

# 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 m<sup>3</sup> und der hohen Messempfindlichkeit der Messplätze typische Nachweisgrenzen von wenigen nBq/m<sup>3</sup> 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.

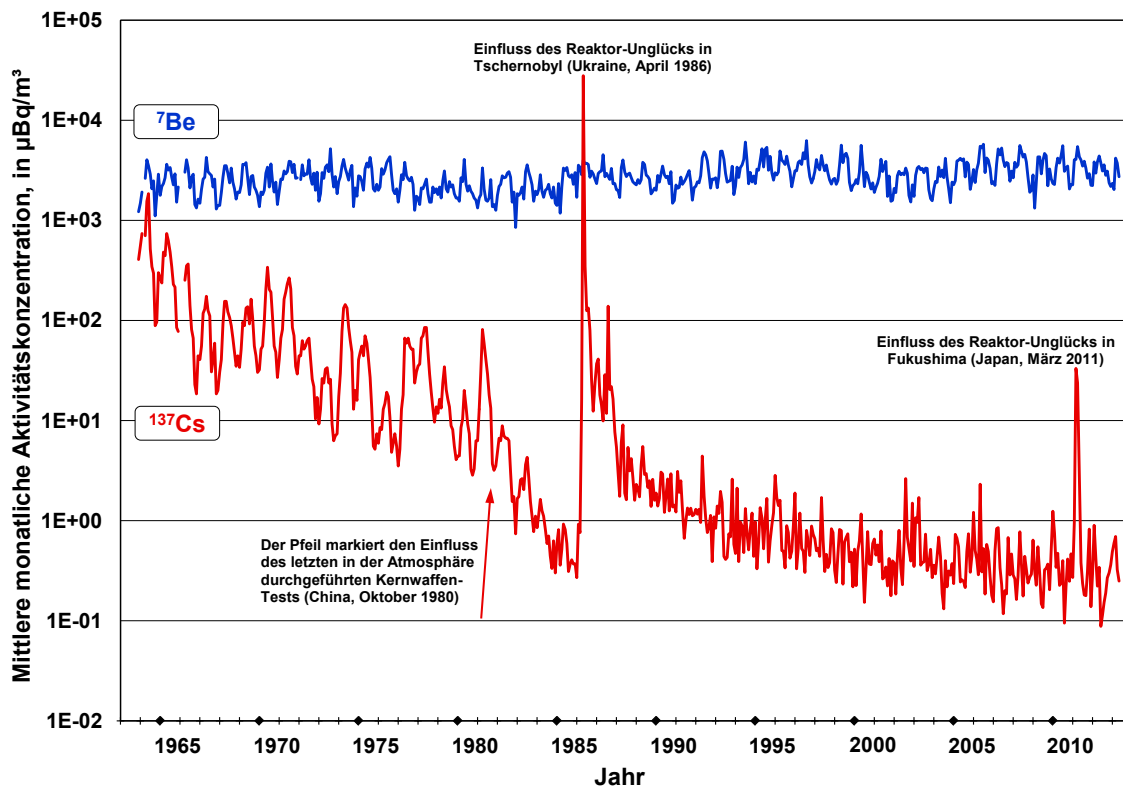


Bild 7: Das natürlich vorkommende Beryllium-7 ist stets in der Atemluft vorhanden. Seine Aktivitätskonzentration liegt, bis auf eine Ausnahme, deutlich über der des aus Waffentests und Reaktorunfällen stammenden Caesium-137.

### Radioökologischer Unterschied von Beryllium-7 und Caesium-137

Das natürliche Be-7 ist immer in einer Aktivitätskonzentration von einigen  $\text{mBq/m}^3$  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-

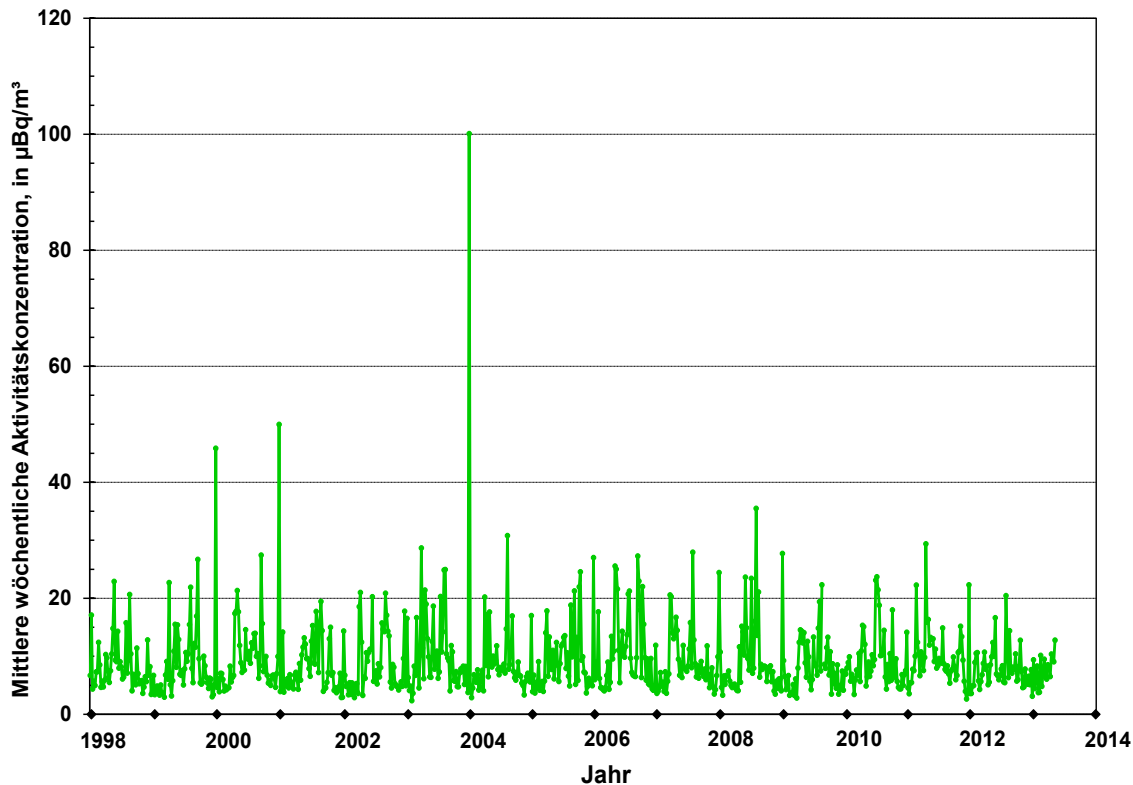


Bild 8:  
Die Aktivitätskonzentration des natürlichen Radionuklids Kalium-40 schwankt im Jahresverlauf. Sie wird unter anderem durch landwirtschaftliche Aktivitäten und Feuerwerke beeinflusst.

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 **NaI(Tl)-Bohrloch-Szintillationsspektrometer** gemessen. Die Nachweisgrenze lag bei etwa  $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . 1971 wurde das erste Gammasspektrometer mit einem **Ge(Li)-Bohrloch-Detektor** in Betrieb genommen, das eine deutlich bessere Energieauflösung bot, sodass die meisten Radionuklide direkt gemessen werden konnten. Mit Gammasspektrometern der darauffolgenden Generation mit **HPGe-Bohrloch-Detektoren**, sehr guter Energieauflösung und geringerer **Eigenaktivität** konnte die Nachweisgrenze bis auf  $10 \text{ nBq}/\text{m}^3$  verbessert werden. Diese enorme Steigerung der Messempfindlichkeit wurde nicht zuletzt auch durch die Erhöhung des Luft-



Bild 9:  
Luftstaubsammler 1983.