennt. In den meisten Fällen wird damit auch eine Anreicherung erreicht, die zur Erhöhung der schließlich im Messpräparat vorliegenden Aktivität führt. Erst wenn die vorliegende Aktivität die Erkennungsgrenze des Messgerätes signifikant überschreitet, wird eine zuverlässige Aktivitätsmessung möglich. Die Umsetzung des Prinzips ist allerdings nicht trivial. Das wird an der Vielzahl von radiochemischen Verfahren deutlich, die in der Sammlung der „Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“ für die verschiedenen Umweltmedien enthalten sind [1]. Dort werden die Grundlagen der radiochemischen Verfahren detaillierter beschrieben. Für die Erklärung von Fachbegriffen bieten die Leitstel-

len das „Glossar zu den Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“ an, in dem eine große Fülle von Fachbegriffen erklärt ist [2].

Die relevanten Radionuklide

Die bei der Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt interessierenden Alphastrahlen emittierenden Nuklide sind die natürlichen Radionuklide aus den radioaktiven Zerfallsreihen von Uran-238 (U-238) und Thorium-232 (Th-232), in geringerem Maße auch die von Uran-235 (U-235) sowie die künstlich erzeugten Isotope der Elemente Neptunium (Np-237), Plutonium (Pu-238, Pu-239, Pu-240), Americium-241 (Am-241) und Curium (Cm-242, Cm-244). Die wichtigsten Betastrahlen emittierenden Radionuklide sind Tritium, Kohlenstoff-14 (C-14), die Isotope Strontium-89 (Sr-89) und Sr-90 sowie dessen Tochternuklid Yttrium-90 (Y-90).

Im Routinebetrieb des Integrierten Mess- und Informations-System (IMIS) werden zur Überwachung der bodennahen Luft im Rahmen der Spurenanalyse monatliche Analysen von Am-241, Sr-90, Uran- und Plutonium-Isotopen verlangt. Am-241 kann mit den hochempfindlichen Gammaspektrometern der PTB sogar direkt in den wöchentlichen Aschen gemessen werden, und der Monatsmittelwert wird aus diesen Messwerten berechnet. Das ist bei den anderen Radionukliden nicht möglich, weil sie keine leicht messbare Gammastrahlung aussenden. Daher werden die Aschen eines Monats zu einer einzigen Monatsmischprobe vereinigt. Diese wird nach dem unten beschriebenen radiochemischen Trennungsgang verarbeitet, sodass bei Luftvolumen von bis zu 750 000 m³ und der hohen Messempfindlichkeit der Messplätze typische Nachweisgrenzen von wenigen nBq/m³ für Sr-90 und unter 0,1 nBq (U und Pu) erreicht werden. Das maximale Luftvolumen wird nur unter optimalen Bedingungen erreicht, nämlich dann, wenn ein Kalendermonat fünf Wochen umfasst und in dieser Zeit nur wenig Staub in der Luft enthalten ist. Der Mittelwert des Luftvolumens der letzten Jahre liegt bei rund 700 000 m³.

* Dr. Herbert Wershofen, Arbeitsgruppe „Umweltradioaktivität“, E-Mail: herbert.wershofen@ptb.de

Der radiochemische Trennungsgang der Spurenmessstelle

Die wesentlichen Teilschritte des radiochemischen Trennungsganges werden beschrieben, ohne im Einzelnen auf die den Trenn- und Reinigungsschritten zugrunde liegenden chemischen Reaktionen einzugehen, was den Rahmen dieser Übersicht sprengen würde. Diese Darstellung beschränkt sich auf die Arbeiten mit Luftstaubproben, in denen nur die löslichen Anteile der interessierenden Radionuklide zu erfassen sind. Anpassungen, die für die Bestimmung von Alpha- oder Betastrahlung emittierenden Radionukliden in anderen Umweltproben oder für die Bestimmung der insgesamt in einem Umweltmedium enthaltenen Aktivität erforderlich sind, werden nicht beschrieben. Wird die Bestimmung der gesamten z. B. in einem Boden enthaltenen spezifischen Aktivität der Uran- oder Thoriumisotope gefordert, ist ein Totalaufschluss der Probe erforderlich, denn eine Extraktion ist dann unzureichend.

Probenvorbehandlung

Nach den gammaspektrometrischen Messungen liegen die einzelnen Wochenproben in Form von gepressten Aschetabletten vor (Bild 1). Die Tabletten werden aus den Messröhrchen entnommen, zunächst in einem Mörser zerrieben und anschließend in einer Kugelmühle fein zermahlen. Damit wird erreicht, dass im folgenden Schritt die löslichen Anteile leichter und schneller extrahiert werden. Als Extraktionsmittel wird „Königswasser“ eingesetzt. Königswasser ist ein Gemisch aus konzentrierter Salzsäure und konzentrierter Sal-

petersäure im Verhältnis 3:1. Damit wird die fein gemahlene Luftstaubasche etwa zwei Stunden lang ausgekocht. Die unlöslichen Anteile werden nach dem Abkühlen der Probe von der Säure, mit der anschließend weiter gearbeitet wird, abfiltriert.

Vorabtrennung und Anreicherung der Radionuklide

Nach der Extraktion liegen die zu bestimmenden Radionuklide in einer großvolumigen Lösung, meist etwa ein Liter, vor. Das Blockschema auf den Seiten 54 und 55 zeigt den gesamten radiochemischen Trennungsgang im Überblick. Die Radionuklide werden im nächsten Schritt z. B. durch eine Gruppenfällung oder Mitfällung von den nicht radioaktiven Anteilen der Probe abgetrennt. Dabei erfolgt gleichzeitig auch die Trennung von einem großen Teil der Radionuklide, die später die Messung stören würden. In der PTB kommt hier die Mitfällung an Eisenhydroxid ($\text{Fe}(\text{OH})_3$) zum Einsatz. Wenn sich die Eisenhydroxidkristalle bilden, werden die Atome der Aktinoide darin eingeschlossen, der Niederschlag fällt aus und setzt sich auf dem Gefäßboden ab (Bild 2). Die löslichen Bestandteile der Probe, darunter auch Sr-89 und Sr-90, bleiben bei der folgenden Filtrierung in der Lösung und werden abgetrennt. Die Lösung wird zur anschließenden Reinigung des Strontiums benutzt, während das Eisenhydroxid im weiteren Verlauf des Trennungsgangs für die Abtrennung und Reinigung von Uran und Plutonium benutzt wird.



Bild 1:
Luftstaub-Aschetabletten.

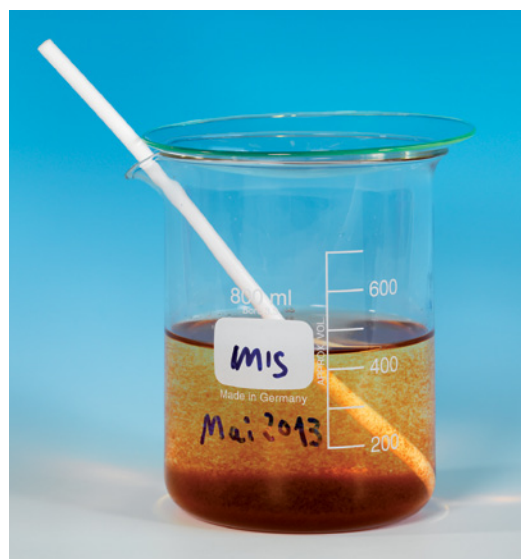


Bild 2:
Eisenhydroxid-Niederschlag mit Uran- und Pu-Isotopen, Strontium verbleibt in der überstehenden Lösung.

Abtrennung und Reinigung von Strontium

In der Strontiumlösung, die vom Eisenhydroxid getrennt wurde, können sowohl Sr-89 als auch Sr-90 enthalten sein. Sr-89 ist jedoch nur nach einer frischen Kontamination zu erwarten und dann auch nur relativ kurz im Vergleich zu Sr-90. Die Halbwertszeit von Sr-89 beträgt ca. 2,6 Jahre, die von Sr-90 dagegen ca. 28,6 Jahre. Der radiochemische Trennungsgang wird im Routinebetrieb so durchgeführt, wie er zur Bestimmung beider Isotope erforderlich ist. Das ist zwar deutlich aufwendiger und dauert länger, aber wir „bleiben in Übung“. Der Hintergrund für dieses Vorgehen ist, dass beide Isotope reine Betastrahler sind, die chemisch nicht voneinander getrennt werden können. Auch mit einem Proportionalzählrohr können sie nicht unterschieden werden. Ein alternatives Messverfahren, die sogenannte Flüssig-Szintillationsspektrometrie, die eine Unterscheidung der beiden Isotope anhand der verschiedenen Energie der Betastrahlen erlaubt, befindet sich in der PTB jedoch noch in der Vorbereitung. Aus der messtechnischen Klemme hilft allerdings, dass nur die Tochter von Sr-90, das Y-90, radioaktiv ist, eine Halbwertszeit von rund 64 Stunden hat und Betastrahlung emittiert. Die Tochter von Sr-89, das Y-89, ist nicht radioaktiv. Deshalb wird im weiteren Verlauf des Trennungsganges das zuerst abgetrennte Strontium mit einem speziell auf Strontium abgestimmten Ionenchromatographie-Trennharz gereinigt. Bild 3 zeigt eine solche Trennsäule für die Sr-Reinigung. Dabei wird auch alles Yttrium entfernt. Anschließend wird gewartet, bis sich nach ungefähr zwei Wochen das radioaktive Zerfallsgleichgewicht von Sr-90 und seiner Tochter



Bild 3: Trennsäule für die Abtrennung des Sr von störenden Radionukliden und die Trennung von Sr- und Y-Isotopen vor der Herstellung der Messpräparate.

Y-90 wieder eingestellt hat, dann sind die beiden Aktivitäten gleich. Anschließend werden die beiden Elemente noch einmal getrennt, wonach die beiden damit erhaltenen Lösungen separat zu Messpräparaten weiterverarbeitet werden.

Die beiden Messpräparate werden gleichzeitig in einem Proportionalzähler gemessen. Bild 4 zeigt ein Messpräparat, das aus einem getrockneten Filterkuchen von entweder Strontiumcarbonat oder von Yttriumoxalat besteht, der einen Durchmesser von rund 5 cm hat. Die Messdauer beträgt im Routinebetrieb etwa 25 Stunden. Die Messdauer eines Präparates ist sowohl für die Bestimmung der Blindwerte als auch für die Bestimmung der Nulleffekte der Proportionalzähler gleich lang.



Bild 4: Beispiel eines Messpräparates zur Aktivitätsbestimmung von Y-90 oder von Sr-89 und Sr-90 zum Einsatz im Proportionalzählrohr.

Aus dem Messergebnis der Y-Messung errechnen wir die zum Zeitpunkt der Trennung vom Sr vorhandene Aktivität von Sr-90, die ja gleich groß ist. Aus der Sr-Messung ergibt sich die Summe der Aktivitäten von Sr-89 und Sr-90. Aus dieser Summe ergibt sich die Aktivität des Sr-89 durch Abzug der über Y-90 bestimmten Aktivität von Sr-90.

Ein Blick auf Bild 8, das auch die störenden „Dreckeffekte“ am Beispiel eines Alphaspektrums eines Plutoniumpräparates zeigt, macht deutlich, dass die Berücksichtigung der radiochemischen Ausbeuten, der Nulleffektbeiträge und der radiochemischen Blindwerte einen erheblichen Aufwand erfordert. Daneben ist die Erfassung aller bei der Auswertung einer Analyse zu berücksichtigenden Korrekturen des radioaktiven Zerfalls in der Zeit zwischen der Probenentnahme und den radiometrischen Messungen für die korrekte Ermittlung eines Messergebnisses unverzichtbar. Die Grundlagen zur Berücksichtigung dieser Korrekturen sind in den allgemeinen Kapiteln der „Messanleitungen“ erläutert [1].

Trennung von Uran und Plutonium

Im Eisenhydroxid, das nach der Strontiumabtrennung vorliegt, sind Uran und Plutonium noch nebeneinander enthalten. Zu ihrer Trennung wird das Eisenhydroxid aufgelöst und die entstehende

Lösung durch eine Trennsäule geschickt. In dieser befindet sich ein spezielles Trennharz, das unter genau eingestellten Reaktionsbedingungen das Plutonium festhält und das Uran passieren lässt. Ist die nötige Menge – hier ist die Erfahrung des Personals sehr gefragt – an Lösung durch die Säule hindurchgelaufen, wird zunächst das Auffanggefäß gewechselt. Dann werden die Reaktionsbedingungen so eingestellt, dass das Plutonium nicht mehr auf der Säule verbleibt und mit der Lösung herausläuft.

Reinigung von Uran

Das Uran ist nach der Abtrennung von Plutonium in den meisten Fällen radiochemisch schon so rein, dass aus dieser Lösung das Messpräparat für die Aktivitätsbestimmung hergestellt werden könnte. Die Erfahrungen im Verlauf der Trennungsgangentwicklung haben jedoch gezeigt, dass Luftstaub sehr viel des natürlich radioaktiven Polonium-210 (Po-210) enthalten kann, sodass die zu Beginn des Trennungsganges durchgeführte Abtrennung nicht ausreicht. Dann kann Po-210 gemeinsam mit dem als Ausbeutetracer zugesetzten U-232 im Messpräparat vorliegen. In diesem Fall lässt sich die radiochemische Ausbeute für Uran nicht zuverlässig bestimmen, weil die Alphastrahlen von Po-210 und U-232 an der gleichen Stelle im Alphaspektrum registriert werden. Dann ist nicht mehr exakt feststellbar, wie groß die im Verlauf des Trennungsganges unvermeidbaren Uranverluste waren, sodass die ursprünglich in der Luftstaubprobe vorhandenen Aktivitäten von U-234, U-235 und U-238 ebenfalls nicht zuverlässig bestimmt werden können. Zur Reinigung des U von Po-210 wird eine Trennsäule eingesetzt, ähnlich wie in Bild 3 gezeigt, allerdings enthält sie nun ein Ionenaustauscherharz. Aus der nach dieser Reinigung erhaltenen Lösung wird mit

einem elektrolytischen Abscheideverfahren das U auf einem Edelstahlplättchen abgeschieden, das anschließend mit einem Alphaspektrometer gemessen wird. Bild 5 zeigt eine Auswahl typischer Messpräparate für die Alphaspektrometrie. Die Messdauer liegt meist bei einigen Tagen bis zu einer Woche, sodass auch U-235 noch recht genau messbar ist, dessen Aktivität in Natur-Uran nur bei 4,7 % der Aktivität des in der Probe vorhandenen U-238 liegt.

Reinigung von Plutonium

Die derzeit im Luftstaub zu erwartende Aktivitätskonzentration von Pu liegt ungefähr bei einem Tausendstel der Aktivitätskonzentration von U-234 oder U-238. Deshalb ist bei der Durchführung des radiochemischen Trennungsganges peinlich darauf zu achten, eine möglichst hohe radiochemische Ausbeute zu erzielen. Anderenfalls ist die auf dem Messpräparat vorliegende Aktivität der Pu-Isotope so gering, dass die Empfindlichkeitsgrenze der Detektoren nicht überschritten wird. Ein zweiter Grund für die besonders sorgfältige Reinigung des Pu ist, dass einige der natürlichen Radionuklide aus den Zerfallsreihen von Uran und Thorium, die auch auf dem Edelstahlplättchen abgeschieden würden, ebenfalls Alphastrahlen emittieren. Diese erscheinen dann im Alphaspektrum an der gleichen Stelle wie die Alphastrahlen der Pu-Isotope oder so dicht daneben, dass sie nur schlecht oder gar nicht zu unterscheiden sind.

Daher wird die nach der Trennung von U und Pu erhaltene Lösung zuerst einer Reinigung mit einem Trennharz unterzogen, das in einer Trennsäule eingesetzt wird, ähnlich wie in Bild 3 gezeigt. Anschließend wird noch eine weitere Reinigung des Pu mit einem Ionenaustauscherharz durchgeführt. Aus der nach dieser Reinigung erhaltenen



Bild 5:
Auswahl typischer Messpräparate für die Alphaspektrometrie. Diese Art der Färbung oder der Musterung sagen nichts über die Qualität der Präparate oder die radiochemische Ausbeute aus. Der Durchmesser der Stahlplättchen beträgt 30 mm, der effektive Durchmesser des Präparates beträgt 25 mm.

Lösung wird mit einem elektrolytischen Abscheidungsverfahren das Pu auf einem Edelstahlplättchen abgeschieden, das anschließend mit einem Alpha-spektrometer gemessen wird. Die Messdauer liegt meist bei mehreren Wochen. Pu-(239+240) kann in Aktivitätskonzentrationen von wenigen nBq/m³ bestimmt werden, während Pu-238 meist unter der Nachweisgrenze liegt. Diese ist weniger von den Nulleffekten der Detektorsysteme, sondern hauptsächlich von den radiochemischen Blindwerten bestimmt, sodass Pu-238 in Monatsproben meist nicht nachweisbar ist.

Wo stoßen wir an Grenzen?

Im Wesentlichen wird die Nachweisgrenze der radiochemischen Verfahren von der Erkennungsgrenze des Detektorsystems bestimmt. Das ist im Prinzip die kleinste Aktivität, die das Messgerät neben dem immer vorhandenen Untergrund messen kann. Daher wird bei der Spurenmessung radioaktiver Stoffe in der Luft versucht, möglichst viel Luftstaub für eine Probe zu sammeln, damit die Aktivität der darin zu messenden Radionuklide möglichst hoch ist. An dieser Stelle ist anzumerken, dass die Staubmenge, die gesammelt wird, auch sehr stark vom Wetter abhängt. Vereinfacht ausgedrückt: Viel Regen – wenig Staub – kleine Aktivitäten! Das gilt für alle Messverfahren, egal für welche Art von Strahlung oder welches Messgerät eingesetzt wird.

Ist vor der eigentlichen radiometrischen Messung, wie im Fall der Bestimmung von Alphastrahlen oder Betastrahlen emittierenden

Radionukliden, noch eine aufwendige radiochemische Abtrennung und Reinigung erforderlich, müssen Aktivitätsverluste hingenommen werden. Diese sind unvermeidbar, weil praktisch kaum eine chemische Reaktion zu absolut 100 % abläuft. Trotz sorgfältigster Arbeiten gehen auch immer geringe Mengen des Probenmaterials bei Trennungen und Umfüllungen verloren.

Ein besonderes Problem stellen die immer in Chemikalien, Geräten oder in der Laborumgebung enthaltenen natürlichen Radionuklide dar. Diese gelangen teilweise mit in die Messpräparate, wo sie ebenfalls Alphastrahlen und Betastrahlen emittieren. Dieser Beitrag zur Zählrate eines Messpräparates wird Blindwert (englisch: blank) genannt und muss separat bestimmt werden. Dafür ist regelmäßig eine vollständige radiochemische Analyse notwendig, weil sich der Blindwert im Verlauf der Zeit verändern kann. Er kann sich ebenfalls verändern, wenn eine Chemikalie durch eine andere ersetzt wird oder neue Glasgeräte aus einem anderen Glas zum Einsatz kommen. Der Arbeits- und Zeitaufwand für eine Blindwertanalyse entspricht praktisch dem Aufwand für eine Luftstaubanalyse, weil sie genauso durchgeführt wird: mit den gleichen Geräten, mit gleichen Mengen an Reagenzien und Lösemitteln, bei identischen Warte- und Verarbeitungszeiten – nur eben ohne eine Luftstaubprobe. Aus einer ausreichend großen Anzahl (aktueller!) Blindwerte wird ein mittlerer Blindwert für jedes Radionuklid, also auch für die Ausbeutetracer, ermittelt. Dieser Beitrag muss bei der Berechnung der Messergebnisse von der gesamten Zählrate des

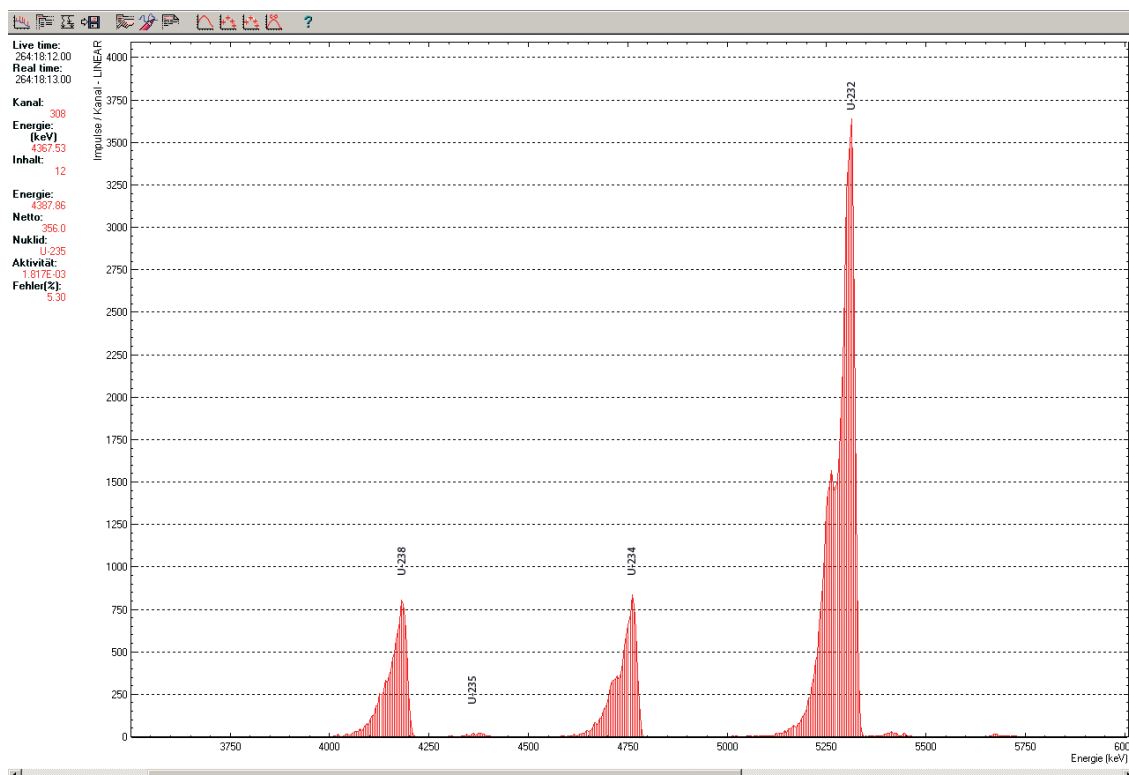


Bild 6:
Alphaspektrum von
Uran-Isotopen aus
der Luftstaubprobe
vom Februar 2013.

betreffenden Radionuklids abgezogen werden. In den meisten Fällen ist dieser Beitrag höher als der Nulleffekt der Detektorsysteme.

Was der Blindwert für die Beurteilung und Auswertung eines Alphaspektrums bedeutet, wird am Beispiel der Spektren von Uran (Bild 6) und von Plutonium (Bild 7 und 8) deutlich. Diese Spektren stammen von einer Luftstaubanalyse aus der Zeit der Trennungsgangentwicklung, als die radiochemischen Trenn- und Reinigungsverfahren noch nicht optimiert und die Blindwerte, speziell die für die Pu-Isotope, noch nicht genau bekannt waren.

Deutlich sichtbar sind in Bild 6 die große Linie des Ausbeutetracers U-232, dessen Aktivität eigentlich im Vergleich zu den Aktivitäten der Isotope U-234 und U-238 etwas zu hoch bemessen wurde, sowie die Linien von U-234 und U-238. Die radiochemische Ausbeute lag bei dieser Analyse bei 92 %. U-235 ist in dieser Darstellung nur schlecht erkennbar, war aber Dank der Messdauer von mehr als 264 Stunden mit ausreichender Genauigkeit messbar. Die kleinen Linien rechts der Tracerlinie stammen von Tochternukliden, die aus dem Tracernuklid entstehen. Mit steigender Betriebszeit des Detektors erhöht sich diese Kontamination. Diese Erhöhung des Detektornulleffekts wird durch regelmäßige Nulleffektmessungen erfasst und sowohl bei der Auswertung eines Luftstaubspektrums als auch bei der Auswertung eines Blindwertspektrums berücksichtigt.

Die derzeit erreichbaren Nachweisgrenzen für die Uran-Isotope in einer Luftstaub-Monatsprobe sind, wie bereits erwähnt, maßgeblich vom radio-

chemischen Blindwert bestimmt und liegen bei etwa 0,5 nBq/m³.

Im Vergleich zum Uranspektrum stellt sich das Plutoniumspektrum derselben Luftstaubprobe anders dar. Bild 7 zeigt die schön ausgeprägte Linie des Ausbeutetracers Pu-242, die einer radiochemischen Ausbeute von ca. 68 % entspricht. Der Trennungsgang ist grundsätzlich leistungsfähig und erlaubt die Herstellung von Pu-Messpräparaten mit recht guter Ausbeute. Die Ausbeuten für Pu können von Probe zu Probe stark variieren und sollten sich durch ständige Optimierung des Trennungsganges bei zukünftigen Analysen insgesamt noch verbessern lassen. Allerdings ist in diesem Spektrum noch eine deutliche Verunreinigung mit nicht vollständig abgetrennten natürlichen Uran- und Thorium-Isotopen zu sehen. Daher eignet sich dieses Spektrum gut zur Diskussion der Blindwertproblematik. Bild 8 zeigt dafür dasselbe Spektrum in einer Darstellung, in der die Blindwertbeiträge und die Einflüsse der noch vorhandenen Reste natürlicher Radionuklide deutlicher hervortreten.

Unter dem linken Bereich der Linie des Pu-242 liegt die Linie des U-234, die die Auswertung der Linie des Pu-242 erschwert. Zur Abschätzung, wie groß ein hier vorliegender Anteil von U-234 in der Linie des Ausbeutetracers ist, kann man versuchen die Linie des U-238 auszuwerten. Kennt man die vorliegende Aktivität von U-238, muss die Aktivität von U-234 gleich groß sein – wenn es sich um Natur-Uran handelt. Das kann jedoch nicht immer als uneingeschränkt gültige Annahme vorausgesetzt werden. Außerdem wird die Bestimmung der

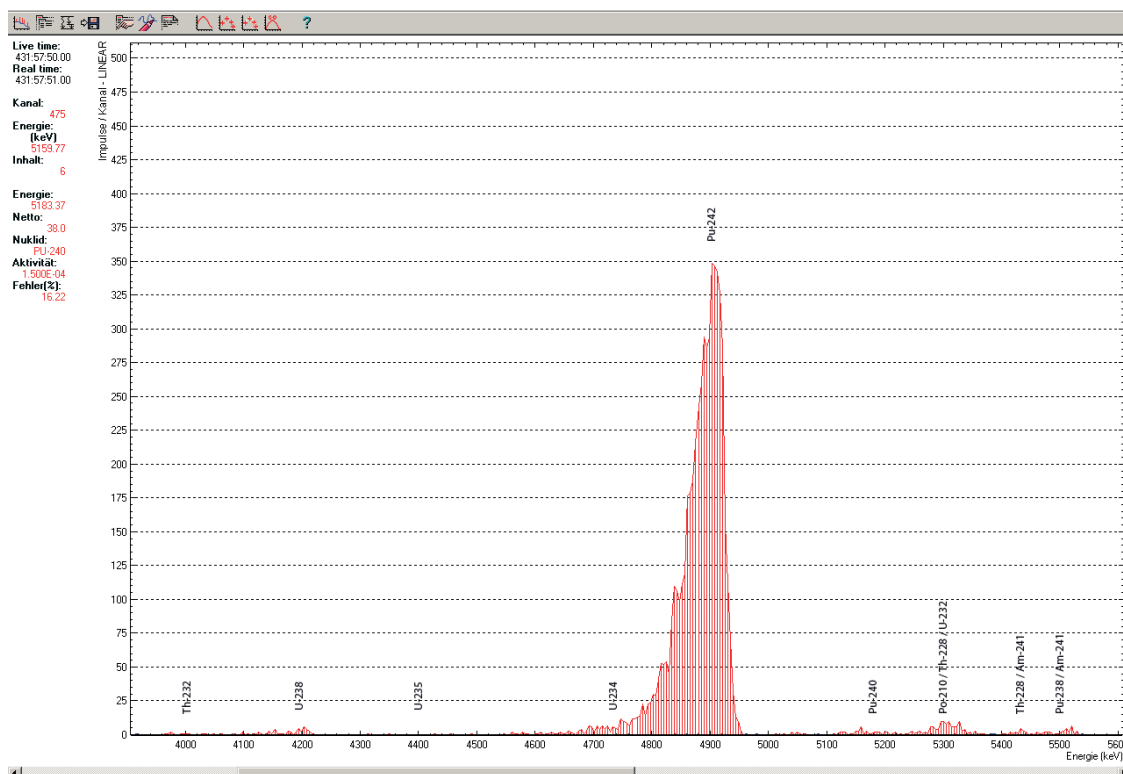


Bild 7:
Alphaspektrum
von Plutonium-
Isotopen aus der
Luftstaubprobe vom
Februar 2013 zur
Darstellung des
Ausbeutetracers
Pu-242.

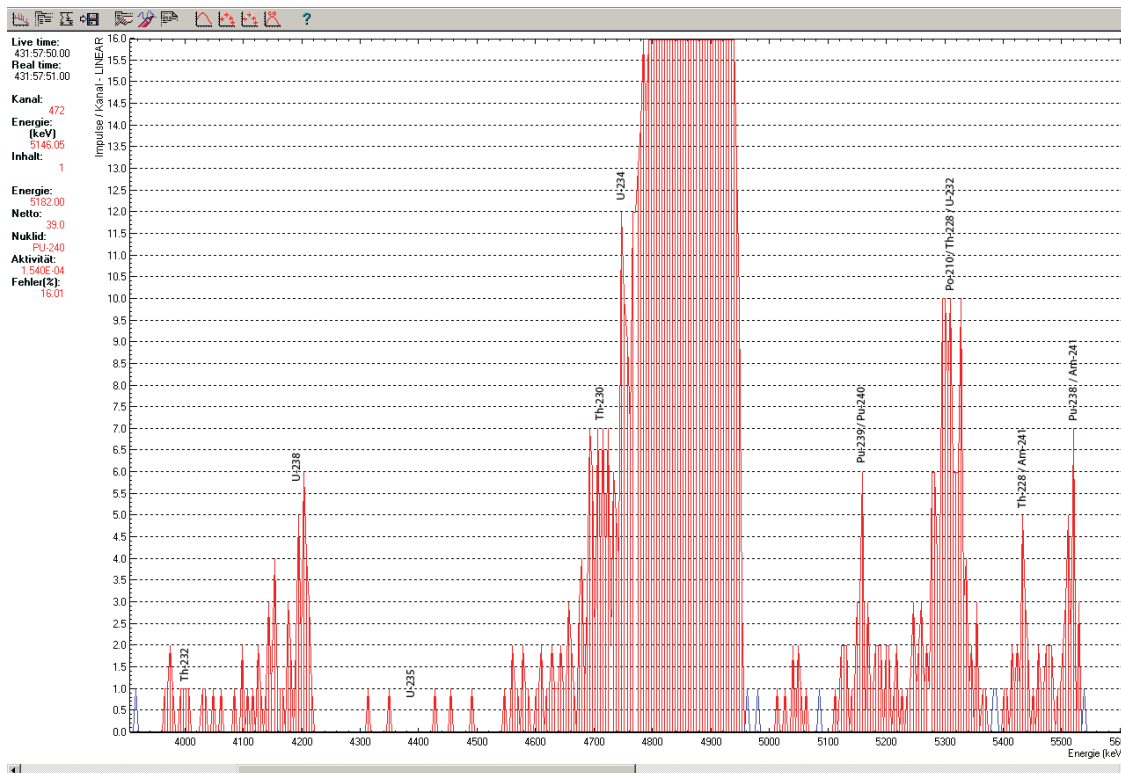


Bild 8:
Alphaspektrum von Plutonium-Isotopen aus der Luftstaubprobe vom Februar 2013 zur Darstellung der Einflüsse natürlicher Radionuklide und des radiochemischen Blindwertes auf die Nachweisgrenze.

Aktivität von U-238 und U-234 erschwert, wenn auch Thorium-232 (Th-232) und Th-230 auf dem Messpräparat vorliegen, deren Linien dicht bei den Uranlinien liegen.

Während diese Einflüsse auf die Bestimmung der radiochemischen Ausbeute meistens von untergeordneter Bedeutung sind, weil die Linie des Pu-242 so deutlich im Spektrum hervortritt, ist die Situation bei den zu bestimmenden Pu-Isotopen kritisch (Bild 8).

Im rechten Teil des Spektrums sind einige Linien erkennbar, die sowohl den Pu-Isotopen, die zu bestimmen sind, zugeordnet werden können, als auch natürlichen Radionukliden. Im vorliegenden Beispiel lässt sich die Linie, die vom Auswertprogramm mit „Pu-(239 / 240)“ markiert wird, zwar gut erkennen. Aber eine zuverlässige Aktivitätsbestimmung ist nur schwer möglich. Die Energien der genannten Pu-Isotope liegen so dicht nebeneinander, dass sie mit alphaspektrometrischen Messungen nicht voneinander getrennt werden können. Diese Trennung erlauben derzeit nur Verfahren der Massenspektrometrie [3]. Daher wird in Messreihen meistens die Summe der Aktivitäten dieser beiden Radionuklide angegeben, die durch die Schreibweisen Pu-(239+249), $^{239/240}\text{Pu}$ oder $^{239+240}\text{Pu}$ verdeutlicht wird. Die Linie des Pu-238 ist sogar ganz unter den störenden Linien verborgen, sodass das Auswertprogramm neben Pu-238 auch Th-228 und Am-241 als im Messpräparat vorliegende Radionuklide vorschlägt.

Die Vorschläge, die das Auswertprogramm liefert, müssen immer kritisch hinterfragt und mit den Ergebnissen der separat gemessenen radio-

chemischen Blindwerte korrigiert werden. In der Praxis bedeutet das, dass die bei den Analysen erreichbare Nachweisgrenze weniger von den Nulleffekten der Alphaspektrometer, als vielmehr von den radiochemischen Blindwerten bestimmt wird. Derzeit liegen die Nachweisgrenzen für die Pu-Isotope bei ca. 1 nBq/m^3 . Wir erwarten, dass sich durch Verbesserungen im Trennungsgang und einer Verringerung der radiochemischen Blindwerte diese Grenze in Zukunft zu einer deutlich höheren Messempfindlichkeit hin verschiebt. ■

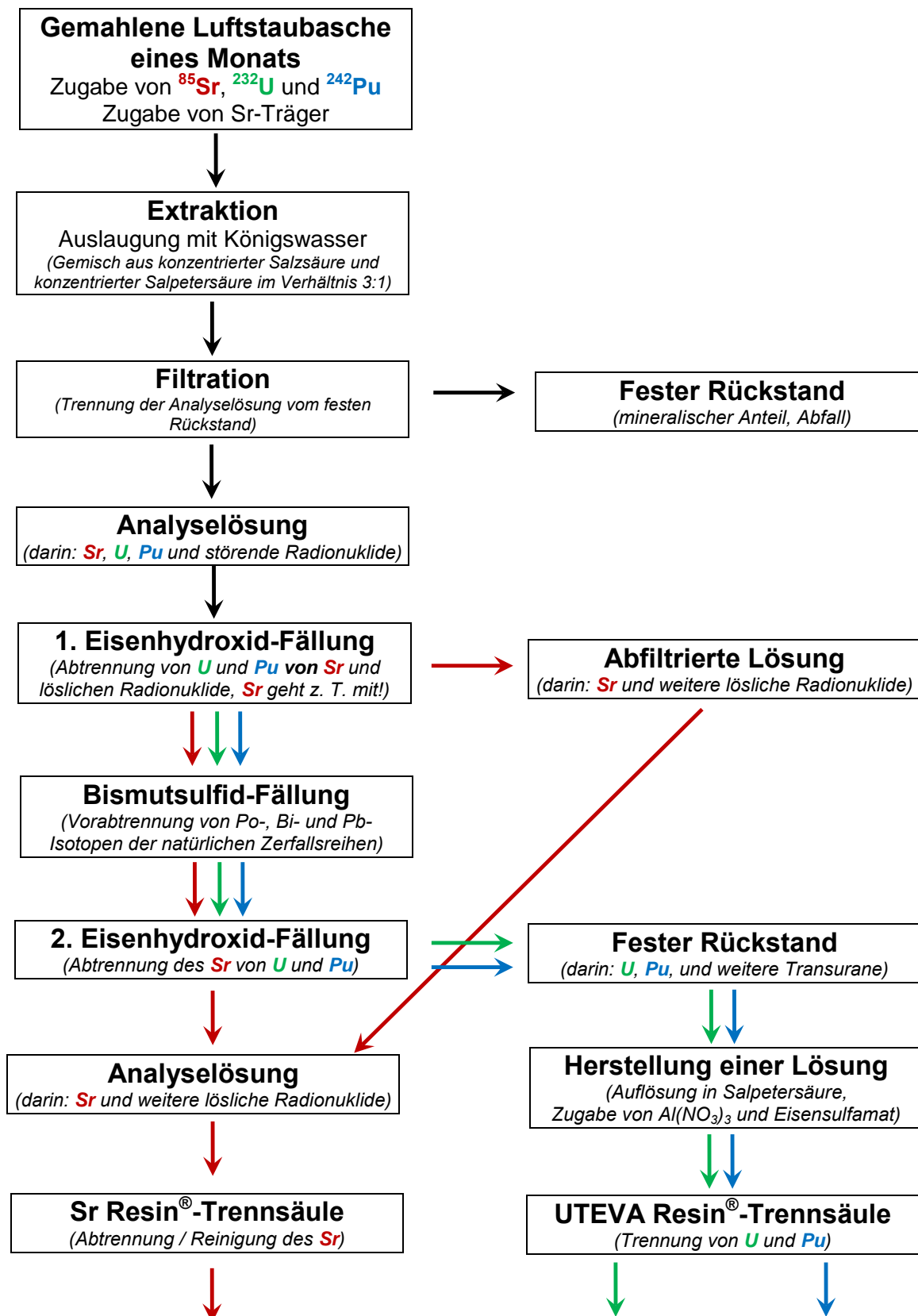
Literaturverzeichnis

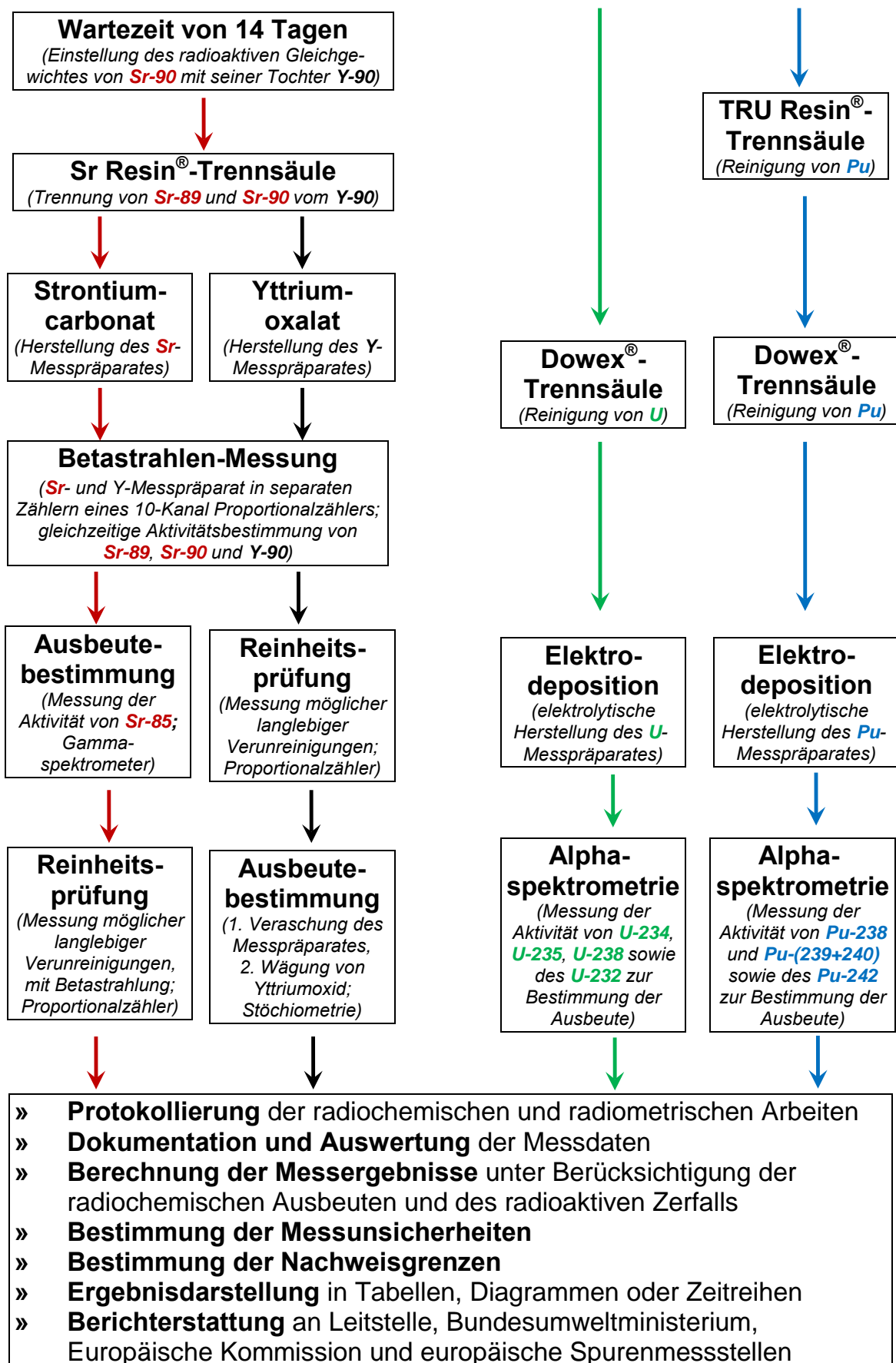
- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/messanleitungen/
- [2] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, [www.bmub.bund.de/service/publikationen/downloads/details/artikel/glossar-zu-den-messanleitungen-fuer-die-ueberwachung-radioaktiver-stoffe-in-der-umwelt-und-externer-strahlung/?tx_ttnews\[backPid\]=384](http://www.bmub.bund.de/service/publikationen/downloads/details/artikel/glossar-zu-den-messanleitungen-fuer-die-ueberwachung-radioaktiver-stoffe-in-der-umwelt-und-externer-strahlung/?tx_ttnews[backPid]=384)
- [3] H. Wershofen, R. Kierepko, J. W. Mietelski, R. Anczkievicz, Z. Holgye, K. Isajenko, J. Kapala, A. Komosa, P. Gaca: The puzzling rare events of high ^{238}Pu content in the ground level atmosphere: Poster-Vortrag, "Migration conference 2013; 14th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere", September 8th–13th 2013, Brighton UK

Radiochemischer Trennungsgang zur Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden in Luftstaub

Blockschema

(Stand: Februar 2014)





Nicht alltägliche Messergebnisse

Herbert Wershofen*

Besondere Ereignisse fallen meistens bei Messungen der wöchentlichen Proben auf. In Braunschweig finden sich nur wenige „große“ Ereignisse wie die kerntechnischen Unfälle in Tschernobyl oder Fukushima. Mehrheitlich sind es kurzzeitige oder nur in geringen Spuren aufgetretene Kontaminationen. Es kann sogar sein, dass an einem gegebenen Ort, an dem zwei Luftstaubproben gleichzeitig und genau gleich lange entnommen wurden, in einer Probe eine Auffälligkeit gemessen wird, während sich in der anderen Probe keine ersichtliche Kontamination nachweisen lässt. Dieses auf den ersten Blick verwunderliche Phänomen lässt sich jedoch erklären: Gasförmig vorliegende Radionuklide sind recht homogen in der Luft verteilt und gelangen daher in einem vergleichbaren Ausmaß in die Staubproben. Im Gegensatz dazu besteht bei nichtflüchtigen Radionukliden die Möglichkeit, dass, wenn sie in geringen Spuren an nur relativ wenigen Staubkörnern gebunden vorliegen, von einer homogenen Verteilung in der Luft keine Rede mehr sein kann. Es gibt auch Fälle, in denen winzige Partikel, die Spalt- oder Aktivierungsprodukte enthalten, über die Abluft einer kerntechnischen Anlage in die freie Atmosphäre gelangen. Solche Partikel sind in Fachkreisen als „heiße Teilchen“ (engl.: hot particles) bekannt. Der Begriff besagt nicht, dass diese Teilchen im eigentlichen Wortsinn heiß sind. Gemeint ist vielmehr, dass sie eine höhere spezifische Aktivität als die übrigen Teilchen in ihrer Umgebung besitzen. Zu Zeiten des frischen Kernwaffenfallouts oder unmittelbar nach dem Unfall von Tschernobyl waren sie deshalb leicht zu detektieren, analog zu einem heißen Teilchen, dass wegen seiner Wärmestrahlung leicht zu finden ist. Die in einem heißen Teilchen enthaltene spezifische Aktivität eines Radionuklides, angegeben z. B. in Bq/g, kann recht hoch sein. Dabei kann die gesamte Aktivität des Radionuklides sehr klein sein, besonders, wenn das Teilchen sehr wenig Masse hat.

Es sind genau solche sehr kleinen Teilchen, die mit der Luft sehr weit transportiert werden können. Nach langen Transportwegen sind dann nur noch vereinzelte heiße Teilchen in der Luft, die schließlich gewissermaßen als Einzelgänger einen

Luftstaubsammler erreichen und dort in eine Probe gelangen. Es leuchtet ein, dass die in einem solchen Fall gemessene Aktivitätskonzentration nicht auf die gesamte Luftprobe hochgerechnet werden darf. Dieser Messwert ist nicht repräsentativ für die Luftprobe, auch wenn er mit kleiner Messunsicherheit gemessen wurde.

Einige im Verlauf der 50-jährigen Geschichte der Spurenmessstelle beobachtete besondere Messergebnisse:

- Zur Jahreswende 1970/1971 gelang der Nachweis frischer Spaltprodukte von einem am 16.12.1970 in Nevada (USA) durchgeführten unterirdischen (d. h. nicht atmosphärischen) Kernwaffenversuch. Interessant an diesem Messergebnis ist, dass nach dem unterirdisch durchgeführten Kernwaffenversuch frische Spalt- und Aktivierungsprodukte nicht nur bis zur Erdoberfläche, sondern auch in etwas höhere Luftschichten gelangt waren. Der englische Fachbegriff dafür ist „venting“, was entgasen, entlüften oder auch Druckausgleich bedeutet. Offensichtlich waren durch die Explosion genügend Undichtigkeiten (Geologen sagen „Wegsamkeiten“) in dem über der Explosionskammer gelegenen Deckgebirge entstanden.
- Im Februar 1977 wurde erstmalig Selen-75 (Se-75) in Braunschweig gefunden. Die Quelle war vermutlich ein Krematorium in Süd-Niedersachsen, in dem ein Toter bestattet wurde, der zuvor nuklearmedizinisch mit Se-75 behandelt worden war. Radionuklide, die in der Nuklearmedizin für diagnostische oder therapeutische Zwecke eingesetzt werden, werden im Normalfall in dafür vorgesehenen Auffang- und Abklingeinrichtungen gesammelt, bis die erlaubten Grenzwerte für die Entsorgung oder die Ableitung erreicht sind. Weiterführende Informationen zu diesem Aspekt der Anwendung radioaktiver Stoffe in der Medizin sind über die Internetseite der Strahlenschutzkommission verfügbar [1].
- Im November 1983 wurden im norwegischen Skibotn, später auch in Braunschweig und in Berlin, bei Ostwind-Wetterlagen Spuren von Zirkon-95 (Zr-95) und Niob-95 (Nb-95) gemes-

* Dr. Herbert Wershofen, Arbeitsgruppe „Umweltradioaktivität“, E-Mail: herbert.wershofen@ptb.de

sen. Das Aktivitätsverhältnis Nb-95/Zr-95 war meist typisch für Reaktor-Korrosionsprodukte. Diese können im normalen Leistungsbetrieb über die Abluft in die Atmosphäre gelangen, aber auch im Zuge einer Kraftwerksrevision.

- Die ersten Spaltprodukte aus Tschernobyl wurden in Braunschweig bereits am Nachmittag des 29. April 1986 nachgewiesen, nachdem der Reaktor in den sehr frühen Morgenstunden des 26. April 1986 explodiert war. Die erste Wolke mit den gasförmigen Spalt- und Aktivierungsprodukten und den kleinen Staubteilchen, die bei der Explosion des Reaktors entstanden waren, zog zuerst mit einer südöstlichen Strömung nach Skandinavien. Dort wurde die Kontamination der Luft als erstes entdeckt, als Angestellte eines Kernkraftwerkes in die Anlage wollten und bei der Eingangskontrolle die dort installierten Strahlungsdetektoren Alarm auslösten. Später drehte sich der Wind und die kontaminierten Luftmassen erreichten auch Deutschland.
- Von 1988 bis 1996 wurde mehrmals Lanthan-140 (La-140) ohne sein Mutternuklid Barium-140 (Ba-140) nachgewiesen. Zwischenzeitlich stellte sich heraus, das La-140 für die Dekontaminationsausbildung im militärischen Bereich verwendet wurde. Eine diesbezügliche Publikation erschien 1987 in einer wehrtechnischen Fachzeitschrift [2].
- Im Zeitraum vom 1. bis 8. Juni 1998 wurde an einer großen Anzahl von Spurenmesstationen Italiens, Frankreichs, Spaniens, der Schweiz, der Tschechischen Republik, der Niederlande und Süddeutschlands eine deutliche Erhöhung der Cs-137-Aktivitätskonzentration in der Luft

beobachtet. Die Quelle der Cs-137-Emission war ein Stahlwerk in Algeciras westlich von Gibraltar. Im Zeitraum Ende Mai bis Anfang Juni wurde dort beim Recycling von Stahlschrott ein medizinisch-radiotherapeutischer Cs-137-Strahler in einem Hochofen eingeschmolzen und das leichtflüchtige Caesium in die Atmosphäre freigesetzt [3].

- In der 35. Kalenderwoche 2002 (26.08. bis 02.09.02) wurde in Teilen Nord- und Mitteleuropas eine geringfügige Erhöhung der Cs-137-Aktivitätskonzentration beobachtet. Der höchste Wert in Deutschland wurde mit $18,4 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ an der DWD-Station in Westmarkelsdorf (Fehmarn) gemessen. Die Aktivitätskonzentrationen nahmen innerhalb Deutschlands in südwestlicher Richtung ab. Bild 2 zeigt die Messergebnisse von Nord nach Süd geordnet. An der Spurenmesstation der PTB in Braunschweig wurden ca. $8 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ($= 8,0\text{E}-6 \text{ Bq}/\text{m}^3$) ermittelt. Der Vergleich mit den Werten von Hannover und Magdeburg zeigt, dass die Cs-137-Spuren in unserer Region recht homogen vorlagen. In Süddeutschland wurden hingegen lediglich die damaligen Grundpegel beobachtet. Ursache dieser ungleichen Verteilung war eine deutliche Wettergrenze über dem Hauptkamm der Mittelgebirge. Südlich davon herrschte überwiegend regnerisches Wetter, sodass dort der Staub mehr oder weniger vollständig aus der Luft ausgewaschen wurde. Als mögliche Ursache für die beobachtete Erhöhung kommt aufgewirbelter Staub aus den stark mit Cs-137 belasteten Gebieten in der Umgebung von Tschernobyl in Betracht. Das dort auf dem Boden abgelagerte bzw. in

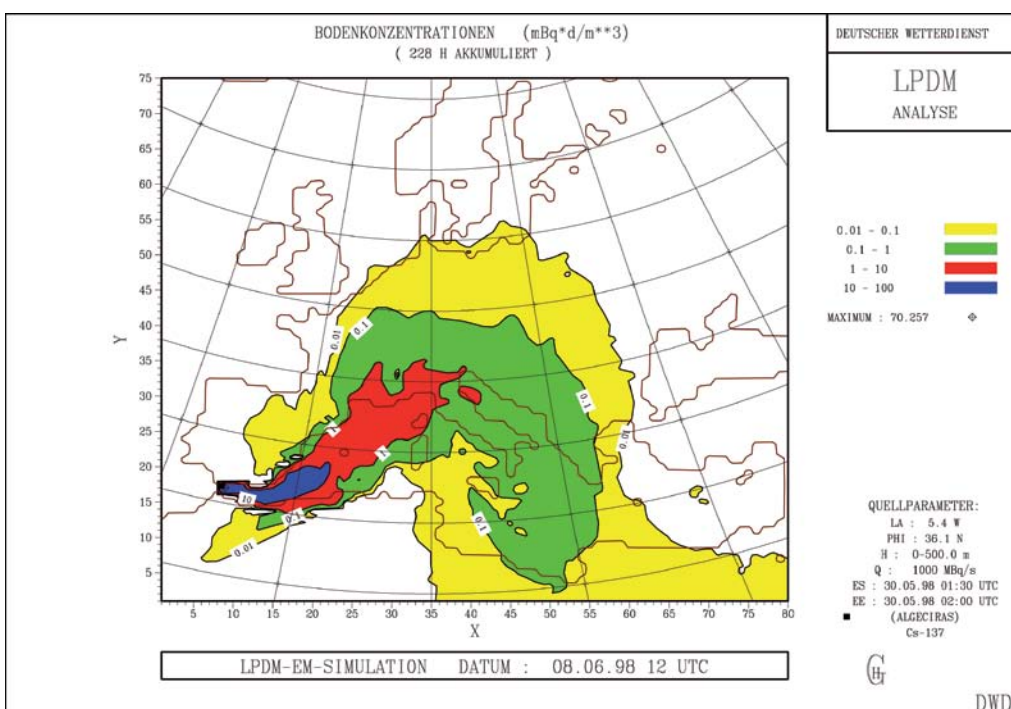


Bild 1:
Ausbreitung der
Cs-137-Aktivität aus
dem Stahlwerk in
Algeciras 1998.

Pflanzen eingelagerte Caesium kann z. B. durch Wald- und Moorbrände, die dort in dieser Jahreszeit häufiger auftreten, in die Atmosphäre gelangen und über große Entfernungen transportiert werden.

- Cobalt-58 (Co-58, Gammastrahlen emittierend, Halbwertszeit 70,9 Tage) ist ein Radionuklid, das u. a. auch in der Nuklearmedizin eingesetzt werden kann, um den Stoffwechsel von Vitamin B₁₂ zu untersuchen. Das entsprechende Verfahren nennt sich Schilling-Test. In der 34. Woche 2003 wurde in Braunschweig in nur einer von zwei gleichzeitig gesammelten Luftstaubproben eine winzige, aber deutliche Spur dieses Radionuklids gemessen. Sie betrug 0,056 µBq/m³, wobei die erreichte Nachweisgrenze (NWG) bei 0,013 µBq/m³ lag, während sie in der Parallelprobe unter der NWG von 0,026 µBq/m³ lag. In der fraglichen Woche kam der Wind an den meisten Tagen aus West bis Nordwest, und nur etwa einen Tag lang aus Süd bis Südwest, sodass eine genauere Herkunftsbestimmung schwierig ist. Eine Spur Co-58 wurde nochmals in der Woche 37, 2010, gemessen. Bild 3 zeigt den entsprechenden Ausschnitt aus den Gamma-spektren. In blau ist das Spektrum der einen Hälfte der Luftstaubprobe gezeigt, in der das Co-58 gefunden wurde und dessen Gammalinie in rot markiert ist. Das in grün zum Vergleich unterlegte Spektrum der anderen Hälfte zeigt an

dieser Stelle den üblichen Verlauf. Ein solcher Befund spricht dafür, dass nur ein einzelnes, winziges Teilchen (fachlich „heißes Teilchen“) in der fraglichen Luftstaubprobe vorliegt. Im Vergleich zu Co-58 ist die Linie des Cs-137, die den damals üblichen Aktivitätskonzentrationen entspricht, in beiden(!) Spektren sehr viel deutlicher sichtbar.

- Die Aktivitätskonzentrationen der natürlich radioaktiven Nuklide Be-7, Na-22, K-40 und Pb-210 lagen in der Kalenderwoche 38 (2003) im Vergleich zur Vorwoche und zur Folgewoche recht hoch (Tabelle 1). Das ist zunächst überraschend, weil Be-7 und Na-22 an sehr kleinen Staubkörnern gebunden sind, die aus der Stratosphäre zum Boden sinken. Dagegen sind K-40 und Pb-210, das als Radionuklid der Uran-Zerfallsreihe auftritt, für größere Staubteilchen typisch, die überwiegend von der Erdoberfläche aufgewirbelt oder als Flugstaub aus Heiz- und Industrieanlagen emittiert werden.

Tabelle 1:
Aktivitätskonzentration natürlicher Radionuklide in der Luft in Braunschweig, in µBq/m³.

Woche	Be-7	Na-22	K-40	Pb-210
37, 2003	2318	0,21	4,0	209
38, 2003	5847	0,51	11,8	1137
39, 2003	3135	0,24	10,8	344

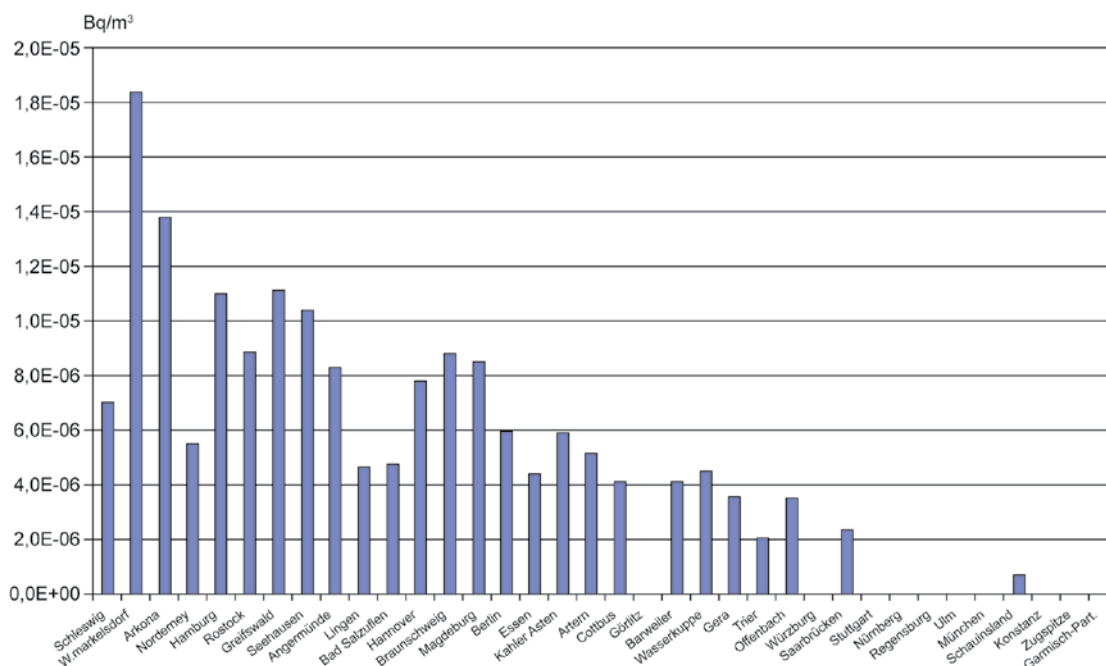


Bild 2:
Aktivitätskonzentration von Cs-137 in der Luft an den Messstationen des DWD, der PTB in Braunschweig und des BfS auf dem Schauinsland in der 35. Kalenderwoche 2002, in Bq/m³.

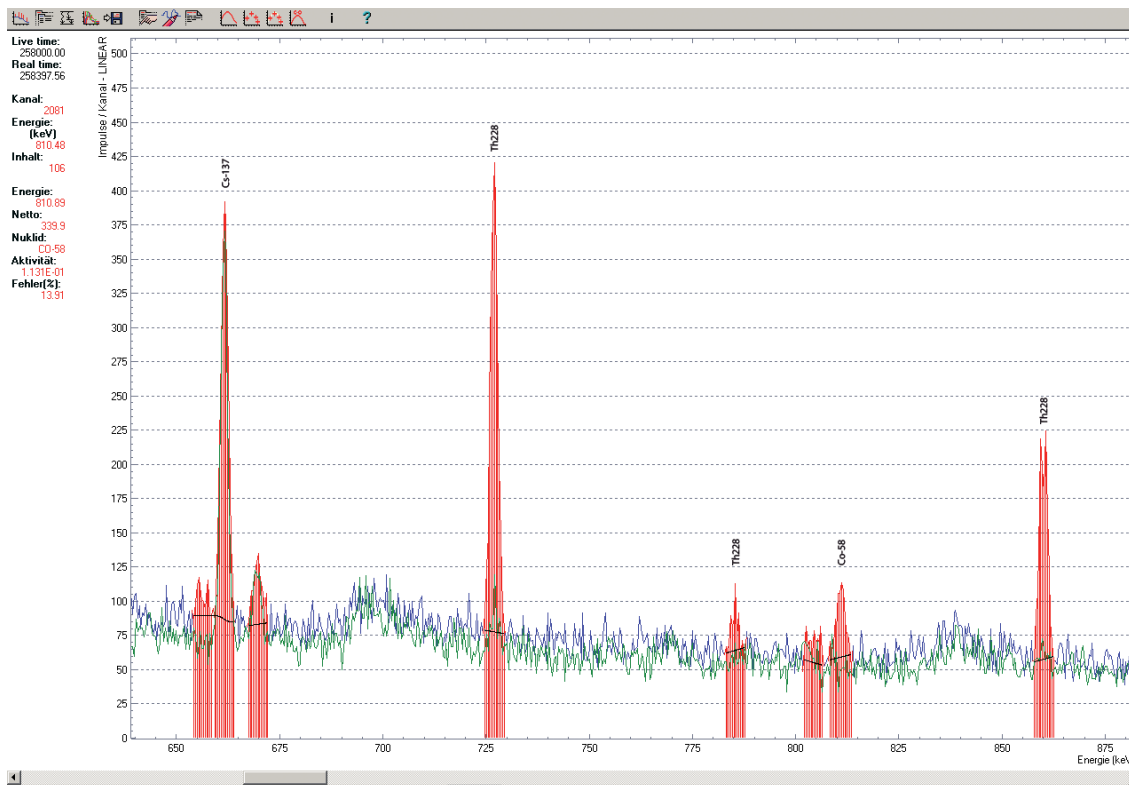


Bild 3:
Nachweis von Co-58
in der Woche 37,
2010. In blau das
Spektrum des Teils
der Luftstaubprobe,
in der das Co-58
gefunden wurde.

Meteorologische Berechnungen (fachlich „Trajektorienrechnungen“) der Zugbahnen der Luftmassen, die in der 38. Woche Braunschweig erreichten, brachten die Erklärung: In der ersten Wochenhälfte hatte eine Inversionswetterlage geherrscht, bei der kaum Wind weht und sich Staub anreichert. Zum Wochenende trat dann eine markante Wetteränderung ein, die mit einer heftigen Durchmischung der Atmosphäre einherging. So erreichte stratosphärische Luft, die sich fünf bis sechs Tage vorher in einer Höhe von bis zu 15 km über den USA und Kanada befunden hat, sehr schnell Braunschweig und trug relativ viel Be-7 und Na-22 ein. Meteorologen bezeichnen solch ein Wetterphänomen als „Einbruch stratosphärischer Luftmassen“ oder kurz als „Stratosphäreneinbruch“.

- I-131, ein in der Öffentlichkeit recht bekanntes künstliches Radionuklid, fällt immer wieder mal auf. Sein Bekanntheitsgrad beruht zum einen auf seiner Anwendung in der Nuklearmedizin zur Therapie von Schilddrüsenkrebs und zum anderen auf der möglichen Freisetzung aus kerntechnischen Anlagen. Es hat eine Halbwertszeit von acht Tagen und gilt daher als Indikator-Nuklid für Freisetzungen aus Anlagen, die sich in Betrieb befinden oder kurz vorher noch befunden haben. Die Freisetzungen von Tschernobyl im April 1986 und aus Fukushima im März 2011 sind hierfür die bekanntesten Beispiele. Weniger bekannt ist, dass es im August 2008 in einer Isotopenproduktionsanlage in Fleurus, Belgien, zu einer I-131-Freisetzung

kam, die in weiten Teilen Westeuropas messbar war [4]. In den Luftstaubproben der PTB war das Signal so schwach, dass es in Höhe der Nachweisgrenze lag. Die Isotopenproduktionsanlage, eine von nur wenigen in der Welt, wurde nach dem Zwischenfall stillgelegt, was zu einem starken Mangel an I-131 für die Krebspatienten führte. Zur gleichen Zeit waren einige der übrigen Produktionsanlagen gerade in Revision oder im Umbau, sodass der weltweite Bedarf an I-131 nicht mehr gedeckt werden konnte.

- Viele Spurenmessstellen in Mittel- und Nordeuropa haben im Herbst 2011 deutliche Spuren von I-131 gemessen, das als Folge eines Defektes der Filteranlagen in einer Produktionsanlage für nuklearmedizinische Präparate in Budapest emittiert wurde. Damals wurde zunächst das informelle Netzwerk der Europäischen Spurenmessstellen, der „Ring of Five“ (Ro5) aktiv, in dem sich die Spurenmessstellen über eine E-Mail-Verteilerliste gegenseitig informieren, wenn an einer Spurenmessstelle ein auffälliges Messergebnis auftritt. Über diesen Weg erhielten sehr bald auch die nationalen Strahlenschutzbehörden ihre Informationen. Schließlich wurde auch die Notfallschutz-Abteilung der Internationalen Atomenergie Agentur (IAEA) in Wien aktiv, um die Quelle der Kontamination zu finden. Die Ergebnisse der Quellenermittlung und die radiologische Bewertung der Messwerte wurden der Öffentlichkeit damals auf der Internetseite der IAEA mitgeteilt und fanden auch in den Medien eine gewisse Resonanz.

- Anfang 2012 berichteten Kollegen aus Osteuropa über deutliche Nachweise von I-131 und teilweise auch von Cs-137 in ihren Luftproben. Während die Erhöhung der Aktivitätskonzentration des Cs-137 auch mit den regelmäßig im Winter zu beobachtenden Einträgen von „Tschernobyl-Cs-137“ erklärbar war, musste das kurzlebige I-131 aus einer in Betrieb befindlichen Anlage stammen. Wegen des weiträumig in Europa messbaren Eintrags war es unwahrscheinlich, dass die Emissionen aus einer nuklearmedizinischen Klinik stammten. In diesem Fall blieb die Herkunft des I-131 ungeklärt. Als Ergebnis der Auswertung der meteorologischen Trajektorien- bzw. [Ausbreitungsrechnungen](#), blieb nur die etwas vage Vermutung übrig, dass es sich möglicherweise um eine Emissionsquelle in Westrussland handeln könne.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass auf dem Pegel von Spuren immer wieder kurzfristig auftretende und manchmal auch überraschende Messergebnisse beobachtet werden, die – glücklicherweise – meistens von vernachlässigbar geringer [Dosisrelevanz](#) sind. Es ist jedoch trotzdem wichtig, solchen Spuren nachzugehen und die Quellen der Kontaminationen zu klären. In den letzten Jahren mehren sich z. B. Befunde, die zeigen, dass es auch in Deutschland durch die zunehmende Verbrennung von Holzpellets in Öfen und Heizungssystemen zu einer Erhöhung der Aktivitätskonzentration von Cs-137 in der Luft kommt. Es gibt belastbare Hinweise aus Griechenland [5], dass dort beobachtete Erhöhungen auf den steigenden Einsatz von Holz in Heizungen zurückgeführt werden können, weil die Bevölkerung als Folge der Wirtschaftskrise auf diesen billigeren Brennstoff ausweicht. Manchmal bleiben Vermutungen über Freisetzungen letztlich das, was sie sind: Vermutungen. Ein Kollege aus Norwegen fand im April 2013 einen Video-Beitrag im Internet [6] über die Freisetzung von Cs-137 in der Stadt Elektrostal, die östlich von Moskau liegt. Anlass der Recherche waren Informationen im Ro5 aus Finnland, wo Erhöhungen der Aktivitätskonzentration von Cs-137 aufgetreten waren, die über dem im Winter üblichen Ausmaß lagen. Etwas später, nachdem auch an weiteren Stationen in Skandinavien schwache Cs-137-Erhöhungen erkennbar waren, begann der norwegische Kollege

seine Recherchen und stieß auf das Video. Die darin geschilderte mögliche Freisetzung in Elektrostal könnte die beobachteten Messergebnisse erklären. Diese Freisetzung konnte aber nie bestätigt oder widerlegt werden.

Fazit

Die Spurenmessung radioaktiver Stoffe in der bodennahen Luft ist eine spannende Aufgabe, die mehr als nur radiochemisches und radiometrisches Fachwissen verlangt. Sie findet im Rahmen des öffentlichen Interesses statt, damit notwendige Informationen dann vorliegen, wenn sie aus aktuellem Anlass benötigt werden. ■

Literatur

- [1] Empfehlung der Strahlenschutzkommission: Ermittlung der Vorbelastung durch Radionuklid-Ausscheidungen von Patienten der Nuklearmedizin, SSK-Geschäftsstelle, Bonn, 16.12.2004 www.ssk.de/SharedDocs/Beratungsergebnisse_PDF/2004/Radionuklid_Ausscheidungen.html?nn=3352592 (abgerufen am 29.02.2014)
- [2] H. Kämper und J. Thierauf: Die Dekontaminationsausbildung der ABC-Abwehrtruppe in Bourges. *Truppenpraxis* 3/1987, 302–308
- [3] Bericht „Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 1998 bis 2001, Daten und Bewertung, Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz“, BfS-Schriften, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, November 2002
- [4] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 2008, Postfach 12 06 29, 53048 Bonn (abrufbar im März 2014 über das BfS unter www.bfs.de/de/bfs/publikationen/berichte/umweltradioaktivitaet/JB_archiv.html/#2008)
- [5] S. Stoulos, A. Ioannidou, E. Vagenas, P. Koseoglou, M. Manolopoulou: Post-Chernobyl ¹³⁷Cs in the atmosphere of Thessaloniki: a consequence of the financial crisis in Greece, *Journal of Environmental Radioactivity* **128** (2014), 68–74
- [6] YouTube Video (in Russisch): www.youtube.com/watch?v=uETl6LjwYG0 (abgerufen am 21.05.2014)

Glossar

Aktivität

Die Aktivität eines Radionuklids ist die Anzahl der Kernumwandlungen (= Zerfälle) in einem Zeitintervall. Dabei entspricht die Aktivität dem Erwartungswert für die Anzahl der spontanen Kernumwandlungen in diesem Zeitintervall. Zur Angabe der Aktivität gehört auch die Angabe des betreffenden Radionuklids und des Bezugszeitpunktes.

Aktivitätskonzentration

Die Aktivitätskonzentration eines radioaktiven Stoffes oder Radionuklids ist der Quotient aus der im Stoff enthaltenen Aktivität und dessen Volumen in Bq/m^3 , in Luft meist in $\mu\text{Bq/m}^3$.

Ausbreitungsrechnung

Meteorologen bezeichnen als Ausbreitungsrechnung die Ermittlung der Verteilung und der Verdünnung von Schadstoffen in der Atmosphäre. Dazu wird die Wetterlage an einem bestimmten Ort, meistens an der Erdoberfläche, und die Konzentration eines Stoffes benötigt. Liegen noch keine Messwerte für die Konzentration vor, kann auch eine Konzentration angenommen werden. Dann werden mit Hilfe der aus dem weltweiten meteorologischen Wetterdatennetz verfügbaren Wetterdaten die Luftmassenbewegungen für den interessierenden Zeitraum berechnet. Das kann sowohl „vorwärts“, also in die Zukunft gerichtet, oder rückwärts, also in der Vergangenheit, erfolgen. Ist nur die Zugbahn einer Luftmasse, die sogenannte „Trajektorie“ gefragt, liefern diese sehr aufwendigen Computerprogramme als Ergebnis der „Trajektorienrechnung“ die entsprechenden „Vorwärtstrajektorien“ oder „Rückwärtstrajektorien“. Werden in den Berechnungen auch Effekte wie Auswaschung durch Regen, das Absinken von Staubteilchen, radioaktiver Zerfall oder chemische Umwandlungen berücksichtigt, lassen sich aus diesen eigentlichen „Ausbreitungsrechnungen“ realistische Rückschlüsse ziehen, an welchem Ort und nach welcher Zeit welche Konzentrationen des Schadstoffes erwartet werden können bzw. vorgelegen haben. Im Fall radioaktiver Stoffe werden diese Konzentrationen für die Ermittlung der als Folge einer Luftkontamination zu erwartende Strahlendosis herangezogen.

Dosisrelevanz

Die Dosisrelevanz, also die Bedeutung einer Strahlendosis, wird meist durch Vergleich mit der natürlichen Strahlendosis bewertet. In Deutschland beträgt der Mittelwert der natürlichen Strahlendosis pro Person etwa 2 Millisievert im Jahr (mSv/a). Je nach der geografischen Höhe und den geologischen Verhältnissen des Aufenthaltsorts kann sie zwischen 1 mSv/a und bis über 10 mSv/a betragen. Daher gelten zusätzliche Strahlendosen, die im Bereich dieser Schwankungsbreite liegen, als nicht relevant.

Dotierte Luftstaub-Referenzfilter

Dotierte Luftstaub-Referenzfilter enthalten eine genau bekannte Menge eines oder mehrerer Radionuklide. Sie werden für Ringvergleiche hergestellt, die zur Qualitätssicherung der Messungen gefordert sind. Ein international anerkanntes Referenzmaterial „Luftstaub“ mit genau bekannten Gehalten radioaktiver Stoffe ist derzeit und auch in absehbarer Zukunft nicht verfügbar. Damit reale chemische Eigenschaften des Luftstaubs, die von Ort zu Ort unterschiedlich sind, erfasst werden, verwendet man bereits mit realem Luftstaub beladene Filter.

Effektive Dosis

Die effektive Dosis ist ein Maß für das gesamte Risiko, das sich als Folge einer Strahleneinwirkung ergibt. Die effektive Dosis ist die Summe der mit den Gewebewichtungsfaktoren multiplizierten Organ Dosen aller relevanten Organe und Gewebe des gesamten Organismus.

Eigenaktivität

Unter der Eigenaktivität z. B. eines Gammask spektrometers wird der Gehalt an radioaktiven Stoffen im Detektor, seinen Komponenten und der Abschirmung verstanden. Überwiegend sind das natürliche radioaktive Stoffe der Zerfallsreihen von Uran und Thorium sowie Kalium-40.

Expositionspfad

Ein Expositionspfad ist im radioökologischen Sinn der Weg, auf dem ein radioaktiver Stoff aus der Umwelt in die Nähe des Menschen gelangt oder sogar von den Menschen aufgenommen wird. Typische Beispiele sind die Ausbreitung mit der Luft oder dem Wasser, wobei radioaktive Stoffe in der Luft eine direkte Strahlendosis von außen hervorrufen und eine innere Strahlendosis bewirken, nachdem sie eingeatmet wurden. Ein etwas komplexeres Beispiel ist der „Weide-Kuh-Milch-Pfad“. Hier werden radioaktive Stoffe auf der Weide abgelagert, die Kuh nimmt sie mit dem Futter auf, dann gelangen sie zu einem bestimmten Anteil in die Milch und mit dieser in die menschliche Nahrungskette.

Ge(Li)-Bohrloch-Detektor

Ein Ge(Li)-Bohrloch-Detektor ist ein Kristall aus Germanium (Ge), der in einer dünnen Schicht mit Litium (Li) dotiert ist. In einem Ge-Kristall löst eindringende ionisierende Strahlung elektrische Impulse aus. Im Kristall eines Bohrloch-Detektors befindet sich eine zentrale Bohrung, in der Messpräparate zur Erhöhung der Messempfindlichkeit gemessen werden. Ge(Li)-Detektorsysteme sind nur noch selten in Gebrauch.

Gewebewichtungsfaktor

Der Gewebewichtungsfaktor w_T dient der Ermittlung der effektiven Dosis. Er berücksichtigt die relativen Beiträge der einzelnen Gewebe und Organe. Der Gewebewichtungsfaktor ist ein Maß für das Strahlenrisiko der einzelnen Organe, verglichen mit dem Strahlenrisiko des gesamten Organismus.

Halbwertszeit

Die Halbwertszeit ($T_{1/2}$) eines Radionuklids ist diejenige Zeitspanne, in der dessen Aktivität auf die Hälfte abnimmt. Neben dieser für ein bestimmtes Radionuklid charakteristischen „physikalischen Halbwertszeit“ gibt es im Strahlenschutz noch die „biologische Halbwertszeit“, die besagt, nach welcher Zeit die in einen lebenden Organismus aufgenommene Aktivität durch biologische Vorgänge ausgeschieden wird. Werden biologische und physikalische Prozesse gemeinsam betrachtet, ergibt sich schließlich die „effektive Halbwertszeit“, die nur für ein bestimmtes Gewebe oder ein bestimmtes Lebewesen charakteristisch ist.

HPGe-Bohrloch-Detektor

HPGe-Bohrloch-Detektoren bestehen aus einem Halbleiterdetektor aus hochreinem Germanium (High Purity Germanium, Kurzbezeichnung HPGe). In einem Ge-Kristall löst eindringende ionisierende Strahlung elektrische Impulse aus. Im Kristall eines Bohrloch-Detektors befindet sich eine zentrale Bohrung, in der Messpräparate zur Erhöhung der Messempfindlichkeit gemessen werden. HPGe-Detektoren haben die wartungsaufwendigeren Ge(Li)-Detektorsysteme weitgehend ersetzt.

In-situ-Messung

„In-situ“ ist lateinisch und bedeutet „am Ort“. Zur Bestimmung radioaktiver Kontaminationen in der Umwelt bedeutet das die Messung in der freien Natur. Meistens werden stationäre oder mobile Gammaskpektrometer eingesetzt, die eine schnelle Information über die Art und Menge der vorliegenden Radionuklide erlauben. In-situ-Messungen zur Bestimmung von Alpha- oder Betastrahlen emittierenden Radionukliden sind i. Allg. nicht vor Ort, sondern erst nach einer Probenaufarbeitung in einem radioanalytischen Labor möglich.

Integriertes Mess- und Informations-System (IMIS)

Das Integrierte Mess- und Informations-System wurde nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl von 1986 eingerichtet, um in Deutschland nach einheitlichen Mess- und Auswerteverfahren die in der Umwelt vorhandenen radioaktiven Stoffe zu messen und radiologisch zu bewerten. Die gesetzliche Grundlage ist das Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) von 1987.

Kosmogener Ursprung

Kosmogener Ursprung eines Radionuklides bedeutet, dass ein Radionuklid entweder aus einem direkten Eintrag aus dem Weltraum stammt, oder aus der Einwirkung teilchenförmiger Weltraumstrahlung, überwiegend hochenergetischer Protonen, auf die Atome und Moleküle in der Lufthülle gebildet wird.

Nachweisgrenze

Die Nachweisgrenze gibt an, welche minimale Aktivität eines Radionuklides gerade noch sicher über dem immer vorhandenen, meist natürlichen Untergrund einer Messapparatur oder eines Analyseverfahrens erkannt werden kann. Daher bedeutet eine Verbesserung, also eine Absenkung der Nachweisgrenze, gleichzeitig eine Erhöhung der Messempfindlichkeit.

NaI(Tl)-Bohrloch-Szintillationsspektrometer

Ein NaI(Tl)-Bohrloch-Szintillationsspektrometer nutzt einen Kristall aus Natriumiodid (NaI), der mit Thallium (Tl) dotiert ist. Im Kristall löst eindringende ionisierende Strahlung Lichtblitze (Szintillationen) aus. Das Energieauflösungsvermögen der NaI(Tl)-Detektoren ist im Vergleich zu Ge-Detektoren relativ schlecht, sodass sie in der hochauflösenden Gammaskpektrometrie keine praktische Bedeutung mehr haben.

Ortsdosis und Ortsdosisleistung

Die an einem bestimmten Ort gemessene Dosis, fachlich die „Äquivalentdosis“ heißt Ortsdosis, und ist ein Maß für die dort von der Strahlung auf Materie übertragene Energiemenge. Die Ortsdosisleistung ist der Quotient aus der Ortsdosis und der Zeit, in der die Energie übertragen wurde, sie ist also das Maß für die Intensität der Strahlung an dem Ort.

Radionuklid

Als Radionuklid bezeichnet man ein radioaktives Atom im Grundzustand oder metastabilen Zustand. Es wird durch die Angabe des Elementsymbols sowie der zugehörigen Massenzahl gekennzeichnet, z. B. Sr-90, Tc-99m.

Radioökologisch

Die Radioökologie ist als Wissenschaft vom Verhalten radioaktiver Stoffe in der gesamten Umwelt ein Teilgebiet der Ökologie. Ein wesentlicher Aspekt ist die Ermittlung der Strahlenexposition des Menschen und der belebten Natur. Dabei sind die Identifizierung relevanter Expositionspfade sowie Kenntnisse von Transport-, Transfer- und Anreicherungsprozessen von besonderer Bedeutung. Radioökologische Kenntnisse sind die Grundlage für die Bewertung der Auswirkungen von Radionukliden, die z. B. aus kerntechnischen Anlagen in die Umwelt gelangen, sowie für Prognosen und Maßnahmen nach unfallbedingten Freisetzungen.

Repräsentativ

Repräsentativ bedeutet im Zusammenhang mit der Messung radioaktiver Stoffe in der Umwelt, dass eine Umweltprobe, die für eine Analyse oder Messung in ein Labor gebracht wird, den Zustand des gesamten Umweltmediums wiedergeben soll, aus dem sie entnommen wurde. In der Praxis ist dieser Idealzustand jedoch nicht immer erreichbar, wenn z. B. eine Boden- oder Gemüseprobe von einem großen Feld oder eine Wasserprobe aus einem Fluss entnommen werden soll.

Risiko

Der Begriff Risiko wird unterschiedlich definiert. Gemeinsam ist allen Definitionen des Risikos, dass es als Ereignis mit der Möglichkeit negativer Auswirkungen beschrieben wird. Als Risiko wird allgemein das Produkt aus Eintrittswahrscheinlichkeit eines Ereignisses und dessen Konsequenz verstanden. Im Strahlenschutz bedeutet das, dass nach einer einmal eingetretenen Strahlenexposition mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit eine negative Folge, z. B. eine Krebserkrankung, eintreten kann, die den Tod zur Folge hat.

Terrestrischer Ursprung

Terrestrischer Ursprung eines Radionuklides bedeutet, dass ein Radionuklid aus der Erde, also aus Gestein, aus dem Boden oder aus daraus hergestellten Baustoffen stammt. Meist handelt es sich um Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen von Uran und Thorium oder um besonders langlebige Radionuklide wie z. B. K-40, die seit der Entstehung der Milchstraße noch nicht zerfallen sind, die sogenannten „primordialen“ Radionuklide.

Spalt- und Aktivierungsprodukte

Spalt- und Aktivierungsprodukte entstehen als Folge von Kernumwandlungen. Spaltprodukte sind Radionuklide, die durch Spaltung von Atomkernen entstanden sind. Auch die Folgeprodukte der primär entstandenen Spaltprodukte werden als Spaltprodukte bezeichnet. Aktivierungsprodukte entstehen, wenn durch Kernreaktionen, z. B. mit Neutronen, Protonen oder anderen Teilchen, aus stabilen Atomkernen Radionuklide entstehen.

Sievert

Das Sievert ist die Einheit der Äquivalentdosis, der Organdosis und der effektiven Dosis. Das Einheitenzeichen ist Sv. Benannt ist sie nach dem schwedischen Mediziner und Physiker Rolf Sievert. Eine Dosis von 1 Sv bedeutet, dass von der Strahlung auf ein Kilogramm Materie eine Energiemenge von 1 Joule übertragen wird. Im Strahlenschutz werden i. Allg. Dosen im Bereich von Milli-Sievert (mSv) betrachtet.

Strahlenexposition

Als Strahlenexposition bezeichnet man die Einwirkung von Strahlung z. B. auf den menschlichen Körper. Im Strahlenschutz unterscheidet man zwischen der äußeren bzw. externen Strahlenexposition, die durch Strahlungsquellen außerhalb des menschlichen Körpers hervorgerufen wird, und der inneren Strahlenexposition, die durch Strahlungsquellen innerhalb des menschlichen Körpers hervorgerufen wird.

Weiterführende Quellen im Internet

Ein Teil des vorstehenden Glossars wurde in Anlehnung an das „Glossar zu den Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“ verfasst, das auf der Internetseite des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit abrufbar ist:
www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/messanleitungen/

Spurenmessstelle der PTB:

www.ptb.de, dann > Fachabteilungen > Abt. 6
ionisierende Strahlung > 6.1 Radioaktivität > 6.12
Umweltradioaktivität > Spurensuche: Messung von
Radionukliden in der bodennahen Luft

Bundesamt für Strahlenschutz:

www.bfs.de/de/ion/imis

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau
und Reaktorsicherheit:

www.bmub.de, dann > Die Themen >
Atomenergie & Strahlenschutz > Radioaktivität in
der Umwelt

Deutscher Wetterdienst:

www.dwd.de, dann > Klima + Umwelt > Überwachung der Radioaktivität

Danksagung

Die vorliegende Zusammenstellung der Geschichte der Spurenmessstelle der PTB und ihre Einbindung in die Überwachung der Umweltradioaktivität in Deutschland wäre ohne die Mitwirkung kompetenter Kolleginnen und Kollegen nicht möglich geworden.

Daher danken wir Dr. Reimund Stapel vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) für die Darstellung der Aufgaben der Spurenmessstellen aus der Sicht des Auftraggebers. Herrn Dr. Axel Dalheimer, Herrn Hubert Glaab und Herrn Dr. Steinkopf vom Deutschen Wetterdienst (DWD) gilt unser Dank für die Erläuterung der Einbindung des DWD in den Messbetrieb und die Beschreibung der für die Messdateninterpretation unverzichtbaren meteorologischen Produkte des DWD. Ein herzliches Dankeschön sagen wir unserer Kollegin Frau Jacqueline Bieringer und ihrem Kollegen Herrn Clemens Schlosser für die Schilderung der koordinierenden Arbeiten der „Leitstelle Spuren-messung“ und deren Einbindung in die nationale und internationale Überwachung radioaktiver Stoffe in der Luft.

Herrn Prof. Dr. Clemens Walther vom Institut für Radioökologie und Strahlenschutz der Leibniz Universität Hannover danken wir für seine Beiträge zur Radioökologie des I-129 und zur dosimetrischen Bewertung der in der Luft messbaren Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden.

Nicht zuletzt gilt unser Dank allen derzeitigen und ehemaligen Mitarbeitern und Mitarbeiterinnen aller an der Spurenmessung beteiligten Behörden und Institute, die mit Ihren praktischen Arbeiten an den Probenahmestandorten, in Labors und Messräumen einen wesentlichen Beitrag zur zuverlässigen Spurenmessung leisten. Besonders danken wir den gegenwärtigen und ehemaligen Mitarbeitern der PTB in der Spurenmessstelle, in den Werkstätten, der Bau- und Geländeunterhaltung und auch der PTB-Fahrbereitschaft, die in den vergangenen 50 Jahren auf „Skandinavienfahrten“ zum erfolgreichen Betrieb der PTB-Luftstaubsammler, die während der Forschungsprojekte in Norwegen und Schweden im Einsatz waren, beigetragen haben.

Last, but not least geht mein Dank an Frau Susanne Stork aus der Bildstelle und die Mitarbeiter der Stabsstelle Presse- und Öffentlichkeitsarbeit der PTB, Frau Imke Frischmuth, Frau Gisela Link und Frau Sabine Siems für ihre redaktionelle Betreuung. Herrn Dr. Dr. Jens Simon (Presse-sprecher) danken wir für die Anregung zu diesem Schwerpunktthema.

Herbert Wershofen

Force Metrology

The measurement of forces in mechanical engineering, in aerospace and in the energy and building industries needs procedures to guarantee nominal values for force transducers up to 30 MN with suitable traceability. Newly developed force transfer standards, configured as a build-up system of several reference transducers, have therefore to be investigated. In addition, parasitic components and different loading effects will be analyzed in order to consider these effects if the devices are used in industrial applications.

Motivation

In Europe, there is an increasing demand to measure high nominal forces up to 30 MN, or higher, in many industrial applications such as, e.g., in civil engineering, or for the monitoring of forces in bridges and for the testing of steel and concrete materials. NMIs and calibration laboratories in industry usually use force standard machines with deadweights, hydraulic amplification, lever amplification, reference transducers or build-up systems to cover the force range up to 15 MN. However, there are neither written standards nor technical regulations for the consideration of parasitic components, multi-component influences or different time dependencies. Reliable models for the extrapolation of measurement results exceeding their calibration range have to be developed in this project to cover forces up to 30 MN and, in future, up to 50 MN.

Objectives

The aim of this JRP is

- to improve the range of primary force standards from 1 MN up to 30 MN and to cover the range from 1 MN to 50 MN by force transfer standards,
- to develop improved transfer standards for forces up to 30 MN and 50 MN,
- to create uncertainty models for build-up force measurement systems for the high-force range,
- to develop methods to extrapolate calibration results for values higher than 15 MN force.

Dissemination

This project will generate new procedures, new software and new EURAMET technical guidelines for users in calibration and testing laboratories for the use of high-force measurement devices, for methods of uncertainty calculation, and for improvements in the dissemination of force, from the primary standards to the calibration services and testing laboratories. In addition, the integration of these results into the relevant standards is another strategy to disseminate the results.

EMRP

European Metrology Research Programme
■ Programme of EURAMET



The EMRP is jointly funded by the EMRP participating countries within EURAMET and the European Union

In brief:

- 3-year European project to extend the range of force of transfer standards to 30 MN or 50 MN
- Tools, software and technical guidelines for users in calibration and testing laboratories
- Stakeholders are welcome to follow the findings at the JRP website below

Partners and Associates

PTB	Germany
BAM	Germany
CEM	Spain
CMI	Czech Republic
INRIM	Italy
LNE	France
METAS	Switzerland
MG	Poland
MIKES	Finland
NPL	United Kingdom
TUBITAK	Turkey

Rolf Kumme
Solid Mechanics
Phone: +49 531 592-1200
Email:
rolf.kumme@ptb.de

EMRPEuropean Metrology Research Programme
■ Programme of EURAMET

The EMRP is jointly funded by the EMRP participating countries within EURAMET and the European Union

Improving microfabrication by monitoring airborne molecular contamination

There is a clear demand from industry for the continuous measurement and control of airborne molecular contamination (AMC). Thus, in May 2013, a € 2.9 million project was started by the European Association of National Metrology Institutes for a 3-year period to improve the detection of AMCs. The project encompasses a multitude of national metrology institutes (NMI) and other stakeholders.

In brief:

- European research project to measure airborne contaminants in manufacturing environments
- Improvements of analytical capabilities and reference standards
- Stakeholders and collaborators are welcome to link themselves to the project

Partners and Associates

MIKES	Finland (Coordination)
CMI	Czech Republic
INRIM	Italy
NPL	United Kingdom
PTB	Germany
VSL	The Netherlands
HC Photonics Corporation	Taiwan

Dr. Olav Werhahn
(Metrology in Molecular Spectroscopy)
Phone: +49 531 592 3123
Email: olav.werhahn@ptb.de

Dr. Tuomas Hieta
(project coordinator)
MIKES, Tekniikantie 1, P.O. Box 9
FI-02151 Espoo
Phone +358 505 110 058
Email: tuomas.hieta@mikes.fi

Motivation

Recent progress in quantitative molecular spectroscopy has brought the detection limits of typical contaminants to ppb ("parts per billion") and even sub-ppb, a level that meets the industrial needs for AMC measurements. In particular, laser-based techniques have reached such a technical maturity that their use in an industrial environment has become realistic. However, the high adsorptivity of the common AMCs combined with their very low concentration, make sampling as well as transportation and the generation of calibration gases challenging.

Objectives

PTB is contributing to this project with the optimization and validation of two commercial instrument types, a photoacoustic spectrometer (PAS) and a cavity ring-down spectrometer (CRDS) for ammonia (NH₃) monitoring. Both spectroscopy techniques exhibit an exceptionally high sensitivity, which enables detection limits of NH₃ in the sub-ppb range. Based on two typical instruments, the two techniques will be characterized with regard to their detection limits, precision, reproducibility and response time, as well as to their measurement uncertainty. Test measurements in a real clean-room environment are additionally planned within the scope of the project.

Dissemination

The results of the technical work packages will be available to the European stakeholders in the semiconductor industry, in micro fabrication, (e. g. in MEMSs), and to manufacturers of optical instrumentation. The project will provide new measurement instruments and services, by disseminating good practice guides on AMC monitoring, by organizing workshops and training courses, by participation in standards organizations or via IP protection.

Large Volume Metrology in Industry

Large volume metrology (LVM) – the ability to measure the size, position, orientation and form of large objects or machine tools – is a critical requirement in many key industries in which the EU is globally competitive, such as in aerospace, automotive and civil engineering, and in power generation. This project aims to unleash the potential of LVM by tackling some of the fundamental issues which today still hold back significant further progress.

Motivation

The achievable accuracy of state-of-the-art LVM systems, such as laser trackers, photogrammetry or indoor GPS, is limited by the ambient conditions, especially for users who work in non-ideal environments such as large factories or aircraft hangars. Issues such as the impact of the harsh environment on measurements, e. g. the thermally induced deformation of large structures, variations of the refractive index and their effect on length and angle measurements, and the incomplete implementation of traceability rules for flexible portable measuring devices, prevent a wider acceptance in industry and the exploitation of new applications. The dimensional inter-compatibility of large aviation parts manufactured in a multi-tude of factories across the world requires traceability in the machining and measuring systems, but the latest laser trackers do not fully exploit their potential accuracy, and large machine tools are difficult to verify in-situ, especially under harsh ambient conditions. To compete globally, the automated EU ‘Smart Factories of the Future’ will require ubiquitous metrology e. g. for production and assembly lines at sub-millimetre accuracy throughout the entire factory, but without installing expensive thermal environmental controls.

Objectives

The aim of this JRP is

- to realise several new measuring tools and techniques that are capable of operating in typical industrial production environments, to maximise the range of applications to volumes of 10 m × 10 m × 5 m and to a target accuracy of 50 µm,
- to develop new traceable absolute distance meters which operate over ranges of at least 20 metres,
- to develop both line-of-sight refractive index measuring systems as well as a novel multi-sensor system that can monitor and automatically compensate for the influence of refractive index variations on length measurements in space,
- to analyse new models for the behaviour of large multi-component structures (such as aircraft wing segments) in non-ideal measurement environments.

Dissemination

This project will generate and evaluate new measurement devices. The results will be disseminated via a series of technical papers in peer-reviewed journals, frequent progress reports to EURAMET TC-L and the CIPM Consultative Committee for Length, industry-focussed workshop and good practice guides.

EMRP

European Metrology Research Programme
■ Programme of EURAMET



The EMRP is jointly funded by the EMRP participating countries within EURAMET and the European Union

In brief:

- 3-year European project to develop new devices for large volume metrology
- Reduction of environmental effects to achieve an accuracy of tens of microns

Partners and Associates

NPL	United Kingdom
CNAM	France
INRIM	Italy
MG	Poland
PTB	Germany
UBATH	United Kingdom
UCL	United Kingdom
KIT	Germany

Dr. Florian Pollinger
Multiwavelength Interferometry for
Geodetic Lengths
Phone: +49 531 592-5420
Email: florian.pollinger@ptb.de

Vollversammlung für das Eichwesen 2013

Der Vizepräsident der PTB, Herr Prof. Dr. Peters, eröffnete am 27. November 2013 die 145. Vollversammlung für das Eichwesen (VV).

Im Rahmen des allgemeinen Teils der VV hielten folgende Redner zu aktuellen Themen Kurzvorträge:

- Dr. Leffler, BMWi: „Das neue Mess- und Eichgesetz – Alter Wein in neuen Schläuchen oder alles ganz anders?“
- Dr. Odin, PTB: „Kompetenznachweis der Eichbehörden durch Peer-Review und Begutachtung“
- Dr. Weberpals, AGME: „Aktuelles aus dem Bereich der Eichaufsichtsbehörden“
- Dr. Többen, PTB: „Eichrechtliche Anforderungen an Smart Meter Gateways (PTB-A 50.8)“

Die Präsentationen sind auf der Homepage der PTB (www.ptb.de) unter der Rubrik „Publikationen“, „Publikationen des gesetzlichen Messwesens“ abrufbar.

Zu Beginn der Arbeitssitzung begrüßte Herr Prof. Dr. Peters als Vorsitzender alle anwesenden Teilnehmer, besonders Herrn Stefan Kähne, der als neuer Leiter der ED Hessen erstmalig an der VV teilnahm. Zudem informierte er über Personaländerungen innerhalb der PTB im Bereich des gesetzlichen Messwesens. Im Jahr 2013 verstarb Herr Prof. Dr. Jäger, Leiter des Fachbereichs 1.3 „Geschwindigkeit“. Herr Dr. Bruns übernimmt zukünftig die Leitung dieses Fachbereichs. Mit der Leitung des Fachbereichs 3.3 „Thermophysikalische Größen“ wird Herr Dr. Fernandes und mit der Leitung des Fachbereichs 8.5 „Metrologische Informationstechnik“ gemeinsam die Herren Dr. Thiel und Prof. Dr. Richter beauftragt.

Die VV nahm die Tätigkeitsberichte der von ihr eingesetzten Vollversammlungs-Arbeitsausschüsse (VV-AA) zustimmend zur Kenntnis. Laut Beschluss der VV wird der Status der VV-AA bis zur VV 2014 wie folgt festgelegt (siehe Tabelle auf der Seite 69).

Auf Basis des neuen Mess- und Eichgesetzes (MessEG) müssen bis zu dessen vollständigem Inkrafttreten am 1. Januar 2015 die zurzeit gültigen Stichprobenverfahren zur Verlängerung der Eichgültigkeitsdauer von Verbrauchsmessgeräten (Wasserzähler, Wärmezähler, Gasmessgeräte und Elektrizitätszähler) überarbeitet werden. Die VV beauftragte die entsprechenden VV-AA mit

der Überarbeitung. Ferner erhielten die VV-AA „Wasserzähler“ und „Wärmezähler“ von der VV den Arbeitsauftrag, sich der Thematik der einseitigen Ausnutzung von Fehlergrenzen der jeweiligen Messgeräte anzunehmen.

Den folgenden Entwürfen bzw. Neufassungen von PTB-Anforderungen (PTB-A) und Technischen Richtlinien (TR) stimmte die VV zu [1]:

- PTB-A 18.3 „Geschwindigkeitsmessgeräte in Kraftfahrzeugen“
- PTB-A 18.11 „Geschwindigkeitsüberwachungsgeräte“
- PTB-A 18.12 „Rotlichtüberwachungsanlagen“
- PTB-A 18.13 „Video-Uhren“
- PTB-A 23.2 „Personendosimeter zur Messung der Tiefen- und Oberflächen-Personendosis“
- PTB-A 23.3 „Ortsdosimeter zur Messung der Umgebungs- und Richtungs-Äquivalentdosis und der Umgebungs- und Richtungs-Äquivalentdosisleistung“
- TR-W 2 „Volumen- und Durchflussmessgeräte als Gebrauchsnormale für die Prüfung von Wasserzählern“
- TR-G 18 „Anforderungen an Dauerreihenschaltung von zwei Ultraschallgaszählern“

Sie werden in die Liste der anerkannten Regeln der Technik aufgenommen und ersetzen ggf. vorherige Ausgaben. Die VV stimmte den PTB-A 50.8 „Smart-Meter-Gateway“ in der eingereichten, noch nicht vollständigen Version zu. Noch fehlende Abschnitte werden nach ihrer Fertigstellung schriftlich abgestimmt. Eine Veröffentlichung erfolgt erst nach der Vervollständigung.

Die Prüfanweisungen

- Gesetzliches Messwesen – Prüfanweisung für programmierbare Wegstreckenzähler (GM-P 18.1)
 - Gesetzliches Messwesen – Prüfanweisung Fahrpreisanzeiger / Taxameter (GM-P 18.2)
- wurden mit Zustimmung der VV angepasst. Als neue Ausgabe ersetzen sie die vorherigen [2].

Die VV vereinbarte folgende Vorgehensweisen bezüglich der Zulassung und Verwendung von Messgeräten bzw. deren Zusatzgeräten:

- Im Rahmen der Bauartzulassung von Messwandlern wird künftig die neue Normenreihe DIN EN 61849 (Teil 1-3) als anerkannte Regel der Technik angewendet.

- Geschwindigkeitsüberwachungsgeräte mit uhrzeitabhängigen Fotoauslösegrenzwerten werden künftig nur zugelassen, wenn dem Überwachungsgerät die gesetzliche Zeit zur Verfügung steht und Sicherungsmechanismen diese Zeitanbindung stetig überprüfen. Bei der Eichung ist die Zeitanbindung zu prüfen. Die erste Seite des dazugehörigen Eichscheins ist entsprechend den Vorgaben der Bescheinigungsrichtlinie zu gestalten.
- Smart-Meter-Gateways werden gemäß dem von der BSI-Task-Force „Betriebsprozesse“, Unterarbeitsgruppe 1 „Eichrechtliche Prozesse“ erarbeiteten Verfahren eichrechtlich behandelt.

Das Bundesministerium für Verkehr, Bau und Stadtentwicklung (BMVBS) beabsichtigt der Europäischen Kommission eine Anpassung der europäischen Preisauszeichnungsverordnung vorzuschlagen, mit der eine zusätzliche Preisanzeige für Kraftstoffe bezüglich eines Referenzkraftstoffs möglich wird. Zu diesem Themenkomplex bildete die VV einen Arbeitskreis unter der Leitung von Herrn Dr. Kramer, PTB AG 1.42 „Gasmessgeräte“. Die Mitglieder sind noch festzulegen.

Die nächste VV findet am 26. November 2014 in Braunschweig statt.

[1] PTB-Anforderungen und Technische Richtlinien werden auf der Homepage der PTB (www.ptb.de) unter der Rubrik „Publikationen“, „Publikationen des gesetzlichen Messwesens“ zum Herunterladen bereitgestellt. Sie können auch vom
Buch Express
Geranienweg 53 A
22549 Hamburg
Homepage: www.deutscher-eichverlag.de
bezogen werden.

[2] Prüfanweisungen (GM-P) können von der Deutschen Akademie für Metrologie (DAM) beim Bayerischen Landesamt für Maß und Gewicht (LMG)
Franz-Schrank-Straße 9,
80638 München
E-Mail: dam@lmg.bayern.de
Homepage: www.dam-germany.de
bezogen werden.

Arbeitsgruppe Q.31, Gesetzliches Messwesen

Nachtrag zur Vollversammlung für das Eichwesen 2013

Als Nachtrag zur VV 2013 gibt der PTB Arbeitsgruppe 1.31 „Geschwindigkeitsmessgeräte“ folgendes bekannt:

Bei Geschwindigkeitsüberwachungsgeräten, deren Drucksensoren in die Fahrbahn eingelassen sind, wird eine Kennzeichnung der Drucksensoren nicht als notwendig erachtet. Sie kann somit zukünftig entfallen.

Tabelle:

VV-AA „Wasserzähler“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Wärmezähler“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Gasmessung“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Elektrizitätsmessung“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Volumenmessanlagen“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Lagerbehälter und deren Messgeräte“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Waagen und Gewichtstücke“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Geschwindigkeitsmessgeräte“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Getreideanalytik“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Abgasmessgeräte“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Software“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Druck“	aktiv gemäß Zielsetzung
VV-AA „Qualitätsmonitoring“	ruht laut Beschluss VV 2013
VV-AA „Eichrechtkonforme Zeitzeichenempfänger“	aufgelöst durch VV 2013
VV-AA „Geschäftsordnung der VV“	ruht laut Beschluss VV 2008

Imke Frischmuth + Jens Simon (Hrsg./Editor)

Metrologisches Lesebuch

Messkunst in der PTB –

in der Vergangenheit, in der Gegenwart und für die Zukunft

Künstler nennen sie sich eher nicht, die Wissenschaftler und Techniker des Messens. Doch ihre Arbeit ist durchaus eine Kunst der besonderen Art, geht es ihnen doch um nicht weniger als darum, ihre Messungen so gut und so präzise, d. h. so kunstvoll wie irgend möglich auszuführen, um der technisch-wissenschaftlichen Welt einen vertrauenswürdigen Bezugsrahmen zu geben. In Deutschland hat diese Messkunst – oder genauer: die Metrologie, die Wissenschaft vom Messen – eine eindeutige Heimat: die Physikalisch-Technische Bundesanstalt. Wie dieser metrologische Bezugsrahmen aussieht, davon handelt dieses Lesebuch, indem es die institutionelle und wissenschaftliche Geschichte der PTB skizziert, die Möglichkeiten der heutigen Metrologie beleuchtet und die Ansprüche der großen metrologischen Zukunftsaufgaben umreißt.

DIN A4 | 336 Seiten | ISBN 978-3-86918-301-5

€ 34,90 (zzgl. Versand)



A Metrological Textbook

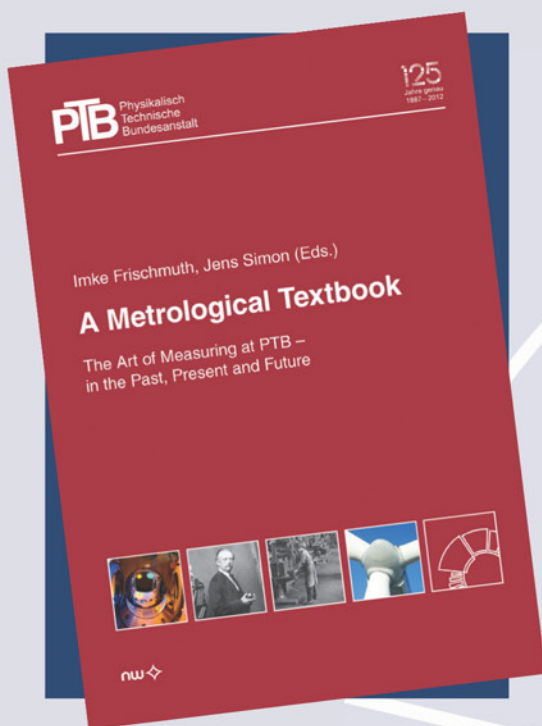
The Art of Measuring at PTB –

in the Past, Present and Future

They do not consider themselves as “artists” – the scientists and technicians of measurement. Nevertheless, their work is a special kind of “artistry” in which they aim for nothing less than to perform their measurements so well and so accurately, i.e., as artistically as ever possible, in order to provide the scientifictechnical world with a reliable frame of reference. In Germany, this art of measurement – or more precisely: metrology, the science of measurement – clearly has a home: the Physikalisch-Technische Bundesanstalt. What this metrological frame of reference looks like is the topic of this textbook. It outlines PTB’s institutional and scientific history, examines the potential of today’s metrology and defines the demands of metrology’s great future tasks.

DIN A4 | 336 Seiten | ISBN 978-3-86918-302-2

€ 34,90 (plus shipping costs)



Zu beziehen über den:
Carl Schünemann Verlag GmbH
Zweite Schlachtpforte 7 | 28195 Bremen
Tel. (04 21) 3 69 03-0 | Fax (04 21) 3 69 03-39 | www.schuenemann-verlag.de

Fachverlag NW
nw
im Carl Schünemann Verlag