

Metrologie für Umwelt- und Klimaschutz



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

132. Jahrgang, Heft 3, Dezember 2022

**Metrologie für
Umwelt- und Klimaschutz**

Titelbild Quellen:
Gorodenkoff.Adobe Stock
bietau.Adobe Stock
IPCC

Inhalt

- Einleitung 5
F. Plag
- Umweltlärm: Metrologie für die Lärmmessung..... 7
C. Kling, C. Koch
- Wirkung neuer Lärmarten auf den Menschen: Infraschall und Luftultraschall 13
M. Bug, C. Koch
- PTB metrological infrastructure for the environmental dose assessment 21
*F. Krasniqi, U. Stolzenberg, M. Luchkov, V. Morosh,
P. Kramer, K. Kahnt, B. Reinelt, J. Kretzer, R. Zwiener*
- Uran und Plutonium in der Umwelt 33
D. Arnold, D. Zapata-García
- „RemoteALPHA“: Optische Detektionssysteme zur sicheren und zuverlässigen Messung
von Kontaminationsvorfällen mit Alpha-emittierenden Radionukliden. 39
*F. Krasniqi, M. Luchkov, V. Dangendorf, R. D. Taubert,
P. Tesch, A. Förster, S. Röttger, F. Mertes, A. Honig, U. Giesen,
K. Tittelmeier, F. Langner*
- Was Klimabeobachtung und Strahlenschutz verbindet:
Neue Metrologie für Radon-Messungen in der Außenluft 51
A. Röttger, S. Röttger, F. Mertes, V. Morosh
- pH-Messungen zur Quantifizierung der Versauerung von Meerwasser 61
F. Bastkowski, S. Seitz
- Developing a black carbon reference material and a standard for light absorption by aerosol particles. 67
J. Saturno, A. Nowak

Einleitung

Fabian Plag¹

¹ Dr. Fabian Plag
Koordinator des
Lenkungskreises
„Energie“ und
Koordinator des
Lenkungskreises
„Umwelt und Klima“
E-Mail: fabian.plag@ptb.de

Beim Thema „Klima und Umwelt“ ist es vielfach bereits fünf vor zwölf. Doch für belastbare Aussagen über die Veränderungen braucht man quantitative, genaue und verlässliche Messungen – und dies in einem hochkomplexen System mit einer sehr hohen Zahl an relevanten Messparametern und Stoffgruppen. Weil Umwelt- und Klimaprozesse keine Grenzen kennen, ist einer der wichtigsten Partner der PTB bei der Klimaüberwachung die World Meteorological Organization (WMO), die unter anderem das Global Atmosphere Watch (GAW) Programme und das Global Climate Observing System (GCOS) betreibt. Letzteres definiert beispielsweise 54 essenzielle Klimavariablen, also physikalische, chemische und biologische Messgrößen, die eine Beschreibung des globalen Klimazustandes zum Ziel haben. Die Änderungen dieser Größen sind klein, und um Entwicklungen eindeutig zu erkennen, sind langfristige, hochgenaue und zuverlässige (sprich: auf das Internationale Einheitensystem SI rückgeführte) Messungen notwendig. Daher ist die PTB in zunehmendem Maße an der Rückführung dieser Messungen beteiligt.

Beim Thema Umweltschutz ist ein wichtiger PTB-Partner das deutsche Umweltbundesamt (UBA); den gesetzlichen Rahmen liefern unter anderem europäische Rahmenrichtlinien für Luft und Wasser. Die PTB ist auch zuständig für die Rückführung und Zertifizierung von KFZ-Abgasmessungen und baut hier stetig ihre Fähigkeiten aus. Im Rahmen des Strahlenschutznetzwerkes unterhält sie enge Kontakte zum Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV), den Leitstellen des Integrierten Mess- und Informationssystems (IMIS), das die Radioaktivität in der Umwelt überwacht, sowie zu den Messstellen des Bundes und der Länder.

Die PTB ist sehr aktiv in europäischen Forschungsprogrammen wie EMPIR und engagiert sich stark in den daraus hervorgehenden, langfristig aufgestellten Europäischen Metrologienetzwerken (EMN). Sie kommuniziert intensiv mit den diversen Akteuren in Gesetzgebung, Industrie und Forschung, um eine stetige Verbesserung und Ausweitung der Aktivitäten zu ermöglichen und zu unterstützen.

Im hier vorliegenden Heft der PTB-Mitteilungen „Metrologie für Umwelt- und Klimaschutz“ bringen acht ausgewählte Fachartikel die Metrologie rund um diesem Themenkomplex einer breiten, fachlich interessierten Leserschaft näher. So sind zwei Beiträge dem Bereich „Schall“ gewidmet, die neben der Messtechnik für die Ermittlung von Grenzwerten auch neuer Lärmarten – nämlich Ultra- und Infraschall abhandeln.

Das Thema „Radioaktivität“ wird durch vier Fachbeiträge in diesem Heft abgedeckt. Zunächst wird ein Überblick über die Referenzmessplätze der PTB zur Bestimmung terrestrischer, kosmischer und künstlicher Strahlung, sowie zur Charakterisierung und Rückführung der dafür benötigten Messtechnik gegeben. Ein weiterer Artikel behandelt das Thema der Schadstoffe Uran und Plutonium in der Umwelt. Die Aktivitäten der PTB dienen dabei dem Strahlenschutz, der Überwachung kerntechnischer Einrichtungen sowie der Identifikation freigesetzter radioaktiver Stoffe – beispielsweise aus der Medizin, der Erkennung von Kernwaffentests oder des Freisetzens (aus kriminellen Beweggründen) von radioaktivem Uran oder Plutonium in der Umwelt. Ferner wird in einem Beitrag die Entwicklung neuartiger optischer Detektionssysteme mit einigen vorläufigen Ergebnissen vorgestellt. Mit Hilfe dieser Messtechnik soll die Fernkartierung von Alpha-Kontaminationen – zum Beispiel bei einem radiologi-

schen Notfall – erprobt werden. Die Beitragsserie zur Radioaktivität schließt ein Artikel über die Zusammenhänge von Klimabeobachtungen und Strahlenschutz ab. Hierbei soll mit Hilfe einer Radon- Tracer-Methode die Bewertung und Beobachtung von atmosphärischen Prozessen verbessert werden.

Die Messungen zur Bestimmung der Versauerung der Ozeane sind von großem Interesse, weil es einen Zusammenhang zwischen dem Anstieg der CO₂-Konzentration in der Atmosphäre und dem Absinken des pH-Werts im Meerwasser gibt. Arbeiten der PTB zur Rückführung des pH-Werts, aber auch für die Bestimmung der Salinität werden im vorletzten Artikel dieses Hefts behandelt.

Den Abschluss des Hefts bildet ein Artikel zur Entwicklung von Referenzmaterialien für Ruß, die

unter anderem für die vergleichbare Messung von sogenannten Black-Carbon-Aerosol-Partikeln in der Atmosphäre wichtig sind. Die im Wesentlichen aus anthropogenen Quellen emittierten Partikel tragen einen signifikanten Anteil zur globalen Erwärmung bei.

Die PTB-Arbeiten auf dem Weg zu einer weltweiten Harmonisierung dieser Messmethoden tragen somit grundlegend zur Messtechnik für den Umwelt und Klimaschutz bei. Die so gewonnenen validen Zahlen, Daten und Fakten unterstützen die Wahl geeigneter Maßnahmen. In diesem Sinne wünsche ich Ihnen einen informativen und spannenden Lesegenuss.

PS: Nehmen Sie bei Interesse zu diesen spannenden Themen gerne Kontakt zu uns auf!

Umweltlärm: Metrologie für die Lärmessung

C. Kling¹, C. Koch²

Einleitung

Lärm ist einer der wesentlichen Umweltfaktoren in unserer heutigen Welt [1]. Trotz intensiver Aktivitäten in der Forschung und dem Lärmschutz muss auch heute noch von einer signifikanten Belastung von Personen durch Lärm sowohl im Arbeitsbereich als auch dem alltäglichen Leben ausgegangen werden. Neben einer gestiegenen Sensibilität gegenüber Lärm in der Bevölkerung und auch bei den verantwortlichen Behörden und Institutionen liegen die Ursachen dafür insbesondere an den sich ständig wandelnden Expositionen, denen der Mensch ausgesetzt ist. Weiter steigende Verkehrszahlen führen zum Beispiel zu ansteigendem Verkehrslärm auch in bewohnten Gebieten. Gleichzeitig entstehen aber auch gänzlich neue, immer noch weitgehend unverstandene Szenarien wie z. B. die Emission von Infraschall von Erzeugern erneuerbarer Energie wie Windenergiesystemen oder Biogasanlagen.

Eine wesentliche Voraussetzung aller Strategien zur Beurteilung von Lärm ist eine quantitative Analyse der Gesamtsituation, die im Wesentlichen auf einer Messung von Schallfeldvariablen und ihrer strukturierten Weiterverarbeitung bis zur Ermittlung von beurteilbaren Endgrößen beruht. Dabei werden vielfältige, sowohl rechtlich als auch geschäftlich relevante Schlussfolgerungen gezogen, die nach Mess- und Eichrecht nur mit geprüften Geräten durchgeführt werden dürfen. Die PTB führt dementsprechend alle notwendigen Arbeiten durch, die immer wieder an neue Gegebenheiten angepasst werden müssen. Jüngstes Beispiel ist die von der neuen Bundesregierung angestrebte neue Fassung der TA Lärm [2]. Eine Revision dieser Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz wird auch Auswirkungen auf die Behandlung von Messgeräten haben. Zusätzlich verändern sich durch die digitale Transformation sowohl die Geräte als auch ihre

Einbindung in Datennetze und Messsysteme mit extrem hoher Geschwindigkeit.

Auch die sich ändernden Expositionsbedingungen sind zu beachten. So haben die Belastungen durch Schall mit Frequenzen an den Grenzen bzw. jenseits des Hörfrequenzbereichs und die Aufmerksamkeit dafür zugenommen. Insbesondere der Einfluss von Infraschall wird gesellschaftlich intensiv diskutiert. Hier ist die PTB seit einigen Jahren aktiv, um die gesamte Rückführungskette von der Primärkalibrierung bis zur vollständigen Prüfung in einem Baumusterprüfverfahren anbieten zu können. Aber auch neue Mess- und Prüfverfahren müssen erarbeitet werden. In diesem Beitrag werden die wichtigsten Arbeiten und aktuellen Entwicklungen dazu kurz vorgestellt. Zur besseren Übersicht wird dazu in die drei klassischen Frequenzbereiche Hörschall, Ultraschall und Infraschall untergliedert. Außerdem forscht die PTB auch aktiv, um Beiträge zum Verständnis der Wahrnehmung bei diesen Frequenzen zu liefern. Mehr darüber kann in einem zweiten Beitrag in diesem Heft nachgelesen werden.

Hörschall

Als Hörschall gilt Schall im hörbaren Frequenzbereich zwischen ca. 20 Hz und ca. 16 kHz. In diesem Frequenzbereich gibt es etablierte Systeme für die Analyse und Beurteilung von Lärmsituationen, die allerdings, wie oben beschrieben, einer ständigen Weiterentwicklung bedürfen. Wichtiger Ausgangspunkt der gesamten Rückführung von Geräten ist die Kalibrierung der Sensoren (Mikrofone) und Messgeräte (zum Beispiel Schallkalibratoren, Schallpegelmesser, Schall-exposimeter).

Dabei wird je nach Mikrofontyp oder nach Anwendungsfall nach der Art des Schallfeldes in Druckfeld, Diffusfeld und Freifeld unterschieden. Zum Beispiel werden für Anwendungen in der Audiologie Kalibrierungen im Druckfeld

¹ Dr. Christoph Kling, Arbeitsgruppe 1.63 *Geräuschmesstechnik*, E-Mail: christoph.kling@ptb.de

² Dr. Christian Koch, Abteilung 1.6 *Schall*, E-Mail: christian.koch@ptb.de

Abbildung 1:
„Goldene“ Referenzmikrofonkapsel
(Quelle: bksv.com)



durchgeführt, da über den gesamten Ohrkanal verteilt näherungsweise der gleiche Schalldruck herrscht, also ein Druckfeld vorliegt. Für eher seltene Anwendungen in Umgebungen mit starken Reflexionen bzw. mit gleichzeitigem Schalleinfall aus mehreren Richtungen werden Mikrofone im diffusen Schallfeld kalibriert. Für den bei der Messung von Lärm häufigsten Fall, nämlich die Bestimmung von Schallfeldern im freien Raum bzw. mit freier Schallausbreitung oder auch für gemischte Schallfelder, wird in der Regel ein Mikrofon oder Messgerät im Freifeld eines reflexionsarmen Raumes kalibriert.

Der bei weitem überwiegende Teil der Kalibrierungen in der Akustik sind Sekundärkalibrierungen nach dem Substitutionsprinzip. Der Hauptvorteil dieser Technik ist, dass sie für viele anwendungsrelevante Mikrofone und Sensoren eingesetzt werden kann und nicht auf teure Messmikrofone begrenzt ist. Damit stellt sie einen Schlüssel in der Rückführungskette für umweltbezogene Messungen dar. Bei dieser Methode wird ein Prüfling mit einer Referenz bekannter Sensitivität im jeweiligen Schallfeld verglichen. Als Referenz dienen in der Regel Transfornormale, gerne als „goldene Mikrofonkapseln“ bezeichnet, die zur Kenntlichmachung meist tatsächlich in einem goldenen Farbton vermarktet werden (Abbildung 1). Diese hochspezialisierten Referenzmikrofone weisen vor allem eine zeitlich sehr stabile Sensitivität auf, die nur wenig durch Temperatur-, Luftdruck- oder Umgebungsfeuchte beeinflusst wird, und sind sehr langlebig. In der Regel senden Kunden ihre eigenen internen Referenzmikrofone zur Kalibrierung ein, die mit den PTB-eigenen Normalen verglichen werden. Die so quantifizierten Mikrofone können dann wiederum als Referenz für weitere Kalibrierungen dienen.

An der Spitze dieser klassischen Rückführungspyramide stehen die Referenzmikrofonkapseln der

PTB, die im sogenannten Reziprozitätsverfahren primär kalibriert wurden. Bei diesem ursprünglich aus der Antennenmesstechnik stammenden Verfahren werden drei gleiche reziproke Wandler paarweise in drei Messdurchgängen vermessen. Als reziproke Wandler werden sie dabei jeweils einmal als Aktuator (Lautsprecher) und einmal als Sensor (Mikrofon) eingesetzt. Schließlich muss nur noch ein lineares Gleichungssystem aus drei Gleichungen und drei Unbekannten aufgelöst werden, um die Sensitivitäten der drei eingesetzten Mikrofone zu erhalten. Letzten Endes ergibt sich die wohl wichtigste Einheit der Akustik, die Einheit Pascal (Pa) des Schalldrucks, aus dem signalgebenden Strom am Aktuator, der Messspannung am Sensor und den Klimagrößen Temperatur, Luftdruck und Luftfeuchte im Schallfeld. Das Reziprozitätsprinzip kann in allen drei idealisierten Schallfeldern angewandt werden. Da es sich im Druckfeld jedoch am einfachsten und mit der geringsten Messunsicherheit umsetzen lässt, wird zumindest im Hörschallbereich sehr häufig eine solche Kalibrierung durchgeführt und dann mithilfe genormter Korrekturwerte in eine Freifeld- oder Diffusfeldsensitivität umgerechnet, wenn sie benötigt wird.

Im Hörschallbereich ist die Infrastruktur im deutschen Kalibrierwesen sehr gut ausgebaut. Mithilfe der verschiedenen primären und sekundären Kalibrierdienste der PTB wird die Einheit Pascal an Eichämter, akkreditierte Kalibrierlaboratorien oder Messtechnikhersteller weitergegeben. Diese benötigen die Kalibrierdaten für eine direkte Rückführung ihrer Messgeräte auf das nationale Normal bzw. zur Sicherstellung sehr geringer Messunsicherheiten für die Weitergabe der Einheit an eigene Kunden. Die PTB-Kalibrierungen bilden damit die messtechnische Grundlage für alle akustischen Messungen in Deutschland.

Neben den Kalibrierdienstleistungen werden im Fachbereich 1.6 der PTB auch Baumusterprüfungen von Schalldruckpegelmessgeräten nach dem Mess- und Eichgesetz im Auftrag der Konformitätsbewertungsstelle (KBS) der PTB durchgeführt. Darunter fallen Schallpegelmesser (handgehaltenes oder stationäres Lärmmessgerät, Abbildung 2), Schallkalibratoren (zur Funktionsprüfung und Justierung von Lärmmessgeräten in situ) und Schall-exposimeter (zur Bestimmung der Lärmexposition). Die technische Grundlage der akustisch relevanten Prüfungen bilden DIN EN-Normen, die inhaltlich identisch aus IEC-Normen gespiegelt werden. Hinzu kommen ergänzende DIN-Normen und der WELMEC Software-Guide 7.2. Die Normen legen die Baumusterprüfungen dabei mit Absicht sehr aufwendig an. Dadurch können die periodischen Prüfungen sehr effizient, ohne den Einsatz teurer akustischer Messräume (zum Beispiel einem reflexionsarmen Raum) und

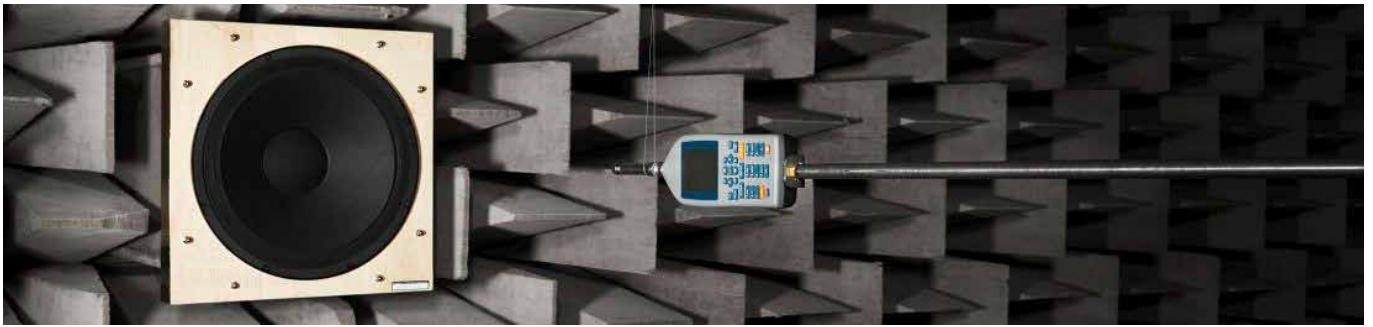


Abbildung 2:
Schallpegelmessung bei der akustischen Frequenzgangsprüfung im reflexionsarmen Raum

damit wirtschaftlich von Eichämtern und akkreditierten Kalibrierlaboren durchgeführt werden. Aufgrund des Umfangs und der Komplexität der Baumusterprüfungen gibt es weltweit nur eine geringe Zahl an Instituten, die den vollständigen Prüfumfang anbieten können. Daher werden Baumusterprüfzertifikate der PTB, die zunächst nur für den deutschen Markt bestimmt sind, von den Geräteherstellern oft im Ausland als Prüfnachweis vorgelegt und in der Regel anerkannt.

Aufgrund der sich sehr schnell entwickelnden digitalen Technik halten inzwischen auch neue Mess- und Herstellungsmethoden Einzug in die gesetzlich geregelte Lärmmessung. Mikrofone auf MEMS-Basis, wie sie typischerweise in Mobiltelefonen eingesetzt werden, sind auch für die Präzisionsmesstechnik mittlerweile von Interesse. Für eine Baumusterprüfung von Geräten mit MEMS-Mikrofonen müssen allerdings neue Prüfverfahren entwickelt werden, woran aktuell an der PTB gearbeitet wird. Auch die digitale Transformation wirkt sich auf die akustische Messtechnik aus. Autarke Schallpegelmessstationen werden in Städten zur Verkehrslärmmessung, in der Industrie zur Lärmimmissionsbestimmung und an Flughäfen zur Fluglärmüberwachung eingesetzt. Die Eichfähigkeit solcher Sensornetzwerke wird im Rahmen eines an der PTB laufenden Projekts untersucht [3].

Ultraschall

Dem Ultraschallbereich schreibt man Luftschall in der Regel dann zu, wenn der dominante Lärmanteil im Frequenzbereich oberhalb von ca. 16 kHz und damit oberhalb des klassischen Hörfrequenzbereichs liegt. In der Industrie weit verbreitete Anwendungen wie Ultraschallschweißen (zum Beispiel schnelles Verschweißen von Plastikverpackungen), Ultraschallschneiden (zum Beispiel Schneiden von Käse, Schokoriegeln oder Kuchen am Fließband) oder Ultraschallreinigen (zum Beispiel Reinigen von Motorteilen oder Halbleiterchips gleich nach der Fertigung) erzeugen am Ohr eines Arbeiters Lärmpegel von 110 dB (Z-bewerteter Schalldruckpegel) und mehr. Zum Vergleich: Ein Presslufthammer erzeugt einen A-bewerteten Schalldruckpegel von ca. 90 dB.

Auch wenn der Luftultraschall bisher als nicht hörbar galt, so kann er doch wahrgenommen werden [Kühler 2019]. Junge Menschen, insbesondere Kinder und Babys, aber auch besonders sensible Menschen sind in der Lage, Ultraschall oberhalb der Hörschwelle wahrzunehmen und empfinden ihn nicht selten als störend oder schmerzhaft.

In Deutschland ist der Ultraschallärm vor allem vor dem Hintergrund des industriellen Arbeitsschutzes im Fokus. Jedoch gibt es immer mehr Anwendungen, die den privaten Alltag erobern. Zum Beispiel sind sogenannte Beam-Lautsprecher käuflich zu erwerben, die mittels einer Ultraschallträgerwelle Hörschall auf beliebige Oberflächen in der näheren Umgebung projizieren. Die Trägerwelle arbeitet typisch mit einer Frequenz von 40 kHz und Schalldruckpegeln im Bereich von 140 dB. Damit können zum Beispiel Besucher eines Museums lokal gezielt an bestimmten Exponaten angesprochen werden, oder es kann im heimischen Wohnzimmer jedem Familienmitglied die eigene Lieblingsplaylist vorgespielt werden, ohne die jeweils anderen Personen im Raum zu stören.

Die quantitative Bestimmung von Schallfeldern im Ultraschallfrequenzbereich stellt eine besondere Herausforderung dar, da wegen der hohen Frequenz und der damit verbundenen kleinen Wellenlänge die Sensoren geometrisch sehr klein sein und im Frequenzbereich besonders breitbandig arbeiten müssen. Deshalb wurden an der PTB dazu spezielle Messverfahren entwickelt und unter anderem in einer Kooperation mit der Robert Bosch AG zur Untersuchung eines neuartigen haptischen Displays eingesetzt [4]. Der ausgestrahlte und fokussierte Luftschall erzeugt bei einem Z-bewerteten Spitzenschalldruckpegel von mehr als 160 dB eine so hohe Schallstrahlungskraft, dass die haptischen Sensoren der Haut angesprochen werden können – der Schall wird fühlbar (Abbildung 3). So können zum Beispiel fiktive Knöpfe und Schalter in den freien Raum projiziert und „betätigt“ werden, wobei eine Kamera die Szene beobachtet. Dabei wird jedoch der gemeinhin anerkannte Grenzwert von 110 dB für den Z-bewerteten Terzschalldruckpegel deutlich überschritten [5], was zusätzliche Sicherheitsüberlegungen notwendig macht.

Ultraschalltechnologien sind bereits lange am Markt, aber erst in den letzten Jahren wurde das Dilemma des „unhörbaren Lärms“ als Problem erkannt. Daher hat der Fachbereich 1.6 der PTB im Laufe mehrerer Projekte Technik und Methoden entwickelt, um Luftultraschall messen und kalibrieren zu können. So wurden zum Beispiel ein Ultraschallpegelmesser [6] und ein Hochfrequenzpersonenschallexposimeter [7] entwickelt, um Lärm an Arbeitsplätzen bestimmen zu können. Die ungewöhnlichen Eigenschaften von realen Schallfeldern an industriellen Ultraschallmaschinen wurden erstmals detailliert untersucht [8] und Schlussfolgerungen für eine geänderte Strategie zur Messung der für eine Beurteilung geeigneten Schallvariablen gezogen.

Das hierbei erworbene Know-how wurde und wird auch im Rahmen eines Technologietransfers an die Industrie übergeben. Weiterhin wurde ein Kalibrierservice für Luftultraschall bis zu einer Frequenz von 100 kHz aufgebaut, der allen Anwendern zur Verfügung steht. Hier können klassische Messmikrofone, neuartige optische Mikrofone und auch Ultraschallaktuatoren kalibriert und geprüft werden. Da Luftultraschall sich aufgrund der kurzen Wellenlängen und der hohen Luftabsorption fast immer unter Freifeldbedingungen ausbreitet, finden die Kalibrierungen immer im Freifeld statt.

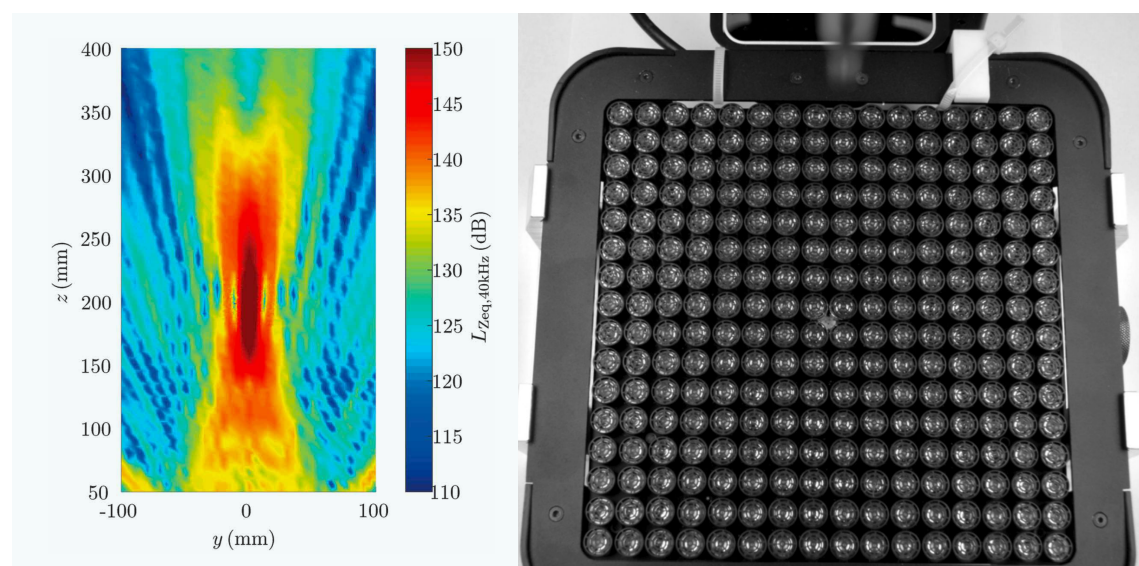
Infraschall

An das untere Ende des Hörfrequenzbereichs schließt sich, jenseits von ca. 20 Hz, der Infraschall an. In diesen Bereich fallen zum Beispiel Schallanteile durch schweren Verkehr, durch haustechnische Anlagen innerhalb von Gebäuden, Schallanteile von Windkraftanlagen oder durch Explosionen. Es wurde nachgewiesen, dass Lärm im Infraschallbereich vom Menschen wahrgenommen werden kann, wenn er ausreichend hohe

Schalldruckpegel aufweist [9]. Die Messtechnik im Infraschallfrequenzbereich ist allerdings noch nicht genügend entwickelt. Zwar sind bereits Schallpegelmesser am Markt, die Infraschall bis in den Millihertzbereich messen, jedoch können diese noch nicht geprüft oder rückgeführt werden. Wie in einem internationalen Ringvergleich [10] gezeigt wurde, ist die Kalibrierung durch die Methode der Druckreziprozitätskalibrierung bis zu Frequenzen von 2 Hz anwendbar, allerdings nur für speziell präparierte und außerdem teure Messmikrofone. Die Kalibrierung bei tieferen Frequenzen ist mit dieser Methode nach einzelner Expertenmeinung jedoch nicht mehr möglich. Daher werden in einem aktuellen Projekt in Kooperation mit anderen europäischen Metrologieinstituten alternative Kalibrierverfahren erprobt [11]. Im Fachbereich 1.6 der PTB entsteht zurzeit ein neuartiges primäres Kalibrierverfahren, das die Abhängigkeit des hydrostatischen Drucks der Atmosphäre von der Höhe nutzt, um an einem auf einer Kreisbahn rotierenden Mikrofon („Mikrofonkarussell“) ein Infraschallsignal zu induzieren (Abbildung 4). Weiterhin wird ein Substitutionsverfahren erprobt, das die Weitergabe der Einheit Pascal an beliebige Mikrofone und Schallpegelmessgeräte, zum Beispiel auch an Mikrobarometer, erlaubt [12]. Die beiden Kalibrierverfahren sollen nach Abschluss des Projekts als Dienstleistung allen Anwendern angeboten werden. Auf diese Weise können dann zum Beispiel Schallpegelmesser auf das nationale Normal zurückgeführt werden, die bei der Lärmbestimmung bei Infraschallfrequenzen Anwendung finden.

Um Infraschallpegelmessungen eichfähig und damit gerichtsfest durchführen zu können, bedarf es in Zukunft allerdings auch einer Erweiterung der Baumusterprüfung für Schallpegelmesser in den entsprechenden Frequenzbereich. Ein erster Schritt in diese Richtung wurde bereits getan [13]. Dazu wurden bestehende europäische

Abbildung 3: Haptisches Array Ultrahaptics Stratos mit 16×16 Ultraschallwandlern (rechts) und Querschnitt durch das vermessene Schallfeld (links, aus [4])



Anwendernormen auf ihre Anforderungen an Infraschallmessgeräte untersucht und notwendige Erweiterungen der klassischen Prüfprozeduren in IEC 61672 [14] abgeleitet. Im Zuge des Infra-AUV-Projekts [11] sollen auch solche Prüfverfahren entstehen und in die Normung eingebracht werden.

Zusammenfassung

Die Sicherung der Qualität aller im Rahmen von quantitativen Untersuchungen im Umweltbereich durchgeführten Lärmessungen ist von hoher Bedeutung. Die in Deutschland und auch international geltenden Regelungen basieren auf festgelegten Obergrenzen oder Schwellwerten und ihre Einhaltung erfordert genaue und verlässliche Messungen, deren Ergebnisse dann zum Vergleich mit diesen Referenzwerten herangezogen werden können. Die Rückführung der gesamten Messkette, die Kalibrierung, aber auch eine notwendige Baumusterprüfung sichern diese Erfordernisse im gesetzlich geregelten Bereich. Aber nicht nur dort ist eine solche funktionierende Infrastruktur von großer Bedeutung. Die im Moment intensiv geführte gesellschaftliche Debatte zeigt, wie sehr verlässliche und glaubhafte Messungen auch zur Verbesserung der Akzeptanz von technischen Entwicklungen und zur Erhöhung des Vertrauens der Bevölkerung in gesellschaftliches und behördliches Handeln beitragen können.

References

- [1] WHO, *Environmental Noise Guidelines for the European Region* (2018), ISBN 978 92 890 5356 3
- [2] Sechste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zum Schutz gegen Lärm – TA Lärm)
- [3] Webseite des GEMIMEG-Projekts: <https://www.gemimeg.ptb.de/>
- [4] M. Liebler, C. Kling, A. Gerlach, C. Koch, *Experimental characterization of high-intensity focused airborne ultrasound fields*, J. Acoust. Soc. Am. **148** (3) 1713 (2020), DOI: <https://asa.scitation.org/doi/10.1121/10.0001974>
- [5] VDI 3766:2012-09, *Ultraschall-Arbeitsplatz – Messung, Bewertung, Beurteilung und Minderung*
- [6] M. Wächtler, M. Rust, A. Wolff, C. Kling, *Development of an ultrasound level meter for use in occupational safety and health*, J. Acoust. Soc. Am. **149** (4), 2836 (2021), DOI: <https://doi.org/10.1121/10.0004787>
- [7] Cieslak, Michal; Kling, Christoph; Wolff, Andrea (2021): *Development of a Personal Ultrasound Exposimeter for Occupational Health Monitoring*. In: *International journal of environmental research and public health* **18** (24). DOI: <https://doi.org/10.3390/ijerph182413289>



Abbildung 4: Foto des Grundaufbaus zum „Mikrofonkarussell“ zur alternativen Primärkalibrierung von Mikrofonen im Infraschallfrequenzbereich

- [8] R. Schöneweiß, C. Kling, C. Koch, *A laboratory study for occupational safety and health on the structure of airborne ultrasound fields*, Acta Acustica **4**, 4, 1–12 (2020), <https://doi.org/10.1051/aacus/2020013>
- [9] Webseite des EMPIR-Projekts „Metrology for modern hearing assessment and protecting public health from emerging noise sources (15HLT03 EARS II)“: <https://www.ears-project.eu/>
- [10] J. Avison et al., *Final report: key comparison EURAMET.AUV.A-K5*, Metrologia **56** (2019), Tech. Suppl., 09001
- [11] Webseite des EMPIR-Projekts „Metrology for low-frequency sound and vibration (19ENV03 Infra-AUV)“: <https://www.ptb.de/empir2020/infra-auv/>
- [12] M. Rust, C. Kling, *Sekundärkalibrierung von Messmikrofonen und Schallpegelmessern im Infraschall-Frequenzbereich*, Fortschritte der Akustik zur 47. Deutschen Jahrestagung für Akustik (DAGA), Wien, 15–18, August, 2021, Österreich
- [13] C. Kling et al., *Specifications and testing strategies for measurement devices for noise exposure determination in the infrasound frequency range*, Online-Repository der PTB (OAR), <https://doi.org/10.7795/EMPIR.19ENV03.RE.20210609>
- [14] DIN EN 61672 *Elektroakustik – Schallpegelmessers* (IEC 61672), Teile 1 bis 3

Wirkung neuer Lärmarten auf den Menschen: Infraschall und Luftultraschall

M. Bug¹, C. Koch²

1. Einleitung

Lärm ist ein wesentlicher Umweltfaktor, der das tägliche Leben in privaten wie beruflichen Bereichen wesentlich beeinflusst. In vielen Studien wurde gezeigt, dass Lärm negative Einflüsse auf den menschlichen Körper hat und zu direkten Gesundheitsschäden führen kann [1–3]. Lärm verursacht aber auch Stress und beeinflusst das psychische Wohlbefinden oder einfach nur die Lebensqualität im weitesten Sinne. Die Zusammenhänge und Wirkmechanismen sind vielfältig und trotz langer Forschungshistorie sind viele Fragen offen, insbesondere auch deshalb, weil sich die Expositionsszenarien ständig verändern.

So sind in den letzten Jahren vermehrt Expositionen mit Schall im Randbereich und außerhalb des „traditionellen“ Hörfrequenzbereiches aufgetreten und in den Fokus auch intensiver gesellschaftlicher Diskussion gerückt. Häufig sind die Erzeuger von erneuerbarer Energie, wie Windenergieanlagen oder Biogasanlagen, Quellen von Infraschall (Schall mit Frequenzen unterhalb von 20 Hz), aber auch andere technische Quellen (z. B. Flug- und Straßenverkehr oder Lüftungssysteme) emittieren in diesem Frequenzbereich [4]. Deshalb nehmen einer Studie des Umweltbundesamtes zufolge die Beschwerden über Infraschalllärm jährlich um etwa 30 % zu [5]. Aber auch auf der hochfrequenten Seite (Ultraschall, Schall mit Frequenzen oberhalb von 20 kHz) nehmen Emittenten und Beschwerden zu [6], was oft insbesondere im Alltagsleben zu schwierigen Situationen, Stress und Auseinandersetzungen führt.

Die Folgen des bewusst und unbewusst wahrgenommenen Lärms zu beiden Seiten des Hörfrequenzbereiches für den menschlichen Körper sind derzeit noch nicht ausreichend geklärt, um effektive Strategien für die Bewertung und den Umgang mit diesen Lärmarten zu entwickeln. Ziel der Forschungsarbeiten ist es, sowohl die Perzep-

tion als auch die Wirkung von Infraschall und Ultraschall auf Basis quantitativer Untersuchungen zu beschreiben und Wissen für einen fundierten gesellschaftlichen Dialog zur Verfügung zu stellen. Insbesondere im Licht des notwendigen Ausbaus der regenerativen Energiequellen hat dieses Thema hohe gesellschaftliche Relevanz und Priorität.

2. Schwellwerte als wichtige Parameter für Wahrnehmung und Perzeption

Lange Zeit galten Infraschall und Luftultraschall als unhörbar, denn das Gehör ist prinzipiell unempfindlich gegenüber Schall außerhalb der Frequenzgrenzen des Hörbereichs. Auf diese Weise ist das Gehör optimiert für die Wahrnehmung von Sprache (Frequenzbereich etwa 100–8000 Hz) und „störende“ Einflussfaktoren, wie natürliche Fluktuationen des Luftdrucks und körpereigene Prozesse (z. B. der Herzschlag) werden physiologisch ausgeblendet. In den letzten etwa 30 Jahren zeigte sich jedoch, dass Infraschall und Luftultraschall bei ausreichend hohem Schalldruckpegel wahrgenommen werden [6, 7]. Die Bestimmung von Hör- bzw. Wahrnehmungsschwellen und Kurven gleicher Lautstärke sind essenziell, um ein quantitatives Maß zu gewinnen, ab wann ein Schallsignal den menschlichen Körper beeinflussen könnte. Die Kenntnis solcher Wahrnehmungsschwellen ist eine Voraussetzung für die Bewertung neuer Lärmarten und Lärmszenarien.

2.1 Wahrnehmungsschwellen für Infraschall

Wahrnehmungsschwellen für Infraschallreintöne sind mittels psychoakustischer Methoden messbar [7,8]. Für das einzelne Individuum sind sie gut reproduzierbar, überspannen aber für verschiedene Individuen einen großen Schalldruckpegelbereich. Deshalb muss von einer sehr unter-

¹ Dr. Marion Bug, Arbeitsgruppe 1.61 Hörschall, E-Mail: marion.bug@ptb.de

² Dr. Christian Koch, Abteilung 1.6 Schall, E-Mail: christian.koch@ptb.de

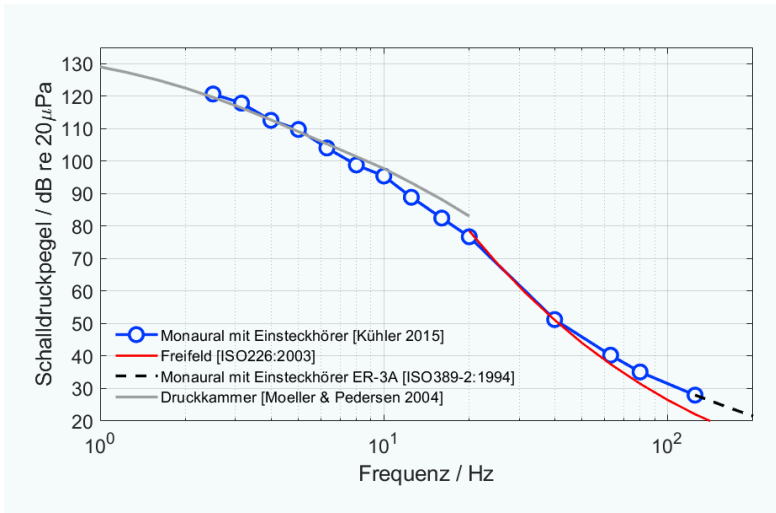


Abbildung 3: Wahrnehmungsschwellen für Reintöne, ermittelt in verschiedenen Studien. Mit Abnahme der Frequenz erhöht sich der Schalldruckpegel an der Wahrnehmungsschwelle.

schiedlichen Sensitivität im Einzelfall ausgegangen werden. An der Wahrnehmung von Infraschall sind möglicherweise zwei Komponenten beteiligt: der Weg des Schalls über das Gehör und die Wahrnehmung der Vibration über den Tastsinn.

Um den reinen „Hörprozess“ für Infraschall zu untersuchen, wurden an der PTB zunächst Wahrnehmungsschwellen für einohrig (monaural) dargebotene Infraschallreintöne bestimmt [8]. Diese sind in Abbildung 1 zusammen mit den Wahrnehmungsschwellen, die unter anderen Bedingungen ermittelt wurden (im Freifeld oder in einer Druckkammer) dargestellt. Die Wahrnehmungsschwellen für Infraschalltöne liegen bei sehr viel höheren Schalldruckpegeln als im Hörfrequenzbereich. Da die Pegelgrenze, ab der ein Ton unangenehm oder gar schmerzhaft laut ist, für alle Frequenzen etwa gleich ist, ist der Dynamikbereich für die Infra-

schallwahrnehmung sehr gering. Deshalb wird bereits ein Schalldruckpegel, der wenige Dezibel oberhalb der Wahrnehmungsschwelle liegt, als unangenehm empfunden.

2.2 Infraschall und Hörschall in Kombination

Da Infraschall in der Realität sehr oft in Kombination mit Hörschall (20 Hz bis 20 kHz) auftritt, wurde auch eine mögliche gegenseitige Beeinflussung von Infraschall und Hörschall untersucht [9]. Hierüber wurde in [10] bereits ausführlich berichtet. Es zeigte sich keine Veränderung der Wahrnehmungsschwellen für Hörschall in Anwesenheit von Infraschall. Überraschend war allerdings, dass sich in Anwesenheit von moderat lautem Hörschall die Wahrnehmungsschwellen für Infraschalltöne erhöhten (Abb. 2). Es gibt also eine Wechselwirkung zwischen beiden Schallarten, deren Ursprung gegenwärtig noch nicht vollständig geklärt ist.

2.3 Wahrnehmungsschwellen für Luftultraschall

Auch für Schall am hochfrequenten Ende des Hörfrequenzbereichs wurden Wahrnehmungsschwellen gemessen [11]. Es zeigte sich, dass hier die individuellen Unterschiede noch deutlicher ausfielen als im Infraschallfrequenzbereich. Während dort fast alle Testpersonen bis hinunter zu einer Frequenz von 2,5 Hz eine Hörwahrnehmung zeigten, konnten nur 21 von 26 Probanden einen Ultraschallton (> 20 kHz) wahrnehmen.

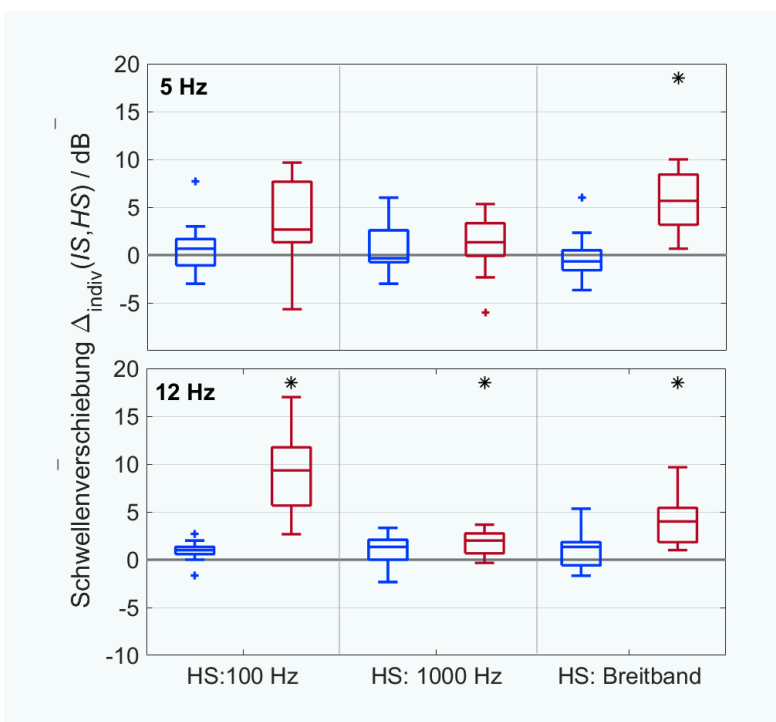
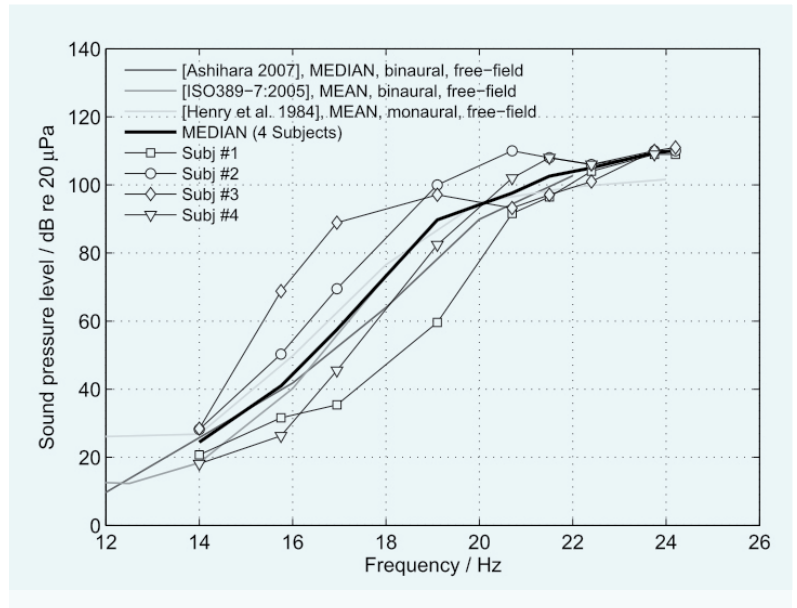


Abbildung 2: Verschiebung der Wahrnehmungsschwellen für Infraschall (IS; 5 Hz oben, 12 Hz unten) bei Anwesenheit verschiedener Hörschallstimuli (HS) [9,10]. Die Verteilung individueller Differenzen zwischen der Wahrnehmungsschwelle des Infraschalltons ohne Hintergrundschall und bei anwesendem Hörschall ist als Boxplot dargestellt. Der Hörschall wurde jeweils mit einem Schalldruckpegel von +5 dB (blau) oder +50 dB (rot) oberhalb dessen Wahrnehmungsschwelle dargeboten. Die schwarzen Sternchen markieren eine signifikante Schwellenverschiebung.

Dafür konnten einige wenige Testpersonen sehr weit in den Ultraschallfrequenzbereich „vordringen“. So zeigt Abb. 3 die Hörschwellen für die 4 (von insgesamt 26) Testpersonen, die bis 24 kHz noch eine Wahrnehmung feststellten. Auffällig ist die abnehmende Steigung der Mediankurve mit zunehmender Frequenz, was auf eine Änderung des Mechanismus der Hörwahrnehmung hindeuten könnte.

3. Wirkung von Infraschall und Ultraschall

Die Wirkung von Infraschall und Ultraschall auf den Menschen ist weitgehend noch nicht verstanden. Aufgrund bisheriger Ergebnisse kann von einer hohen Komplexität der Wirkung ausgegangen werden, die stark von physikalischen Parametern (z. B. Schallfeld, Einwirkungsdauer) abhängt und auf mehreren Ebenen (z. B. physiologisch, psychisch) in unterschiedlichem Maße Einfluss nimmt. Wesentliche Bausteine für eine Untersuchung sind qualitative und quantitative Methoden, welche bestimmte Aspekte der Wirkung beschreiben. So können z. B. Testpersonen, die den Schallsignalen ausgesetzt werden, auf physiologische oder psychische Veränderungen hin untersucht werden. Bildgebende bzw. räumlich differenzierende Prozesse, wie die Elektroenzephalografie oder die Magnetresonanztomografie, ermöglichen Aussagen über die Verarbeitung des Schalls im Gehirn. Im Folgenden werden einige Beispiele gezeigt, die Bausteine für ein Verständnis der komplizierten und z. T. unerwartet ablaufenden Prozesse liefern.



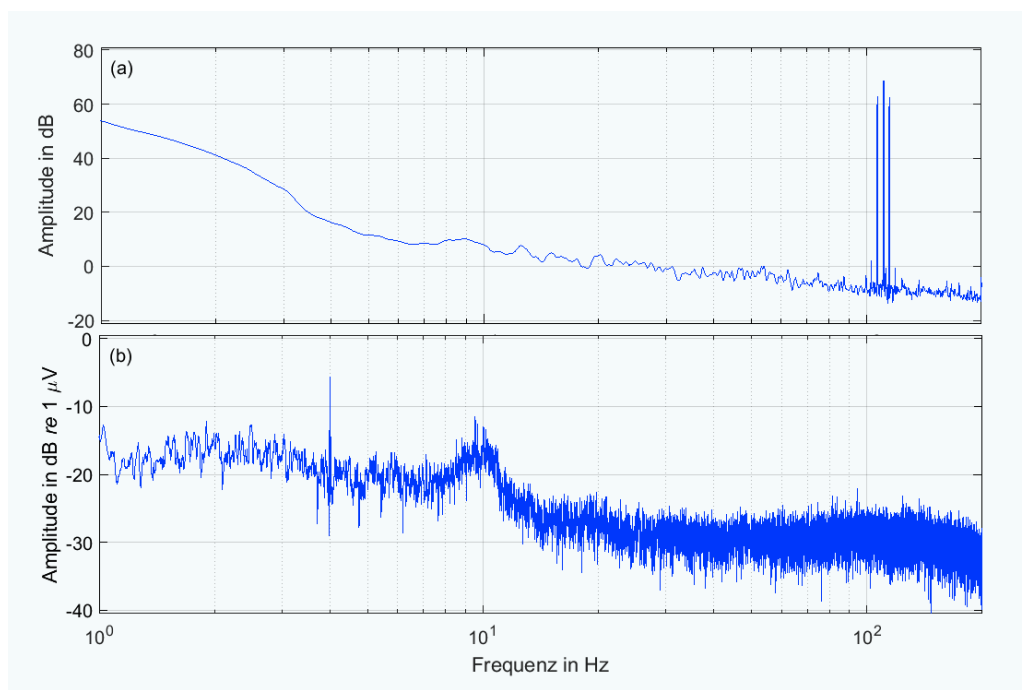
3.1 Modulation des Hörschalls durch Infraschall: Untersuchung mit Elektroenzephalografie

Da Infraschall gleichzeitig auftretenden Hörschall modulieren kann, ist eine Wahrnehmung des Infraschalls auf diesem Wege denkbar. In diesem Zusammenhang wird aber auch die verstärkte Wahrnehmung von Infraschall an Windenergieanlagen durch Modulationsprozesse intensiv diskutiert [12].

Höhere kortikale Prozesse sind auf langsame Modulationen (von einer Frequenz von 0,5 Hz bis zu wenigen Hertz) spezialisiert, denn die Einhüllenden von Sprachsignalen in diesem Frequenz-

Abbildung 3: Wahrnehmungsschwelle für Reintöne im Ultraschallfrequenzbereich für die vier Testpersonen mit dem höchstfrequenten Hörvermögen im Vergleich zu anderen Studien

Abbildung 4: (a) Frequenzspektrum des akustischen Stimulus (111 Hz Ton, amplitudenmoduliert mit 4 Hz). Die Modulation zeigt sich durch Seitenlinien des 111-Hz-Tons, während bei 4 Hz keine Energie im Spektrum vorhanden ist. (b) Das durch diesen Stimulus evozierte Hirnsignal, gemessen mittels EEG-Ableitung. Hier ist die Modulationsfrequenz im Spektrum deutlich sichtbar, während das entsprechende Hirnsignal für den 111-Hz-Ton wesentlich kleiner als das Untergrundrauschen ist.



bereich bilden die Phoneme ab und diese sind für das Sprachverstehen essenziell. Bei einer solchen Amplitudenmodulation besitzt der Schall, physikalisch betrachtet, keine Energie bei der Modulationsfrequenz (Abb. 4a). Diese ist deshalb sogar bei einer spektral aufgelösten Schallpegelmessung nicht sichtbar. Die nichtlineare Verarbeitung des Gehörs führt jedoch zur Wahrnehmung der Modulation. Durch objektive Audiometrie, z. B. mittels EEG (Elektroenzephalogramm), können die entsprechenden Nervenpotentiale entlang der Hörbahn gemessen und quantifiziert werden (Abb. 4b). Damit lassen sich Aussagen über die Verarbeitung und damit die Wahrnehmung von Infraschallsignalen im Gehirn erhalten. Inwieweit Modulationen dabei eine Rolle spielen, wird derzeit intensiv unter Nutzung der EEG-Technik untersucht.

3.2 Langzeitexpositionen mit Infraschall und Luftultraschall

Die psychische und gesundheitliche Wirkung von Infra- und Ultraschall auf den Menschen wurde bisher fast ausnahmslos mit Testpersonenstudien im Labor untersucht. Dabei kamen ausschließlich kurze Signale mit einer Dauer zwischen einigen Sekunden und einigen Minuten zum Einsatz. Um praxisrelevantere Expositionsszenarien nachbilden zu können, wurde eine Studie mit kontrollierter Langzeitexposition durchgeführt. Dazu wurden sowohl Infraschall- als auch Ultraschallquellen entwickelt, die ein konstantes und nachvollziehbares Schallsignal über viele Stunden abgeben können. Insbesondere im Infraschallfrequenzbereich gelang das nur mit einer speziellen Eigenentwicklung der PTB. Diese Quellen wurden in den Schlafzimmern der Testpersonen aufgestellt und jeweils für 8 Stunden während einer Versuchsdauer von 28 Nächten betrieben. Die Studien wurden als „Blindstudien“ durchgeführt, sodass

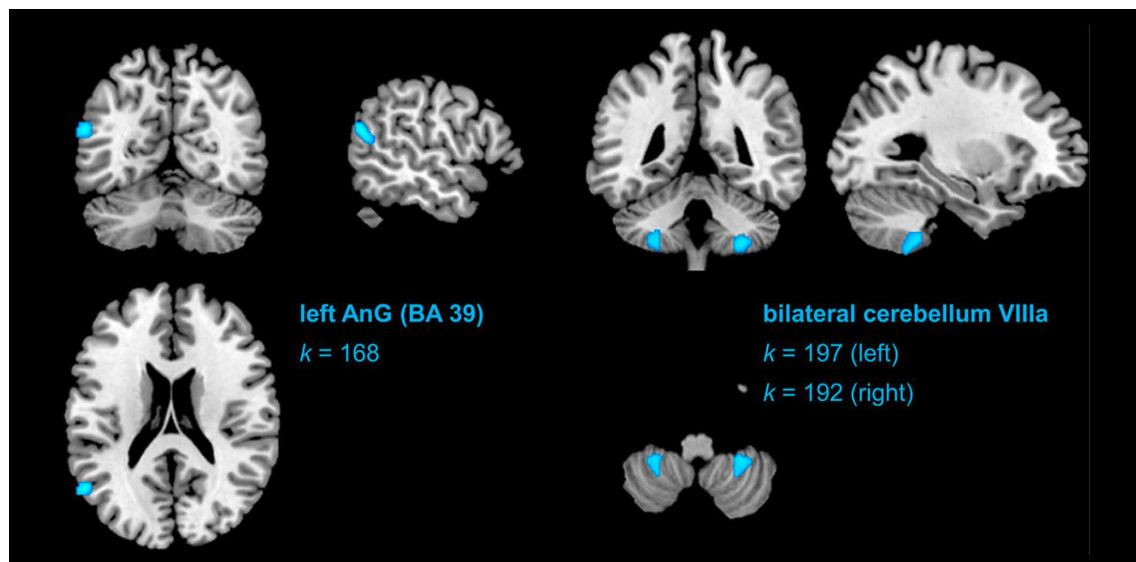
die Probanden nicht wussten, ob wirklich Schall emittiert wird oder nicht [13,14].

Die Langzeitexposition von 38 Versuchspersonen mit nicht bewusst wahrnehmbarem Infraschall (6 Hz, 80–90 dB SPL) [13] zeigte keinen signifikanten Einfluss auf verhaltensabhängige Parameter (somatisches und psychisches Befinden, z. B. Schwindel, Druckgefühl im Brustkorb, Atemschwierigkeiten, Taubheitsgefühl in Körperbereichen), die Schlafqualität oder subjektive kognitive Parameter (z. B. Konzentrationsstörungen, Nervosität, Stress). Eine MRT-Untersuchung vor und nach der einmonatigen Exposition zeigte minimale, aber statistisch signifikante Veränderungen der grauen Hirnsubstanz in Bereichen des Superior Temporal Gyrus (STG), die für das Sprachverstehen zuständig sind, sowie auf beiden Seiten des Cerebellums (Abb. 5). Letzteres ist nach neuen Erkenntnissen nicht nur in motorische Funktionen involviert, sondern auch am Funktionieren des Arbeitsgedächtnisses und kognitiver Funktionen beteiligt.

Die Langzeitexposition von 34 Versuchspersonen mit nicht bewusst wahrnehmbarem Ultraschall (22,4 kHz) [14] zeigte ebenfalls keinen signifikanten Einfluss auf verhaltensabhängige Parameter, aber geringe Veränderungen der grauen Hirnsubstanz in mehreren Teilbereichen des Frontallappens, im limbischen System und im Cerebellum. Die Hirnsubstanzveränderungen bei Ultraschallexposition waren komplexer und traten in völlig anderen Hirnbereichen auf als bei Infraschallexposition. Jedoch gab es in beiden Studien keinen Hinweis auf eine daraus resultierende Veränderung des somatischen oder psychischen Befindens oder auf subjektive kognitive Parameter (z. B. Stress). Die abschließende Klärung einer möglichen Auswirkung der beobachteten Veränderungen bedarf weiterer Forschungsarbeiten.

Ergänzend sei eine weitere Studie erwähnt, in der die MRT-Bildgebung während der Exposition

Abbildung 5: MRT-Scans mit Schnitten durch die Frontalebene (jeweils links oben; Blick von vorne), Sagittalebene (jeweils rechts oben; Blick von der Seite) und Transversalebene (jeweils unten; Blick von oben) aus [13]. Die Bereiche, in denen eine Veränderung der grauen Hirnsubstanz zwischen den MRT-Scans vor und nach der Langzeitexposition mit Infraschall festgestellt wurde, sind blau markiert.



mit einem 200 s langen 12-Hz-Ton an 14 Testpersonen durchgeführt wurde [15]. Für fast unhörbaren Infraschall mit einem Schalldruckpegel nahe der individuellen Wahrnehmungsschwelle wurde eine Veränderung in der Gehirnaktivierung gezeigt. Wie für die Langzeitexposition mit Infraschall beobachtet, betraf die Aktivierung Hirnbereiche, die für die auditorische Verarbeitung zuständig sind. Zudem wurde eine Aktivierung in Bereichen der emotionalen Kontrolle beobachtet. Interessant war, dass mäßig lauter, also deutlich überschwelliger Infraschall keine entsprechende Aktivierung bewirkte.

3.3 Kognitive Wirkung von Infraschall und Luftultraschall

Hörschall hat eine deutliche Wirkung auf alle kognitiven Prozesse, wie man aus der täglichen Erfahrung z. B. des Lesens, wenn nebenbei Musik läuft, kennt. Insbesondere für Arbeiten in lärmender Umgebung ist es sehr wichtig, die Wirkungen zu kennen, um z. B. Arbeitsschutzmaßnahmen zielgenau einsetzen zu können. Möglicherweise bewirken neue Lärmarten, wie Infra- oder Ultraschall, auch eine Beeinflussung, wobei andere, z. B. unterbewusste Prozesse eine Rolle spielen könnten.

So wurde in einer mittels MRT-Bildgebung unterstützten Studie untersucht, inwieweit Infraschall die Funktion von Prozessen im Arbeitsgedächtnis beeinflusst. Dazu wurden Probanden mit einem 12-Hz-Infraschallton beschallt, während sie unter MRT-Kontrolle eine Gedächtnisaufgabe lösen mussten [16]. Der Infraschallton wurde hier wiederholt über jeweils 3 s während einer definierten Aufgabe („n-back task“), die hohe Konzentration erfordert, abgespielt. Der Ton war für alle 13 Probanden deutlich hörbar, was sich bei einem Vergleich der MRT-Scans mit und ohne Ton auch in einer erhöhten Aktivität im primären auditorischen Cortex zeigte (Abb. 6). Gleichzeitig wurde eine leichte Erhöhung der Gedächtnisleistung unter Einwirkung des Infraschalls gefunden, die allerdings statistisch nicht signifikant war. Es kann aber, auf Basis dieser Ergebnisse, eine unmittelbare negative Auswirkung auf die kognitive Leistung mit hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

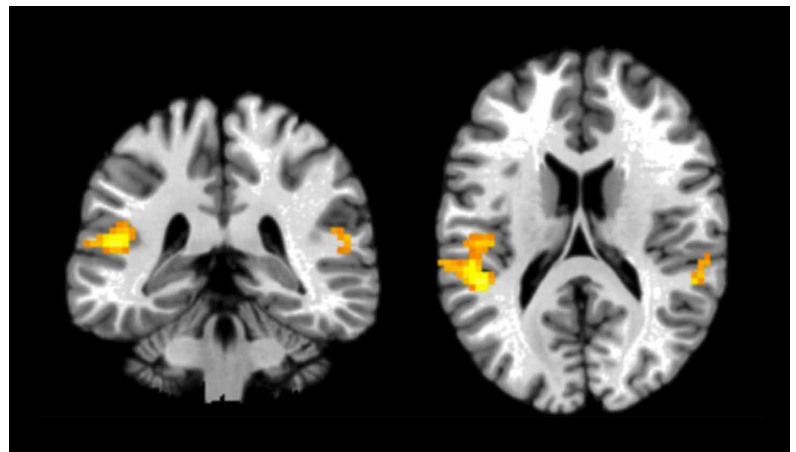
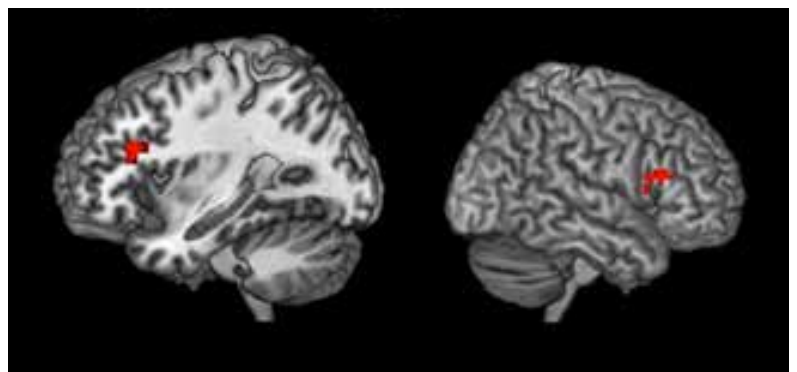


Abbildung 6: MRT-Scan: Aktivierung in Hirnbereichen des primären auditorischen Cortex während der Bearbeitung einer Arbeitsgedächtnisaufgabe in Anwesenheit eines Infraschalltons im Vergleich zur Bearbeitung der Aufgabe ohne Infraschallton (aus [16]). Links ist ein Schnitt durch die Frontalebene (Blick von vorne) gezeigt, rechts ein Schnitt durch die Transversalebene (Blick von oben).

telbare negative Auswirkung auf die kognitive Leistung mit hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

Für die Untersuchung einer möglichen kognitiven Wirkung von Ultraschall wurde eine Studie in Analogie zu der oben beschriebenen Infraschallstudie durchgeführt [17]. Da sich das Wahrnehmungsvermögen im Ultraschallbereich individuell besonders stark unterscheidet (siehe Abschnitt 2.3), wurden vor der eigentlichen Messung Wahrnehmungsschwellen jeder einzelnen Testperson bestimmt. Die MRT-Studie wurde dann mit 15 Probanden durchgeführt, die einen 21,5-kHz-Ton deutlich wahrnehmen konnten. Dieser Ton wurde wiederholt über jeweils 3 s während der Gedächtnisaufgabe abgespielt. Interessant ist, dass es keinen signifikanten Unterschied der Hirnaktivierungen in An- und Abwesenheit des Ultraschalltons gab. Stattdessen zeigte sich eine deutlich höhere Aktivierung bei Darbietung eines unterschwelligen Ultraschalltons im Vergleich zu dessen überschwelliger Präsentation im Bereich des Frontallappens. Ein deutlicher Unterschied in der Hirnaktivierung ging einher mit einer verkürzten Reaktionszeit im Gedächtnisexperiment und einer als subjektiv unangenehmer beschriebenen Hörsituation (der Ultraschallton wurde über einen Einsteckhörer präsentiert, während die MRT-Geräusche durch Schallschutz gedämpft wurden). Diese Ergebnisse lassen vermuten, dass unterschwelliger Ultraschall bestimmte Prozesse

Abbildung 7: MRT-Scan: Zusätzliche Aktivierung in Hirnbereichen des primären auditorischen Cortex während der Bearbeitung einer Arbeitsgedächtnisaufgabe bei Anwesenheit eines unterschwelligen 21,5-kHz-Ultraschalltons im Vergleich zu dessen überschwelliger Darbietung [17]. Die Abbildung zeigt Schnitte durch die Sagittalebene (Blick von links bzw. rechts).



im Gehirn, wie z. B. für Gedächtnisleistungen beeinflussen kann. Eine direkte Ablenkung, die z. B. an Arbeitsplätzen mit Ultraschall im Sinne des Arbeitsschutzes kritisch zu sehen wäre, konnte nicht nachgewiesen werden.

Zusammenfassung und Ausblick

Die Wirkung von Lärm zu verstehen ist essenziell, um Methoden und Technik gegen schädigende Einflüsse entwickeln zu können. Das betrifft die aktive und passive Lärminderung ebenso wie die Entwicklung von Strategien für die Erhöhung der Resilienz von betroffenen Personen gegen Lärm und seine Folgen. Die Untersuchungen für neue Lärmarten sind hier notwendige Voraussetzung, um auch in diesem neuen Gebiet fundierte Methoden zur Beurteilung des Lärms und seiner Wirkungen entwickeln zu können.

Die Studien zum Infraschall zeigen sowohl mögliche positive Effekte (Verbesserung der Leistungsfähigkeit des Arbeitsgedächtnisses bei Anwesenheit eines deutlich hörbaren, kurzen Infraschalltons; Kapitel 3.3) als auch negative Wirkung (Abnahme der grauen Hirnsubstanz in Bereichen der Sprachverarbeitung bei Langzeiteinwirkung unhörbaren Infraschalls; Kapitel 3.2). Deshalb ist es denkbar, dass die gesundheitliche Wirkung von Infraschall stark von dessen Einwirkungsdauer abhängt. Auch beim Ultraschall wurden positive und negative Wirkungen beobachtet.

Grundsätzlich muss aber festgestellt werden, dass sowohl für Infraschall als auch Ultraschall weiterhin noch viele grundsätzliche Fragen zur Einschätzung der sehr vielfältigen Lärmsituationen offen sind. Es bedarf, insbesondere, weiterer Grundlagenstudien zur Quantifizierung der Wirkung dieser neuer Lärmarten, um fundiertes Wissen in die laufende gesellschaftliche Debatte einbringen zu können und die Entwicklung geeigneter Strategien für den Umgang mit den neuen Lärmarten zu unterstützen.

Referenzen

- [1] C. Clark, K. Paunovic, *WHO environmental noise guidelines for the European region: A systematic review on environmental noise and quality of life, wellbeing and mental health*, Int. J. Environ. Res. Public Health 15, 2400 (2018)
- [2] M. Enda, M., *What to do about environmental noise?* Acoustics Today 13, 18 (2017)
- [3] C. Nugent, N. Blanes, J. Fons et al., *Noise in Europe 2014*, European Environmental Agency 10/2014
- [4] J. H. Schmidt, M. Klokner, *Health effects related to wind turbine noise exposure: a systematic review*, PLoS one 9, 114183 (2014)
- [5] D. Krahé, D. Schreckenberger, F. Ebner et al., *Machbarkeitsstudie zur Wirkung von Infraschall*, Umweltbundesamt (2014)
- [6] T. Leighton, B. Lineton, C. Dolder, M. Fletcher, *Public exposure to airborne ultrasound and very high frequency sound*, Acoustics Today 16, 17 (2020)
- [7] H. Möller, C. S. Pedersen, *Hearing at low and infrasonic frequencies*, Noise and health, Medknow Publications 6, 37 (2004)
- [8] R. Kühler, T. Fedtke, J. Hensel, *Infrasonic and low-frequency insert earphone hearing threshold*, J. Acoust. Soc. Am. 137, EL347-EL353 (2015)
- [9] E. Burke, J. Hensel, T. Fedtke, S. Uppenkamp, C. Koch, *Detection thresholds for combined infrasound and audio-frequency stimuli*, Acta Acoust. united Ac. 105, 1173 (2019)
- [10] M. Bug, E. Burke, T. Fedtke, C. Koch, *Metrology for medical acoustics and audiology*, PTB-Mitteilungen 2/2020, Metrology in Medicine (2020)
- [11] R. Kühler, R. Weichenberger, M. Bauer et al., *Does airborne ultrasound lead to activation of the auditory cortex?* Biomed. Eng. – Biomed. Tech. 64, 481 (2019)
- [12] S. Jennings, J. Kennedy, *Detection and evaluation of amplitude modulation from a wind energy development, Ireland*. Acta Acoust. united Ac. 105, 1042 (2019)
- [13] L. Ascone, C. Kling, J. Wieczorek, C. Koch, S. Kühn, *A longitudinal, randomized experimental pilot study to investigate the effects of airborne infrasound on human mental health, cognition, and brain structure*, Scientific Reports 11, 5814 (2021)
- [14] L. Ascone, C. Kling, J. Wieczorek, C. Koch, S. Kühn, *A longitudinal, randomized experimental pilot study to investigate the effects of airborne ultrasound on human mental health, cognition, and brain structure*. Scientific Reports 11, 3190 (2021)
- [15] M. Weichenberger, M. Bauer, R. Kühler et al., *Altered cortical and subcortical connectivity due to infrasound administered near the hearing threshold – evidence from fMRI* PLoS one 12, e0174420, 1 (2017)
- [16] M. Weichenberger, R. Kühler, M. Bauer et al., *Brief bursts of infrasound may improve cognitive function – An fMRI study*. Hearing research 328, 87 (2015)
- [17] M. Weichenberger, M. Bug, R. Brühl et al., *Air-conducted ultrasound below the hearing threshold produces functional changes in the cognitive control network*, In preparation

PTB metrological infrastructure for the environmental dose assessment

F. Krasniqi¹, U. Stolzenberg², M. Luchkov³, V. Morosh⁴,
P. Kramer⁵, K. Kahnt⁶, B. Reinelt⁷, J. Kretzer⁸, R. Zwiener⁹

This article gives an overview of the unique metrology infrastructure for ionizing radiation in the environment that has been developed at PTB over the last three decades. This infrastructure includes reference sites used to quantify terrestrial radiation (ionizing radiation due to radioactive nuclei in the Earth's crust), secondary cosmic radiation (due to the decay of galactic and solar cosmic rays in the Earth's atmosphere) and artificial radiation (through simulation of a bypassing radioactive cloud) in quantities that represent the biological effects of ionizing radiation. These reference sites have supported research and development in a number of EURAMET projects that resulted in groundbreaking developments of spectrodosimetry systems for radiological surveillance of the environment. They also foster interdisciplinary collaboration that paves the way for new insights and knowledge on the links between the ionizing radiation in the environment, climate, anthropogenic activities, and health.

1. Introduction

Living organisms are continuously exposed to ionizing radiation in the environment, and, to a large extent, this exposure is unavoidable. This radiation originates from a variety of sources, both natural and artificial, and can cause biological effects that can be hazardous for both humans and for the ecologic health of the Earth biosphere [1]. Natural ionizing radiation is emitted from cosmogenic and terrestrial sources. Terrestrial sources include primordial radionuclides such as uranium (^{238}U and ^{235}U decay series), thorium (^{232}Th decay series) and potassium ^{40}K . They emit gamma radiation with energies up to 2.6 MeV which contribute significantly to the absorbed dose [2]. A particular descendant of uranium and thorium, often the largest contributor to

background radiation, is radon gas. Through its progenies, radon contributes significantly to gamma radiation in the environment [1]. Cosmogenic radiation, on the other hand, comprise particle radiation (predominantly protons) originating from galactic cosmic rays and solar energetic particles. They trigger air showers (a cascade of ionized particles and electromagnetic radiation) in the Earth's atmosphere that irradiate the Earth surface with secondary cosmic radiation [3]. The main component of secondary cosmic rays near the ground, which contributes significantly to the absorbed dose, is made by muons. Muons are similar particles to electrons, but about 200 times heavier and unstable, with a lifetime of about 2.2 μs . They are produced in the altitude range between 12 km and 15 km and, due to their very high energies in the GeV range, can reach the Earth's surface before decaying. This fact, explained by the relativistic effect of time dilatation, is a very popular example of the validity of the theory of relativity [4].

In addition to natural radioactivity and cosmogenic sources, since mid of the last century the radiation background has also been increased by man-made activities [1, 5]. Among the man-made sources of radiation that currently have the greatest impact on the environment are the aftermath of nuclear accidents and fallouts from the development and testing of nuclear weapons [5]. Although the existence of nuclear accidents has been present for many years and our society has developed safeguards to significantly reduce the likelihood of an accident to very low levels, they can still happen with devastating consequences. For example, the emitted material during the Chernobyl nuclear accident in 1986 [2, 5] consisted of radioactive isotopes having half-live times ranging from a few hours (^{99}Mo , ^{132}Te), several days (^{33}Xe , ^{131}I , ^{140}Ba , ^{239}Np), months (^{89}Sr , ^{95}Zr , ^{103}Ru , ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{242}Cm) to years (^{90}Sr ,

¹ Dr. Faton Krasniqi, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen*, E-Mail: faton.krasniqi@ptb.de

² Dr. Ulf Stolzenberg, Arbeitsgruppe 6.32, Arbeitsgruppe 6.33 *Strahlenschutz an Röntgenstrahlenerzeugern*, E-Mail: ulf.stolzenberg@ptb.de

³ Maksym Luchkov, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen*, E-Mail: maksym.luchkov@ptb.de

⁴ Viacheslav Morosh, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen*, E-Mail: viacheslav.morosh@ptb.de

⁵ Patrik Kramer, Arbeitsgruppe 6.32, Arbeitsgruppe 6.35 *Strahlenschutz-Messplatstechnik*, E-Mail: patrik.kramer@ptb.de

⁶ Karsten Kahnt, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen*, E-Mail: karsten.kahnt@ptb.de

⁷ Björn Reinelt, Arbeitsgruppe 6.32, Arbeitsgruppe 6.35 *Strahlenschutz-Messplatstechnik*, E-Mail: bjorn.reinelt@ptb.de

⁸ Jörg Kretzer, Arbeitsgruppe 6.32, Arbeitsgruppe 6.33 *Strahlenschutz an Röntgenstrahlenerzeugern*, E-Mail: joerg.kretzer@ptb.de

⁹ Roland Zwiener, Arbeitsgruppe 6.32, Arbeitsgruppe 6.33 *Strahlenschutz an Röntgenstrahlenerzeugern*, E-Mail: roland.zwiener@ptb.de

^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs , $^{238,239,240,241}\text{Pu}$). In particular, the release of ^{137}Cs , a radioisotope that is stored in sediments and tends to accumulate in plant tissue and enter the food chain, results in long-term soil contamination that will last for centuries.

Monitoring of ionizing radiation in the environment is an important radiological management tool that allows observation, assessment and prediction of future trends related to sources of radiation, including their distribution in the biosphere and their migration capabilities. The need for radiological monitoring and, in particular, for the establishment of national and pan-European monitoring networks such as the German 'Integrated Measuring and Information System for the Surveillance of Environmental Radioactivity' (IMIS) [6] and European Radiological Data Exchange Platform (EURDEP) [7] became apparent after Chernobyl nuclear accident, which confirmed the assertion that nuclear accidents have transboundary repercussions. Therefore, national early warning systems must be able to clearly detect changes in ambient radiation. At the same time, dosimetry systems must be harmonized so that different technical approaches and procedures do not lead to inconsistencies in the reported levels of ionizing radiation.

Monitoring of ionizing radiation in the environment is not constrained only to early warning system. The large amount of data collected also enables a wide range of data analyses that contribute to the development of novel dosimetry systems [8, 9], as well as support the overlapping needs between climate research, atmospheric chemistry, biology and radiation protection communities which are critical to make informed decisions on the global challenges our society is facing [10, 11].

This article summarizes the unique metrology infrastructure for ionizing radiation in the environment that has been developed at the PTB over the last three decades. PTB via Division 6 *Ionizing Radiation*, Department 6.3 *Radiation Protection Dosimetry* and working group 6.32 "Dosimetry at Low Dose Rates" operates a worldwide unique combination of reference facilities for dosimetry at very low dose rates, including Environmental Radiation Dosimetry Site (ERADOS), Cosmic Radiation Dosimetry Site (CORADOS), Underground laboratory for DOSimetry (UDO II) and the free-field reference site that allows simulation of a bypassing radioactive plume [12, 13]. In addition, an unmanned gamma spectrometry system for radiological monitoring has been developed under European Metrology Program

for Innovation and Research (EMPIR) project 17ENV04 "Preparedness" (Metrology for mobile detection of ionizing radiation following a nuclear or radiological incident) [14], and a data management platform for environmental monitoring is currently being commissioned. This infrastructure, in conjunction with the innovative methods developed at PTB, is not only important for radiation protection, but also promotes interdisciplinary collaboration that provides new insights and knowledge about the links between the environment, climate, anthropogenic activities, and health that advance knowledge for the development of protective measures to reduce associated health risks and preserve ecosystems.

2. Monitoring radiation dose in the environment: The PTB reference sites

To monitor the ionizing radiation in the environment, the measurements are done in terms of ambient dose equivalent rate $\dot{H}^*(10)$ [15]. These measurements are needed to make decisions, e. g. in a case of nuclear emergency, to surveil nuclear power plants or nuclear waste depositions. An accurate measurement of this quantity is important not only for estimating the potential exposure of humans to external radiation, but also for developing new measurement methods that will help establish the link between radiation protection, climate, and biospheric evolution [10, 11].

The problem with measuring ambient dose equivalent rate $\dot{H}^*(10)$ in the natural environment is that any possible artificial excess dose must be quantified by subtracting the natural environment dose from the total measured dose. This task is a challenging because dosimetry systems respond differently to different components of the ionizing radiation in the environment, and the natural dose is not constant but is influenced by weather conditions [13,16,17]. The indication of a dosimeter \dot{G} can be expressed as the sum of the following contributions: the inherent background of the dosimeter \dot{G}_0 , the contributions of the terrestrial radiation $q_{\text{TR}} \dot{H}^*(10)_{\text{TR}}$, the secondary cosmic radiation $q_{\text{SCR}} \dot{H}^*(10)_{\text{SCR}}$ and, if applicable, an excess dose rate $q_{\text{ART}} \dot{H}^*(10)_{\text{ART}}$ [13,17]:

$$\dot{G} = \dot{G}_0 + q_{\text{TR}} \dot{H}^*(10)_{\text{TR}} + q_{\text{SCR}} \dot{H}^*(10)_{\text{SCR}} + q_{\text{ART}} \dot{H}^*(10)_{\text{ART}} \quad (1)$$

with q_{TR} , q_{SCR} , and q_{ART} being the responses of detector to terrestrial radiation, secondary cosmic radiation, and artificial radiation, respectively. From this equation, an excess ambient dose equivalent rate $\dot{H}^*(10)_{\text{ART}}$ when applicable, can be derived as:

$$\dot{H}^*(10)_{\text{ART}} = \frac{1}{q_{\text{ART}}} \left[\dot{G} - \dot{G}_0 - q_{\text{TR}} \dot{H}^*(10)_{\text{TR}} - q_{\text{SCR}} \dot{H}^*(10)_{\text{SCR}} \right] \quad (2)$$

As both, the terrestrial dose rate $\dot{H}^*(10)_{\text{TR}}$ and the dose rate caused by secondary cosmic radiation $\dot{H}^*(10)_{\text{SCR}}$ vary with time, it is impossible to derive the artificial dose rate $\dot{H}^*(10)_{\text{ART}}$ directly from the instruments reading, especially if $\dot{H}^*(10)_{\text{ART}}$ is of the same order of magnitude as $\dot{H}^*(10)_{\text{TR}}$. Response factors q_{TR} , q_{SCR} and q_{ART} also need to be determined as they may deviate considerably from unity. Finally, the inherent background can be in the same order of magnitude as the natural background radiation reading, which is, e. g., often true for Geiger Müller counter-based instruments. These facts make it very difficult to measure accurately small increases in dose rate caused by artificial radiation [9].

In order to investigate dosimetry systems with regard to these parameters, PTB has established four reference sites for the investigation of ionizing radiation in the environment. The dose rates measured there are traceable to PTB's primary standards. These reference sites have played a crucial role in the harmonization of the European early warning dosimetry system and, more generally, have made a fundamental contribution to the quality assurance of environmental dosimetry systems by providing network operators and monitoring bodies with basic information on the calibration and performance of their dosimetry systems [12, 13, 17, 33]. Since 2019, they are also anchored in German radiation protection legislation by providing reference measurement fields to ensure a national quality standard according to § 103 Radiation Protection Ordinance StrlSchV [18]. In addition, the PTB reference sites have supported the European Metrology Research Programme (EMRP) joint research project ENV57 "MetroERM" (Metrology for radiological early warning networks in Europe) in developing novel spectrodosimetry systems for environmental monitoring [19], the EMPIR project 17ENV04 "Preparedness" in developing an unmanned aircraft based gamma spectrometry system for radiological surveillance [20] and in investigating the dose rate measurement instruments used in non-governmental networks [21], are currently supporting the EMPIR research project 19ENV01 "traceRadon" (Radon metrology for use in climate change observation and radiation protection at the environmental level) [10] in exploring radon as a tracer for identifying successful greenhouse gas (GHG) mitigation strategies, and will support the recently granted European Partnership on Metrology research project BIOSPHERE in evaluating the mutual effects of cosmic rays and solar UV radiation in terrestrial ecosystems [11].

2.1 The PTB environment radiation dosimetry site

Natural ionizing radiation at ground level is investigated at the Environment Radiation DOSimetry Site (ERADOS) using several sophisticated detectors that continuously measure secondary cosmic radiation, terrestrial gamma radiation and radon, as well as atmospheric parameters such as temperature, air pressure, humidity, and rainfall [2, 22]. The measuring site is located in the southern part of the PTB premises in Braunschweig, at 52° 17' N, 10° 28' E and an altitude of approx. 80 m above sea level. The measuring site consists of a flat, grass-covered area (approx. 35 m × 55 m) and two wooden houses with a floor area of approx. 16 m². In particular, the detectors, which are not weatherproof, are safely housed in the air-conditioned wooden houses, see Fig. 1. This measuring site also hosts one of the 1800 stationary dosimeters of the Federal Office for Radiation Protection (BfS)-IMIS monitoring network, which transmits data to the Radiological Situation Center of the Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation, Nuclear Safety and Consumer Protection (BMUV), and to EURDEP.

The photon component of ionizing radiation (gamma radiation) in the environment is measured with a variety of established classical counting systems such as high pressure ionization chambers (Reuter-Stokes of the type RS-131) and scintillation probes based on organic scintillator crystals (type Automess 6150 AD b/E). These systems are capable of measuring equivalent dose rates in the range of a few nSv/h up to 1 mSv/h, at an energy range from a few tenths of keV up to 7 MeV. Recently, this assortment has been complemented by a new generation of detectors developed at PTB, based on scintillator crystals such as CeBr₃ and SrI₂, which provide radionuclide information in addition to the classical counting systems measuring only $H^*(10)$ [8,9,23,24,25]. These novel systems, called spectrodosimeters (see

Figure 1: Photograph of the ERADOS during an intercomparison of passive $H^*(10)$ area dosimeters for environmental monitoring



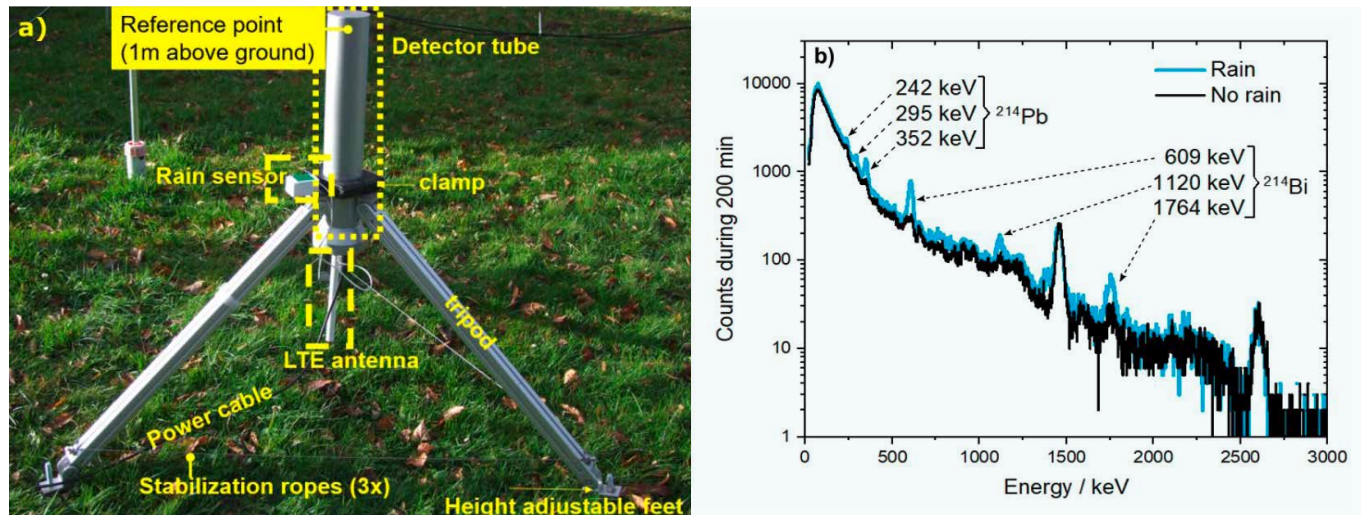


Figure 2: (a) Photograph of a CeBr_3 spectrodosimetry system developed at the PTB. The detection system consists of a cylindrical crystal with a height of 2.54 cm and a diameter of 2.54 cm connected to a Hamamatsu Photomultiplier of the type R6231-100-01 operated at 600 V, with signal readout by a Bridgeport multi-channel analyzer. A LTE (Long Term Evolution) antenna provides remote access to the system via a RaspberryPi module. (b) Comparison of spectra measured by a CeBr_3 detector during a rain event and during a dry period. During rainfall, the wash-out of ^{222}Rn progeny (mainly ^{214}Pb and ^{214}Bi , with half-lives of 27 min and 20 min, respectively) may cause a significant increase (up to a factor of two) of the dose rate on ground. The most prominent ^{222}Rn progeny peaks are marked

Fig. 2), are able to measure the gamma radiation spectrum with an energy resolution as low as 4 % at 662 keV, allowing the measurement of a typical terrestrial dose rate with an uncertainty of less than 3 % [9, 24] and a correct identification of radionuclides with a surface contamination as low as 2 kBq/m².

Secondary cosmic rays are monitored using several particle detectors sensitive to muons and neutrons. The Muon Dosimetry System (MUDOS) allows coincidence rate measurements using two cylindrical multi-wire proportional chambers filled with CF_4 counting gas, and the DETector system for COSmic radiation (DECOS) allows coincidence measurements on the basis of two large area plastic scintillator panels (EJ-200 Polyvinyltoluene, 80 cm × 80 cm × 2.5 cm) arranged one above the other and read out by two photomultipliers [4]. The coincidence rates of both muon detectors are calibrated in terms of $H^*(10)$ using a tissue-equivalent proportional counter (TEPC) which is surrounded by a multiwire proportional counter, in order to identify charged particles [4, 26]. This TEPC reference instrument system was developed at the PTB and allows absolute measurement of $H^*(10)$ due to muon component. The neutron component of the secondary cosmic radiation is observed using neutron dose rate probes consisting of a polyethylene moderator sphere with a composite ^3He recoil proton counter tube (LB 6411). Since high-energy neutrons with energies of about 100 MeV are a major part of the ambient dose equivalent rate due to neutrons [2], a neutron counter with an external layer of 10 mm lead is also operated. The response to high energy neutrons is enhanced by utilizing spallation neutrons, which are generated in the lead.

The ambient dose equivalent rate measured by the photon detectors (classical counters and spectrodosimetry systems) at ERADOS includes both terrestrial and secondary cosmic ray

contributions. To obtain only the contribution of terrestrial gamma radiation, the charged component due to secondary cosmic rays must be subtracted from the measured value \dot{G} (cf. Eq. 1) according to the following equation

$$\dot{H}^*(10)_{\text{TR}} = \frac{1}{q_{\text{TR}}} [\dot{G} - \dot{G}_0 - q_{\text{SCR}} \dot{H}^*(10)_{\text{SCR}}] \quad (3)$$

Both the \dot{G}_0 and q_{TR} are measured at the PTB underground laboratory (see next subsection), where q_{TR} is determined by a sealed ^{226}Ra source resembling the gamma spectrum in the environment, while q_{SCR} is determined at PTB's reference site for secondary cosmic radiation (see Sect. 2.3). With $H^*(10)$ due to secondary cosmic rays measured with muon detectors, the terrestrial and muonic components of the ionizing radiation in the environment can be separately quantified. The response of photon detectors to cosmic neutrons is not measurable and, thus, practically zero.

Radon concentration in the outdoor air is another parameter that is monitored at the ERADOS. Because of the extended half-lives of uranium (^{238}U) and radium (^{226}Ra), and due to their abundance in the Earth's surface, radon is continually being released into the air where it reaches an altitude of several kilometers, before being lost through radioactive decay. As shown in Fig. 2(b), Radon in the environment contributes significantly to the measured ambient dose equivalent $H^*(10)_{\text{TR}}$. Short-term increases of up to about twice the natural level occur when radioactive decay products of the naturally occurring radioactive noble gas radon are washed out of the atmosphere by precipitation and deposited on the ground. Radon activity concentration at ERADOS is measured by two complementary detectors, one operating on the principle of detection of progeny following the two filter principle, the ANSTO 200 L [27] and the AlphaGUARD measuring the decay of radon directly [28]. This topic is discussed in more detail in a separate article in this issue.

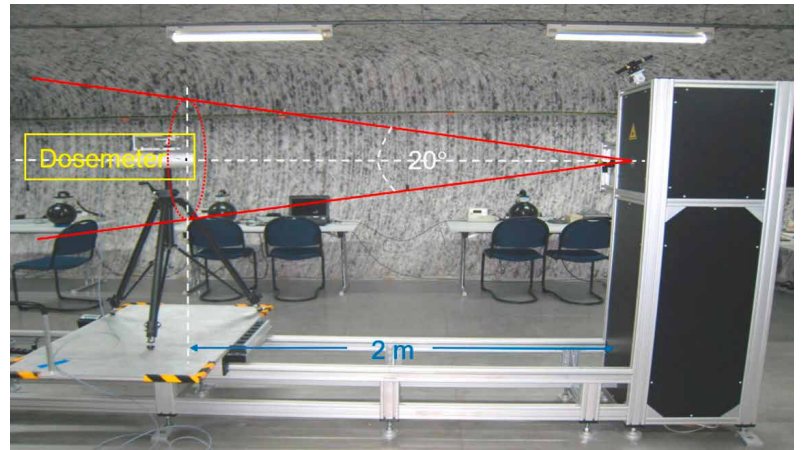
All data measured at ERADOS are stored in a data management platform (see Section 3), which allows their visualization and analysis (see Fig. 7).

2.2 The PTB underground laboratory for dosimetry

PTB operates an Underground laboratory for DOSimetry (UDO II) in the salt mine of esco (Kali+Salz AG) in Graslleben at a depth of 430 m below the ground [29–32]. The overall dimensions of UDO are 18.5 m × 7.5 m × 3.2 m. Due to the depth of 430 m below ground, the cosmic ray muon intensity in this facility is reduced by more than 2 orders of magnitude compared to ground level. In addition, the low specific activity of the pure rock salt and a moderate activity concentration of radon in air ($< 10 \text{ Bq m}^{-3}$), as well as the use of well selected materials with a specific activities less than 2 Bq/kg, result in an extremely low ambient dose equivalent rate $\dot{H}^*(10)_{\text{bg,UDO}} = (1.5 \pm 0.2) \text{ nSv/h}$ [24]. Therefore, UDO II is well suited for dosimetry at low dose rates. In principle, it would provide the necessary conditions for other low radiation background applications, such as, e. g. low-level gamma-ray spectrometry [32], as it was done in the previous underground laboratory UDO I.

UDO II is equipped with a unique photon calibration facility for calibrations at low dose rates (comparable to those in the natural environment and even below), with reference photon fields which are traceable to primary standards of the PTB and covering an ambient dose equivalent rates between 9 nSv/h and 300 nSv/h, see Fig. 3. The isotopes ^{241}Am , ^{57}Co , ^{137}Cs and ^{60}Co generate ‘quasi monoenergetic’ photon fields, whereas a sealed ^{226}Ra source is applied to generate a ‘quasi continuous’ (broad) photon spectrum. The inverse value of calibration factors obtained at UDO II represent the response factors q_i (cf. Eq. 1–3) of the instrument with respect to a particular radionuclide. One set of four ^{137}Cs sources of different activities can be used to investigate the linearity of the detectors, while another set of sources of different radionuclides including ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{57}Co , ^{60}Co and ^{226}Ra , with photon energies between 59 keV and 1.25 MeV is used to study the energy dependence of the detectors’ response [12, 13]. Radioactive sources are stored in a lead safe placed in a 4 m long cavity drilled in the rock salt wall. The ambient dose rate due to source storage is negligible.

Due to the very low ambient dose equivalent rate at UDO II, the inherent background of dosimetry detector systems can be measured directly with low uncertainties [12, 13]. The following two methods can be used to determine the inherent background



of any detector system: a direct measurement at a place where there is almost no background radiation (method 1) or the linear regression analyses of the dose-rate dependence of the instrument reading (method 2). Method 1 is realized by performing a continuous (many hours) measurement in the UDO II facility with no calibration source present in the measurement room. To calculate the inherent detector background reading \dot{G}_0 in terms of the ambient dose equivalent (cf. Eq. 1), the nominal UDO II background value $\dot{H}^*(10)_{\text{bg,UDO}}$ is subtracted from the observed reading at UDO II, \dot{G} , which results in:

$$\dot{G}_0 = \dot{G}_{\text{UDO}} - \dot{H}^*(10)_{\text{bg,UDO}} \quad (4)$$

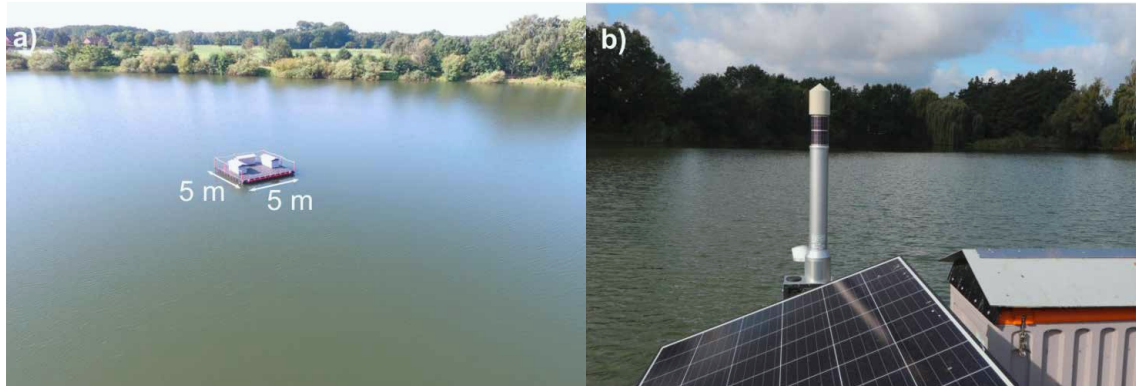
Method 2 is associated with the examination of the linearity of the device under test by varying the reference value of $\dot{H}^*(10)$ at the detector position using radioactive sources with different activities, a linear regression of the results yields valuable information. When the instrument reading of detector system is plotted versus the applied $\dot{H}^*(10)$, the interception of the linear regression line with the instrument reading is identified as the inherent background of the instrument [12, 13].

2.3 The PTB cosmic radiation dosimetry site

To investigate and determine the response of detectors to SCR, PTB has installed the reference site for COSmic RAdiation DOSimetry (CORADOS) on a floating platform on a lake about 15 km from PTB-Braunschweig [2, 22]. The platform is located about 100 m from the shore and is well shielded against terrestrial radiation from the lake bottom by a water depth of about 2.5 m to 3 m, depending on the exact position above the bottom and the absolute water content of the lake. The latter may vary throughout the year depending on seasonal climatic conditions. The platform consists of hollow polyethylene

Figure 3: UDO II calibration facility. A source holder bearing the radioactive source is placed inside the lead collimator with an opening angle of 20°. A laser positioning system helps to identify the reference irradiation point at a distance of 2 m from the source. The well-collimated photon beam leaving the collimator does neither hit the salt rocks nor the floor or the ceiling in the vicinity of the reference point (the edge of the beam hits the ground about 4 m behind the reference point), resulting in a negligible background due to scattered photons

Figure 4: (a) Photograph of the CORADOS. The platform is made of hollow polyethylene blocks with a total area of 5 m × 5 m. The dosimetry equipment is set up in boxes made of polyethylene which are permanently mounted on the platform. (b) Recently CORADOS has been modernized with two dosimetry systems and a solar panel with accessories to power the measurement systems and enable data transmission.



blocks with a total area of 5 m × 5 m. The dosimetry equipment is housed in polyethylene boxes permanently mounted on the platform, see Fig. 4.

Due to the flat geometry of the lake's surroundings, only radon and its decay daughters as well as terrestrial radiation from the lake shore which reaches the floating platform within a small horizontal solid angle by Compton scattering in air will remain. They contribute with a background ambient dose equivalent rate of about 1 nSv/h [13, 33]. Therefore, on this reference site detectors are exposed almost only to secondary cosmic radiation. During a measurement at CORADOS the muon detector MUDOS monitors the charged component of the secondary cosmic radiation at ERADOS. On the assumption that the distance between ERADOS and CORADOS of about 15 km is small enough, the muon fluences at both sites are equal [12]. From Eq. (1), the response of a detector to secondary cosmic radiation is then given by

$$q_{\text{SCR}} = \frac{\dot{G} - \dot{G}_0 - \dot{H}^*(10)_{\text{bg,CORADOS}}}{\dot{H}^*(10)_{\mu}} \quad (5)$$

with $\dot{H}^*(10)_{\text{bg,CORADOS}}$ representing the background radiation at the floating platform and $\dot{H}^*(10)_{\mu}$ the charged component of the secondary cosmic radiation measured using DECOS or MUDOS at ERADOS.

Recently CORADOS has been modernized with two measurement systems, a Geiger-Müller counter system (GammaTRACER XL2) and a self-developed spectrodosimetry system with a CeBr₃ scintillator similar to the one shown in Fig. 2a, that are permanently installed on the platform. The measured data are sent hourly, via mobile phone network, to the Data Management Platform for environmental monitoring at ERADOS (see Sect. 3).

2.4 The PTB free-field irradiation site

To investigate and determine the sensitivity of detectors to small – artificially increased – dose rates, PTB has established the fourth reference site, the so-called free-field reference site that

is equipped with a photon irradiation facility. This reference site is established at the PTB in an almost natural environment in the vicinity of the neutron dosimetry laboratory buildings. The proton accelerator, which is located inside these buildings, is shielded quite well, but it is agreed that during the intercomparison on the free field, the accelerator and the cyclotron will not operate. The center of the free-field site is 38 m away from the neighboring technical supply building and is situated on a plain area that forms a rectangular of 63 m × 120 m. The area is covered with grass that is kept short by regular mowing [12, 13, 33].

The photon irradiation facility, the so-called plume simulator, is designed to simulate a nuclear accident by increasing the dose rate from various radioactive sources in the reference circle with a radius of 5 m by up to a factor of six compared to normal ambient values, see Fig. 5. The goal is to investigate and verify the response of detector systems to the uncollimated gamma radiation that would occur during a radiological event. Active dosimeters, especially those that are part of an early warning network, should be able to detect small variations in dose rate.

The plume simulator contains a set of four different radioactive sources that can accommodate ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co and ²²⁶Ra sealed sources. These sources can be moved from a shielded magazine to different irradiation positions centered on lead cylinders of different thicknesses, resulting in dose rates ranging from 8 nSv/h to 400 nSv/h due to different attenuation levels. The whole procedure of moving different sources to different irradiation positions is controlled by a computer program which allows programming of different time-dependent dose rate profiles. In addition, it is ensured that the sources are secured in a shielded magazine in case of a malfunction.

All measuring instruments and the source shall be fixed 1 m above the ground. All measuring instruments and a secondary standard Reuter Stokes ionization chamber (type RS-131) are installed in the circle of radius of 5 m. The reference instrument provides reference $\dot{H}^*(10)_{\text{ref,ART}}$ values. With instruments response factors q_{TR} , q_{SCR} , and

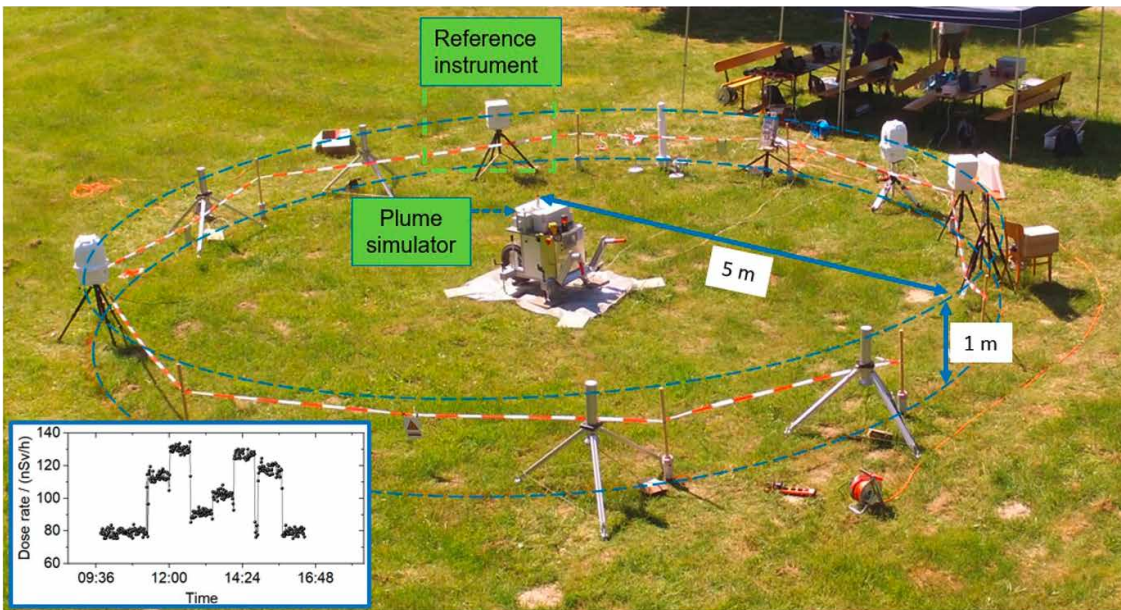


Figure 5: The reference site for the simulation of a bypassing radioactive plume. The plume simulation device is centered on the circle of radius 5 m. All measuring instruments and the source were fixed 1 m above the ground. A secondary standard Reuter Stokes ionization chamber (type RS-131) was installed in the circle as reference instrument and operated during the test to provide reference values of the ambient dose equivalent rate. Inset: raw data (not corrected for the natural background) showing a typical time-dependent irradiation profile.

q_{ART} determined in UDO II, and reference values $\dot{H}^*(10)_{TR}$ and $\dot{H}^*(10)_{SCR}$ measured at ERADOS, $\dot{H}^*(10)_{ART}$ can be quantified using Eq. (2).

3. Data management platform for environmental monitoring

The reference data measured continuously at ERADOS and CORADOS make a fundamental contribution to the research and development of dosimetry systems for environmental monitoring [8, 9, 23–25]. They also make a critical contribution to the quality assurance of dosimetric monitoring and early warning systems which are investigated and calibrated by PTB [12, 13, 16, 17]. In addition, these data also promote cooperation between currently independent groups such as climate observation, which is currently taking place within the 19ENV01 "traceRadon" project

[10], and atmospheric chemistry and biology, which will be explored in the upcoming joint research project BIOSPHERE [11]. Therefore, a centralized data management platform is essential in collecting, cataloging, and storing data generated by such a multitude of unique instruments. With such a platform, researchers, analysts, and other scientific staff can better store and search for scientific data and knowledge, speed up workflows and optimize collaboration.

A Data Management Platform "Environmental Monitoring" (DMP-EM) is currently being commissioned to store and catalog the unique reference data collected at ERADOS and CORADOS. A brief summary is given in Fig. 6. More thorough explanation will be published elsewhere when the activity is concluded. Here, a special Python program reads the files in .csv-format in which the values of various sensors are stored and writes them to a relational database

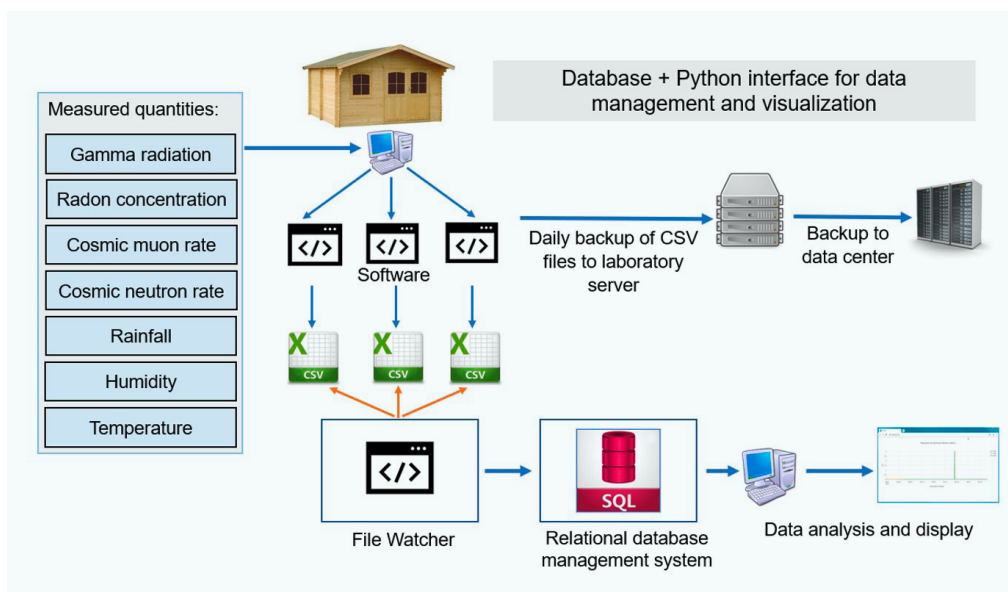


Figure 6: Schematic drawing of the Data Management Platform "Environmental Monitoring". Sensor data are stored continuously to a laboratory computer, with daily backup to laboratory server and PTB data center. The data from the lab computer are copied continuously to a relational database management system. A multitude of software programs check the consistency between the data written in the lab computer and those in the database, and the plausibility of sensor data (outliers or any true signal). In case of inconsistencies, an alarm is sent by e-mail to alert the responsible personnel. User friendly web applications and python programs allow data display and analysis.

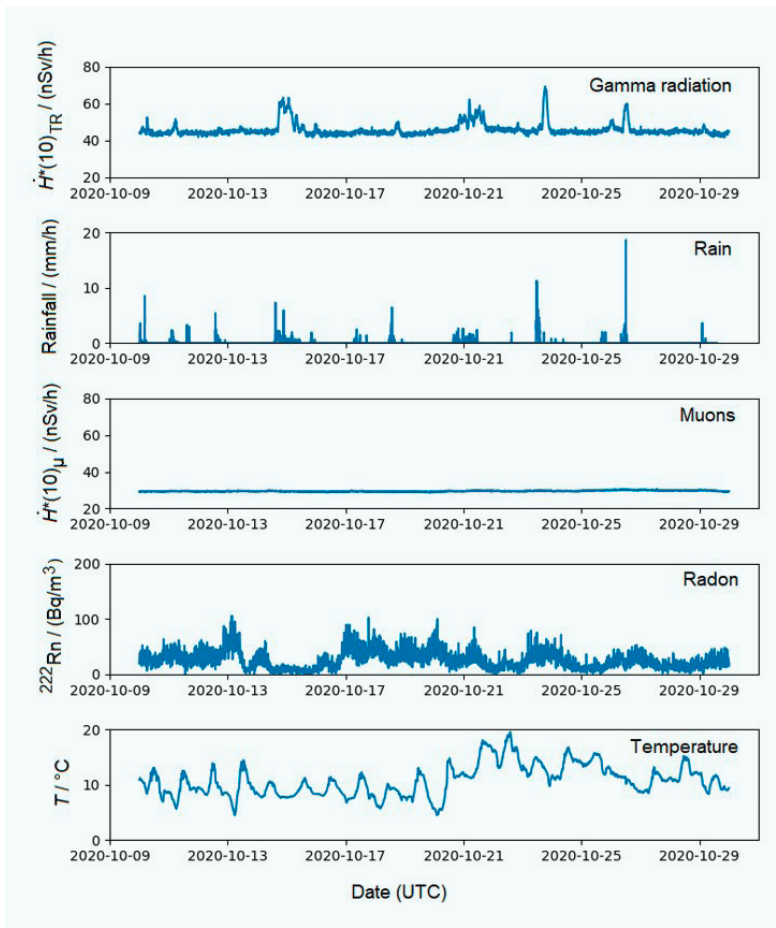


Figure 7: Reference data measured at the ERADOS during October 2020

management system. Special programs which continuously access the database, check the consistency of the data and, in the event of a malfunction (including device errors), trigger an alarm that is sent by e-mail to alert the responsible personnel. An interactive visualization web application enables quick data review, and a user-friendly Python interface enables data analysis ranging from data visualization to simple statistical analysis.

Figure 7 shows an example of the data measured at ERADOS with five sensors and analyzed using Python programs interfaced with DMP-EM:

Figure 8: The unmanned airborne monitoring systems developed at the PTB



terrestrial ambient dose equivalent rate (cf. Eq. 3), rainfall, ambient dose equivalent rate due to muons measured using DECOS (cf. Section 2.1), radon concentration measured using AlphaGUARD, and temperature.

The two upper panels in Fig. 7 show correlation between short term increase of the terrestrial ambient dose equivalent with the rainfall due to the washing out of the radon progenies (see Sect. 2.1, Fig. 2b). Correlation between radon concentration, temperature and terrestrial gamma radiation, on the other hand, are washed out. Although these correlations – from a physical point of view – are to be expected, the dynamic interplay between various atmospheric parameters such as wind, aerosol movement, cloud formation, extent of radon release from the ground, etc., significantly disturb them. In this case, artificial intelligence concepts such as data mining would greatly help in finding the hidden correlations in the data, and therefore, such large environmental datasets would provide a rich playground for novel approaches.

This DMP-EM is currently commissioned for the internal use only. Complementary to the present system, new concepts of data processing (artificial intelligence, machine learning) are anticipated to be used. They are essential for handling ionizing radiation data because of their sociopolitical importance, and for supporting collaboration between different independent research communities, which is encouraged in current and future research projects. In the future, depending on the funding, DMP-EM could evolve in a more elaborate platform that can be used to provide policymakers with scientific assessments that improve decision-making in EU policies on the environment, climate, energy and research.

4. Unmanned aircraft based gamma spectrometry system for radiological surveillance

One of the main objectives of the EMPiR project 16ENV04 "Preparedness" [20] was to develop airborne radiation detection systems installed on Unmanned Aerial Vehicles (UAV) for the remote measurement of dose rates and radioactivity concentrations on the ground. In order to fulfil these objectives, PTB has developed an unmanned airborne monitoring system by equipping Rotary-Wing Unmanned Aerial Systems (RWUAS) with a fully characterized spectrodosimetry system, see Fig. 8. In addition, new software tools for data acquisition, processing, transmission and analysis have also been developed.

The spectrodosimetry system resides in a 3D-printed housing and consist of a CeBr₃ 1.5 " × 1.5 " scintillator with PMT, compact

120 MHz Bridgeport Instruments base and PT1000 platinum temperature sensor, characterized at the four PTB reference sites described in the previous sections. Being independent of the carrier, the spectrometer is accompanied by a positioning module, laser altimeter, barometer (altitude redundancy sensor) and can be mounted to any RWUAS. The brain of the system is a Raspberry Pi Model 3B microcontroller.

Data transfer is performed using a 2.4 GHz XBee Pro transceiver with a 7 dBm omnidirectional antenna mounted onto the detector support plate. The ground station, a laptop with another 2.4 GHz XBee transceiver and 7 dBm directional antenna, establishes peer-to-peer communication with the monitoring system and receives data every 2 seconds. The tested range of stable data transmission is at least 1.2 km with an unobstructed view of the drone from the ground.

The acquisition and control software are written in Python 3.5 / PyQt5. The ground station (control) software displays real-time telemetry, dose rates and 2048-channel spectra (see Figure 9). It also monitors the interference on 2.4 GHz channels and selects the least busy channel for communication with UAMS.

Such airborne radiation monitoring is key to the fast contamination assessment following a radiological event. The use of unmanned airborne monitoring systems offers the benefits of the high-

resolution aerial measurements, especially in the areas otherwise inaccessible by big aircraft, and the operating personnel protection, as devices can be controlled from a safe distance.

5. Summary

Long-term monitoring of environmental radiation with high accuracy requires knowledge of the dosimeters' response to gamma radiation from radionuclides which are common in the environment, to secondary cosmic rays, and, last but not least, their inherent background. These basic instrument parameters that are needed to calculate the absolute value of the ambient dose equivalent can be accurately measured at the PTB reference sites for ionizing radiation in the environment. These unique measurement infrastructure in conjunction with the instrumentation and methods developed at the PTB has largely supported harmonization of area monitoring in Europe by providing the network operators with basic information on the calibration and performance of their dosimetry systems. Since 2019, this infrastructure is also anchored in the German radiation protection legislation.

Monitoring dose rate in the environment with state-of-the-art instruments, combined with the large amount of data managed by the data management platform, stimulates the development of new instrumentation and methods that will benefit the environment and society.

¹⁰ This project has received funding from the EMPIR programme co-financed by the Participating States and from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme. 19ENV01 „trace-Radon“ denotes the EMPIR project reference.

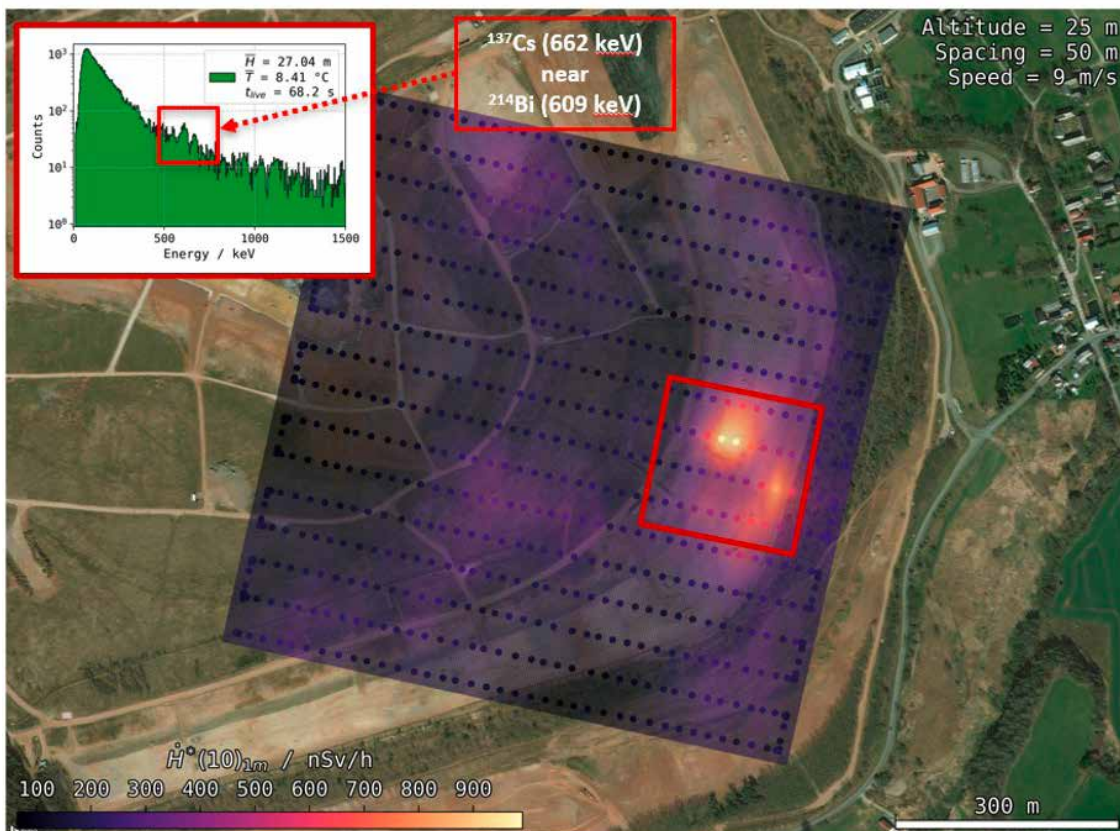


Figure 9: Reference $\dot{H}^*(10)$ measured with PTB UAMS at a former uranium mine, Wismut GmbH, Seelingstädt, Germany. The hot spot has been produced by a 1 GBq ^{137}Cs source on top of the semi-uniform uranium tailings contamination. Inset: the 2048 channel spectra showing ^{137}Cs and ^{214}Bi peaks.

This will foster a multidisciplinary approach to environmental issues, such as, for example, the greenhouse gas mitigation strategies currently being investigated in EMPIR project 19ENV01 “traceRadon”¹⁰.

The unmanned airborne monitoring systems developed by the PTB in the framework of the 17ENV04 “Preparedness” ensures a rapid, coordinated and effective response in emergency situations involving dispersion of gamma-emitting radionuclides in the environment. This system provides accurate and quick determination of hotspot contamination locations on ground surface, along with a preliminary spectrometric analysis, to allow for correct planning of remedial actions.

The facilities presented here are unique in Europe even worldwide. They are identified as unique infrastructure by the European Metrology Network (EMN) for Radiation Protection [34].

Acknowledgements

The authors would like to thank S. Neumaier, F. Wissmann, H. Dombrowski and A. Röttger for establishing the metrology infrastructure for the environmental dosimetry. They are also grateful to J. Roth and B. Lambertsen for the development of data acquisition software and optimization of the infrastructure. Patrick Kessler is acknowledged for his contribution to the development of spectrodosimetry systems. The authors would also like to acknowledge the fruitful collaboration with EURADOS Working Group 3 “Environmental Dosimetry”, EURAMET TC-IR Working group Ionizing Radiation and Radionuclides in Environment, Energy and Industry, and the European Metrology Network for Radiation Protection.

References

- [1] G. Cinelli, M. De Cort, T. Tollefsen (Eds.), *European atlas of natural radiation*, Publication Office of the European Union, Luxembourg, 2019
- [2] F. Wissmann, *Radiation Protection Dosimetry* **118**, 1, 3–10 (2006)
- [3] P. K. F. Grieder, *Cosmic rays at earth: Researchers’ reference manual and data book*, Elsevier (2001)
- [4] F. Wissmann, V. Dangendorf, U. Schrewe, *Radiation Measurements* **39**, 95–104 (2005)
- [5] A. Dawe et al., *Nuclear scars: The lasting legacies of Chernobyl and Fukushima*, Greenpeace International (2016)
- [6] W. Weiss, H. Leeb, *Radiation Protection Dosimetry* **50**, 163 (1993)
- [7] M. Sangiorgi et al., *Earth Syst. Sci. Data* **12**, 109–118 (2020)
- [8] P. Kessler et al., *Radiation Physics and Chemistry* **140**, 309 (2017)
- [9] P. Kessler et al., *Journal of Environmental Radioactivity* **187**, 115–121 (2018)
- [10] A. Röttger et al.: *New metrology for radon at the environmental level*, *Meas. Sci. Technol.* **32**, 124008, 2021, <https://doi.org/10.1088/1361-6501/ac298d>
- [11] Potential European Partnership on Metrology Call 2021 – Green Deal and Normative, JRP BIOSPHERE, Metrology for Earth Biosphere: Cosmic rays, ultraviolet radiation and fragility of ozone shield
- [12] F. Wissmann, J. C. Saez Vergara, *Radiation Protection Dosimetry* **118**, 2, 167–175 (2006)
- [13] H. Dombrowski et al., *Radiation Protection Dosimetry* **135**, 1, 1–20 (2009)
- [14] <https://www.euramet.org/research-innovation/search-research-projects/details/project/metrology-for-mobile-detection-of-ionising-radiation-following-a-nuclear-or-radiological-incident/>
- [15] ICRU REPORT 51, *Quantities and units in radiation protection dosimetry, international commission on radiation units and measurements* (1993)
- [16] R. Dabrowski et al., *Journal of Instrumentation* **12**, 1, 10005 (2017)
- [17] S. Neumaier, H. Dombrowski, *Radiation Protection Dosimetry* **160**, 4, 297–305 (2014)
- [18] Strahlenschutzverordnung vom 29. November 2018 (BGBl. I S. 2034, 2036)
- [19] <https://www.euramet.org/research-innovation/search-research-projects/details/project/metrology-for-radiological-early-warning-networks-in-europe/>
- [20] A. Vargas et al., *Radiation Measurements* **145**, 106595 (2021)
- [21] V. Morosh et al., *Radiation Measurements* **143**, 106580 (2021)

- [22] H. Dombrowski, S Neumaier, JINST 7, 04017 (2012)
- [23] H. Dombrowski, Radiation Protection Dosimetry **160**, 4, 269–276. (2014)
- [24] A. Röttger, P.Kessler, Journal of Environmental Radioactivity 205–206, 48–54 (2019)
- [25] R. Dabrowski et al, JINST **12**, 10005 (2017)
- [26] F. Wissmann et al., Radiation Protection Dosimetry **110**, 1–4, pp.347–349 (2004)
- [27] S. D. Chambers et al., EGU General Assembly 2021, Vienna Austria 19–30 April 2021. Session GI6.2, abstract ID EGU21–196.
<https://doi.org/10.5194/egusphere-egu21-196>
- [28] A. Röttger, D. Linzmaier, A. Honig, Applied radiation and isotopes **87**, 44–47 (2013),
<https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.111>.
- [29] H. Dombrowski, JINST **14**, 10008 (2019)
- [30] H. Dombrowski, S.Neumaier, Radiation Protection Dosimetry **140**, 3, pp.223–233 (2010)
- [31] M. Kowatari et al., Radiation Protection Dosimetry **142**, 2–4, pp.125–135 (2010)
- [32] S. Neumaier et al., Applied Radiation and Isotopes **53**, 173–178 (2000)
- [33] J. C. Saez Vergara et al., Radiation Protection Dosimetry **123**, 190–208 (2007)
- [34] <https://www.euramet.org/european-metrology-networks/radiation-protection/?L=0>

Uran und Plutonium in der Umwelt

D. Arnold¹, D. Zapata-García²

¹ Dr. Dirk Arnold,
Fachbereich
6.1 *Radioaktivität*,
E-Mail:
dirk.arnold@ptb.de

² Dr. Daniel
Zapata-García,
Arbeitsgruppe 6.12
Umweltradioaktivität, E-Mail: daniel.zapata@ptb.de

Natur von Uran und Plutonium

Uran und Plutonium sind zwei radioaktive Schadstoffe, die regelmäßig im Rahmen von Programmen zur Überwachung der Umweltradioaktivität weltweit gemessen werden. Aber warum?

Uran und Plutonium sind zwei radioaktive Elemente, die sowohl für die Produktion von Kernwaffen genutzt werden als auch mit der Erzeugung von Kernenergie in Verbindung stehen. Damit handelt es sich um zwei sicherheitsrelevante Elemente, deren Auftreten in der Umwelt sehr genau beobachtet wird.

Uran ist primordial, es ist also seit der Entstehung der Erde vor 4,5 Milliarden Jahren in der Erdkruste vorhanden. Es gibt zwei primordiale Uranisotope U-235 und U-238, die als Ausgangspunkte von zwei radioaktiven Zerfallsreihen mehr als zwanzig weitere Radionuklide erzeugen, die alle in der Umwelt messbar sind. Das Isotopenverhältnis von U-235 zu U-238 in Natururan beträgt 0,72 % was einem Aktivitätsverhältnis von 4,6 % entspricht. Hinzu kommt ein drittes natürliches Uranisotop, U-234, das Teil der Zerfallsreihe von U-238 ist.

Uran ist auch von großer wirtschaftlicher und sozialer Bedeutung. Nach der Entdeckung der Uran Kernspaltung in den späten 1930er Jahren wurde die enorme Energie des Urans bereits im darauffolgenden Jahrzehnt für waffentechnische Zwecke nutzbar gemacht. In den 1950er Jahren wurden die ersten energieerzeugenden Kernkraftwerke in Betrieb genommen. Diese Kraftwerke nutzten ebenso wie die Kernwaffen die neutroneninduzierte Spaltung des Isotops U-235, das in Gasdiffusionsprozessen aus natürlichem Uran angereichert worden war. Sowohl beim Einsatz von Kernwaffen als auch bei der Erzeugung von Kernenergie entsteht eine große Anzahl radioaktiver Spaltprodukte und Transurane. Eines der Transurane ist Plutonium, das in Reaktoren

mithilfe von Neutronenbestrahlung erzeugt wird. Die Produktion waffenfähigen Plutoniums in Brutreaktoren zielt auf die Erzeugung von Pu-239. In beiden Prozessen, Energieerzeugung in Kernreaktoren und Erbrütung von waffenfähigem Plutonium in Brutreaktoren, werden aber auch andere Plutoniumisotope mit Massenzahlen zwischen 228 und 247 hergestellt, die alle radioaktiv sind. In der Umwelt messbar sind vor allem die Isotope Pu-238, Pu-239, Pu-240 und Pu-241. Die Isotopenverhältnisse können dabei, je nach Ursprung des Plutoniums, sehr unterschiedlich sein und zur Identifikation des Quellmaterials herangezogen werden.

Die Isotopenverhältnisse zweier Isotope eines Elementes in der Umwelt hängen stark von natürlichen und technischen Prozessen ab. Unterschiedliches chemisches Verhalten von Uran und den Radionukliden der Zerfallsreihen führen dazu, dass das Isotopenverhältnis von U-234 zu U-238 in der Umwelt eine große Variabilität aufweist. Je nach Ursprung des Urans aus natürlichen Vorkommen, angereichert mit dem Isotop U-235 für die Kernenergieerzeugung oder hochangereichert als Kernwaffenmaterial, sind auch die Gehalte und Isotopenverhältnisse von Uran in Umweltproben sehr variabel.

Warum werden Uran, Plutonium sowie andere künstliche und natürliche Radionuklide in der Umwelt analysiert?

Die Überwachung der Umweltradioaktivität dient dem Strahlenschutz der Bevölkerung, der Überwachung kerntechnischer Einrichtungen, dem Erkennen von Freisetzungen radioaktiver Stoffe aus anderen Quellen als der friedlichen Nutzung der Kernenergie (z. B. aus der industriellen Produktion radioaktiver Substanzen oder ihrer Anwendung in der Medizin) der Erkennung von Kernwaffentests oder von kriminellen Freiset-

zen radioaktiver Stoffe in die Umwelt. Aufgrund des räumlichen und zeitlichen Abstands zwischen Freisetzung und Messung spielen Transportprozesse und Austauschprozesse zwischen Luft, Boden und Wasser eine wichtige Rolle. Dabei müssen sowohl physikalische als auch chemische Prozesse betrachtet werden. Thematisch lässt sich somit die Überwachung der Umweltradioaktivität den Gebieten Strahlenschutz, Radioökologie und nukleare Forensik zuordnen.

Die Überwachung der Umweltradioaktivität hat in der PTB eine lange Tradition [1, 2]. Seit Oktober 1963 beobachten Wissenschaftler der PTB regelmäßig künstliche und natürliche Radionuklide in der Luft. Bild 1 zeigt im Überblick die Messwerte dieser Beobachtungen. Anfangs galt das 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 im Rahmen von Forschungsprojekten durchgeführt. Heute sind sie eine Daueraufgabe zur Strahlenschutzvorsorge. Im Integrierten Mess- und Informations-System (IMIS) [3], das 1987 nach dem Unfall von Tschernobyl zur Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt in Deutschland eingerichtet wurde, werden die Spurenmessungen an 24 Orten gemeinsam mit dem Bundesamt für Strahlenschutz und dem Deutschen Wetterdienst im Auftrag des Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz durchgeführt [4]. An diesen Orten werden gammastrahlende Radionuklide gemessen; Uran und Plutonium-isotope werden an 6 ausgewählten Messstationen, unter anderem am PTB-Standort in Braunschweig, analysiert. Als eine von vier Stationen berichtet die PTB ihre Messergebnisse an die Europäische Kommission. Die Messreihen ermöglichen die Untersuchung von Trends über längere Zeiträume und den Einfluss verschiedener Quellen auf die Messergebnisse. 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. Dabei werden sowohl gammastrahlende Radionuklide als auch Beta- und Alphateilchen emittierende Radio-

nuklide gemessen. Wie der Name „Spurenmessung“ es schon vermuten lässt, handelt es sich um eine sehr empfindliche Methode, die im Wesentlichen durch den Einsatz von Hochvolumen-Luftstaubsammlern erreicht wird. Pro Woche werden ca. 150 000 m³ Luft durch einen Luftfilter gesaugt und der Staub auf dem Filter abgeschieden.

Wie werden U und Pu analysiert?

Die Analytik von Plutonium und Uran stellt eine besondere Herausforderung dar. Einerseits gehören die Ziel-Isotope zu der Gruppe der Alphateilchen emittierenden Radionuklide, die aufgrund der kurzen Reichweite der Alphateilchen in den Umweltmaterialien nicht direkt (wie die gammastrahlenden Radionuklide) gemessen werden können. Andererseits liegen die Konzentrationen auf einem sehr niedrigen Niveau, die nur bei höheren Probenmassen nachzuweisen sind. Aus diesen Gründen werden für die Bestimmung von Plutonium- und Uranisotopen im Luftstaub in der PTB die wöchentlichen Luftstaubaschen zu einer Monatsmischprobe vereinigt, die einer aufwendigen radiochemischen Abtrennung und Reinigung unterzogen wird [5]. Zu Beginn des radiochemischen Verfahrens werden U-232 und Pu-242 quantitativ als Ausbeutetracer den Luftstaubaschen zugefügt. Diese beiden radioaktiven Isotope sind normalerweise nicht in Umweltproben enthalten und sind somit sehr gut geeignet, die unausweichlichen Verluste bei den Analyseverfahren zu quantifizieren. Nach dem radioanalytischen Trennungsgang entstehen durch Elektroabscheidung auf Edelstahlplättchen Messpräparate, deren Massenbelegungen sehr gering sind, sodass damit die Autoabsorption der Alpha-Teilchen minimiert wird. Die Messdauer liegt bei Uran meist bei einigen Tagen bis zu einer Woche, sodass auch U-235 noch recht genau messbar ist. Bei Plutonium liegt die Messdauer meist bei mehreren Wochen. Pu-(239+240) kann in Aktivitätskonzentrationen von wenigen nBq/m³ bestimmt werden, während Pu-238 meist unter der Nachweisgrenze liegt. Einer Monatsmischprobe liegt der Staub aus ca. 750 000 m³ Luft zugrunde. Somit entsprechen wenige nBq/m³ einer Aktivität von wenigen mBq auf einem Messpräparat.

Alphaspektrometrie versus Massenspektrometrie

Die oben genannten Messzeiten von einer Woche für Uran und mehrere Wochen für Plutonium zeigen, dass die Messung der Alphateilchen an ihre Grenzen stößt. Eine schnelle Analytik im Falle eines radiologischen Vorfalls ist bei kleinen Gehalten nicht möglich. Da die betrachteten Isotope U-238, U-235, U-234 sowie Pu-239 und Pu-240

alle über lange Halbwertszeiten von 6500 Jahre bei Pu-240 bis 4,5 Milliarden Jahren bei U-238 betragen, liegt es nahe, nicht die Alphateilchen bei dem Zerfall dieser Isotope, sondern direkt die vorhandenen Isotope mittels Massenspektrometrie zu messen. Damit könnte die Messzeit auf weniger als einen Tag reduziert werden.

Darüber hinaus gibt es bei den Plutoniumisotopen noch weitere Vorteile der Massenspektrometrie im Vergleich zur Alphaspektrometrie. Für die Messung einer Plutoniumaktivität von wenigen mBq mittels Alphaspektrometrie werden die Messproben dicht vor einem Alphateilchendetektor platziert und somit eine möglichst große geometrische Zählausbeute realisiert. Darunter leidet allerdings die Energieauflösung der gemessenen Spektren. Da die Energien der Alphateilchen von Pu-239 und Pu-240 sehr ähnlich sind, können diese beiden Isotope nur als Summe Pu-(239 + 240) im Spektrum gemessen werden. Eine solche Limitierung gibt es bei den massenspektrometrischen Verfahren nicht. Beide Plutoniumisotope können gut voneinander getrennt bestimmt werden. Ein zweiter Vorteil ist die Möglichkeit, massenspektrometrisch auch das Isotop Pu-241 gleichzeitig mit Pu-239 und Pu-240 zu messen. Pu-241 emittiert keine Alpha-Teilchen, sondern niedrigerenergetische Beta-Teilchen. Für eine radiometrische Messung mittels Flüssigszintillation ist eine zweite Abtrennung zur Herstellung des geeigneten Messpräparates notwendig. Dieser zusätzliche Analysenschritt entfällt bei der Massenspektrometrie.

Isotopenverhältnisse

Die Bestimmung der Isotopenverhältnisse der Radionuklide in den Zerfallsreihen von U-238 und U-235 wird sowohl zur Beantwortung geologischer als auch radioökologischer Fragestellungen [6] eingesetzt. Die Bestimmung der Isotopenverhältnisse von U-235 zu U-238 und Pu-239 zu Pu-240 zählen zu den wichtigen Methoden der nuklearen Forensik für die Bestimmung der Herkunft des untersuchten Materials. Neben dem natürlichen Isotopenverhältnis von U-235 zu U-238, das in der Geochemie und Geochronologie sehr relevant ist [7], gibt es verschiedene Anreicherungsgrade von U-235 beim Einsatz in Kernreaktoren zur Erzeugung von Energie oder in Forschungsreaktoren zur Nutzung als Neutronenquellen. Für den Einsatz von Uran in Kernwaffen sind hohe Anreicherungsgrade notwendig. Abgereichertes Uran findet man unter anderem im militärischen Bereich als Artillerie-Munition.

Das in der Umwelt messbare Plutonium hat in jedem Fall einen künstlichen Ursprung mit einem hohen Anteil von Pu-239 bei Waffenplutonium im Vergleich zu Reaktorplutonium.

Aktivitätsnormale und Referenzmaterialien

Eine weitere Aufgabe der PTB neben der Spurenmessung radioaktiver Stoffe in der Luft ist die Bereitstellung von Aktivitätsnormalen für die Durchführung von Vergleichsmessungen im Rahmen von IMIS. An diesen Vergleichen nehmen die an IMIS beteiligten Bundes- und Landesmessstellen teil. Darüber hinaus nutzen viele dieser Bundes- und Landesmessstellen die Aktivitätsnormale der PTB zur Kalibrierung ihrer Detektorsystemen und zur Validierung radiochemischer Analyseverfahren. Die IMIS-Vergleiche werden von einzelnen Leitstellen zur Überwachung der Umweltradioaktivität (BfS, DWD, MRI, ...) organisiert. Für die Durchführung der IMIS-Vergleiche gibt es zwei etablierte Verfahren: a.) Der Organisator des Vergleichs erhält eine Aktivitätsnormal-Mischlösung von der PTB, setzt diese quantitativ einem Umweltmaterial (Wasser, Sediment, Milchpulver, ...) zu und verteilt dieses Material an die Teilnehmer. Zusätzlich kann der Organisator die PTB beauftragen, das gespikete Probenmaterial zu analysieren und so die metrologische Rückführung auch für den Verdünnungsschritt sicherzustellen. Beim zweiten Verfahren b.) wählt der Organisator ein Material aus, das bereits über eine „Kontamination“ mit den gewünschten Radionukliden verfügt, verteilt dies an die Teilnehmer und beauftragt die PTB mit der Analyse des Materials zur Bestimmung der Referenzwerte für den Vergleich. Damit wird auch im zweiten Verfahren die metrologische Rückführung der Referenzwerte sichergestellt.

Ausblick

Es wurde bereits auf die Vorteile der Massenspektrometrie im Vergleich zur Alphaspektrometrie bei der Messung von Uran- und Plutonium-Isotopen hingewiesen. Dies war mit ein Grund für den Aufbau eines Massenspektrometrie-Systems in der PTB für die Messung der Radioaktivität in Umweltproben. Das „Multi-Collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer“ (Bild 2) ist bereits für die Messung der Uran- und Plutonium-Isotope kalibriert und wird in der Zukunft bei der Referenzwertbestimmung der Aktivität langlebiger Radionuklide in Vergleichsmaterialien gerade bei kleinen Aktivitätskonzentrationen (wie z. B. Uran in Trinkwasser) zu einer deutlichen Reduktion der Messunsicherheiten beitragen.

Wenn im Oktober 2022 das geplante europäische Forschungsprojekt „Metrology for the harmonisation of measurements of environmental pollutants in Europa“ an den Start geht, dann sollen im Bereich der Umweltradioaktivität a.) systematisch und quantitativ die Vor- und Nachteile verschiedener Typen von Massenspektrometern bestimmt werden, mit dem Ziel, ein robustes für die Routi-

nemessung von Umweltproben geeignetes System zu identifizieren und b) Normale und Referenzmaterialien entwickelt werden, mit dem Ziel, die in a.) untersuchten Systeme rückführbar auf die SI-Einheiten zu kalibrieren. Ein weiteres Ziel des Projekts ist, den Laboratorien, die heute schon mit radio-metrischen Methoden die Radioaktivität in der Umwelt überwachen, den Einstieg in die Massen-spektrometrie zu erleichtern und im europäischen Maßstab harmonisierte Verfahren und Kalibrier-normale zu entwickeln und bereitzustellen.

Literatur

- [1] *Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft*. PTB-Mitteilungen **124**, 1 (2014), ISSN 0030-834X
https://www.ptb.de/cms/fileadmin/internet/publikationen/ptb_mitteilungen/mitt2014/Heft1/PTB-Mitteilungen_2014_Heft_1.pdf
- [2] H. Wershofen, *Die Spurenmessstelle der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt*, in: *Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft*. PTB-Mitteilungen **124**, 1, (2014)
- [3] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz, *Das Integrierte Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS)*. Allgemeine Umweltüberwachung, <https://www.bmu.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/ionisierende-strahlung/ueberwachung-der-radioaktivitaet-in-der-umwelt/allgemeine-umweltueberwachung>
- [4] R. Stapel, *Bedeutung der Spurenmessung im Rahmen der Regelungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität*, in: *Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft*. PTB-Mitteilungen **124**, 1 (2014)
- [5] H. Wershofen, *Radiochemische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden*, in: *Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft*. PTB-Mitteilungen **124**, 1 (2014)
- [6] C. Walther, H. Wershofen, *Radioökologische Beobachtungen bei der Spurenmessung und dosimetrische Bewertung radioaktiver Spuren in der Luft*, in: *Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft*. PTB-Mitteilungen **124**, 1 (2014)
- [7] X. Hou, P. Roos, *Critical comparison of radiometric and mass spectrometric methods for the determination of radionuclides in environmental, biological and nuclear waste samples*, *Anal Chim Acta* **608**, 105–139 (2008)

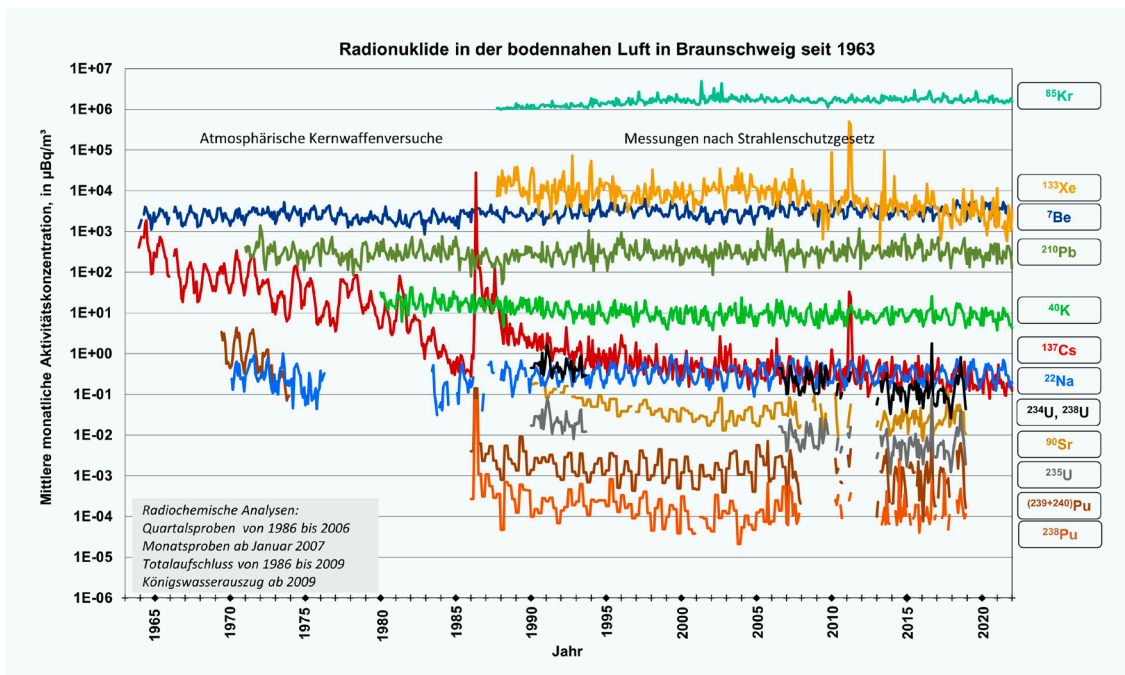


Abbildung 1:
Alle Langzeit-Messreihen der PTB seit Oktober 1963



Abbildung 2:
Das „Multi-Collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer“ der PTB für die Messung von Uran- und Plutonium-Isotopen in der Umwelt

„RemoteALPHA“: Optische Detektionssysteme zur sicheren und zuverlässigen Messung von Kontaminationsvorfällen mit Alpha-emittierenden Radionukliden

F. Krasniqi¹, M. Luchkov², V. Dangendorf³, R. D. Taubert⁴, P. Tesch⁵, A. Förster⁶, S. Röttger⁷, F. Mertes⁸, A. Honig⁹, U. Giesen¹⁰, K. Tittelmeier¹¹, F. Langner¹²

Aufgrund ihrer hohen Energie und ihres hohen lokalen Energietransfers stellen Alphateilchen ein sehr hohes Risiko für biologisches Gewebe im Vergleich zu allen nuklearen Zerfallsprodukten dar. Radiologische Notfälle, bei denen Alpha-emittierende Radionuklide versehentlich oder absichtlich freigesetzt werden und in den menschlichen Körper gelangen, können Menschen erheblichen Schaden zufügen. Um eine schnelle, koordinierte und wirksame Reaktion in solchen Notfällen zu ermöglichen, wurde das EMPIR (European Metrology Program for Innovation and Research)-Projekt 19ENV02 „RemoteALPHA“ (siehe Danksagung auf Seite 49) bewilligt. Dieses Forschungsprojekt, an dem acht EU-Institutionen beteiligt sind, zielt auf die Entwicklung neuartiger Methoden und Instrumente bis hin zu einer nachhaltigen Metrologie-Infrastruktur für die Ferndetektion von Alphastrahlern in der Umwelt. Dieser Beitrag gibt einen Überblick über die Motivation für das Projekt „RemoteALPHA“, mit dem besonderen Schwerpunkt auf der Entwicklung neuartiger optischer Detektionssysteme und ihrer Kalibriermöglichkeit, und stellt einige vorläufige Ergebnisse vor, die das Potenzial der optischen Detektionstechnologie für die Fernkartierung von Alpha-Kontaminationen zeigen. Diese Forschung ist besonders wichtig, da es derzeit kein Detektionssystem gibt, mit dem eine großflächige Kontamination mit diesen Radionukliden gemessen werden kann, da die Reichweite der Alphateilchen in der Luft im Zentimeterbereich liegt. In diesem Zusammenhang sind also neue Ferndetektionstechniken erforderlich, die sowohl den Bediener als auch den Detektor aus dem Strahlungsfeld heraushalten, um die Unzulänglichkeiten herkömmlicher Handdetektoren zu überwinden.

1. Einführung

Alphateilchen sind positiv geladene energiereiche Teilchen, die aus zwei Protonen und zwei Neutronen bestehen und mit dem Kern des Helium-4-Atoms identisch sind. Die durchschnittliche Energieabgabe dE , die pro Weglänge dx entlang ihrer Bahn deponiert wird (der lineare Energietransfer, dE/dx), skaliert bei typischen Emissionsenergien von Alphateilchen (ca. 2 MeV bis 8 MeV) ungefähr mit $q^2/E(x)$, wobei $q (= 2e)$ die Ladung des Alphateilchens und $E(x)$ seine Energie am Ort x darstellt [1]. Aufgrund der sehr hohen lokalen Energieabgabe haben Alphateilchen im Vergleich zu locker ionisierenden Strahlenarten wie Gamma- oder Betastrahlung eine sehr viel höhere biologische Wirksamkeit bei gleicher deponierter Energiedosis zur Schädigung biologischen Gewebes und insbesondere der Desoxyribonukleinsäure (DNA). Dies macht sie entsprechend effektiver bei der Erzeugung von lethalen Schäden an der Zelle oder von Genmutationen, die ihrerseits zur Krebsentstehung (Onkogenese) führen können. In biologischem Weichgewebe beispielsweise wird die gesamte Energie eines Alphateilchens innerhalb einer sehr kurzen Weglänge abgegeben, die oft weniger als 100 μm beträgt (nur wenige Zelldurchmesser) [2]. Die freigesetzte Energiemenge ist um ein Vielfaches höher als die einer gewöhnlichen chemischen Reaktion (gewöhnliche chemische Energie, die von den Zellen im Körper genutzt wird), was bedeutet, dass ein einzelnes Alphateilchen in der Lage ist, eine Vielzahl chemische Reaktionen innerhalb einer einzigen Zelle und darüber hinaus allen Zellen innerhalb seiner Reichweite (normalerweise zwei bis vier) auf fatale Weise

¹ Dr. Faton Krasniqi, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen*, E-Mail: faton.krasniqi@ptb.de

² Maksym Luchkov, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen*, E-Mail: maksym.luchkov@ptb.de

³ Dr. Volker Dangendorf, Arbeitsgruppe 6.15 *Detektorentwicklung*, E-Mail: volker.dangendorf@ptb.de

⁴ Dr. Richard Dieter Taubert, TRD, Arbeitsgruppenleiter Strukturereinheit, Projekt: 7.31 *Hochtemperaturskala* E-Mail: dieter.taubert@ptb.de

⁵ Philipp Tesch, Arbeitsgruppe 7.31 *Hochtemperaturskala*, E-Mail: philipp.tesch@ptb.de

⁶ Anna Förster, Arbeitsgruppe 7.31 *Hochtemperaturskala*, E-Mail: anna.foerster@ptb.de

⁷ Dr. Stefan Röttger, Arbeitsgruppe 6.13 *Alpha- und Gammaspektrometrie*, E-Mail: stefan.roettger@ptb.de

⁸ Florian Mertes, Arbeitsgruppe 6.13 *Alpha- und Gammaspektrometrie* E-Mail: florian.mertes@ptb.de

⁹ Dipl.-Ing.(FH) A. Honig, Arbeitsgruppe 6.13 *Alpha- und Gammaspektrometrie*, E-Mail: anja.honig@ptb.de

¹⁰ Dr. Ulrich Giesen, Arbeitsgruppe 6.45 *Ionenstrahlenwendungen*, E-Mail: ulrich.giesen@ptb.de

¹¹ Kai Tittelmeier, Arbeitsgruppe 6.15 *Detektorentwicklung*, E-Mail: kai.tittelmeier@ptb.de

¹² Dipl.-Ing.(FH) Frank Langner, Arbeitsgruppe 6.45 *Ionenstrahlenwendungen*, E-Mail: frank.langner@ptb.de

auszulösen. Allerdings betrifft dies nur Alphateilchen die innerhalb des Körpers, z. B. in der Lunge, emittiert werden. Ein Alphateilchen, das außerhalb des Körpers emittiert wird, kann dagegen mit einem Stück Papier oder durch die oberen Schichten der Haut abgeschirmt werden. Aus diesem Grund müssen Alphaemitter, im Gegensatz zu fast allen anderen radiologisch relevanten Strahlenarten, inkorporiert werden, um die hohe biologische Wirksamkeit ihrer emittierten Strahlung zu entfalten.

Im Falle einer großräumigen nuklearen oder radiologischen Notstandssituation, bei der es zu einer zufälligen oder absichtlichen Freisetzung von Alphastrahlen emittierenden Radionukliden in die Umwelt kommt (z. B. der Freisetzung von Alphastrahlern in die Umwelt durch nukleare Terroranschläge oder Verkehrsunfälle sowie durch schwere Notfälle in kerntechnischen Anlagen), könnten je nach Verteilungsmuster und meteorologischen Bedingungen wie Wind und Niederschlag große Gebiete kontaminiert werden. In diesem Fall ist der Nachweis von Alphastrahlen emittierenden Radionukliden mit herkömmlichen Detektoren aufgrund ihrer geringen Flächenauflösung bekanntermaßen unsicher und aufgrund ihrer geringen Reichweite (z. B. etwa 3,7 cm für ein 5,5 MeV-Teilchen) zeitaufwendig und mühsam. Bei diesem Vorgehen muss die Oberfläche des kontaminierten Gebiets aus äußerst kurzer Distanz abgesucht werden, und das Personal wäre den Gefährdungen durch die Strahlung sowie Kollateralrisiken durch Feuer, andere schwer zu detektierende Strahlung, chemische Kontamination usw. ausgesetzt. [3, 4]. Daher werden neue Techniken zur Ferndetektion benötigt, die einen direkten Zugang mit naher Distanz zum Gefährdungsgebiet durch Personal nicht erfordern.

Im Rahmen des EMPIR-Projekts „RemoteALPHA“ [5], das von der PTB koordiniert wird und eine Laufzeit von 3 Jahren (01.09.2020–31.08.2023) hat, wird die Fern- und Echtzeitdetektion von Alpha-emittierenden Radionukliden durch die sogenannte Alpha-Radiolumineszenz-Technik [3, 4, 6] realisiert. Diese Technik basiert auf der ultravioletten (UV) Lumineszenz der Luft, der sogenannten Radiolumineszenz, die durch die Wechselwirkung von Alphateilchen mit der Luft hervorgerufen wird. Der Hauptvorteil dieser Technik ergibt sich aus der Tatsache, dass dieses UV-Licht über eine beträchtliche Entfernung (hunderte von Metern) durch die Luft übertragen werden kann, die um mehrere Größenordnungen größer ist als die Reichweite von Alphateilchen in der Luft (einige Zentimeter). Dies ermöglicht die Ferndetektion kontaminierter Bereiche, wodurch sich die Detektionskosten, der Zeitaufwand und das Risiko für das Personal verringern und eine automatische Abtastung möglich wird.

Die Herausforderung bei dieser Detektionsmethode ist die geringe Lichtausbeute strahleninduzierter Lumineszenz an Luft, die mit hoher Effizienz in Gegenwart anderer optischer Strahlenquellen (tagsüber Sonnenstrahlung und nachts Mond- und Sternenlicht und insbesondere künstliches Licht) eindeutig als strahlungsinduzierte Lichtemission identifiziert werden muss.

Das Gesamtziel von „RemoteALPHA“ besteht in der Entwicklung neuartiger optischer Systeme für die Fernerkennung und -quantifizierung großflächiger Kontaminationen mit Alphastrahlern in der Außenumgebung, die im Falle eines radiologischen Notfalls fundierte und schnelle Gegenmaßnahmen ermöglichen. Die spezifischen Ziele des Projekts sind:

1. Entwicklung einer neuen Methode und Instrumentierung für den optischen Nachweis von Alpha-Emittieren in der Umwelt durch Radiolumineszenz in der Luft (Arbeitspaket 1).
2. Entwicklung und Einrichtung eines Kalibrierungssystems für die neuartigen Radiolumineszenz-Detektorsysteme (Arbeitspaket 2).
3. Erweiterung des optischen Detektionssystems um eine bildgebende Funktion zur Kartierung von Alphakontaminationen in der Umwelt (Arbeitspaket 3).
4. Vorbereitung und Durchführung einer Machbarkeitsstudie für ein laserinduziertes Fluoreszenzspektroskopieverfahren zum Nachweis von Alphastrahlern (Arbeitspaket 4).
5. Förderung der Umsetzung der Ergebnisse durch die Stakeholder und Einbringung von Input in relevante Normungsgremien und Strahlenschutzbehörden (Arbeitspaket 5).

Die im Rahmen von „RemoteALPHA“ entwickelten Instrumente und Methoden zielen darauf ab, ein angemessenes Maß an Bereitschaft und Reaktionsfähigkeit für einen radiologischen Notfall zu gewährleisten, bei dem es zu einer Ausbreitung von Alpha-emittierenden Radionukliden in der Umwelt kommt. Diese Maßnahmen sind in den Rechtsvorschriften der Europäischen Union (EU) in der Richtlinie 2013/59/EURATOM des Rates festgelegt und für alle EU-Mitgliedstaaten verbindlich [7].

In den folgenden Abschnitten werden einige Auszüge aus den laufenden Arbeiten der PTB zu den Arbeitspaketen 1 und 2 erläutert.

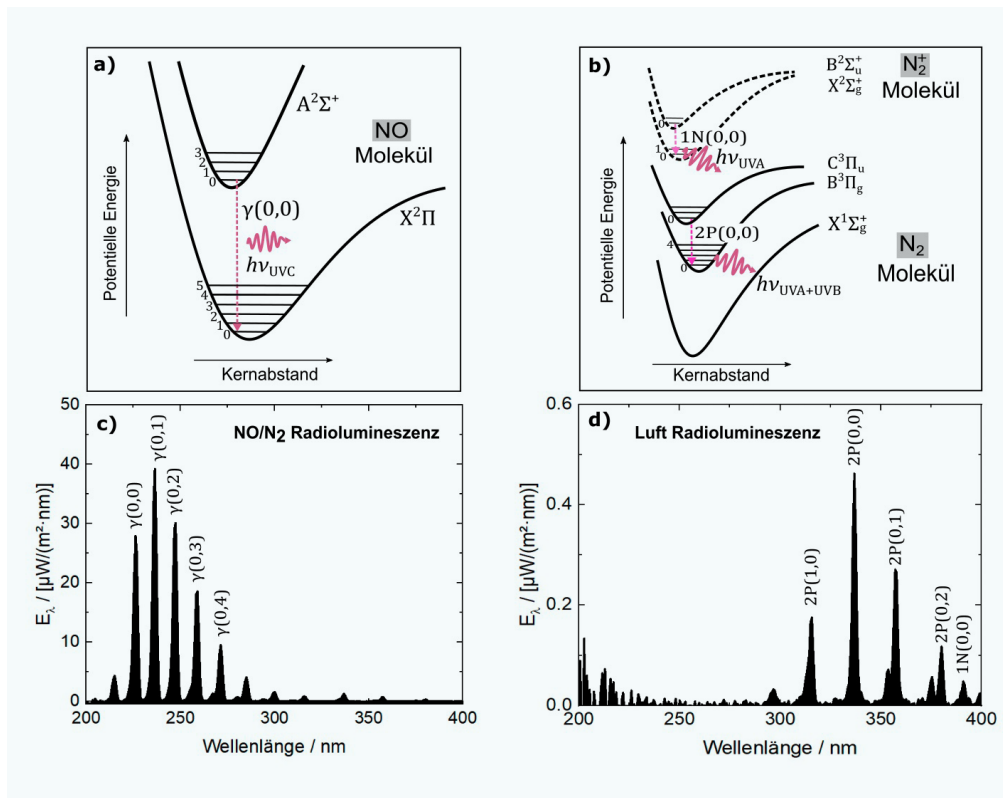


Abbildung 1: Gemessene Radiolumineszenzspektren in Luft und NO/N₂-Atmosphäre sowie schematische Darstellung der Morse-Potentiale für N₂- und NO-Moleküle. (a) Ausgewählte Energieniveaus des NO-Moleküls, dargestellt mit Morse-Potentiale. Der Zerfall zwischen den Schwingungszuständen vom ersten angeregten Zustand A²Σ⁺ zum Grundzustand X²Π erzeugt UV-C-Emissionen, die das γ-Band bilden [15]. (b) Morse-Potentiale für das N₂-Molekül. Die wichtigsten Übergänge des Stickstoffmoleküls liegen im 2P-System (C³Π_u → B³Π_g) und 1N-System (B²Σ_u⁺ → X²Σ_g⁺) [3]. Der Grundzustand des neutralen Moleküls ist X¹Σ_g⁺. Radiolumineszenzspektrum von NO (c) und Luft (d). Die Spektren wurden in der PTB-Ionenbeschleunigeranlage bei einer nominalen Alpharate von etwa 30 × 10⁶ Alphateilchen pro Sekunde mit einem PTB-kalibrierten Array-Spektrometers gemessen. Die Flussraten von N₂ und NO in (c) betragen etwa 2300 ml/min bzw. 15 ml/min.

2. Radiolumineszenz und ihr Nachweis

Wenn Alphateilchen im MeV-Energiebereich die Luft durchdringen, ionisieren sie eine große Anzahl von Molekülen und Atomen. Die freigesetzten Elektronen, die sogenannten Sekundär- oder Deltaelektronen, wechselwirken ebenfalls wieder mit den Luftmolekülen – aufgrund der großen Menge vor allem mit molekularem Stickstoff (N₂) – und erzeugen weitere Elektronen niedriger Energie. Dieser kaskadenartige Prozess führt zur Anregung der Luftmoleküle, die dann durch die Aussendung von Radiolumineszenzlicht im UV-Spektralbereich relaxieren [3]. Sekundärelektronen können sehr energiereich sein, bis zu einigen keV, aber diejenigen mit Energien im Bereich von 14 eV bis 15 eV tragen am meisten zur Auslösung der Radiolumineszenz bei [8–12].

Aufgrund der relativ großen Menge molekularen Stickstoffs (N₂) in der Luft sowie seiner im Vergleich zu Sauerstoff hohen UV-Lumineszenz wird die Radiolumineszenz in Luft hauptsächlich durch die Emission von molekularem Stickstoff (N₂) und, in viel geringerem Maße, durch Spuren von Stickstoffmonoxid (NO) erzeugt, wobei sich die Lichtemissions-Wellenlänge je nach Zusammensetzung der Luft über drei ultraviolette Bereiche erstreckt (UV-A: 315 nm–400 nm, UV-B: 280 nm–315 nm und UV-C: 100 nm–280 nm). In Umgebungsluft findet etwa 99 % der Emission im UV-A- und UV-B-Spektralbereich zwischen 280 nm und 440 nm statt [3, 4, 6]. Im Durchschnitt erzeugt ein einzelnes 5 MeV-Alphaeilchen an Luft etwa

100 Photonen im UV-A- und UV-B-Spektralbereich [3, 6, 13]. Die Radiolumineszenzausbeute in Luft im UV-C-Spektralbereich (100 nm–280 nm) ist dagegen mit etwa 0,08 Photonen pro MeV deponierter Energie etwa 200-mal geringer als im UV-A- und UV-B-Bereich [4]. Diese Ausbeute kann jedoch um mehr als drei Größenordnungen gesteigert werden, indem Spuren von Stickstoffmonoxid in die die Probe umgebende Stickstoffatmosphäre gegeben werden. Stickstoffoxid erzeugt Radiolumineszenz über das NO-γ-Band zwischen 200 nm und 300 nm, also fast ausschließlich im UV-C-Spektralbereich. Dieses Band entsteht hauptsächlich durch den Anregungstransfer von N₂ auf NO-Moleküle [14]. Abbildung 1 zeigt die Radiolumineszenzspektren, die sowohl in Luft als auch in NO/N₂-Atmosphäre an der PTB-Ionenbeschleunigeranlage gemessen wurden (siehe Abschnitt 3), sowie schematische Zeichnungen der Morsepotentiale der wichtigsten elektronischen Zustände und Übergänge in N₂- und NO-Molekülen.

Die stärksten Emissionslinien des Stickstoffs (siehe Abb. 1d) überschneiden sich mit dem Spektrum des Sonnenlichts und mit typischen Fluoreszenzlampen, was eine breite Anwendung der Technik stark einschränkt. Aus diesem Grund wird der UV-A- und UV-B-Spektralbereich der Radiolumineszenz nur für Messungen in dunkler Umgebung genutzt werden können. Im UV-C-Spektralbereich ist das Hintergrundlicht dagegen sehr gering, insbesondere bei Tageslicht, da der größte Teil der Sonnenstrahlung unter 280 nm

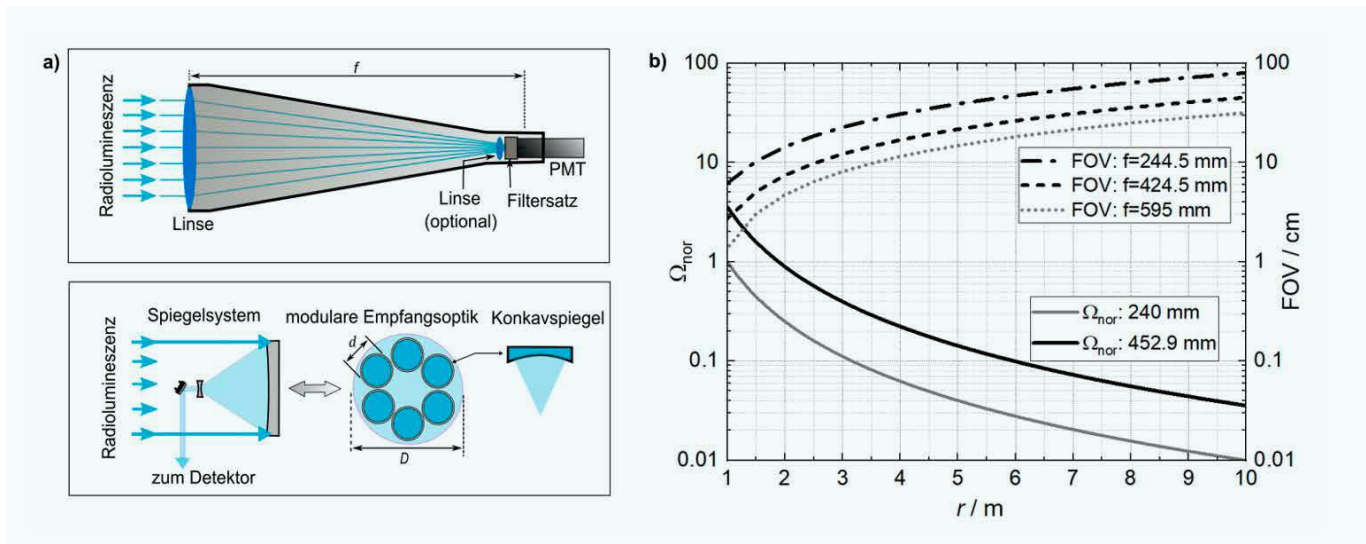


Abbildung 2:
(a) Schematische Zeichnungen der im Rahmen des „RemoteALPHA“-Projekts entwickelten optischen Systeme. Sowohl die Linsensysteme (obere Abbildung) als auch die Spiegelsysteme (untere Abbildung) verwenden große Empfangsoptiken, um den geometrischen Faktor zu maximieren, und die Brennweiten wurden so gewählt, dass das Radiolumineszenzbild durch die Überlappung der Sichtfelder zwischen benachbarten Scanpunkten nicht wesentlich verwischt wird. **(b)** Geometrischer Faktor $\Omega = \pi D^2/(4r^2)$, wobei D der Durchmesser der Empfangsoptik und r der Abstand zwischen Quelle und Empfangsoptik ist, normiert auf den Wert für $D = 240$ mm und $r = 1$ m. Auf der rechten Seite ist das Sichtfeld $\text{FOV} = \Delta\gamma \cdot (s/s')$ aufgetragen, wobei $\Delta\gamma$ die Größe des empfindlichen Bereichs des Detektors ist ($\Delta\gamma = 20$ mm) und s und s' der Abstand zwischen Objekt und Bild.

vom atmosphärischen Ozon absorbiert wird [3, 4, 6, 14, 15]; Mittels s. g. „sonnenblinder“ optischer Detektoren kann daher in diesem Bereich sehr untergrundarm gemessen werden. Da die Intensität der UV-C-Radiolumineszenz in Luft aber sehr gering ist (etwa um den Faktor 200 geringer als im UV-A-Bereich), muss allerdings durch die Verwendung optischer Systeme mit hoher Lichtempfindlichkeit und/oder durch Spülen der Atmosphäre um die Alpha-Quelle mit NO/N_2 -Gasgemischen die Detektionsempfindlichkeit erhöht werden.

Der erfolgreiche Nachweis schwacher spektraler Fingerabdrücke aufgrund der Alpha-Radiolumineszenz in der Umwelt ist eine sehr anspruchsvolle Aufgabe und geht definitiv über den derzeitigen Stand der Technik der für den Kontaminationsnachweis eingesetzten Messverfahren hinaus. Dies erfordert einen optimierten optischen Aufbau, der in der Lage ist, (a) eine große Anzahl von Radiolumineszenzphotonen zu erfassen und (b) das Hintergrundlicht wirksam zu unterdrücken. Um diese Anforderungen zu erfüllen, wurden im Rahmen des „RemoteALPHA“-Projekts linsen- und spiegelbasierte optische Detektoraufbauten entworfen und entwickelt. Alle Linsensysteme haben die gleiche Konfiguration (siehe Abb. 2): eine Objektivlinse (Quarzglas mit einem Durchmesser von 240 mm oder eine PMMA-Fresnellinse

mit Durchmessern von 391,5 mm oder 257,6 mm), eine optionale Linse zur Bündelung des Radiolumineszenzlichts in einen parallelen Strahl, einen Filtersatz zur Auswahl eines möglichst schmalen Bandes des zu detektierenden Wellenlängenbereichs im UV-A oder UV-C sowie einen Photomultiplier (PMT) mit einer an die zu messende Wellenlänge optimal angepassten Photokathode (Bialkali im UV-A, Cäsiumtellurid im UV-C). Während das Quarzglas-System aufgrund seines Gewichts für den bodengestützten Einsatz als Scanning-Teleskop vorgesehen ist, soll das auf der Fresnel-Linse basierende Linsensystem aufgrund seines geringen Gewichts in einem unbemannten luftgestützten Überwachungssystem zur Kartierung von Alpha-Kontaminationen in der Umwelt eingesetzt werden. Das Spiegelsystem hingegen ist modular und basiert auf handelsüblichen Laserlinienspiegeln, sodass die Empfangsoptik je nach Bedarf beliebig vergrößert werden kann.

Alphateilchen-induzierte Photonen werden isotrop aus der umgebenden Luft der alpha-strahlenden Radionuklide emittiert. Unter der Annahme, dass eine Punktquelle aus großer Entfernung beobachtet wird, ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Alphateilchen nachgewiesen wird, proportional zur Radiolumineszenzausbeute, zur Quanteneffizienz des Detektors und zum effektiven Raumwinkel der Empfangsoptik [13]. Betrachtet man den kontaminierten Bereich als ein Ensemble von Punktquellen, muss das Öffnungsverhältnis D/f jedoch so gewählt werden, dass die geometrische Effizienz bei einem akzeptablen Sichtfeld maximiert wird, das das gescannte Radiolumineszenzbild nicht wesentlich verwischt. Zur Veranschaulichung dieses Punktes sind in Abb. 2b der geometrische Wirkungsgrad und das Sichtfeld (FOV) als Funktion des Abstands zwischen Quelle und Detektor dargestellt. Während die Lichtsammelleffizienz mit $1/r^2$ skaliert, ist das FOV proportional zu r .

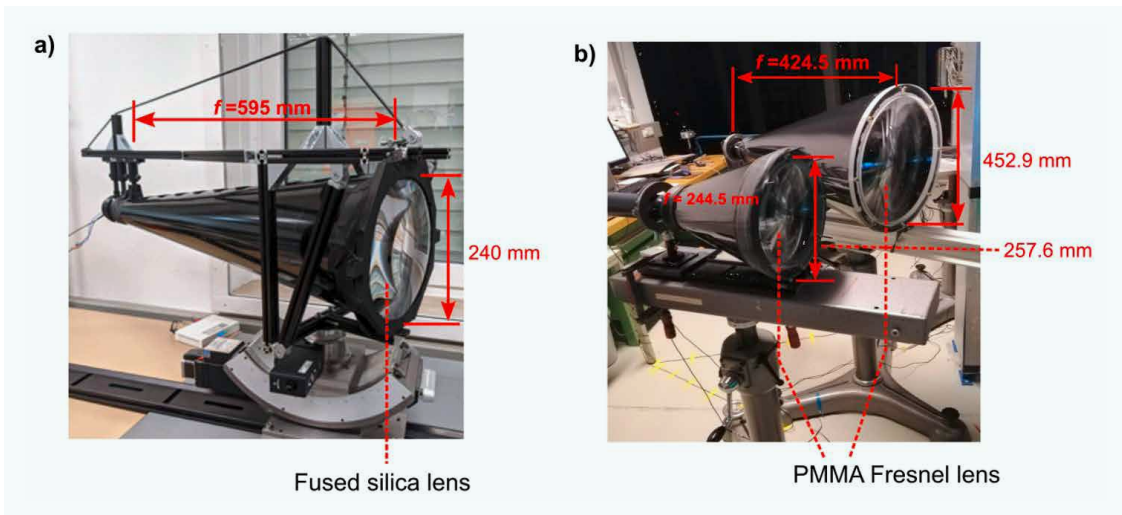


Abbildung 3: Linsenbasierte Radiolumineszenz-Detektionssysteme. (a) System mit Quarzglaslinsen (Abet Technologies), montiert auf einem Goniometer und einem Drehtisch (Newport M-BGM160PE bzw. RVS80CC). (b) PMMA-Fresnel-Linsensysteme (Orafol Fresnel Optics). Alle Linsensysteme können mit Hamamatsu PMTs (H10682-210 für den UV-A-Spektralbereich und H11870-09 für den UV-C-Spektralbereich) und UV-C-Filtern (FF01-260/16-25, Semrock Inc.) oder UV-A-Filtern (337 nm, 10 nm Bandpassfilter von Edmund Optics) gekoppelt werden.

3. Vorläufige Tests der Radiolumineszenz-Detektionssysteme

Der erfolgreiche Nachweis von spektralen Fingerabdrücken aufgrund der Alpha-Radiolumineszenz in der Umwelt erfordert optische Einrichtungen, die Licht in den charakteristischen Wellenlängen der Radiolumineszenz-Photonen effizient detektiert, aber gleichzeitig möglichst unempfindlich auf das Umgebungslicht sind. Abbildung 3 zeigt drei in der PTB entwickelte optische Systeme auf der Basis verschiedener optischer Linsen, die für den Nachweis von Radiolumineszenz sowohl im UV-A- als auch im UV-C-Spektralbereich optimiert sind. Alle drei Systeme arbeiten als Kartierungssysteme, indem sie das Radiolumineszenzbild der Alphastrahlungsquellen durch Fernabtasten des kontaminierten Gebietes erzeugen. Da das Spektrum des meisten Radiolumineszenzlichts in Luft in den Wellenlängenbereich der Sonnenstrahlung fällt, der den spektralen Fingerabdruck der Alpha-Quellen verdeckt, wurden

Bandpass- und Langpassfilter in Verbindung mit lichtdichten Abdeckungen aller empfindlichen Teile eingesetzt, die zum einen das Licht aus den schmalen Spektrallinien des Stickstoffs effizient durchlassen, zum anderen das in der Regel breitbandige Umgebungslicht maximal abschwächen. Abbildung 4 zeigt den Umgebungslichtuntergrund des optischen Systems aus Quarzglas, wenn das System in einem herkömmlichen Büro auf das Fenster gerichtet ist. Wie sich zeigte, stammt der größte Teil des Hintergrundlichts von den Leuchtstoffröhren des Büros (im Durchschnitt etwa 100 detektierte Ereignisse pro Sekunde). Tagsüber ergab sich bei ausgeschaltetem Licht ein Hintergrundsignal von etwa 30 detektierten Ereignissen pro Sekunde, während nachts und bei ausgeschaltetem Licht das Hintergrundsignal vernachlässigbar ist (~ 1 detektiertes Ereigniss pro Sekunde).

Die ersten Prototypen mobiler optischer Nachweissysteme, die in der Lage sind, Alphateilchen aus der Ferne und in Echtzeit durch Radiolumineszenz zu messen, wurden am Microbeam an der

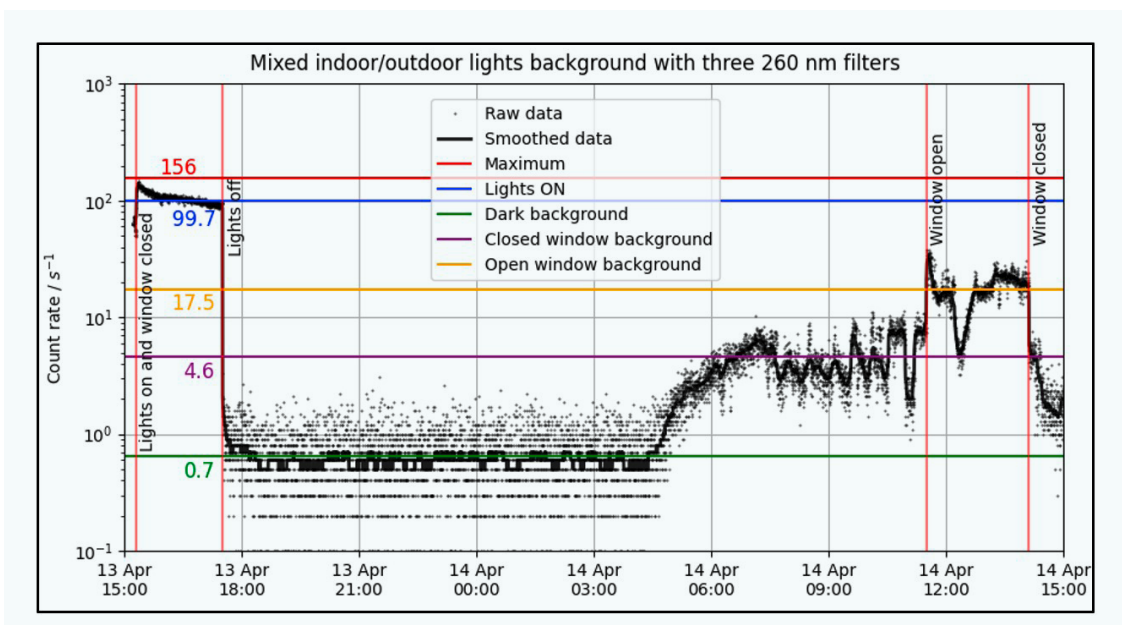


Abbildung 4: Messung des Umgebungslichts mit dem Quarzglasobjektivsystem in Abb. 3a. Das optische System besteht aus einem Quarzglasobjektiv mit einer optionalen bikonkaven Linse mit $f = -30 \text{ mm}$ (Thorlabs, LC4252). Der Filteraufbau besteht aus einem Stapel von 3 UV-C-Filtern (FF01-260/16-25, Semrock Inc.), die mit einem Cäsium-Tellurid-Photokathoden-PMT (H11870-09, Hamamatsu) gekoppelt sind.

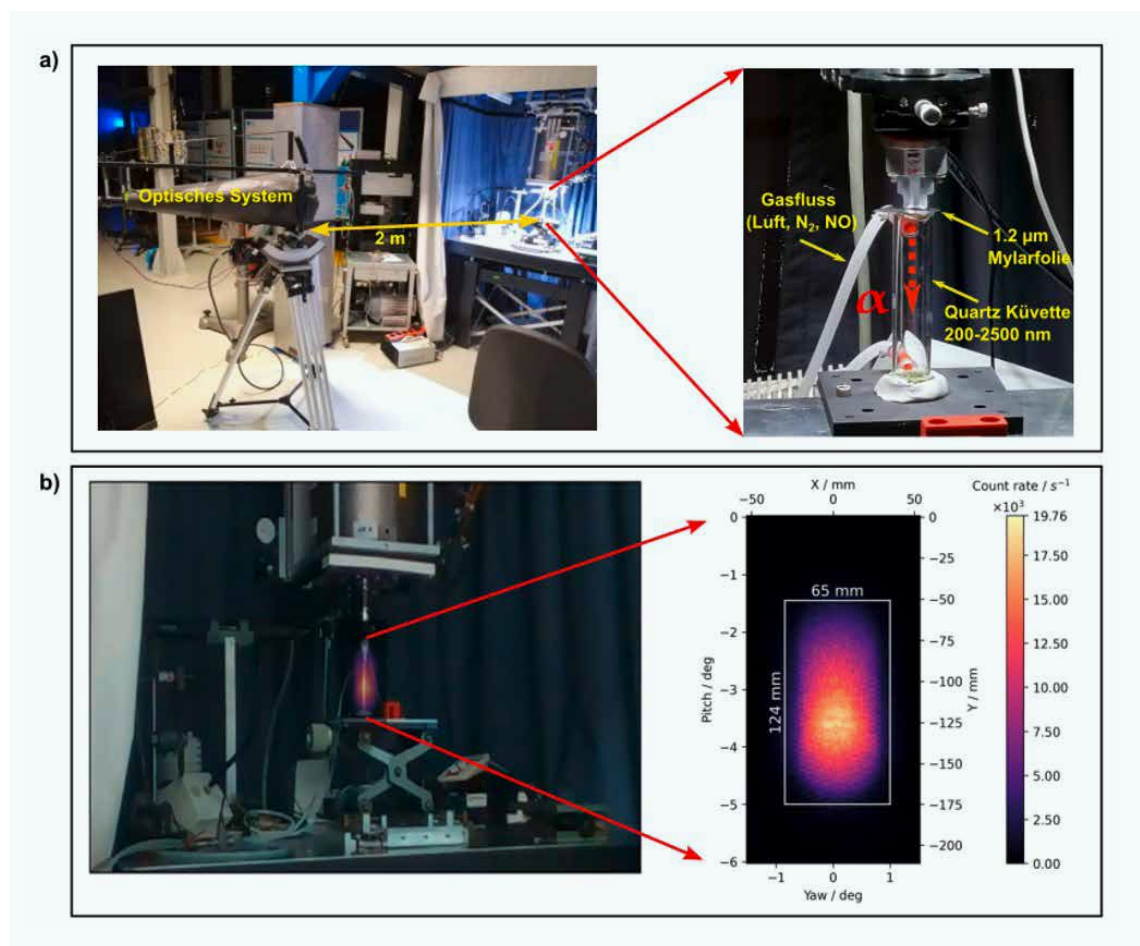
PTB-Ionenbeschleunigeranlage (PIAF) getestet [16]. Hier wurde mithilfe eines kompakten Zyklotrons ein fein kollimierter Alphastrahl mit einem Strahlquerschnitt von etwa $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ und einem einstellbaren Teilchenstrom von $50 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ bis $45 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ bei Energien von 8,3 MeV zur Verfügung gestellt. Der Alphateilchen treten durch ein Strahlaustrittsfenster (0,25 mm bis 1,0 mm Durchmesser), das mit einem Folienstack bestehend aus 5 μm dicken Mylarfolie, 10 μm dickem Szintillator (zur Strahlstrommessung) und einer 3 μm dicken Al-Folie besteht, aus dem Hochvakuum des Strahlrohres in die Luft der Atmosphäre. Danach dringt der Ionenstrahl nach einer kurzen Luftstrecke von 1 mm bis 2 mm durch ein dünnes Eintrittsfenster aus Mylar, 1,2 μm dick, in eine 100 mm lange Zylinderkuvette ein. Diese besteht aus synthetischem Quarz mit guter optischer Transparenz im Wellenlängenbereich von 200 nm bis 2500 nm (Hellma Analytics). Die Kuvette ist über Gasanschlüsse mittels ein Mischsystem mit verschiedenen Gasen befüllbar (siehe Abb. 5a.)

Alphateilchen mit einer Energie von 5 MeV – der gängigsten Energie von alphastrahlenden Radionukliden – wurden erzeugt, indem eine 26 μm dicke Al-Folie als Energieabschwächer in der Luftstrecke zwischen Strahlaustrittsfenster und Quarzkuvette eingebracht wurde. Abb. 5a zeigt ein typisches Beispiel, wie diese schwachen Radiolu-

mineszzenz-Emissionen zur Fernerkundung von Alpha-Quellen im UV-C-Spektralbereich verwendet werden können. Hier wurde der Bereich um die Kuvette mit dem Quarz-Teleskopsystem (Abb. 3a) in 2 m Entfernung von der Quelle gescannt.

Ein typisches UV-C-Radiolumineszenzbild von Alphateilchen, die in der mit einer Mischung aus Luft und N_2 gefüllten Kuvette gestoppt wurden, ist in Abb. 5b dargestellt. Das linke Feld zeigt das UV-C-Radiolumineszenzbild, das einem konventionellen Foto überlagert ist, wobei die Koordinaten beider Bilder durch Raytracing korreliert sind. Das Radiolumineszenzlicht im rechten Feld entspricht den elektronischen NO-Übergängen $\gamma(0,3)$ und teilweise $\gamma(0,2)$ und $\gamma(0,4)$, siehe Abb. 1a, die mit dem auf 260 nm zentrierten Bandpass-Interferenzfilter mit einer Bandbreite von 20 nm (FF01-260/16-25, Semrock Inc.) und dem Hamamtsu PMT mit Cäsiumtellurid-Photokathode (H11870-09) ausgewählt wurden. Die Radiolumineszenzlichtemission erfolgt um den Alphastrahl herum in einem dünnen zylindrischen Volumen, dessen Länge der Reichweite der Alphateilchen im Gas entspricht (76,7 mm für 8,3 MeV-Alphateilchen). Da das FOV des Detektionssystems in der Objektebene etwa 40 mm beträgt, führte die Überlappung benachbarter Abtastpunkte zu einer Verbreiterung des Bildes im Vergleich zum tatsächlichen Bereich der Lichtemission der Alphateilchen im Gas. Das

Abbildung 5:
(a) Ein Foto des Experimentieraufbaus am PTB Microbeam (PIAF). Das in Abb. 3a gezeigte Linsensystem aus Quarzglas wurde verwendet, um den Bereich um die Quarzkuvette abzutasten, in dem die beschleunigten Alphateilchen gestoppt werden. Die Kuvette konnte mit Luft, N_2 und NO/N_2 -Gemisch gefüllt werden. **(b)** Das linke Feld zeigt das UV-C-Radiolumineszenzbild einer „Alpha-Kontaminations“-Szene. Das Radiolumineszenzbild wurde einem konventionellen Foto überlagert, wobei die Koordinaten beider Bilder durch Strahlenverfolgung korreliert wurden. Das rechte Feld zeigt das gemessene UV-C-Radiolumineszenzbild.



Radiolumineszenzbild wurde durch Faltung des Originalbildes mit einem kreisförmigen Kern von 1 cm Durchmesser geglättet. Der Hintergrund des Bildes, der aus allen Pixeln außerhalb der gezeichneten Box berechnet wurde, beträgt (47 ± 32) cps, während das höchste Signal etwa 2×10^4 cps beträgt.

Mit dem Quarzglas-Linsensystem in Abb. 3a konnten Alpha-Quellen mit einer Aktivität von etwa $50 \text{ kBq} \times \text{cm}^{-2}$ in Luft bei einem Abstand von 2 m zwischen Quelle und Detektor abgebildet werden. Das Fresnel-Linsensystem (Abb. 3b) hingegen ist im UV-C-Spektralbereich aufgrund der Transmissionsgrenze bei 260 nm weniger empfindlich (etwa Faktor 2), im UV-A-Spektralbereich jedoch aufgrund der hohen Transmission und des großen geometrischen Wirkungsgrads sehr effizient.

Das Radiolumineszenzsignal im UV-C-Spektralbereich kann um mehr als drei Größenordnungen verstärkt werden, wenn der Raum um die Alpha-Quelle mit einem NO/N_2 -Gemisch gespült wird. Die Verstärkung des Signals in der NO/N_2 -Mischung ist auf die Übertragung der Anregung von N_2 auf NO zurückzuführen. Bei diesem Prozess regt molekularer Stickstoff im langlebigen $\text{N}_2 \text{ A}^3\Sigma_u^+$ -Zustand Stickstoffoxid im Grundzustand zum $\text{NO A}^2\Sigma^+$ -Zustand an, während das N_2 -Molekül seine Anregung verliert und in den Grundzustand zerfällt [14]. Ein Teil der Schwierigkeit bei der Verwendung dieses Ansatzes für die Kartierung von Kontaminationen liegt jedoch in der schnellen Auslöschung dieses Energietransferkanals durch atmosphärische Gase. Das Vorhandensein von O_2 und vor allem H_2O stellt für die NO -Radiolumineszenz ein größeres Problem dar als für N_2 : Schon sehr geringe Wassermengen reichen aus, um eine beträchtliche Menge an Populationen aus dem A-Zustand von NO zu entfernen, bevor sie die Möglichkeit haben, strahlend zu zerfallen [15]. Abbildung 6 zeigt die Empfindlichkeit der NO -Radiolumineszenz nach Unterbrechung des NO/N_2 -Gasstroms. Die Spektren wurden mit einem PTB-kalibrierten Array-Spektrometers gemessen. Die Wellenlängenkalibrierung wurde mit einer Linienquelle (HgAr Penray) mit einer Messunsicherheit von etwa 0,1 nm durchgeführt, während die relative spektrale Empfindlichkeit mit einer Messunsicherheit von etwa 3 % geschätzt werden konnte. Aus den Daten geht hervor, dass die UV-C-Radiolumineszenzintensität bereits 2 Minuten nach Beendigung der NO/N_2 -Spülung um mehr als einen Faktor 10 abnimmt. Dabei muss erwähnt werden, dass aufgrund der nicht gasdichten Abdeckung der Küvette durch die dünne Mylarfolie ein schneller Gasaustausch mit der Umgebungsluft stattfindet.

Um das volle Potenzial der NO -Radiolumineszenz-Verstärkung im UV-C-Spektralbereich

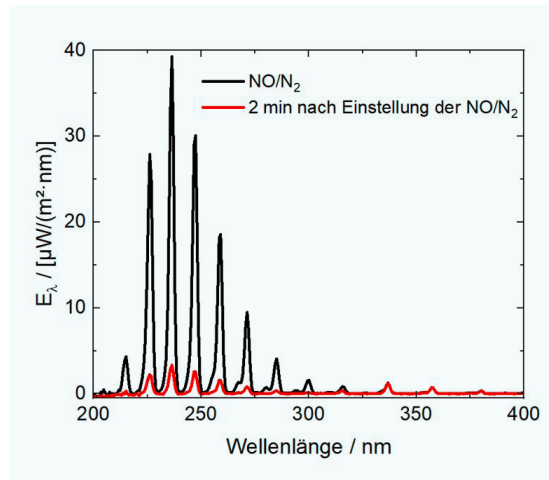


Abbildung 6: Radiolumineszenz-Emissionsspektrum von NO , gemessen am PIAF bei einer nominalen Alphateilchenrate von etwa 30×10^6 Teilchen/s mit einem PTB-kalibrierten Array-Spektrometers. Zwei Minuten nach Unterbrechung des NO - und N_2 -Flusses sinkt das UV-C-Radiolumineszenzsignal um den Faktor 10 im Vergleich zu dem mit NO/N_2 -Spülung gemessenen Signal (NO -Flussrate: 15 ml/min, N_2 -Flussrate: 2300 ml/min).

auszuschöpfen, ist daher eine Stickstoffspülung mit einem angemessenen Gehalt an NO -Verunreinigungen entscheidend. Für die Praxis bedeutet das allerdings, dass Bereiche, in denen mit solchen Gasgemischen die UV-C Lumineszenz gezielt verstärkt werden soll, mit sehr hohen Gasflüssen gespült werden müssen.

4. Entwicklung von Kalibrierungstechniken für neuartige Radiolumineszenz-Detektorsysteme

Um eine fundierte und zuverlässige Interpretation der Messdaten zu gewährleisten, sind rückführbare Kalibrierverfahren erforderlich. Im Rahmen von „RemoteALPHA“ werden erstmals rückführbare Kalibrierverfahren für das Radiolumineszenz-Detektionssystem eingeführt, sodass eine fundierte Interpretation der gemessenen Radiolumineszenzsignale möglich sein wird. Dies beinhaltet (a) einen neuen dedizierten, charakterisierten und kalibrierten optischen UV-Strahldichtestandard und (b) einen gut charakterisierten Alphastrahler, um eine rückführbare Beziehung zwischen dem Radiolumineszenzsignal und der Alpha-Aktivität herzustellen.

4.1 Optische Transfornormale und Kalibrierverfahren zur Rückführung auf das SI

Das im Rahmen des Projekts entwickelte neuartige Radiolumineszenz-Detektionssystem ist von seiner prinzipiellen Arbeitsweise her betrachtet ein abbildender optischer Detektor. Die relevante radiometrische Größe zur quellengestützten, optischen Rückführung auf das SI für Detektoren dieses Typs ist die spektrale Strahldichte. Ziele der Arbeiten im Rahmen dieser Teilaufgabe sind daher sowohl die Konzeption, der Aufbau, die radiometrische Charakterisierung und die Kalibrierung eines dedizierten Transfer-Strahldichtenormals als auch die Entwicklung und Validierung eines Kali-

brierverfahrens zur radiometrischen Rückführung des Radiolumineszenz-Detektionssystems unter Anwendung eines optischen Transfornormals.

Strahldichtenormale auf der Basis einer Ulbrichtkugel haben den Vorteil, dass sie einen vergleichsweise großflächigen und homogene Lambert-Strahler darstellen und damit ein geeignetes Transfornormal zur optischen Simulation der Radiolumineszenz-Strahlung eines ausgedehnten Alphastrahlers sind. Deswegen wurde als Instrumentierung für die Rückführung auf das SI ein modulares Ulbrichtkugel-Transfornormal konzipiert und aufgebaut (Abb. 7). Die wesentlichen Eigenschaften des Ulbrichtkugel-Transfornormals sind:

- variable Strahldichte mit großem Dynamikbereich durch Kombination mit einer Satelliten-Ulbrichtkugel und/oder einem einstellbaren Präzisionsspalt
- Aluminium-Ulbrichtkugeln mit definiert Korund-gestrahnten inneren Oberflächen für eine verbesserte Stabilität des Reflexionsgrads im Spektralbereich des UV
- Satelliten-Ulbrichtkugel mit unterschiedlichen Port-Konfigurationen, dadurch Flexibilität bei Auswahl, Anordnung und Kombination der eingesetzten optischen Strahlungsquellen.

Als optische Strahlungsquellen für das Transfer-Strahldichtenormal werden UV-LEDs mit Zentralwellenlängen bei 260 nm (UV-C) und 340 nm (UV-A), einer spektralen Bandbreite (FWHM) von 11 nm bzw. 8 nm und einer durchschnittlichen Strahlungsleistung von 1 mW verwendet. Dadurch können in guter Näherung die N₂-Radiolumineszenz-Emissionslinien bei 259,1 nm und 337,1 nm optisch simuliert werden (Abb. 8) und das Radio-

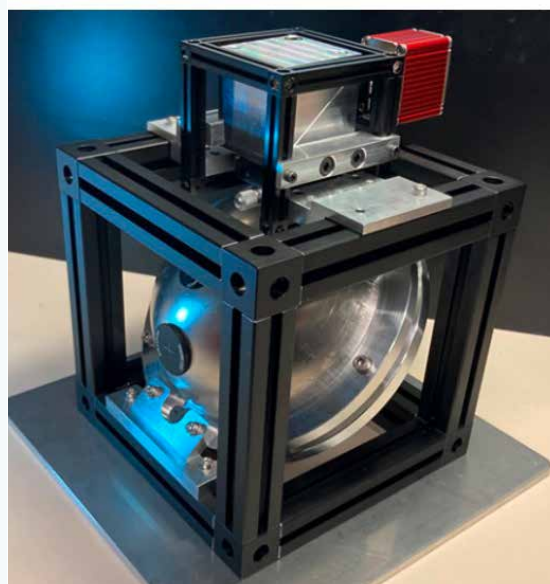
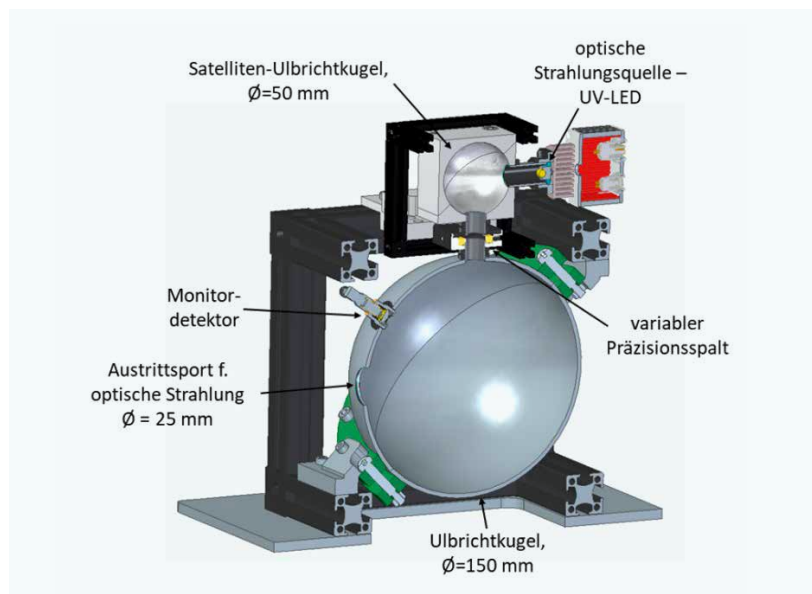
lumineszenz-Detektionssystem in den jeweiligen, durch dessen Interferenzfilter vorgegebenen Spektralbereichen radiometrisch charakterisiert werden.

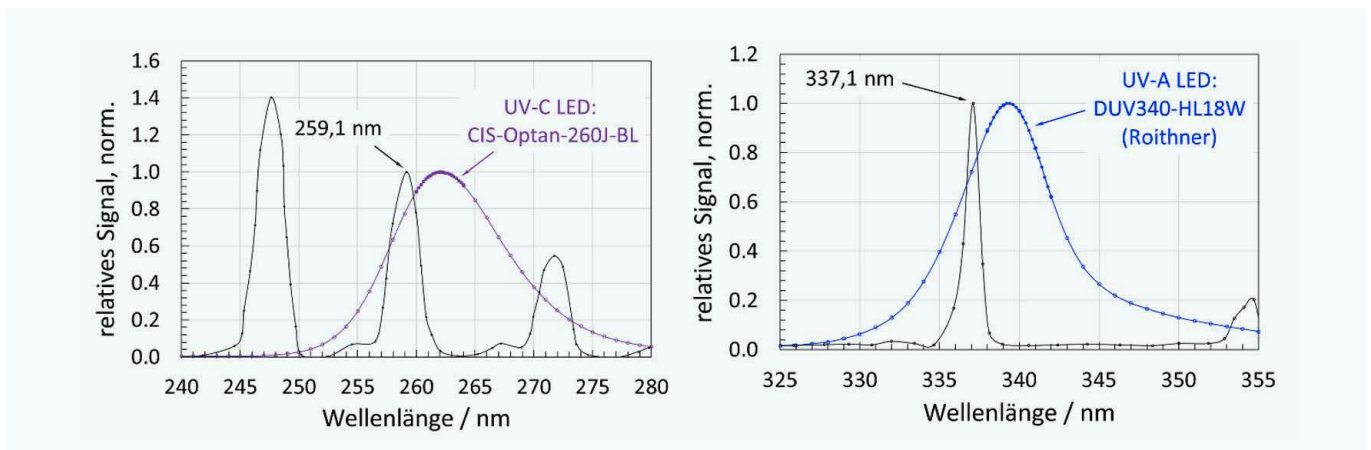
Wird in die Ulbrichtkugel eine LED-Strahlungsleistung von 1 mW bei 10 nm Bandbreite direkt, d. h. ohne Abschwächung durch einen Spalt bzw. einer Satelliten-Ulbrichtkugel, eingekoppelt, kann unter der Annahme eines Wand-Reflexionsgrads von 0,5 rechnerisch abgeschätzt werden, dass am Austrittsport der Ulbrichtkugel eine spektrale Strahldichte von maximal $4 \cdot 10^{-4} \text{ W (nm} \cdot \text{m}^2 \text{ sr)}^{-1}$ realisiert werden kann. Damit steht für die radiometrische Charakterisierung des Radiolumineszenz-Detektionssystems eine optische Strahlungsquelle mit ausreichendem Dynamikbereich zur Verfügung.

4.2 Entwicklung einer Alpha-Spektrometriequelle zur rückführbaren Kalibrierung der Radiolumineszenz-Detektorsysteme

Für die Bestimmung der Radiolumineszenzausbeute werden ausführlich charakterisierte Quellen benötigt. Die Radiolumineszenzausbeute beschreibt, wie viele optisch detektierbare Photonen pro Energieeinheit der Alphastrahlung entstehen. Dazu muss sowohl die Emissionsrate an Alphateilchen dieser Quelle bekannt sein als auch ihre Energieverteilung, da eine Energieabhängigkeit der Radiolumineszenzausbeute zu erwarten ist. Insbesondere ist dabei eine Quelle nötig, die über ein scharfes Emissionsspektrum verfügt. Der Durchtritt von Alphastrahlung durch Materie führt, wie erwähnt, zur sehr schnellen Abnahme der Energie, weshalb die Massenbelegungsichte einer solchen Quelle so gering wie möglich sein muss. Ebenso sind vergleichsweise hohe Aktivitäten von mindestens 500 kBq nötig, um statistisch ausreichende Daten bzw. Unsicherheiten gewinnen

Abbildung 7: Schnittdarstellung (links) des modularen Transfer-Strahldichtenormals in der Konfiguration mit Satelliten-Ulbrichtkugel, einer UV-LED als optische Strahlungsquelle und variablem Präzisionsspalt sowie realisierter Prototyp (rechts).





zu können. Diese Eigenschaften schränken die Wahl eines geeigneten Isotops stark ein, denn die meisten ausreichend verfügbaren alphastrahlenden Nuklide besitzen nur vergleichsweise geringe spezifische Aktivität, sodass die Masse einer solchen Quelle nicht mehr zu vernachlässigen ist, wodurch das Emissionsspektrum stark verbreitert wird. Ein herausragendes Isotop in dieser Hinsicht ist ^{210}Po , das in einem Maßstab von einigen 100 GBq industriell durch den Neutroneneinfang am stabilen ^{209}Bi hergestellt wird.

Zur rückführbaren Kalibrierung von Radiolumineszenz-Detektorsystemen ist es notwendig eine Alpha-emittierende Quelle zu verwenden, deren Charakteristik auf nationale Normale rückgeführt ist. Die Quelle muss dabei alle entstehenden Alphateilchen möglichst ungestört, d. h. mit ihrer primären Alphaenergie in einen möglichst großen Raumwinkel emittieren.

Da die Alphateilchen zunächst in Luft Radiolumineszenzlicht erzeugen müssen und diese Signale dann zur Kalibrierung der optischen Systeme in einiger Entfernung verwendet werden, muss die Alphaquelle eine ausreichende Stärke aufweisen, um auch hinreichende statistische Unsicherheit erreichen zu können. Eine Abschätzung ergab, dass eine Alphaaktivität zwischen 500 kBq und 1 MBq ideal für die Kalibrierung geeignet wäre. Die am weitesten verbreiteten Alphaspektrometriequellen werden mit ^{241}Am durch elektrolytische Abscheidung aus Lösung hergestellt. Allerdings besitzt ^{241}Am eine lange Halbwertszeit mit $T_{1/2}(^{241}\text{Am}) = 432,6(6)$ a. Somit muss relativ viel Masse auf die Quelle aufgebracht werden, was zu einer erhöhten Selbstabsorption führt. Da ^{241}Am zusätzlich über ein relativ komplexes Alphaspektrum mit 5 Übergangswahrscheinlichkeiten oberhalb von 0,1 % zwischen 5,38 MeV und 5,54 MeV sowie eine Reihe von e- und γ -Übergängen verfügt, wurde nach einer geeigneteren Alternative mit höherer spezifischen Aktivität gesucht. Diese Alternative stellt das ^{210}Po dar. Mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2}(^{210}\text{Po}) = 138,3763(17)$ d ist die notwendige Schichtdicke bei gleicher Aktivität

um einen Faktor 1000 geringer. Wenige 10^{-9} g ^{210}Po entsprechen bereits einer Aktivität von 1 MBq. Darüber hinaus besitzt ^{210}Po nur 2 Alphaübergänge, wovon der höherenergetische bei 5304,33(7) keV eine Übergangswahrscheinlichkeit von 99,99876(4) % besitzt und der einzige γ -Übergang bei 803,052(24) keV mit einer γ -Übergangswahrscheinlichkeit von nur 0,00123(4) % praktisch zu vernachlässigen ist. Da der Zerfall des ^{210}Po direkt in das stabile ^{206}Pb erfolgt, kann keine weitere Strahlung von Zerfallsketten die Messung beeinflussen. Somit hat das Emissionsspektrum einer ^{210}Po -Quelle die nahezu idealen Eigenschaften für die rückführbare Kalibrierung von Radiolumineszenz-Detektorsystemen.

^{210}Po wird technisch und auch für private Anwender außerhalb Deutschlands zur Vermeidung statischer Aufladungen, z. B. bei optischen Linsen und Waagen eingesetzt. Eines dieser Produkte ist der käuflich erwerbliche Static-Master. Darin ist ^{210}Po in einem metallischen Verbund aus Silber- und Goldfolien eingebettet. Die emittierte Alphastrahlung unterliegt dadurch einem starken Energieverlust und einer Verbreiterung, weshalb die Charakterisierung der Radiolumineszenz mit einer solchen Quelle nur bedingt möglich ist.

Das ^{210}Po aus einem solchen Verbund wurde zusammen mit dem darin enthaltenen Silber durch verdünnte Salpetersäure herausgelöst. Polonium ist ein relativ edles Metall und verfügt über ein Standardreduktionspotential von 0,8 V des Redoxpaares Po(IV)/Po(0) . In wässriger Lösung liegt Polonium hydratisiert als Po(IV) vor [17]. Dadurch scheidet es sich durch Reduktion aus wässrigen bzw. salzsauren Lösungen auf allen metallischen Oberflächen ab, die gleich oder weniger edel als Silber sind, z. B. Kupfer, Nickel und Silber selbst. Diese Eigenschaft trifft auf die meisten anderen Metalle nicht zu, sodass durch die stromlose Abscheidung relativ reine Polonium-Schichten gewonnen werden können. Zur Herstellung einer Quelle wurde die gewonnene Silbernitrat-/Poloniumnitrat-Lösung mit verdünnter Salzsäure (0,5 M

Abbildung 8: Spektraler Verlauf der selektierten UV-C/UV-A-LED-Strahlungsquellen, angepasst an die durch Interferenzfilter definierten spektralen Empfindlichkeitsbereiche des Radiolumineszenz-Detektorsystems und das Radiolumineszenz-Emissionsspektrum von N_2

HCl) versetzt und bei 50 °C in Kontakt mit einem polierten Sterling-Silber (925) Target (30 mm Durchmesser) gebracht, was zur Abscheidung von Polonium und edleren Verunreinigungen führte. Das Target wurde mechanisch durch den Einsatz eines Poliermittels mit durchschnittlicher Korngröße von 100 nm (Merard LUXOR orange) auf Hochglanz poliert. Die zur Deposition verfügbare Fläche wurde durch eine Verblendung mithilfe einer abgedichteten Vorrichtung aus Polymethylmethacrylat (PMMA) auf einen Durchmesser von 12 mm begrenzt.

Es wurden 840 kBq ^{210}Po auf dem Target abgeschieden und anschließend alphaspektrometrisch untersucht. Einen Vergleich der Alphaspektren des Static-Master und der so hergestellten Quelle ist in Abbildung 10 gezeigt. Im Alphaspektrum der so erzeugten Quelle kann weiterhin eine verbreiterte Form erkannt werden, die auf die in der Lösung enthaltenen und mit abgeschiedenen Verunreinigungen zurückzuführen ist. Es wird erwartet, dass durch weitere vorbereitende Maßnahmen vor der Abscheidung des Poloniums und dem Einsatz hochreiner Targets (5N Silber) der Bereich von 4,2 MeV bis 5,2 MeV im Spektrum weiter unterdrückt werden kann, sodass eine Quelle mit annähernd monoenergetischer Emission um 5.3 MeV resultieren würde.

5. Zusammenfassung

Die Radiolumineszenzkartierung mit einem gut charakterisierten und optimierten optischen System ist eine wirksame Methode zur Lokalisierung von Kontaminationen mit Alpha-emittierenden Radionukliden. Im Gegensatz zu herkömmlichen Alphakontaminationsdetektoren, die in der Hand gehalten werden und zur Messung der Alphastrahlung bis auf wenige Zentimeter an die Quelle herangeführt werden müssen, ermöglicht diese Standoff-Detektionstechnik eine frühzeitige Warnung vor potenziellen Gefahren aus sicherer Entfernung von der Quelle. Das Herzstück der im Rahmen des „RemoteALPHA“-Projekts

entwickelten neuen Technologie sind optische Detektionssysteme, die auf Linsen- und modularen Spiegelkonfigurationen basieren und für die Erfassung einer großen Anzahl von Radiolumineszenz-Photonen optimiert sind. Diese Instrumente können als eigenständige Geräte betrieben werden, zum Beispiel von einem UAV (Drohne) aus oder auf einem Fahrzeug, und dann von einer Fernsteuerung und per Fernauslese bedient werden. Im UV-C-Spektralbereich können Alpha-Quellen bis zu einer unteren Aktivitätsgrenze von etwa $50 \text{ kBq} \times \text{cm}^{-2}$ in Luft in einer Entfernung von etwa 2 m detektiert werden. Diese Nachweisgrenze kann durch Anwendung einer Stickstoff/NO-Spülung um mehr als drei Größenordnungen verbessert werden. Da die Auslöschung durch Umgebungssauerstoff und Wasserdampf das UV-C-Radiolumineszenzsignal erheblich abschwächt, ist die Spülung mit einer optimalen Mischung aus NO und N_2 für den erfolgreichen Nachweis von Proben mit geringer Aktivität entscheidend. Das Vorhandensein von UV-Hintergrundlicht in der Umgebung, sei es durch Sonnenlicht oder künstliche Quellen, bleibt ein wichtiger Faktor, der sich auf die Nachweisgrenzen auswirkt und sowohl technisch als auch durch Datenverarbeitungsmethoden weiter optimiert werden muss.

Die fundierte Interpretation und insbesondere die Vergleichbarkeit von Radiolumineszenz-Messdaten kann nur dann sichergestellt werden, wenn das dazu eingesetzte Messmittel auf das SI-Einheitensystem rückgeführt ist. Für das neuartige, optische Radiolumineszenz-Detektionssystem wurden daher zwei komplementäre metrologische Vorgehensweisen identifiziert. Die erste Methode beinhaltet die Anwendung eines dedizierten, optischen Quellen-Transfornormals mit variabler Strahldichte auf der Basis einer Ulbrichtkugel in den Spektralbereichen UV-A und UV-C. Das zweite Verfahren beruht auf der Herstellung einer rückführbaren Beziehung zwischen dem UV-Radiolumineszenzsignal und der Alpha-Aktivität. Zur auf nationale Normal rückführbaren

Abbildung 9:
Herstellung der ^{210}Po -Quelle, von links nach rechts:
1) Silber-Target im PMMA-Halter,
2) Silber-Target im Halter in der ^{210}Po -Lösung,
3) Trockene, noch ungereinigte ^{210}Po -Quelle auf Silber-Target



Kalibrierung der Radiolumineszenz-Detektoren werden neue, bisher nicht produzierte Alpha-spektrometriequellen benötigt. Diese Quellen benötigen eine möglichst monoenergetische Alphaemission, die gut charakterisiert werden kann. Um Eigenabsorption zu reduzieren, muss die Quelle eine hohe spezifische Eigenaktivität (kurze Halbwertszeit) besitzen. Aus diesen Überlegungen wurde eine ^{210}Po -Quelle auf einem Silberbacking ausgewählt und produziert. Die Charakteristika der Quelle entsprechen den Forderungen für die Kalibrierung der hier entwickelten Radiolumineszenz-Detektoren.

Danksagung

*This project 19ENV02 „RemoteALPHA“ has received funding from the EMPIR programme co-financed by the Participating States and from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme. 19ENV02 „RemoteALPHA“ denotes the EMPIR project reference.

F. K. und V. D. danken I. Kröger (FB 4.5) und P. Sperfeld (FB 4.1) für die Bereitstellung des PTB-kalibrierten Array-Spektrometers und die Unterstützung bei der Auswertung der Radiolumineszenzspektren. S. R. und F. M. danken S. Hennig (FB 6.1) für die Unterstützung der Arbeiten in und um das Radioaktivitätslabor. Das „RemoteALPHA“-Projekt wird durch die sehr gute und sehr intensive Zusammenarbeit mit den Partnern Clemens Walther (LUH), Arturo Vargas (UPC), Juha Toivonen (TAU), Mihail-Razvan Ioan (IFIN-HH), Péter Gál (BFKH), Sakari Ihantola (ALFA RIFT) und István Róbert Nikolényi (SZIU) unterstützt.

Literatur

- [1] E. B. Podgorsak, *Radiation Physics for Medical Physicists*, Springer (2010)
- [2] J. M. Thompson, *Tracking down alpha-particles: The design, characterisation and testing of a shallow-angled alpha-particle irradiator*, Radiat. Prot. Dosim. **183**, 264 (2019)
- [3] J. Sand, *Alpha radiation detection via radioluminescence of air*, Tampere University of Technology (2016)
- [4] A. J. Crompton, K. A. A. Gamage, A. Jenkins, C. J. Taylor, *Sensors* **18**, 15 (2018)
- [5] 19ENV02 RemoteALPHA, Remote and real-time optical detection of alpha-emitting radionuclides in the environment, <https://www.euramet.org/research-innovation/search-research-projects/details/project/remote-and-real-time-optical-detection-of-alpha-emitting-radionuclides-in-the-environment/>
- [6] S. M. Baschenko, *J. Radiol. Prot.* **24**, 75 (2004)
- [7] Official Journal of the European Union, COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM of 5 December 2013, Document 32013L0059
- [8] M. Zubek, *Excitation of the C3u state of N₂ by electron impact in the nearthreshold region*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **27**, 3, p.573, (1994)
- [9] J. T. Fons, R. S. Schappe, C. C. Lin, *Electron-impact excitation of the second positive band system (C3u ! B3g) and the C3u electronic state of the nitrogen molecule*, *Physical Review A* **53**, 4, 2239 – 2247 (1996)
- [10] G. Poparic, M. Vivic, D. Belic, *Vibrational excitation of the C3u state of N₂ by electron impact*, *Chemical Physics* **240**, 1–2, pp.283–289 (1999)
- [11] F. Blanco, F. Arqueros, *The role of secondary electrons in some experiments determining fluorescence emission from nitrogen C3u levels*, *Physics Letters A* **345**, 4–6, pp.355–361 (2005)
- [12] Y. Itikawa, *Cross sections for electron collisions with nitrogen molecules*, *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **35**, 1, pp. 31–53 (2006)
- [13] J. Sand, S. Ihantola, K. Peräjärvi, H. Toivonen, J. Toivonen, *Radioluminescence yield of alpha particles in air*, *New Journal of Physics* **16**, p.053022 (2014)
- [14] T. Kerst, J. Toivonen, *Intense radioluminescence of NO/N₂-mixture in solar blind spectral region*, *Optics express* **26**, 33764–33771 (2018)
- [15] T. Kerst, *Optical stand-off detection of alpha radiation in nuclear facilities* (Ph. D. thesis), Tampere University, Tampere, Finland, Tampere University Dissertations 129 (2019)
- [16] K.-D. Greif, H. J. Brede, D. Frankenberg, U. Giesen, *The PTB single ion microbeam for irradiation of living cells*, *Nucl. Instr. and Meth. B* **217**, 505–512 (2004)
- [17] P. E. Figgins, *The radiochemistry of polonium*, National Academy of Sciences (1961)

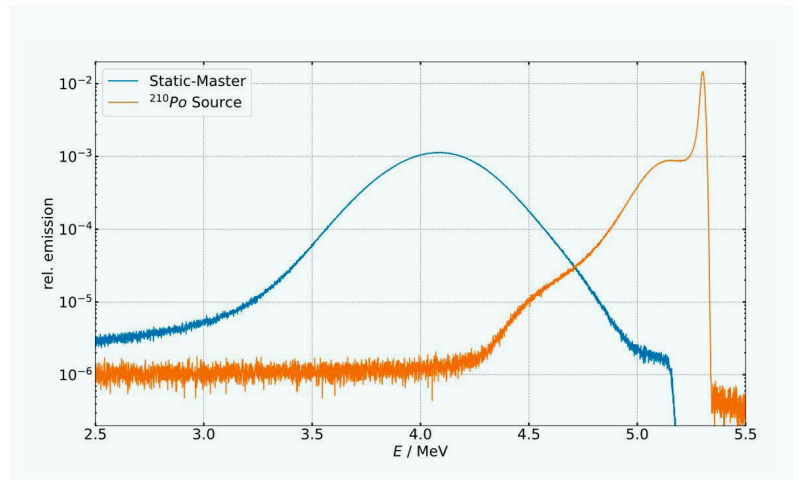


Abbildung 10: Relative Alphaemissionsspektren für den Alphaenergiebereich von 2,5 MeV bis 5,5 MeV in logarithmischer Darstellung. Gemessen mit einem 25-mm²-Siliziumschichtdetektor hinter einer 3,2 mm durchmessenden Blende und einem Abstand von der Quellenoberfläche von 15 mm. Die Alphaenergieauflösung des Detektionssystems ist mit ca. HWB = 10 keV spezifiziert und das elektronische Rauschen wurde durch einen internen Pulser ca. HWB = 8 keV bestimmt. Die Alphaenergieauflösung und Alphaschwerpunktenergie der gemessenen Quellen ergeben sich daraus zu:
 Static-Master:
 $\langle E_\alpha \rangle = 4,1 \text{ MeV}$,
 HWB = 980 keV.
 ^{210}Po : $\langle E_\alpha \rangle = 5,2 \text{ MeV}$,
 HWB = 23 keV.

Was Klimabeobachtung und Strahlenschutz verbindet: Neue Metrologie für Radon-Messungen in der Außenluft

A. Röttger¹, S. Röttger², F. Mertes³, V. Morosh⁴

Das natürlich vorkommende Radon ist Ursache für den größten Teil der Exposition der Bevölkerung durch ionisierende Strahlung. Radon ist gleichzeitig ein hocheffizienter Tracer, um atmosphärische Prozesse zu verstehen, die Genauigkeit chemischer Transportmodelle zu bewerten und integrierte Emissionsschätzungen von Treibhausgasen zu ermöglichen. Für Atmosphären-, Klima- und Strahlenschutzforschung wird daher ein metrologisches System für die Messung der atmosphärischer Radon-Aktivitätskonzentrationen benötigt. Die besondere Herausforderung liegt in den niedrigen Aktivitätskonzentration des Radons in der Außenluft von $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bis $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, wobei es unterhalb von $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ derzeit gar keine metrologische Rückführung gibt. So können Messwerte unterschiedlicher Instrumente betrieben an unterschiedlichen Standorten bezüglich ihrer Ergebnisse nicht verglichen und Austauschprozesse nicht verfolgt werden.

Um Abhilfe zu schaffen, wird im Folgenden eine

neue Kalibriermethode für Aktivitätskonzentrationen unter $20 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und deren Anwendung auf einen Prototyp eines mobilen Radonmonitors beschrieben, der bei diesen Aktivitätskonzentrationen erstmals metrologisch rückgeführt Unsicherheiten von 5 % (bei $k = 2$) erreichen kann und auf der Referenzmessfläche der PTB betrieben wird, siehe Abbildung 1.

1. Einleitung

Die Überprüfung der Einhaltung politischer Vorschriften in Bezug auf Treibhausgasemissionen ist ein wesentlicher Bestandteil der Bemühungen zur Eindämmung des Klimawandels. Unabhängige, zuverlässige „Top-Down“-Methoden, die konsistent für die Schätzung von Treibhausgasemissionen auf lokaler bis hin zu der regionalen Ebene angewandt werden können (wie die Radon Tracer Method, RTM), sind ein wesentlicher Bestandteil dieses Prozesses. Die RTM stützt sich auf



- ¹ Annette Röttger, Abteilung 6 *Ionisierende Strahlung*, E-Mail: annette.roettger@ptb.de
- ² Dr. Stefan Röttger, Arbeitsgruppe 6.13 *Alpha- und Gammaskpektrometrie*, E-Mail: stefan.roettger@ptb.de
- ³ Florian Mertes, Fachbereich 6.1 *Radioaktivität*, Arbeitsgruppe 6.13 *Alpha- und Gammaskpektrometrie*, E-Mail: florian.mertes@ptb.de
- ⁴ Viacheslav Morosh, Arbeitsgruppe 6.32 *Dosimetrie bei niedriger Dosisleistung*, E-Mail: viacheslav.morosh@ptb.de

Abbildung 1: Die Referenzfläche (ERADOS) der PTB im Herbst 2021. Eine Erweiterung der Instrumentierung ermöglicht es, die Metrologieforschung zur Überwachung der Ortsdosisleistung in der Umwelt mit neuen Methoden für die Klimabeobachtung zu kombinieren.

beobachtete Radon- und THG-Konzentrationen und gemessene oder modellierte Radonflüsse. Zuverlässige Radonflusskarten könnten zudem den EU-Mitgliedstaaten helfen, die europäische Richtlinie 2013/59/EURATOM einzuhalten. In diesem Artikel werden erste Ergebnisse des Projekts EMPIR 19ENV01 „traceRadon“¹ vorgestellt [Röttger 2021], dessen Hauptziele darin bestehen, einen standardisierten Ansatz für die Anwendung der RTM zu finden, eine Infrastruktur mit einer Rückführungskette für Radonaktivitätskonzentrations- und Radonflussmessungen zu schaffen und Instrumente für die Validierung von Radonflussmodellen zu entwickeln. Da Radonflüsse aus dem Boden die terrestrische Gammadosisleistung (TGDR) dominieren, werden die Ergebnisse des Projekts auch die Empfindlichkeit von Strahlenschutz-Frühwarnnetzen verbessern, da eine enge Korrelation zwischen Radonfluss und Umgebungs-Äquivalentdosisleistung besteht [Kessler 2017].

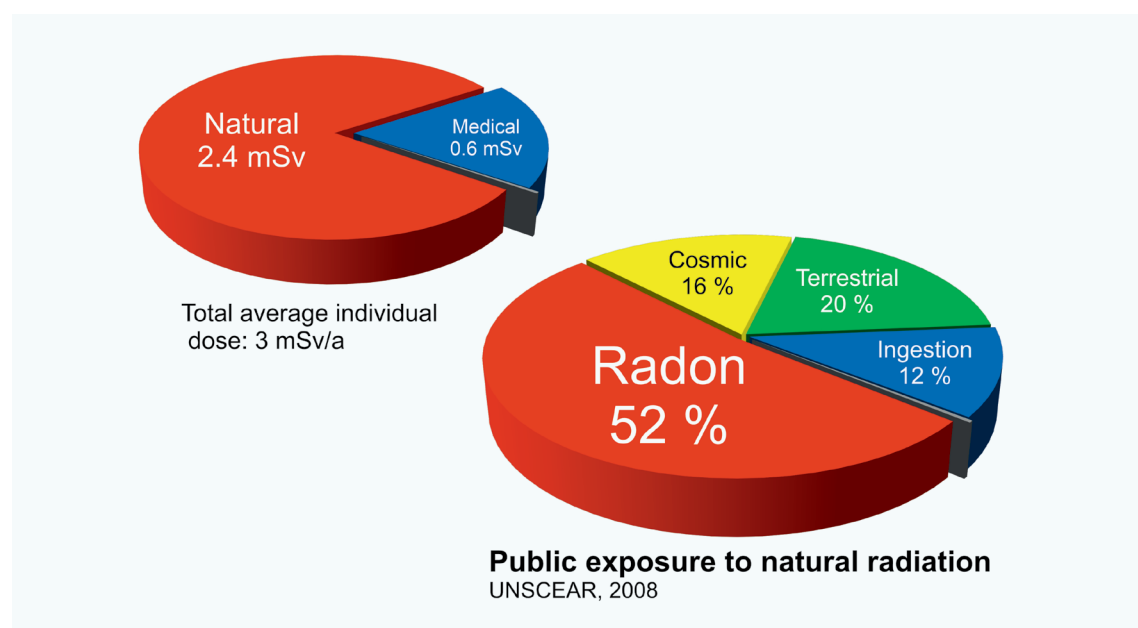
Radon ist ein farbloses, geruchloses und chemisch inertes radioaktives Gas, das fast überall in unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen vorkommt. ²²²Rn ist ein Folgeprodukt des langlebigen ²²⁶Ra (mit einer Halbwertszeit von ca. 1600 Jahre), das in den meisten Gesteins-, Wasser- und Bodenarten allgegenwärtig ist [EC-JRC 2020]. Wie alle radioaktiven Stoffe zerfällt Radon in andere Elemente und gibt dabei Strahlung ab, hauptsächlich in Form von Alphateilchen. Es ist wissenschaftlich belegt, dass Radon aufgrund seiner Folgeprodukte für den Großteil des Lungenkrebsrisikos der nicht rauchenden Bevölkerung verantwortlich ist [Darby 2005], da eingeatmete Radon-Folgeprodukte zu einer erheblichen Schädigung der Atemwegszellen führen können. In Gebäuden können die Aktivitätskonzentrationen des Radons und seiner Folgeprodukte so hohe

Werte erreichen, dass sie ein ernstes Gesundheitsrisiko darstellen. Je höher die Radon-Aktivitätskonzentration ist, desto größer ist das Gesundheitsrisiko: Die Exposition gegenüber Radon in Wohnungen ist allein in der Europäischen Union für etwa 20 000 Todesfälle durch Lungenkrebs pro Jahr verantwortlich [WHO, 2009]. Aus diesem Grund werden immer mehr Vorschriften erlassen, um die Exposition (siehe Abbildung 2) durch Radon zu verringern. Das wichtigste Dokument für Europa ist die europäische Richtlinie 2013/59/EURATOM [EURATOM 2013] und für Deutschland das Strahlenschutzgesetz [StrlSchG 2017].

Weltweit fehlen Daten über die Radon-Aktivitätskonzentration in der Außenluft: Mangels Qualität der Messdaten macht die Messung einfach keinen Sinn. Stattdessen hat man sich für Fragen des Strahlenschutzes auf Innenraummessungen der Aktivitätskonzentration zurückgezogen, die in der Regel deutliche höhere Werte haben und deshalb leichter messbar sind.

Eine wichtige Aufgabe in dem Projekt „traceRadon“ ist es, zur Verbesserung der Bestimmung von Treibhausgasflüssen die Transportprozesse von Radon im Boden und seinen Fluss in die Atmosphäre anhand vorliegender Bodenparameter-Karten sowie der sich verändernden Bodenfeuchte zu modellieren. Dies geschieht beim Einsatz der Radon-Tracer-Methode, denn damit lassen sich die Flüsse der Treibhausgase bestimmen. Eine auf bodenphysikalischen Prozessen und aktuellen Parametern wie Bodenfeuchte basierende dynamische Flusskarte kann daneben auch die Ausweisung von Gebieten mit hohem Radonpotenzial verbessern: Denn die Identifikation der sogenannten Radon-Vorsorgegebiete (eng. Radon Priority Areas, RPA) ist eine Verpflichtung für alle Bundesländer nach der Strahlenschutzverordnung. Das Problem hierbei: Viele

Abbildung 2: Die mittlere jährliche Exposition des Menschen nach [UNSCEAR 2008]. Die Exposition aus natürlichen Quellen (2,4 mSv) dominiert die Gesamtexposition (ca. 3 mSv). Die herausragende Bedeutung des Radons für den Strahlenschutz ergibt sich daraus, dass über 50 % der natürlichen Exposition auf Radon zurückzuführen ist.



Karten und die Festlegung von RPAs basieren nur auf Radon-Innenraummessungen in Wohngebäuden, teilweise verknüpft mit Information zu Gebäudecharakteristika (z. B. Österreich). Manche europäischen Länder stützen die Festlegung auf Daten zu Radon in der Bodenluft (z. B. Tschechien und Deutschland). Eine andere Methode für die Charakterisierung eines Gebiets hinsichtlich seines Radonpotenzials ist die Verknüpfung von verschiedenen radon-relevanten Parametern (allgemeine Bodencharakteristika, insbesondere Radon in der Bodenluft, Bodenpermeabilität, Konzentration von Radionukliden im Boden). Dies wird oft als geogenes Radonpotenzial bezeichnet. Im Zuge des Projekts „MetroRADON“ [MetroRADON 2017] wurden Methoden dazu weiterentwickelt (z. B. der Radon Hazard Index, RHI). Die Verwendung von Radonflussdaten und -karten zur Identifizierung von RPA wurde aufgrund der mangelnden Qualität der Daten bisher noch nie versucht. Deshalb werden im Rahmen des Projekts „traceRadon“ Radonflussmessungen und -karten als neue Parameter zur Identifizierung von RPA durch den Radon Hazard Index (RHI) evaluiert.

Vorraussetzung für die Schaffung von online verfügbaren dynamischen Karten ist eine saubere metrologische Grundlage: die Rückführung der Messungen auf das SI-System. Nur über die Implementation eines Qualitätssicherungssystem mit validen Informationen über Unsicherheiten ist die Voraussetzung für die Vergleichbarkeit von Ergebnissen gegeben. Die Basis dafür, die neue Metrologie für Radon-Messungen in der Außenluft, wird in den folgenden Abschnitten vorgestellt.

2. Neue Aktivitätsstandards für Radon

Die Metrologie des Radons (betrachtet wird hier ^{222}Rn) bezüglich der Darstellung der Einheit der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ lässt sich grundlegend in zwei verschiedene Ansätze unterteilen. Eine Möglichkeit, Radon absolut zu quantifizieren, ist die Methode nach Picolo [Picolo 1996], bei der gasförmiges Radon aus dem Zerfall von Radium (^{226}Ra) an einem Kaltpunkt im Vakuum ausgefroren wird. Die vom festen Radon emittierten Alpha-Teilchen werden unter definiertem Raumwinkel gemessen, sodass die Aktivitätseinheit auf die Basiseinheiten Sekunde und Meter zurückgeführt werden kann. Im Anschluss wird das Radon wieder in die Gasphase überführt und kann nachfolgend zur Erzeugung von Atmosphären bekannter Aktivitätskonzentration verwendet werden. Die Aktivitätskonzentration einer so hergestellten Atmosphäre nimmt mit einer Halbwertszeit von 3,8 Tagen exponentiell ab, wodurch die Zählstatistik und damit die erreichbare Unsicherheit bei der Kalibrierung von Prüflingen limitiert ist. Damit eignet sich dieser Ansatz nicht zur Dar-

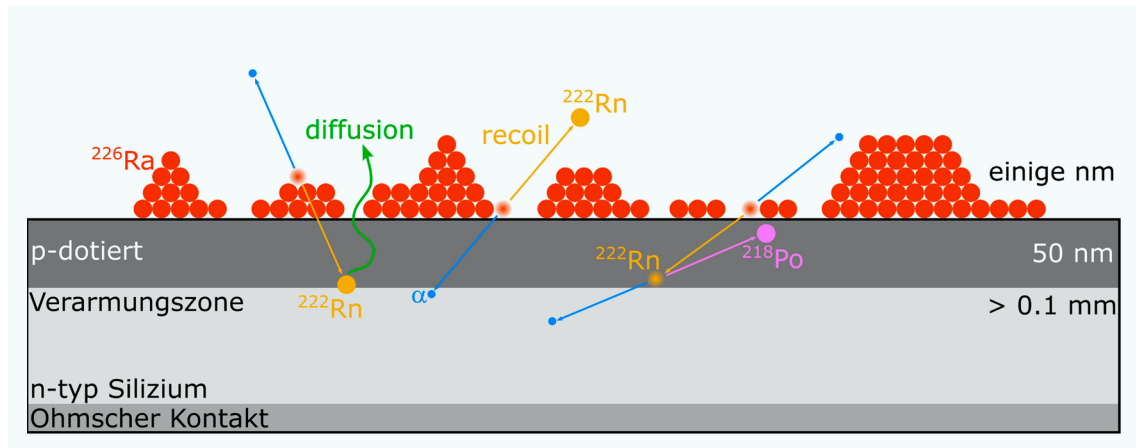
stellung von Referenzatmosphären mit Aktivitätskonzentration vergleichbarer derer in der Außenluft ($< 100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

Eine Alternative zu dieser Methode ist der Einsatz von Präparaten, die Radium enthalten und so beschaffen sind, dass ein Teil des entstehenden Tochternuklids Radon kontinuierlich in ein Referenzvolumen freigesetzt wird. Dadurch wird das im Volumen zerfallende Radon kontinuierlich ersetzt, wodurch sich nach etwa fünf bis zehn Halbwertszeiten ein Gleichgewichtszustand also eine konstante Aktivitätskonzentration, einstellt [Mertes 2020]. Die Nutzung dieser Aktivitätskonzentration zu Kalibrierzwecken setzt voraus, dass die freigesetzte Aktivität an Radon rückgeführt auf das SI-System quantifiziert werden kann. Da der Mechanismus, der das Freisetzen des Radons bewirkt, aus einer Kombination zweier Prozesse besteht, einerseits dem Rückstoß der Kerne in Folge des Alpha-Zerfalls und andererseits aus den Diffusionsprozessen, korreliert die Menge an freigesetztem Radon in der Regel mit Umgebungsparametern wie z. B. der relativen Feuchte und der Temperatur, da diese Einfluss auf den effektiven Diffusionskoeffizienten nehmen. Um diese Abhängigkeiten zu untersuchen, wurden in der PTB neuartige Quellen entwickelt mit der messtechnischen Möglichkeiten der fortwährenden Bestimmung der Emanation [Mertes 2021a, in print]. So konnte gezeigt werden, dass es bei geringer Eindringtiefe z. B. von ionenimplantiertem ^{226}Ra keine messbare Abhängigkeit der Emanation von der Umgebungsfeuchte und nur eine geringe Abhängigkeit von der Temperatur gibt [Mertes 2022, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2021.110093>].

Die absolute Bestimmung der Aktivität des ^{226}Ra geschieht bei diesem Quellen-Typ durch α -Spektrometrie unter definiertem Raumwinkel, während der freigesetzte Anteil an ^{222}Rn sowohl durch den γ -spektrometrischen Vergleich mit radondichten Quellen, als auch durch konventionelle α -spektrometrische Messung, quantifiziert wird. Auf dieser Basis wurden mehrere primäre ^{222}Rn -Aktivitätsnormale hergestellt, die sich für die Darstellung der Aktivitätseinheit im Bereich $< 100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ in großvolumigen Klimakammern eignen. Typische Größen von begehbaren Klimakammern sind 10 m^3 bis 30 m^3 .

Einen völlig neuen Weg in der Rückführung und somit ein Meilenstein in der messtechnischen Entwicklung stellt das nachfolgend vorgestellte Gerät dar. Ausgehend von der Herausforderung hohe zeitliche Auflösungen zu benötigen und gleichzeitig hohe Zählstatistik zu generieren und damit geringe Unsicherheiten bei niedrigen Aktivitäten erreichen zu können, benötigt man die höchstmöglich realisierbare Detektionseffizienz. Der innovative Lösungsansatz bestand darin kommerziell erhältliche Silizium-Detektoren mit einer

Abbildung 3:
Schematische Übersicht einer ^{226}Ra Dünnschicht aufgedampft auf einem Silizium-Detektor.



dünnen Schicht an ^{226}Ra zu bedampfen.

Abbildung 3 zeigt eine schematische Übersicht des dabei entstehenden Geräts, des **Integrated ^{226}Ra Source/Detectors (IRSD)**.

Nach dem Bedampfen befindet sich ^{226}Ra auf der Oberfläche des Silizium-Detektors, sodass rund 50 % des entstehenden Radons freigesetzt werden. Sowohl die Alpha-Teilchen des ^{226}Ra als auch die des zurückbleibenden Radons können dadurch unter Umgebungsdruck mit einer Zählzelle von rund 50 % getrennt voneinander und kontinuierlich spektrometrisch nachgewiesen werden. Da die Gesamtmenge an Radon eine Erhaltungsgröße ist, erlauben die kontinuierlich aufgenommenen Alpha-Spektren die Menge an freigesetztem Radon zu bestimmen. Diese Art der Messung stellt eine mathematische Inversion dar und benötigt besondere Analyseverfahren. Auf der Basis des Kalman-Filters zur Zustandsschätzung in linear dynamischen Systemen wurden neuartige Algorithmen entworfen und implementiert, mit deren Hilfe sich der zeitliche Verlauf der freigesetzten Aktivität des Radons und die zugeordnete Unsicherheit aus den kontinuierlich gewonnenen Messdaten berechnen lassen. Durch das beschriebene Verfahren lässt sich selbst das Freisetzen eines Radonatoms pro Sekunde (ca. $2 \mu\text{Bq} \cdot \text{s}^{-1}$) im Mittel innerhalb weniger Stunden Integrationszeit noch mit Unsicherheit um 2 % ($k = 1$) bestimmen.

Der IRSD wird zukünftig eingesetzt werden, um Radonmonitore auch im Feld und bei wechselnden klimatischen Bedingungen fortlaufend, automatisiert und rückgeführt zu kalibrieren.

3. Von der Quelle zum Messinstrument: Neue Datenanalyse-verfahren und Prototyp-Kalibrierungen

Radon in der Außenluft „richtig“ zu messen, bedeutet eine metrologische Rückführung der Aktivitätskonzentration des Radons in der Außenluft von ca. $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ bis $20 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ und des Radonflusses aus dem Boden im Bereich von ca. $20 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ bereitzustellen. Wegen der

kleinen Ereigniszahlen stellt dies eine große Herausforderungen für die Weitergabe über Transfernormale (i. allg. besonders metrologisch qualifizierte Messgeräte) dar [Linzmaier 2013]. Das wird anhand folgender Beispielrechnung offensichtlich: Man nehme an, dass ein Radon-Messgerät über ein aktives Volumen vom 1 L verfügt. Daraus ergeben sich bei $10 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ Zählraten von 36 h^{-1} , was allein statistisch eine Unsicherheit (bei Poisson-Statistik) von 17 % bei einer Messzeit von einer Stunde ergibt. Da man bei einem solchen System zusätzlich die Unsicherheit des Eigennulleffekts, der Linearität und der Kalibrierung berücksichtigen muss [Röttger 2013, Röttger 2011], ist die Gesamtmessunsicherheit sowie die Nachweis- und Erkennungsgrenze eines solchen Systems selbst bei idealen Kalibrierbedingungen wenig geeignet, dynamische Vorgänge in der Aktivitätskonzentration in der Außenluft nachzuweisen. Eine Lösung des statistischen Problems stellt die Vergrößerung des aktiven Volumens oder die Messung der Folgeprodukte mit erhöhtem Durchfluss dar. So lassen sich die Zählraten stark erhöhen. Solche Detektoren sind die ANSTO-Monitore (aktives Volumen zwischen 200 L und 1500 L), der Atmospheric Radon Monitor ARMON der Universität von Barcelona oder der Heidelberg Radon Monitor HRM.

Eine Kalibrierung eines 200 L großen Messsystems unter nicht dynamischen Bedingungen konnte zum ersten Mal in der Klimakammer der PTB mithilfe von ionenimplantierten Emanationsquellen realisiert werden. Der Verlauf der registrierten Zählraten in Abhängigkeit von der Zeit ist in Abbildung 4 dargestellt. Ein mathematisches Modell der entstehenden Radon-Aktivitätskonzentrationen aus der Kenntnis der Aktivität von ^{226}Ra und der Emanation der verwendeten Quellen sowie des Volumens der Kammer wurde entwickelt. Aus den gemessenen Zählraten wird der Kalibrierfaktor und der Eigennulleffekt des Detektors bestimmt. Die Bereiche der unterschiedlichen Quellen sind durch unterschiedliche Farben gekennzeichnet. Im unteren Bereich ist das Residuum zwischen Messwerten und mathemati-

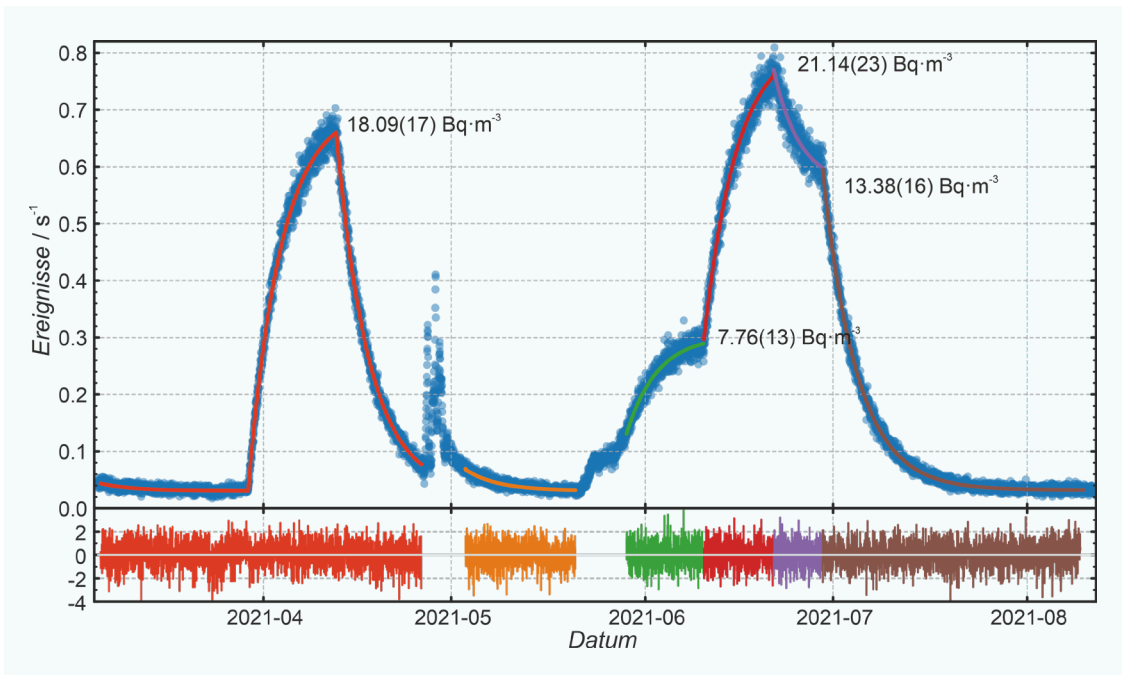


Abbildung 4: Zeitlicher Verlauf einer Kalibrierprozedur eines neuen, portablen Detektorprototyps ANSTO 200 L. Unterschiedliche ionenimplantierte Emanationsquellen kamen zum Einsatz. Die für diese Quellen bestimmten Aktivitätskonzentrationen im Gleichgewicht sind in der Abbildung als Zahlenwert integriert. Die Einsatzbereiche der Quellen sind farblich unterschieden. Ein Gesamtmodell über den Zeitraum wurde verwendet, um den Kalibrierfaktor und den Eigennulleffekt des Detektors zu bestimmen.

schem Model dargestellt. Die Zahlenwertangaben geben die maximale Aktivitätskonzentration der Quellen im Gleichgewicht wieder. Die Qualität der Kalibrierung und die Korrektheit des verwendeten Modells wird durch Abbildung 5 belegt. Hier ist die Abweichung zwischen Modell und gemessener Zählrate als Verteilung wiedergegeben. Alle Verteilungen wurden zur besseren Vergleichbarkeit auf eine Fläche von 1 normiert.

Den Unterschied zu kommerziell erhältlichen Radon-Messgeräten aus dem Bereich des Strahlenschutzes verdeutlicht Abbildung 6. Hier sind die Messergebnisse des 200-L-Monitors mit den Anzeigen dreier kommerzieller Radon-Monitore in Abhängigkeit von der Zeit dargestellt. Zwei der Monitore (gelbe und rote Punkte) waren in dersel-

ben Atmosphäre wie der ANSTO 200 L. Der dritte Monitor (grüne Punkte) befand sich außerhalb der Klimakammer. Mit dieser ersten Kalibrierung hat die PTB erfolgreich den Nachweis geführt, dass rückgeführte Kalibrierungen von Radonmonitoren für die Klimaforschung in der Radon-Aktivitätskonzentration unterhalb von $20 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ mit Unsicherheiten in der Größenordnung von 5 % möglich sind.

Dies ist ein wichtiger Meilenstein bei der Entwicklung neuer Dienstleistungen im Bereich der Klimabeobachtung, wie sie sich das Konsortium von „traceRadon“ vorgenommen hat. Erster Kunde im Rahmen des Projektes sind die Betreiber des Radonmonitors des Klimabeobachtungsnetzwerkes ICOS. Mit Radonmessungen kann ICOS die

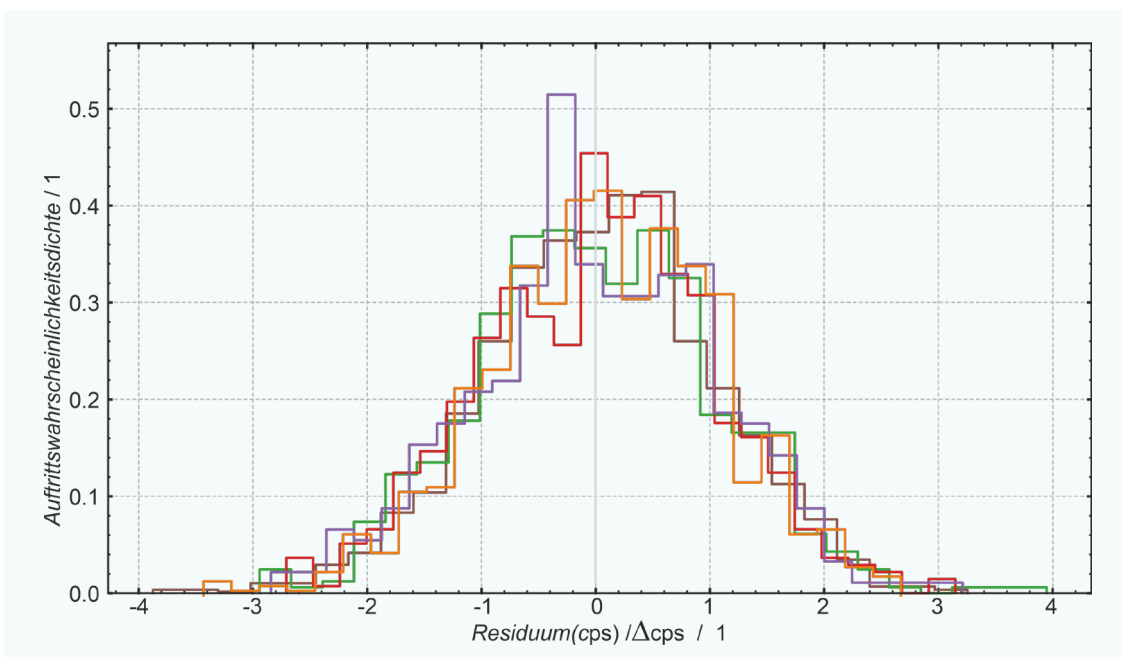
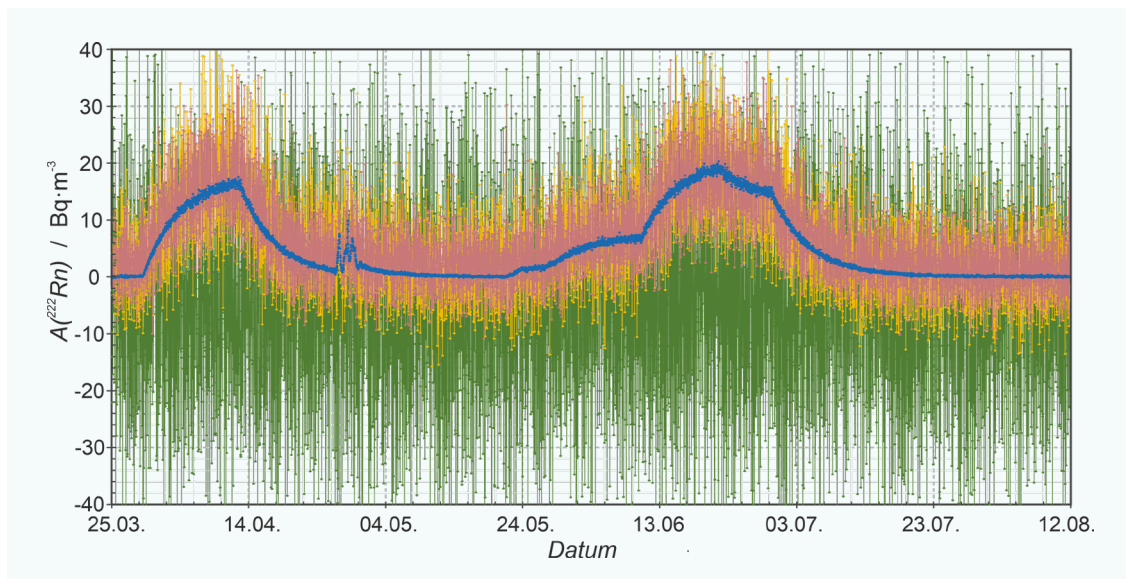


Abbildung 5: Verteilung der normierten Abweichung aus Abbildung 4 mit identischer Farbkodierung. Die bis auf statistische Schwankungen identischen symmetrischen und sehr schmalen Verteilungen sprechen für die Güte der Kalibrierung und die Korrektheit des Modells. Zu besseren Vergleichbarkeit der Verteilungen wurde die Fläche aller Verteilungen auf 1 normiert.

Abbildung 6: Vergleich zwischen kommerziellen Radonmonitoren für die Innenraumüberwachung (AlphaGuard, gelbe, rote Punkte) und dem neuen portablen Außenluftmonitor (ANSTO 200 L, blaue Punkte). Zum Vergleich wurde ein AlphaGuard (grüne Punkte) außerhalb des Kalibriervolumens betrieben. Die Unterschiede in den statistischen Schwankungen aufgrund des unterschiedlichen aktiven Volumens sind eindrucksvoll erkennbar. Alle Punkte stellen 30-min-Mittelwerte dar.



Erfassung von Treibhausgasflüssen systematisch verbessern. Das ist dringend erforderlich, denn der Anstieg von Treibhausgasen in der Atmosphäre gilt als wesentliche Ursache des Klimawandels. Verursacht wird dieser Anstieg durch direkte anthropogene Emissionen aus der Verbrennung von fossilen Brennstoffen und aus Änderungen der Landnutzung. Darüber hinaus bestehen möglicherweise starke Rückkopplungen zwischen dem Klima und den natürlichen Quellen und Senken von Treibhausgasen, die bisher aber nur teilweise verstanden sind und daher nur unzureichend in globalen Klima-Modellen abgebildet werden können [ICOS: <https://www.icos-cp.eu/> last accessed 2021-11-16].

4. Der Einsatz im Feld: Erweiterung der Messmöglichkeiten auf der Referenzmessfläche in der PTB

Die PTB-Referenzmessfläche (ERADOS: Environment Radiation Dosimetry Site) dient zur Darstellung und Weitergabe der Äquivalent-Dosisleistung in der Umwelt. Dafür werden sowohl kommerzielle Messinstrumente als auch eigenentwickelten Detektoren verwendet [Dombrowski 2018, Kessler 2018, Röttger 2019]. In Kombination mit metrologischen Analyseverfahren sorgt diese Instrumentierung für weltweit einzigartig kleine Unsicherheiten bei der Bestimmung des Messwertes für die Äquivalent-Dosisleistung. ERADOS spielt aufgrund seiner Ausstattung und Lage eine bedeutende Rolle bei den Forschungsaktivitäten des EMPIR-Forschungsprojekts „traceRadon“.

Das Strahlungsfeld auf ERADOS wird mit mehreren hochentwickelten Detektoren charakterisiert: Dazu gehören die kontinuierliche Messung sowohl der terrestrischen Strahlung, erzeugt durch den radioaktiven Zerfall von Radionukliden in der Erdkruste, als auch die der sekundären kosmische

Strahlung. Daneben werden die Umweltparameter wie Temperatur, Druck und Niederschlag kontinuierlich aufgezeichnet. All diese Messwerte werden systematisch auf Konsistenz und Plausibilität überprüft. Zu diesem Zweck wurde eine Datenmanagementplattform entwickelt, die eine schnelle Datenprüfung ermöglicht, wodurch Trends und Anomalien zuverlässig erkannt werden können.

Neu im Kreis der Präzisionsmesstechnik: der Prototyp eines 200 L großen Detektors von der Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO, <https://www.ansto.gov.au>, [Chambers 2021]). Dieser Radonmonitor misst die Radon-Aktivitätskonzentration in der Außenluft über die kurzlebigen Folgeprodukte. Sein Messprinzip basiert auf einem Doppel-Kreislauf-Doppel-Filter System. Der erste Filter befindet sich im äußeren Kreislauf in dem sogenannten Thoron-Rückhaltmodul, das dazu dient, das in dem Luftstrom vorhandene Thoron (^{220}Rn) zerfallen zu lassen. Bei einem Volumen von ca. 100 L und der Durchflussrate von $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ vergehen ca. 10 min, bis die komplette Luft im Thoron-Rückhaltmodul ausgetauscht ist. Da die Halbwertszeit von Thoron 55,6 s beträgt, reicht diese Zeit aus, dass 99,99 % der im Luftstrom vorhandenen Menge dort zerfällt. So lassen sich die Folgeprodukte durch den Filter am Austritt des Moduls entfernen. Ohne den ersten Filter würden die Folgeprodukte (hauptsächlich Pb-212, Halbwertszeit 10,6 h) den zweiten Filter „verunreinigen“ und zu höheren Messwerten führen. Diese Verunreinigung kann durch Abschalten des inneren Kreislaufs und längeres Warten (idealerweise ein Vielfaches der Halbwertszeit) wieder beseitigt werden. Während dieser Abklingzeit sollte keine Messung stattfinden. Der zweite Filter befindet sich direkt am Detektorkopf und fängt die elektrisch geladenen Radonfolgeprodukte auf, die in der Probenluft bei ihrem weiteren Zerfall Alpha-Teilchen emit-

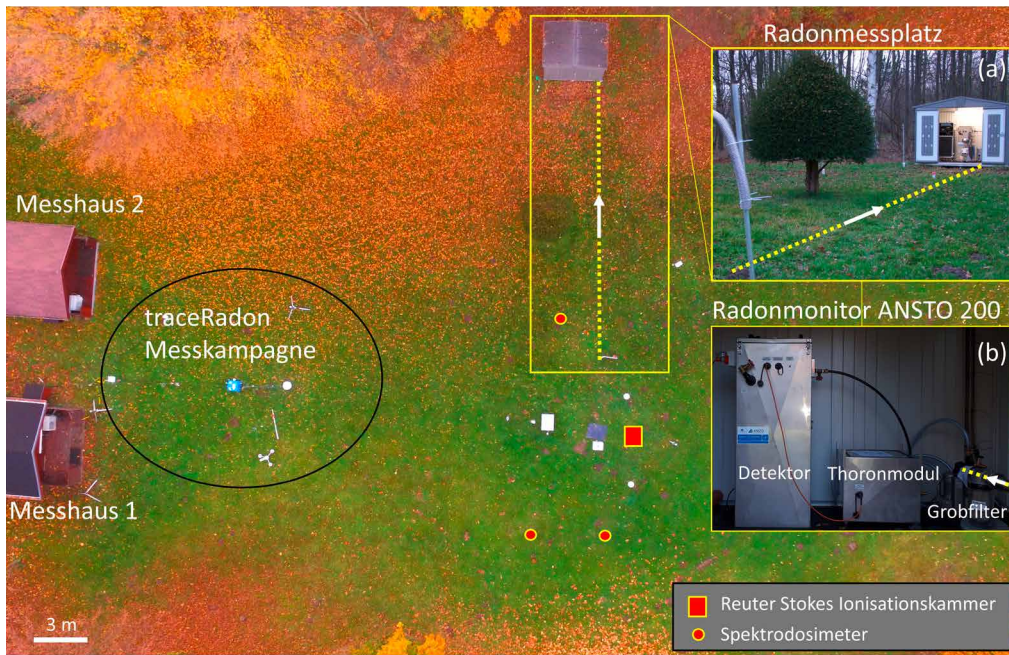


Abbildung 7: Foto von ERADOS mit der Instrumentierung. Die beiden Messhäuser (links) enthalten die Messsysteme zur Bestimmung der Äquivalent-Dosisleistung verursacht durch die geladene Komponente der sekundären kosmischen Strahlung sowie die Neutronendetektoren. Auf der Messfläche befinden sich die Detektoren zur Bestimmung der terrestrischen Komponente der Äquivalent-Dosisleistung, eine Ionisationskammer vom Typ Reuter Stokes und Eigenentwicklungen vom Typ Spektrosimeter. Die gestrichelte Linie zeigt den Verlauf des unterirdisch verlegten Stahlwellrohres zur Entnahme der Luftprobe aus der Mitte der Messfläche. Der Ausschnitt (a) zeigt den Blick auf den Radonmessplatz mit dem ANSTO 200 L, die Details sind in (b) zu sehen.

tieren und Szintillationen im Detektormaterial (ZnS) auslösen. Die durch die Szintillationsphotonen verursachten Pulse werden während einer vorgegebenen Messzeit aufsummiert. Durch die Multiplikation der Zählrate (nach Abzug des Nulleffekts) mit dem Kalibrierfaktor ergibt sich die gemessene Radon-Aktivitätskonzentration in der Luft bei bekannter Durchflussrate.

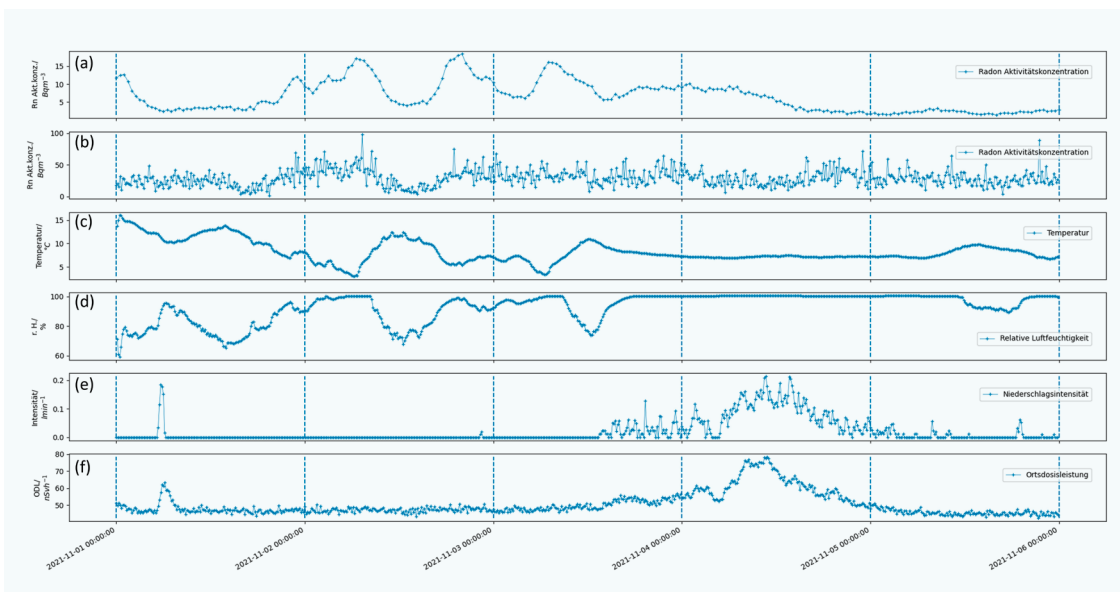
Auf ERADOS wurde der Einlass des ANSTO-200-L-Radonmonitors mit einem langen Wellrohr verbunden, durch das der zu messende Luftstrom aus ca. 15 m Entfernung und einer Höhe von 1 m über dem Erdboden entnommen werden kann. Da das Rohr unterirdisch verlegt ist, muss es aus einem radonundurchlässigen Material – in diesem Fall aus Stahl – aufgebaut sein und darf keine Verbindungsstellen aufweisen. Ein winziges Leck an einer Verbindungsstelle im Boden würde zu einem starken Anstieg des Messwertes

führen, da die Radon-Aktivitätskonzentration dort um Größenordnungen höher als an der Oberfläche ist. Ein Grobfilter zwischen dem Rohr und dem Einlass der Thoron-Rückhalteeinheit hält grobe Partikel wie etwa Blätter, Gras oder Insekten zurück, siehe Abbildung 7.

Da sich die Radon-Aktivitätskonzentration mit der Höhe über dem Boden ändert, wird für die Konsistenz der Messwerte und für die Möglichkeit der Untersuchung von Korrelationen die Höhe der Probenahme bzw. die Höhe der Detektorposition auf 1 m über dem Boden festgelegt. Diese Konfiguration kann je nach Zielsetzung des aktuellen Forschungsplans angepasst werden.

In der Literatur [Cuculeanu 2011] findet man Darstellungen über Korrelationen der Radon-Aktivitätskonzentration in der Außenluft mit meteorologischen Parametern: Lufttemperatur, relative Luftfeuchte, Luftdruck, Niederschlag, Schneebeleg.

Abbildung 8: Auszug aus den erfassten Daten auf ERADOS. Die obersten beiden Datensätze stellen den zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentration von Radon in der Außenluft gemessen jeweils mit dem ANSTO 200 L Monitor (a) und einem AlphaGuard (b) dar. Darunter ist der Temperaturverlauf (c), die relative Luftfeuchtigkeit (d), die Intensität des Niederschlags (e) und die Ortsdosisleistung (f) dargestellt. Die Reduzierung der Radon-Aktivitätskonzentration in der Außenluft nach dem Niederschlag ist nur mit hochsensitiven Systemen erfassbar, der sichtbare Anstieg der Ortsdosisleistung entspricht dem Effekt des Radon-Washout-Effekts, der bei den radiologischen Frühwarnnetzen Fehlalarme auslöst.



Einige dieser Abhängigkeiten führen zu Tages- und Jahreszeit abhängigen Variationen, die sich an einer Periodizität im Verlauf der gemessenen Aktivitätskonzentration erkennen lassen. Die anderen nehmen Einfluss auf die gemessenen Werte beim Eintreten bestimmter Bedingungen. Z. B. können Niederschläge zu Wasseranreicherung im Boden führen, was wiederum das Blockieren der Diffusionswege für Radon bedingt und eine niedrigere Aktivitätskonzentration in der Luft zur Folge hat. Auf der Referenzmessfläche wird die Bodenfeuchte und -temperatur bis zu 1 m in neun verschiedenen Tiefen (5 cm, 10 cm, 20 cm, 30 cm, 40 cm, 50 cm, 60 cm, 75 cm, 100 cm) gemessen. Außerdem findet eine permanente Aufzeichnung der Niederschlagsmenge statt. Damit ist eine detaillierte Korrelationsanalyse über lange Zeiträume und über mehrere Jahreszeiten möglich.

Besonders interessant sind die gleichzeitigen Messungen der Ortsdosisleistung (ODL) und des γ -Spektrums über Spektrosimeter. Das ermöglicht, die genaue Ursache der Veränderungen der ODL anhand der Energie- und Häufigkeitsinformation im Spektrum festzustellen, i. allg. das stärkere oder schwächere Auftreten von radioaktiven Isotopen. Der bekannteste natürliche Effekt, der durch Radon und seine Folgeprodukte verursacht wird und der einen deutlichen Anstieg der ODL hervorruft, ist der „Washout-Effekt“. Er besteht im Auswaschen von in der Atmosphäre befindlichen Folgeprodukten des Radons. Folglich bildet sich in der Bodennähe eine höhere Konzentration dieser kurzlebigen Folgeprodukte, die beim weiteren Zerfall charakteristische γ -Strahlung aussenden, siehe Abbildung 8 mit Daten vom 04. bis 05.11.2021.

Im Zusammenhang mit der Erfassung und der Analyse der vielen korrelierten Datensätze soll die geplante Anwendung moderner Methoden aus dem Bereich des maschinellen Lernens genannt werden. Sie können dabei helfen, Artefakte oder Anomalien in den Daten zu identifizieren. Darüber hinaus können mit ihrer Hilfe Vorhersagemodelle entwickelt werden.

5. Zusammenfassung und Ausblick

Das natürliche Edelgas Radon lässt sich als Tracer für die Flüsse anderer aus dem Erdboden austretenden Gasen, i. allg. Treibhausgase wie Kohlenstoffdioxid oder Methan, einsetzen. Die Methode, diese Flüsse zu messen, wird im EU-geförderten Projekt „traceRadon“ mit metrologischen Grundlagen unterstützt und im weiteren Verlauf des Projektes einer Evaluierung bzgl. seiner Leistungsfähigkeit unterzogen. Dazu werden im Rahmen einer 12-monatigen Messkampagne abwechselnd an vier Standorten in Europa und im Vereinigten Königreich umfangreiche Messdaten (Radonfluss

und Radon-Aktivitätskonzentration, Bodenfeuchte, Umgebungs-dosisleistung, Gammaskpektrum, Emission von CO₂) von parallel betriebenen Messgeräten erhoben und anschließend ausgewertet. Als einer dieser Standorte ist ERADOS, die Referenzmessfläche der PTB, ausgewählt worden. Die Messkampagne läuft seit November 2021 erfolgreich.

Auch die ersten Ergebnisse im Bereich neuer Technologien zur Kalibrierung der hochsensitiven Radonmonitore liegen vor.

Sie wollen auf dem Laufenden bleiben? Folgen Sie uns mit #traceRadon auf Twitter!

Details zum Projekt finden Sie auch auf <http://traceRadon-empir.eu/>.

6. Danksagung

Das Projekt „traceRadon“ ist im Sommer 2020 gestartet. Unterstützung erhält es von einer weltweiten breiten wissenschaftlichen Gemeinschaft aus Klimaforschung, Strahlenschutz und Metrologie. Alle Akteure eint das Ziel, neue und verbesserte Daten für die Wissenschaft, die Bevölkerung und die Entscheidungsträger bereitzustellen.

Als Projektpartner sind die folgenden Institute beteiligt: Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Deutschland, Budapest Főváros Kormányhivatala Hungary, Cesky Metrologicky Institut, Tschechische Republik, Agenzia Nazionale per le nuove tecnologie, l'energia e lo sviluppo economico sostenibile, Italien, Institutul National de Cercetare-Dezvoltare pentru Fizica si Inginerie Nucleara „Horia Hulubei“, Rumänien, NPL Management Limited, Vereinigtes Königreich, Institut Za Nuklearne Nauke Vinca, Serbien, Österreichische Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit GmbH, Österreich, Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej, Polen, Instituto de Engenharia de Sistemas e Computadores, Tecnologia e Ciência, Portugal, Joint Research Centre – European Commission, Lunds Universitet, Schweden, Státní ústav jaderné, chemické a biologické ochrany, Tschechische Republik, Universidad De Cantabria, Spain, University of Bristol, Vereinigtes Königreich, Universitat Politècnica de Catalunya, Spanien, Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines, Frankreich, IDEAS Hungary Betéti Társaság, Ungarn.

Unterstützt wird das Konsortium von den folgenden Kooperationspartnern: Universität Heidelberg, Deutschland, ANSTO, Australia's Nuclear Science and Technology Organisation, Australien, ERA, European Radon Association, Europa, Met Office, Vereinigtes Königreich, University of Novi Sad, Serbien, Politecnico di Milano, Italien,

University of Córdoba, Spanien, EURADOS e.V. Europa, Universität Siegen, Deutschland, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Frankreich, ARPA Piemonte, Italien, ARPA Valle d'Aosta, Italien.

Dabei reichen das Interesse und die Unterstützung des Projektes über Europa weit hinaus: So kommen die Mitglieder des Stakeholder-Komitees von vier verschiedenen Kontinenten.

Die Autoren bedanken sich bei den Projektpartnern und den Kooperationspartner von „traceRadon“ sowie allen Institutionen, die das Projekt mit Empfehlungen unterstützt haben. Ein großer Dank geht an die beteiligten Beschäftigten für die herausfordernde Arbeit. Ein weiterer Dank geht an EURAMET e.V., die Europäische Vereinigung nationaler Metrologieinstitute, die mit dem Rahmenprogramm EMPIR ein solches Projekt überhaupt erst möglich gemacht haben.

Literatur

- [1] [Chambers 2021] S. D. Chambers, V. Morosh, A. D. Griffiths, A. G. Williams, S. Röttger, A. Röttger, *Field testing a portable two-filter dual-flow-loop ^{222}Rn detector*, Virtual poster and vPICO presentation, EGU General Assembly 2021, Vienna, Austria 19–30 April 2021, Session GI6.2, abstract ID EGU21-196 (2021), <https://doi.org/10.5194/egusphere-egu21-196>
- [2] [Darby 2005] S. Darby, D. Hill, A. Auvinen, J. M. Barros-Dios, H. Baysson, F. Bochicchio, H. Deo, R. Falk, F. Forastiere, M. Hakama, I. Heid, L. Kreienbrock, M. Kreuzer, F. Lagarde, I. Mäkeläinen, C. Muirhead, W. Oberaigner, G. Pershagen, A. Ruano-Ravina, E. Ruosteenoja, A. S. Rosario, M. Tirmarche, L. Tomásek, E. Whitley, H. E. Wichmann, R. Doll, *Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European case-control studies*, *British Med. J.* **330**, 223–226 (2005), <https://doi.org/10.1136/bmj.38308.477650.63>
- [3] [Cuculeanu 2011] V. Cuculeanu, F. Simion, E. Simion, A. Geicu, *Dynamics, deterministic nature and correlations of outdoor ^{222}Rn and ^{220}Rn progeny concentrations measured at Bacau, Romania* (2011), doi:10.1016/j.jenvrad.2011.04.005
- [4] [Dombrowski 2018] H. Dombrowski, N. A. Cornejo Díaz, M. P. Toni, M. Mihelic, A. Röttger, *Comparison of the uncertainties of several European low-dose calibration facilities*. *Journal of Instrumentation* **13** (2018), <https://doi.org/10.1088/1748-0221/13/04/P04023>
- [5] [EC-JRC 2020] European Commission, Joint Research Centre, <https://remon.jrc.ec.europa.eu/About/Atlas-of-Natural-Radiation/Digital-Atlas>, auch als: G. Cinelli, M. De Cort, T. Tollefsen: *European Atlas of Natural Radiation*, Publication Office of the European Union: Luxembourg; ISBN 978-92-76-08259-0 (2020), <https://doi.org/doi:10.2760/520053>
- [6] [EURATOM 2013] Rat der europäischen Kommission (EK), *Richtlinie 2013/59/EURATOM des Rates vom 5. Dezember 2013 zur Festlegung grundlegender Sicherheitsnormen für den Schutz vor den Gefahren einer Exposition gegenüber ionisierender Strahlung und zur Aufhebung der Richtlinien 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom und 2003/122/Euratom*. Amtsblatt der Europäischen Union, L 13/1
- [7] [Kessler 2017] P. Kessler, A. Camp, H. Dombrowski, S. Neumaier, A. Röttger, A. Vargas, *Influence of radon progeny on dose rate measurements studied at PTB's radon reference chamber*, *Radiation Protection Dosimetry* **177**(4), 407–414. (2017), <https://doi.org/10.1093/rpd/ncx059>
- [8] [Kessler 2018] P. Kessler, B. Behnke, H. Dombrowski, S. Neumaier, A. Röttger, R. Dabrowski, *Novel spectrometers for environmental dose rate monitoring*, *Journal of Environmental Radioactivity* **187**, p.115–121, <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.01.020>
- [9] [Linzmaier 2013] D. Linzmaier A. Röttger, *Development of a low-level radon reference atmosphere*, *Applied Radiation and Isotopes* **81**, 208–211 (2013), <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.032>
- [10] [Mertes 2020] F. Mertes, S. Röttger, A. Röttger, *A new primary emanation standard for Radon-222*, *Applied Radiation and Isotopes* **156**, p.108928 (2020), ISSN 0969-8043, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.108928>
- [11] [Mertes 2021a, in print] F. Mertes, S. Röttger, A. Röttger, *Development of ^{222}Rn emanation sources with integrated, quasi 2p active monitoring*, *International Journal of Environmental Research and Public Health* (2021)
- [12] [Mertes 2021b, in print] F. Mertes, N. Kneip, R. Heinke, R. Kieck, D. Studer, F. Weber, S. Röttger, A. Röttger, K. Wendt, C. Walther, *Ion implantation of ^{226}Ra for a primary ^{222}Rn emanation standard*, *Applied Radiation and Isotopes*
- [13] [MetroRADON 2017] MetroRADON – Metrology for Radon Monitoring: Workpackage 4 – Radon priority areas (RPAs) and the development of the concept of a “Geogenic Radon Hazard Index” (RHI), <http://www.metroradon.eu/>

- [14] [Picolo, J.L., 1996] J. L. Picolo, *Absolute measurement of radon-222 activity*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Volume 369, Issues 2–3, Pages 452–457 (1996), ISSN 0168-9002, [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(96\)80029-5](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)80029-5)
- [15] [Röttger 2011] A. Röttger, A. Honig, *Recent developments in radon metrology: New aspects in the calibration of radon, thoron and progeny devices*, Radiation Protection Dosimetry **145**, 2–3, p. 260–266, <https://doi.org/10.1093/rpd/ncr047>
- [16] [Röttger 2013] A. Röttger, D. Linzmaier, A. Honig, *Calibration of commercial radon and thoron monitors at stable activity concentrations*, Applied radiation and isotopes **87**, 44–47 (2013), <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.111>
- [17] [Röttger 2019] A. Röttger, P. Kessler, *Uncertainties and characteristic limits of counting and spectrometric dosimetry systems*, Journal of Environmental Radioactivity **205–206**, p. 48–54 (2019), ISSN 0265-931X. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.04.012>
- [18] [Röttger 2021] A. Röttger et al: *New metrology for radon at the environmental level*, Meas. Sci. Technol. **32**, 124008 (2021), <https://doi.org/10.1088/1361-6501/ac298d>
- [19] [StrlSchG 2017] Gesetz zur Neuordnung des Rechts zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung vom 27. Juni 2017, Bundesgesetzblatt Jahrgang 2017 Teil I Nr. 42, ausgegeben zu Bonn am 3. Juli 2017
- [20] [UNSCEAR, 2008] UNSCEAR 2008 REPORT Vol. I, *Sources and effects of ionizing radiation*, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2008 Report to the General Assembly, with scientific annexes
- [21] [WHO, 2009] World Health Organization, 2009, *WHO handbook on indoor radon: a public health perspective*, ISBN: 9789241547673

pH-Messungen zur Quantifizierung der Versauerung von Meerwasser

F. Bastkowski¹, S. Seitz²

¹ Dr. Frank Bastkowski, Arbeitsgruppe 3.13 *Elektrochemie*, E-Mail: frank.bastkowski@ptb.de

² Dr.-Ing. Steffen Seitz, Arbeitsgruppe 3.13 *Elektrochemie*, E-Mail: steffen.seitz@ptb.de

1. Einleitung

Der pH-Wert ist ein wichtiger physikochemischer Parameter in vielen Bereichen, wie z. B. in der Biochemie, Industrie, Landwirtschaft und Medizin. Steigende anthropogene CO₂-Emissionen führen zu einem stetigen Anstieg des CO₂-Partialdrucks in der Atmosphäre. CO₂ löst sich in Wasser unter Bildung von Kohlensäure, wodurch der pH-Wert jährlich um ca. 0,002 absinkt, wie man in Abbildung 1 sehen kann. Es zeigt sehr anschaulich die Korrelation zwischen dem Anstieg des CO₂-Partialdruckes in der Atmosphäre und im Meerwasser und dem Absinken des Meerwasser-pH-Wertes im Nordpazifik. Die vermeintlich geringe Änderung des pH-Wertes von 0.002/a hat langfristig jedoch ernste Konsequenzen für marines Leben, insbesondere für Korallen, Muscheln, aber auch für Algen und Fische und für die Biodiversität [1].

Exakte und rückgeführte Messungen des pH-Wertes sind daher von besonderem Interesse, um Änderungen des Meerwasser-pH über einen langen Zeitraum zuverlässig zu verfolgen und damit die Vergleichbarkeit von Messergebnissen weltweit sicherzustellen.

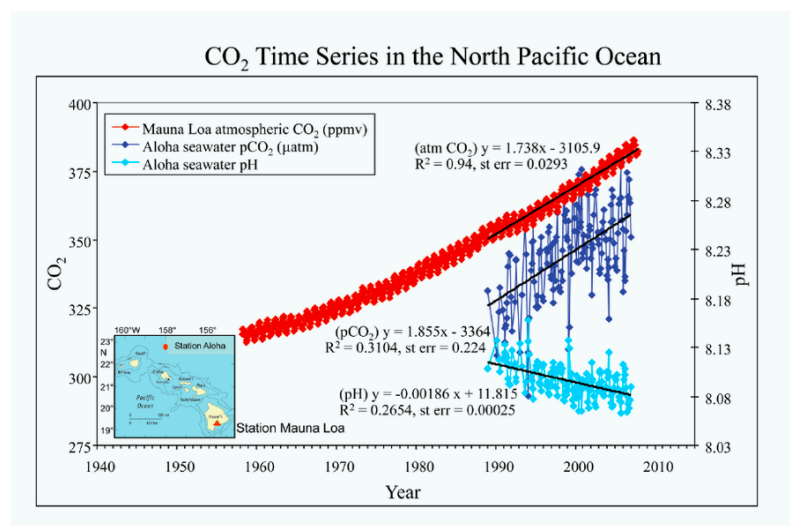
Heutzutage wird der pH-Wert in Meerwasser überwiegend mithilfe eines optischen Verfahrens gemessen, das in der Norm ISO 18191:2015 beschrieben wird [2]. Das Messverfahren benötigt einen hinsichtlich seiner physikochemischen Eigenschaften aufwendig charakterisierten Farbstoff. Der charakterisierte Farbstoff stellt das Bindeglied dar, um die Rückführung des mit der optischen Methode gemessenen pH-Wertes auf primäre Standards sicherzustellen. Derzeit gibt es jedoch kein akzeptiertes Modell der Messung, welches für den zumeist relevanten Temperatur- und Salinitätsbereich gültig ist und die Rückführung des optisch gemessenen pH-Wertes realisiert. Zudem fehlt es an zertifizierten Referenzmaterialien,

sodass die Bewertung und Validierung der in der ISO 18191:2015 beschriebenen Methode nicht durchgeführt werden kann.

In einem Kooperationsprojekt der Arbeitsgruppe 3.13 *Elektrochemie* mit dem Institut für Ostseeforschung in Warnemünde (IOW) wurden pH-Werte von künstlichen Meerwasserstandards im Salinitätsbereich 5–20, wie er für die Ostsee typisch ist, an der PTB primär vermessen. Am IOW wurden dieselben Lösungen dann verwendet, um den Farbstoff für optische pH-Messungen zu charakterisieren. Diese Arbeiten bilden seitdem die Grundlage für rückgeführte, optische pH-Messungen von Meerwasser im Salinitätsbereich 5–20 [3,4].

Das europäische Metrologie-Forschungsprojekt SAPHTIES aus dem normativen Call des EMPIR-Programms will die Rückführung des optisch gemessenen pH-Wertes auf etablierte pH-Primärnormale im Temperaturbereich 0–30 °C und Salinität 5–40 realisieren, um die Bereiche abzudecken, die für die Ozeanografie am relevantesten sind. Die Norm 18191:2015 soll entsprechend

Abbildung 1: Zeitlicher Verlauf des CO₂-Partialdruckes in der Atmosphäre und im Meerwasser sowie des pH-Wertes im nordpazifischen Ozean [1]



überarbeitet werden. Das Projekt ist 2021 mit Beteiligung von NMIs und ozeanografischen Instituten gestartet. Die Arbeitsgruppe 3.13 *Elektrochemie* leitet darin das Arbeitspaket 1, welches das Modell der Rückführung des optisch gemessenen pH-Wertes aufstellt.

Der vorliegende Artikel gibt einen Überblick über den wissenschaftlichen Stand zu den Arbeiten der Rückführung des optisch gemessenen pH.

2. Messung des pH-Werts von Meerwasser auf der pH_T-Skala

2.1 Definition des pH_T-Werts

Es existieren verschiedene pH-Skalen, welche alle einem individuellen Zweck dienen. Die für Meerwassermessungen am häufigsten verwendete pH-Skala ist die pH_T-Skala (pH auf der sog. „total scale“). „Total“ bezeichnet hierbei die Tatsache, dass neben den freien Wasserstoffionen auch Hydrogensulfationen für die Übertragung von Wasserstoffionen sorgen, was vor allem in Meerwasser von Bedeutung ist. Der pH_T-Wert wird durch folgende Gleichung definiert [5]:

$$pH_T = -\lg\left[m_{H^+}\left(1 + \frac{m_{SO_4^{2-}}^T}{K_{m,HSO_4^-}}\right)\right] \approx -\lg[m_{H^+} + m_{HSO_4^-}] \quad (1)$$

m_{H^+} ist hierbei die Molalität der freien Protonen, $m_{SO_4^{2-}}^T$ ist die Gesamtsulfatmolalität (Summe aus Sulfat und Hydrogensulfat). K_{m,HSO_4^-} ist die Dissoziationskonstante des Hydrogensulfations. Das Argument des Logarithmus in der exakten Definition des pH_T entspricht näherungsweise der Summe der Molalitäten aus freien Protonen und Hydrogensulfationen (rechte Seite der Gleichung).

In der Metrologie erfolgt die Realisierung des pH-Werts durch eine primäre, elektrochemische Messprozedur (Harned-Zelle) [6]. In der ozeanographischen Praxis wird der pH_T allerdings spektrophotometrisch unter Verwendung eines photoaktiven Farbstoffes gemessen. Um die Rückführung des spektrophotometrisch gemessenen pH_T-Wertes auf die primäre elektrochemische Messprozedur zu erreichen, werden primäre, künstliche Meerwasserstandards zusammen mit einem hochreinen, charakterisierten, photoaktiven Farbstoff benötigt, deren elektrochemische Potentiale mit der Harned-Zelle gemessen werden.

2.2 Rückführung des spektrophotometrischen pH_T-Wertes

2.2.1 Rückführung auf das primäre, elektrochemische pH_T-Messverfahren

Der bei der spektrophotometrischen Messung des

pH_T-Wertes eingesetzte Farbstoff ist eine Säure, die je nach pH_T-Wert der Messlösung mehr oder weniger stark unter Freisetzung von Wasserstoffionen dissoziiert. Die dabei entstehenden Spezies sind photoaktiv und liefern im Absorptionsspektrum charakteristische Absorptionsbanden bei bestimmten Wellenlängen (vgl. Abbildung 2).

Das Verhältnis der beiden dissoziierten Spezies ist einerseits von den zur Verfügung stehenden Wasserstoffionen, und damit dem pH_T-Wert der Lösung, und andererseits von der Dissoziationskonstante des Farbstoffes abhängig. Diese Abhängigkeit wird durch die sog. Henderson-Hasselbalch-Lambert-Beer-Gleichung ausgedrückt:

$$pH_T = -\log k_2^T e_2 + \log \frac{R - e_1}{1 - R \frac{e_3}{e_2}} \quad (2)$$

k_2^T : Dissoziationskonstante des Farbstoffes
 R: Verhältnis der Absorptionen bei den Wellenlängenmaxima der dissoziierten Spezies
 e_1, e_2, e_3 : Verhältnisse der Extinktionskoeffizienten der dissoziierten Spezies

Für die Rückführung des pH_T-Wertes können verschiedene Standards zum Einsatz kommen. Entweder werden künstliche Meerwasserstandards verwendet, die die Zusammensetzung des natürlichen Meerwassers mehr oder weniger stark vereinfacht abbilden und zusätzlich mit TRIS (Tris(hydroxymethyl)aminomethan) gepuffert sind [7,8,9]. Oder es kann auch natürliches Meerwasser direkt als Standard zum Einsatz kommen, das als sog. Standardmeerwasser aufbereitet wird und kommerziell erworben werden kann [10]. In der Praxis hat sich allerdings die Verwendung künstlicher Meerwasserstandards durchgesetzt.

Die Rückführung erfolgt in zwei Schritten. Im ersten Schritt werden die elektrischen Potentiale eines Meerwasserstandards mithilfe der primären, elektrochemischen Messprozedur und der pH_T-Wert analog zum herkömmlich gemessenen pH-Wert [11] gemessen. Die Definitionsgleichung (1) des pH_T-Wertes kann über die Nernstgleichung mit den gemessenen Potentialen verknüpft werden, sodass der pH_T Wert durch diese ausgedrückt werden kann [5]:

$$pH_T = \frac{E - E_m^*}{\left(\frac{RT}{F}\right)} + \lg\left(\frac{m_{Cl^-}}{m^0}\right) - \lg \omega_{H_2O} \quad (3)$$

E : das gemessene Potential der Harned-Zelle gefüllt mit dem künstlichen Meerwasserstandard
 E_m^* : das Standardpotential der mit künstlichen Meerwasserstandard gefüllten Harned-Zelle
 R: molare Gaskonstante
 T: Temperatur (K)
 F: Faraday-Konstante
 m_{Cl^-} : Chlorid-Molalität des künstlichen Meerwasserstandards

m^0 : Einheits-Molalität ($1 \text{ mol} \cdot \text{kg}^{-1}$)
 $\omega_{\text{H}_2\text{O}}$: spezifischer Wasseranteil des künstlichen Meerwasserstandards

Die primäre, elektrochemische Messapparatur zur Messung des pH_T -Wertes ist in Abbildung 3 gezeigt:

In einem zweiten Schritt wird dem Meerwasserstandard eine kleine Menge des photoaktiven Farbstoffes zugesetzt und das Stoffmengenverhältnis der dissoziierten Spezies des Farbstoffes aus den optisch gemessenen Absorptionsspektren ermittelt. Durch Gleichsetzen von Gleichung 2 und 3 für Messungen bei unterschiedlichen Salinitäten bei verschiedenen Temperaturen wird die Dissoziationskonstante des Farbstoffes als Funktion der Temperatur und der Salinität empirisch ermittelt. Schließlich kann der pH_T -Wert einer unbekanntem Meerwasserprobe mit Gleichung 2 und der charakterisierten Dissoziationskonstanten durch spektrophotometrische Messungen bestimmt werden.

Metrologisch gesehen ermöglicht das beschriebene Rückführungskonzept eine Rückführung auf das SI, weil nur SI-rückgeführte Messgrößen enthalten sind. Dabei müsste jede Farbstoffcharge in Kombination mit einem Meerwasserstandard entsprechend dem oben genannten Verfahren neu charakterisiert und mit einem entsprechenden Zertifikat versehen werden. Die Messungen sind jedoch zu umfangreich für eine regelmäßige Charakterisierung. In jedem Fall ist es praktikabler und es sind geringere Messunsicherheiten zu erwarten, wenn die Dissoziationskonstante eines bestimmten Typs Farbstoff in Kombination mit einem definierten Meerwasserstandard einmalig charakterisiert wird. Dafür müssen Kriterien für deren Reproduzierbarkeit festgelegt und die zugehörige Messunsicherheit quantifiziert werden, wobei insbesondere die Reinheit des Farbstoffes eine wichtige Rolle spielt. Letztlich zieht man sich auf diese Weise auf ein vereinbartes Rückführungsverfahren zurück und büßt zugunsten der Praktikabilität und einer geringeren Messunsicherheit die SI-Rückführung ein. Bei der Rückführung ist außerdem zu berücksichtigen, dass die Herleitung von Gleichung (3) aus Gleichung (1) Schritte beinhaltet, die mit Unsicherheiten behaftet sind. Diese sind für eine vollständige Rückführung in zukünftigen Arbeiten zu quantifizieren.

2.2.2 Forschungsprojekt mit dem Institut für Ostseeforschung Warnemünde (IOW) zur Rückführung des pH_T -Wertes im Salinitätsbereich 5-20

In einem Kooperationsprojekt mit dem Institut für Ostseeforschung in Warnemünde (IOW) wurden in der PTB pH_T -Werte von künstlichen Meerwasserstandards im Temperaturbereich

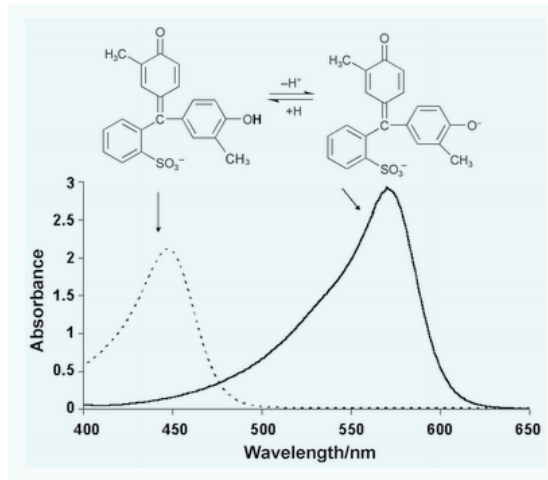


Abbildung 2: Photospektrum der beiden dissoziierten Spezies des Farbstoffes *m*-Kresolpurpur

5 - 45 °C und im Salinitätsbereich 5–20, wie er für Ostseewasser typisch ist, mithilfe des primären, elektrochemischen Messverfahrens gemessen. Am IOW wurden die spektrophotometrischen Messungen durchgeführt. Diese Messungen liefern die Grundlage für die oben beschriebene Rückführung von spektrophotometrisch gemessenen pH_T -Werten für diesen Temperatur- und Salinitätsbereich [3, 4].

Die künstlichen Meerwasserstandards wurden basierend auf der aus der Literatur bekannten Rezeptur [10] aus Salzen synthetisiert, die im Meerwasser am häufigsten vorkommen und die vorab auf ihre Reinheit und Spurenverunreinigungen untersucht wurden. Zur Stabilisierung des pH_T -Wertes kam der für künstliche Meerwasserstandards etablierte Puffer TRIS (Tris(hydroxymethyl)aminomethan) zum Einsatz. Speziell für den unteren Salinitätsbereich wurde

Abbildung 3: Messapparatur der PTB zur elektrochemischen Messung des pH_T -Wertes. Die Apparatur enthält die mit den künstlichen Meerwasserproben gefüllten Harned-Zellen, deren Potentiale mithilfe eines Digitalmultimeters unter temperierten Bedingungen gemessen werden.



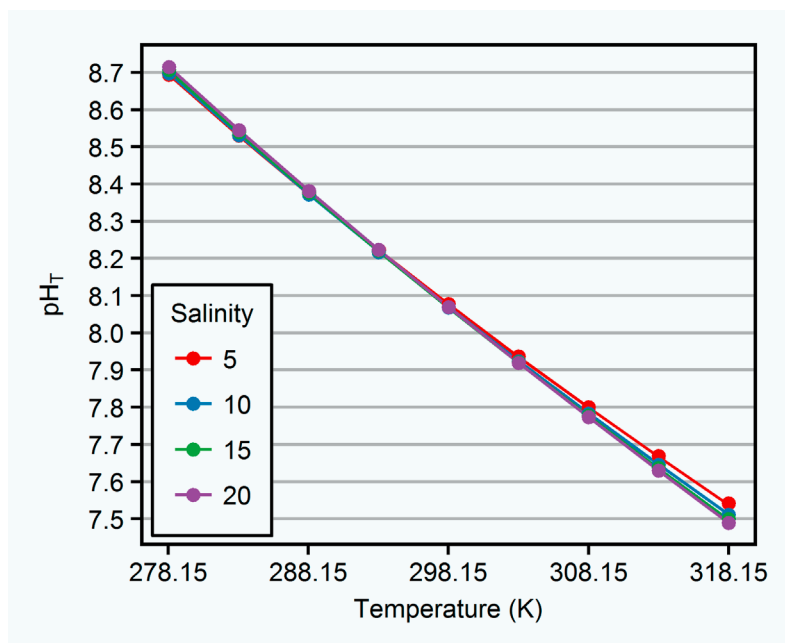


Abbildung 4: Abhängigkeit des pH_T -Wertes von der Temperatur und der Salinität

die Rezeptur dahingehend angepasst, dass im Gegensatz zur Rezeptur aus der Literatur nicht allein Natriumchlorid durch den Puffer ersetzt wurde, um die Ionenstärke konstant zu halten, sondern alle Komponenten. So wurde sichergestellt, dass es bei geringen Salinitäten nicht zu einer starken Verzerrung der Ionenverhältnisse kommt, die eventuell einen Einfluss auf den pH_T -Wert haben. Mit den so hergestellten künstlichen Meerwasserstandards wurden an der in Bild 3 gezeigten Apparatur die pH_T -Werte nach Gleichung 3 bei den Salinitäten 5, 10, 15 und 20 im oben genannten Temperaturbereich in 5 °C-Schritten gemessen. Dieselben Messlösungen wurden mit kleinen Mengen des photoaktiven Farbstoffes meta-Kresolpurpur versetzt, um die optischen Eigenschaften des Farbstoffes in Abhängigkeit der Salinität und der Temperatur zu untersuchen. Die Untersuchungen an der PTB und am IOW ermöglichten damit die Bestimmung der Dissoziationskonstante k_2^T des Farbstoffes nach Gleichung 2. Die Untersuchungen erfolgten bei drei verschiedenen Pufferkonzentrationen, um eine Extrapolation auf eine pufferfreie Lösung zu ermöglichen, die am ehesten der Zusammensetzung des natürlichen Meerwassers entspricht. Die für den Salinitätsbereich 5–20 erhaltenen Messwerte wurden schließlich mit den Literaturwerten des Salinitätsbereiches 20–40 zu einem gemeinsamen Datensatz kombiniert, um rückgeführte pH_T -Messungen von Meerwasser im gesamten Salinitätsbereich 5–40 zu ermöglichen. Bild 4 zeigt die ermittelten pH_T -Werte in Abhängigkeit der Temperatur für verschiedene Salinitäten. Die Abhängigkeit von der Temperatur ist deutlich ausgeprägter als die von der Salinität.

Während für die primär gemessenen pH_T -Werte Messunsicherheitsbudgets aufgestellt wurden,

konnten diese für die spektrophotometrischen Untersuchungen allerdings im Rahmen der Projektlaufzeit nicht aufgestellt werden. Auch steht ein Unsicherheitsbudget für die Messfunktion $\text{pH}_T(k_2^T(S, T), R)$ noch aus, die für die Messung der pH_T -Werte unbekannter Proben in Abhängigkeit von deren Temperatur und Salinität benötigt wird. Schließlich wäre es wünschenswert, die Rückführung für den gesamten Salinitätsbereich auf Basis einer einheitlichen Rezeptur für primäre pH_T -Meerwasserstandards zu etablieren. Diese Ziele werden im EMPIR-Projekt SApHTIES verfolgt.

2.2.3 Europäisch-metrologisches Forschungsprojekt SApHTIES

Das europäische Metrologie-Forschungsprojekt SApHTIES widmet sich der Etablierung der Rückführung des pH_T -Wertes auf das primäre, elektrochemische Messverfahren und untersucht die Rückführung auf das SI im Salinitätsbereich 5–40 zwischen 0–30 °C [12]. Geeignete Meerwasserstandards sollen charakterisiert und die Unsicherheit der zugeordneten pH_T -Werte quantifiziert werden, auch hinsichtlich der Homogenität und Stabilität der Standards. Insbesondere sollen dabei die Defizite der derzeitigen pH_T -Norm ISO 18191:2015 eliminiert werden. Projektpartner sind fünf europäische metrologische Institute (LNE, DFM, IPQ, PTB, SYKE) sowie zwei Meeresforschungsinstitute (Geomar, Ifremer). Die Projektlaufzeit beträgt 3 Jahre.

Eine wichtige Voraussetzung für die Rückführung des pH_T -Wertes auf eine vereinbarte Messprozedur wie die in 2.2.1 beschriebene ist die Charakterisierung des spektrophotometrischen Farbstoffes hinsichtlich seiner Reinheit. Es konnte gezeigt werden, dass Farbstoffe, die aus unterschiedlichen Chargen stammen bzw. unterschiedliche Reinheiten aufweisen, zu signifikant unterschiedlichen pH_T -Werten führen [13]. Für hochgenaue pH_T -Messungen werden daher aufwendig aufgereinigte Farbstoffe verwendet. Die Charakterisierung des Farbstoffes und insbesondere seiner Reinheit ist daher ein wichtiger Bestandteil des Projekts.

Für rückgeführte Messungen von natürlichen Proben gilt es außerdem zu beachten, dass die chemische Zusammensetzung der natürlichen Proben sich von der künstlichen Meerwasserstandards unterscheidet, zum einen aufgrund der Puffersubstanz TRIS, zum anderen aufgrund der vereinfachten ionischen Zusammensetzung in den künstlichen Meerwasserstandards. Die Auswirkungen dieser Unterschiede auf den pH_T -Wert müssen für eine Rückführung berücksichtigt werden. Jedoch steht eine Quantifizierung dieser Effekte bislang aus. Dieses Ziel soll ebenfalls im Rahmen des europäischen Metrologie-Forschungsprojekts

erreicht werden.

Wie am Ende von 2.2.1 beschrieben, ist zusätzlich noch die Unsicherheit der Beziehung zwischen Gleichungen (1) und (3) für eine vollständige Rückführung zu quantifizieren. Diesbezüglich werden erste Untersuchungen im Rahmen des Projekts durchgeführt, die aber nicht abschließend sein werden. In diesem Zusammenhang kooperiert die AG 3.13 auch mit der SCOR working group 145 [14], die sich u. a. mit der Quantifizierung der Aktivitätskoeffizienten wichtiger Ionen in Meerwasser und deren Messunsicherheit befasst. Diese werden benötigt, um den Zusammenhang zwischen der Aktivität der Wasserstoffionen und deren Konzentration in Meerwasser mathematisch zu formulieren, und adressieren damit auch die Unsicherheit von Gleichung 3.

3. Zusammenfassung

Optisch gemessene pH_T -Werte sind für Meerwassermessungen ein wichtiger physikochemischer Parameter, welcher u. a. verwendet wird, um die Ozeanversauerung zu quantifizieren und zu überwachen. Für die weltweite metrologische Vergleichbarkeit von pH_T -Werten über lange Zeiträume muss die Rückführung der pH_T -Werte auf international anerkannte Normale sichergestellt werden. Dies wird durch die Charakterisierung der pH_T -Werte von definierten, künstlichen Meerwasserstandards gewährleistet, denen ein hochreiner, photoaktiver Farbstoff zugesetzt wird und die an einen primären, elektrochemischen pH_T -Messplatz angebunden sind. In einem ersten, nationalen Projekt hat die PTB zusammen mit dem IOW die Rückführung für Salinitäten etabliert, wie sie für die Ostsee typisch sind. Im EMPIR-Projekt SAPHTIES werden diese Arbeiten nun auf den gesamten Salinitätsbereich ausgedehnt und die Rückführung vereinheitlicht. Dies erfordert auch eine Überarbeitung der aktuellen pH_T -Norm ISO 18191:2015

4. Literatur

- [1] R. A. Feely, S. C. Doney et al, *Present conditions and future changes in a high- CO_2 world*, *Oceanography* **22**, pp.3–47 (2009)
- [2] *Water quality – Determination of pH_t in sea water – Method using the indicator dye m-cresol purple*, International Standard ISO 18191:2015(E)
- [3] J. D. Müller, F. Bastkowski, B. Sander, S. Seitz, D. R. Turner, A. G. Dickson, G. Rehder, *Metrology for pH Measurements in brackish waters – Part 1: Extending electrochemical pH_T measurements of TRIS buffers to salinities 5–20*, *Front. Mar. Sci.* **5**, 176 pp.1–12 (2018)
- [4] J. D. Müller, G. Rehder, *Metrology for pH measurements in brackish waters – Part 2: Experimental characterization of purified meta-cresol purple for spectrophotometric pH_T measurements*, *Front. Mar. Sci.* **5**, 177, pp. 1–9 (2018)
- [5] L. G. Sillén, *Equilibrium concepts in natural water systems*, in: R. F. Gould: editor. *Adv. Chem. Ser.* **67**, 45 (1967)
- [6] T. A. DelValls, A. G. Dickson, *The pH of buffers based on 2-amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol ('tris') in synthetic sea water*, *Deep Sea Res. Part I Oceanogr. Res. Pap.* **1**, 45, 1541–1554 (1998)
- [7] I. Hansson, *A new set of pH scales and standard buffers for sea water*. *Deep-Sea Research* **20**, 479–491 (1973)
- [8] R. W. Ramette, C. H. Culberson, R. G. Bates, *Acid-base properties of tris(hydroxymethyl) aminomethane (tris) buffers in seawater from 5 to 40 °C*, *Analytical Chemistry* **49**, 867–870 (1977)
- [9] A. G. Dickson, *pH buffers for sea water media based on the total hydrogen ion concentration scale*. *Deep-Sea Research I*, **40**, 107–118 (1993)
- [10] F. J. Millero, R. Feistel, D. G. Wright, T. J. McDougall, *The composition of standard seawater and the definition of the reference-composition salinity scale*, *Deep-Sea Research I*, **55**, pp 50–72 (2008)
- [11] R. P. Buck, S. Rondinini, A. K. Covington, F. G. K. Baucke, C. M. A. Brett, M. F. Camoes et al, *Measurement of pH. Definition, standards and procedures*, IUPAC recommendations, *Pure Appl. Chem.* **74**, pp 2169–2200 (2002)
- [12] https://www.euramet.org/research-innovation/search-research-projects/details/project/metrology-for-standardised-seawater-pht-measurements-in-support-of-international-and-european-climat/?tx_eurametctcp_project%5Baction%5D=show&tx_eurametctcp_project%5Bcontroller%5D=Project&cHash=58007d57cda027ca0745ca569f197bf6
- [13] W. Yao, X. Liu, R. H. Byrne, *Impurities in indicators used for spectrophotometric seawater pH measurements: assessment and remedies*, *Mar. Chem.* **107**(2), pp.167–172 (2007)
- [14] <http://marchemspec.org/>

Developing a black carbon reference material and a standard for light absorption by aerosol particles

J. Saturno¹, A. Nowak²

¹ Dr. Jorge Saturno, Arbeitsgruppe 3.43 Aerosol- und Partikelmesstechnik, E-Mail: jorge.saturno@ptb.de

² Dr. Andreas Nowak, Arbeitsgruppe 3.43 Aerosol- und Partikelmesstechnik, E-Mail: andreas.nowak@ptb.de

Introduction

Black carbon (BC), also known as soot aerosol particles, is produced by incomplete combustion of fossil fuels or biomass and is emitted from multiple sources (see Fig. 1). The nature of emitted soot particles depends greatly on the combustion conditions. Fuel-rich combustion leads to high amounts of BC and organic carbon (OC), whereas a fuel-lean combustion produces less particulate matter but BC rich soot aerosol.

Combustion generated aerosol particles have strong climate impacts by directly absorbing incoming solar radiation from the ultraviolet (UV) up to the infrared (IR) region, and by different indirect and semi-direct effects related to cloud radiative effects. Due to their radiative effects, BC particles itself are identified as one of the most significant causes of global warming (IPCC 2021, see Fig. 2).

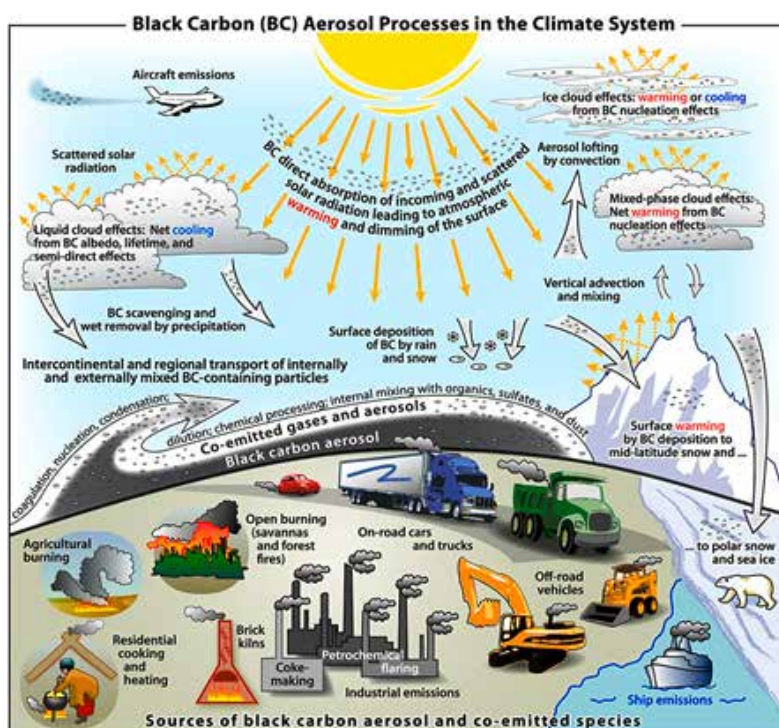
In general, soot aerosols are considered harmful, affecting human health in multiple ways and are identified as carcinogenic (WHO 2012).

The determination of BC aerosol particles by measuring the light attenuation (ATN) of particle contaminants applied to a filter is a common technique for monitoring soot concentrations, the instrument based on this principle is called *aethalometer*. Conceptually, there are two steps to these measurements. First, the determination of the optical absorption of the particles (absorption

coefficient, σ_{ap}), derived from attenuation. The absorption determination requires different assumptions due to cross interferences between the scattering of light by particles and the filter substrate. And second, the conversion of particle absorption into particulate mass (M_{BC}) assuming a mass absorption cross-section (α_{abs}), see Figure 3.

For accurate estimation of absorption coefficients and their spectral dependency, Aethalometer measurements rely on several correction procedures. A compilation of different correction schemes can be found in Collaud Coen et al. (2010). The first systematic correction scheme that deals with the different artifacts affecting Aethalometer measurements was proposed by Weingartner et al. (2003). This correction scheme uses a comparison with an

Figure 1: Different sources of black carbon or soot aerosols in terms of processing and transporting mechanism in the climate system (Source: Bond et al., 2013)



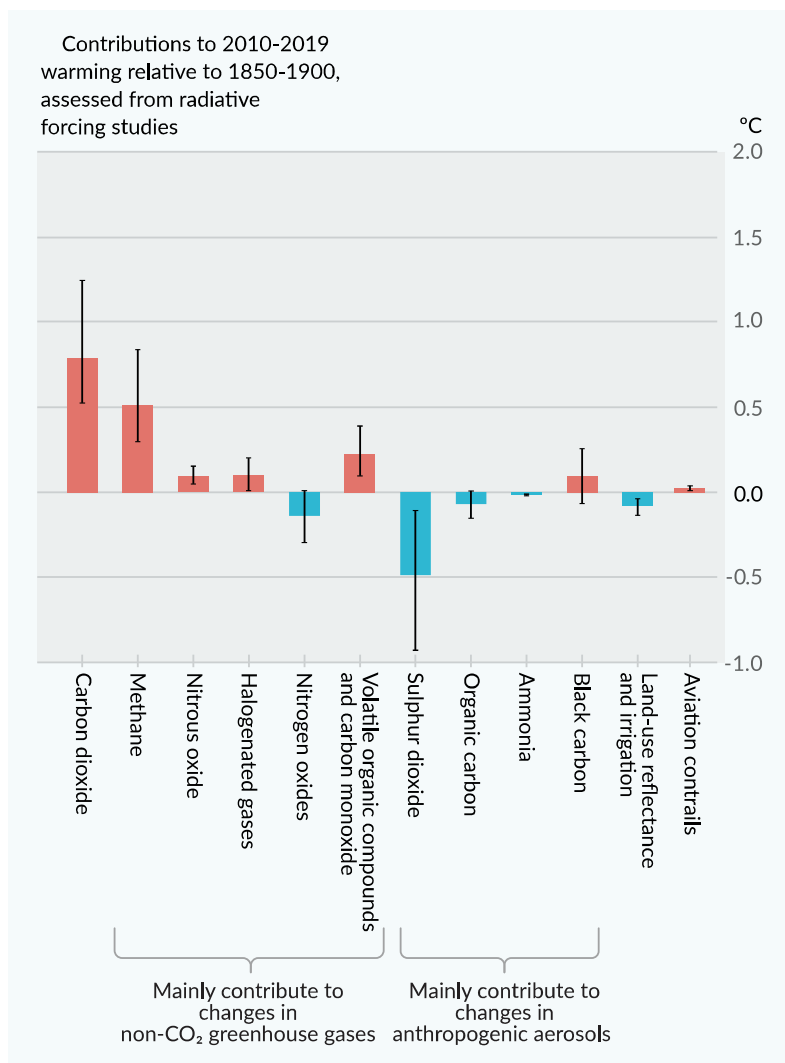


Figure 2: Historical contributions to global warming by emissions. IPCC report, 2021 (IPCC AR6 SPM). Black carbon aerosol was identified as a significant contributor to global warming.

indirect light absorption measurement (extinction minus scattering) to estimate a multiple scattering compensation. In addition, a filter-loading correction was estimated by empirically calculating the “shadowing factor”. This correction consists of the following empirical equation that converts attenuation coefficients, σ_{ATN} , into absorption coefficients, σ_{ap} ,

$$\sigma_{ap} = \frac{\sigma_{ATN}}{C \cdot R(ATN)} \tag{1}$$

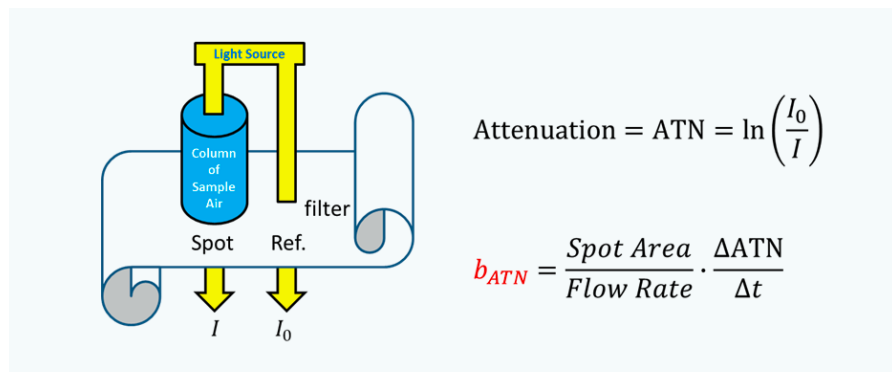
where C accounts for multiple scattering effects on the filter, due to: a) scattering by the filter fibers and b) scattering by aerosol particles embedded on the filter. The factor R(ATN) accounts for the filter-loading effect.

The composition and optical properties of soot-like particles change significantly when combustion sources change, for example, from coal combustion to vehicle exhaust gases or due to atmospheric aging processes such as the formation of light scattering coatings, which has a significant influence on the relationship between absorption and black carbon mass concentration.

Absorption photometers are integrated in many European air quality monitoring networks (e. g. ACTRIS, GUAN, UK Black Carbon Network, Atmo-France). A robust calibration technique and a traceability to SI are still open questions for filter-based absorption photometers (Moosmüller, 2009). The need for reference materials for the calibration of these filter-based techniques has been discussed elsewhere (Baumgardner et al., 2012).

Determination and uncertainty sources

Even though BC measurements based on light-absorption have been implemented in air quality networks since decades, there is no reference standard material available. Additionally, there are different systematic errors associated to the use of filter-based techniques that need to be quantified in a regular basis, like the presence of non-BC particles, and particle-filter interactions. Moreover, upon atmospheric aging, BC particles are coated with other materials and therefore, properties like α_{abs} and its wavelength dependence are modified upon atmospheric transport. These are challenges that need to be addressed when trying to establish a BC reference material for light-absorption techniques. It is important to point out that the measurand remains the same, i.e. M_{BC} is not transformed during atmospheric transport, but the presence of non-BC particles in the aerosol mixture biases the light-absorption coefficient measurement and this source of systematic error is time dependent and usually unknown.



$$\text{Attenuation} = ATN = \ln\left(\frac{I_0}{I}\right)$$

$$b_{ATN} = \frac{\text{Spot Area}}{\text{Flow Rate}} \cdot \frac{\Delta ATN}{\Delta t}$$

Figure 3: Working principle of a filter-based Aethalometer (source: personal communication Ernest Weingartner, FHNW, Switzerland)

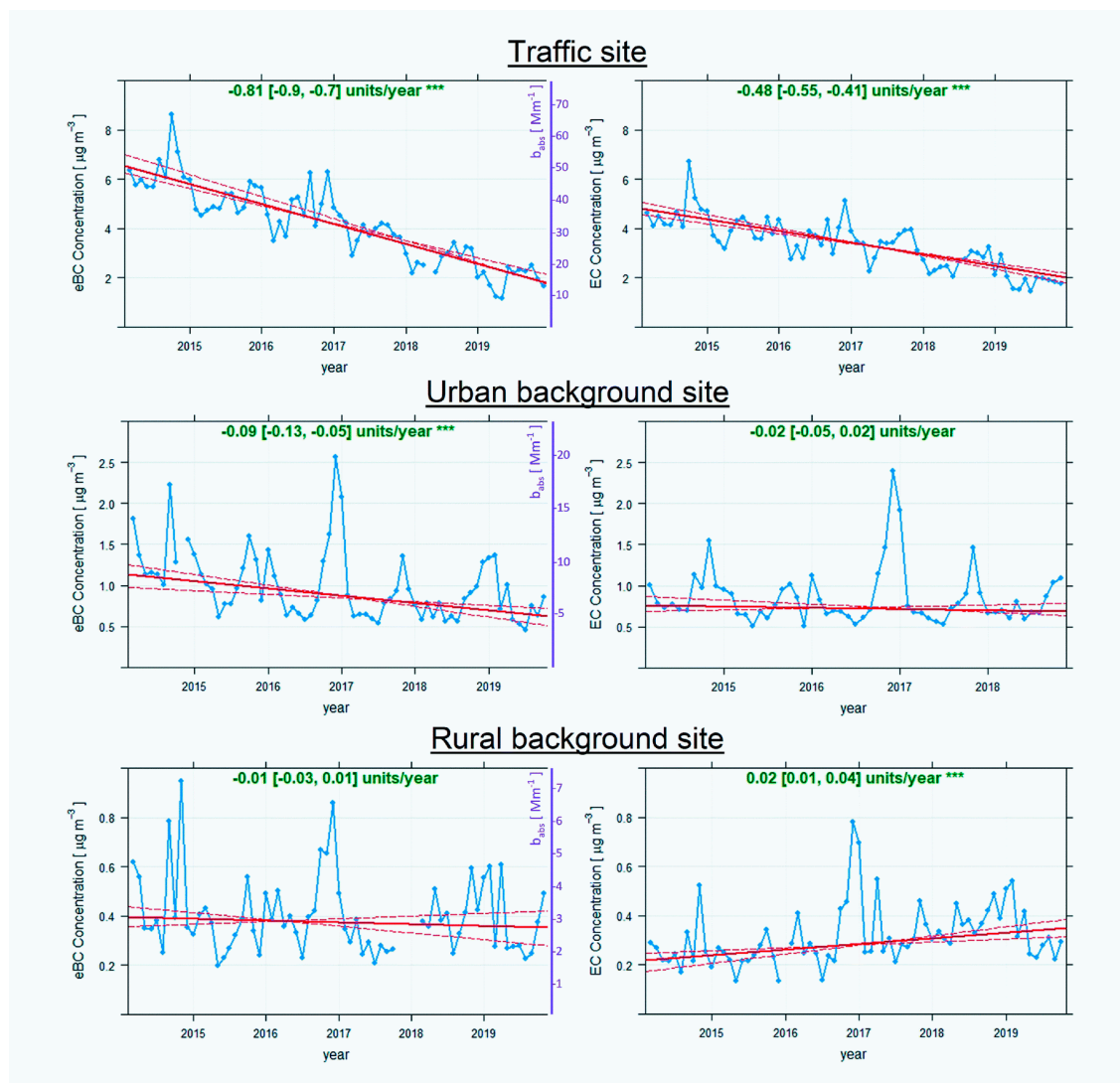


Figure 4: Equivalent BC mass concentration and absorption coefficient (left) and elemental carbon mass concentration (right) measured at three different sites in UK (Ciupek et al. 2021)

The calculation of the particle absorption coefficient via the difference of extinction and scattering is possible with simple means. However, the description of measurement uncertainties is more complicated due to the non-independent calibrations of the instruments. The full data processing chain and scheme for achieving a measurement uncertainty is shown in Figure 5.

Cooperation

The PTB has been involved in the [EMPIR 16ENV02 BC](#) project together with other European partners like NPL, METAS, LNE, TROPOS, PSI, NRC Demokritos, Fachhochschule Nordwestschweiz. The aim of the project was to investigate a pathway to make aerosol absorption measurements traceable to the SI. In order to achieve this goal, the consortium decided to provide two different BC reference materials; a fresh-like and an aged-like soot aerosol. In this newsletter, we focus on the fresh soot approach and provide results of a comparison of different soot or soot-like generators that can be

implemented as lab- or field-based calibration reference materials for measurement devices which are used for exhaust emission studies like the micro soot sensor (MSS) or the photoacoustic extinctionsmeter (PAX). The PAX 870 was identified as secondary standard by the EMPIR BC consortium and is regularly used by PTB to optimize the soot aerosol output for different soot generators in calibration facility for particle number devices.

The different generators were compared based on the criteria defined in the project for fresh-like soot aerosol: absorption Ångström coefficient (\hat{a}_{abs}) of 0.9–1.1, single scattering albedo (ω_0) of 0.05–0.20, and particle count mean diameter (CMD) of 50–100 nm. Table 1 shows a list of the commercially available soot-like aerosol generators that were available in the project.

As part of PTB tasks in the project, a fresh soot particle generator was characterized. The main goal was to set an aerosol source as reproducible and stable as possible for calibration using near black carbon aerosol in terms of optical properties. Figure 6 shows the single scattering albedo (SSA)

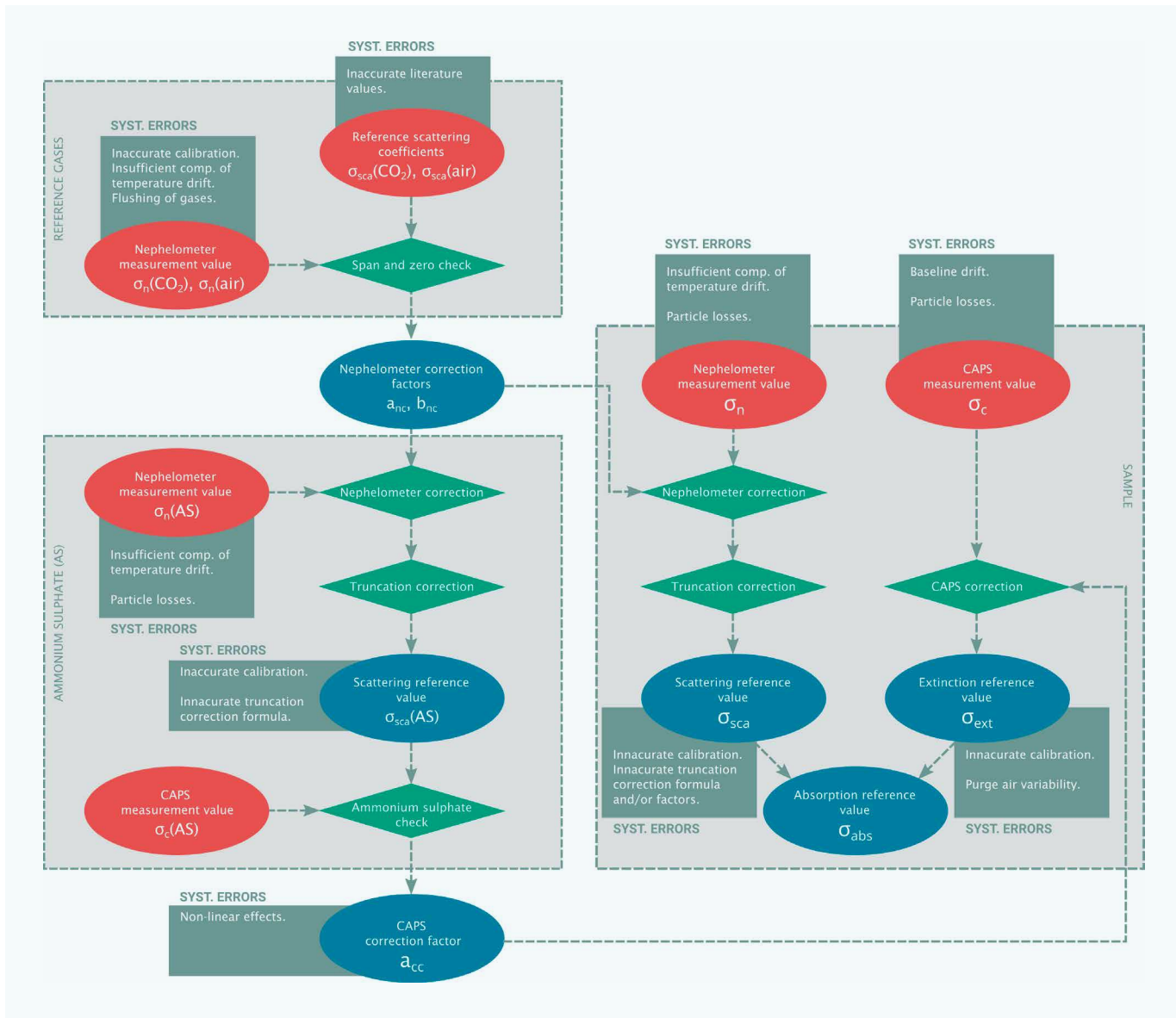


Figure 5: Calibration chain and error propagation of a setup for measuring the particle absorption coefficient by the difference of particle extinction and scattering coefficients. (Adapted from deliverable D2, EM-PIR BC, originally by Thomas Mueller and Sascha Pfeifer, TROPOS, Leipzig)

values measured by the PAX at 870 nm wavelength for different particle diameters and using different fuel-to-air combustion mixtures to produce the soot aerosol particles. By means of a catalytic stripper (CS), used as volatile particle removal (VPR) conditioner, the particles were stripped of the organic fraction, and therefore became “darker” (lower SSA). The CS was used at two different temperature settings: 150 °C and 350 °C (see color scale in Fig. 6). This way, the optimal combustion mixtures and particle size conditions were chosen for subsequent calibration purposes and measurement intercomparisons organized in the frame of the EMPIR BC project.

The detection limit for the absorption coefficient for PAX was calculated to be 0.33 Mm^{-1} . It should be noted that this value is based on the instrumental noise and does not include uncertainties of baseline measurements. The expected relative error cannot be estimated but was determined by intercomparison measurement

a primary method, the CAPS_{pmex}-Aurora4000. The deviation between the system was found to be about 10 %. With the available measurements, it cannot be estimated whether there are dependencies on the single scattering albedo or on the level of the absorption coefficient.

Conclusion and outlook

Establishing a reference material for aerosol light absorption requires defining criteria like the desired (i) particle diameter, (ii) particle morphology, and (iii) optical properties, and how these properties are going to be made traceable to a primary standard. Although traceability is necessary for all the mentioned properties, once the reference material is sufficiently characterized, the traceability of absorption photometers should be provided by comparison to reference absorption measurements. It has been shown that a reliable and traceable system for measuring

Generator type	Generator model	Manufacturer
Diffusion flame burner	miniCAST 5203C	Jing Ltd.
	miniCAST 5303C	Jing Ltd.
	Miniature inverted soot generator (MISG)	Argonaut
Premixed flame burner	miniCAST 5201BC	Jing Ltd.
Spark generator	Spark generator	Fasmatech
	GFG 1000	PALAS GmbH
Nebulized aerosol	Fullerene-soot	Several providers
	Aquadag	Several providers

Table 1: List of soot-like particle generators used in the EMPIR 16ENV02 BC project

aerosol absorption consists of the extinction minus scattering (EMS) method.

The effort to implement an SI-traceable calibration for aerosol light absorption requires establishing clear protocols for nephelometer and CAPS calibration and the reduction of systematic errors like baseline drift, inaccuracy of reported literature values for the span gases, truncation errors and particle losses.

A step beyond would be converting light absorption coefficients to BC mass concentration values, using a constant mass absorption cross-section (MAC_{BC}). This constant depends on the chemical composition and the density of

the material as well as on other morphological properties like the fractal dimension. The traceability of this constant will therefore depend on how well the aerosol source can be characterized using different techniques, like electron microscopy, aerodynamic particle sizing, and different chemical composition measurements. Those measurements will also need to be proven on a periodic basis in order to assess the stability of the aerosol source. These methods are, however, still novel and not adequately standardized.

Further activities are planned to be addressed by the potential research topic *Standardisation*

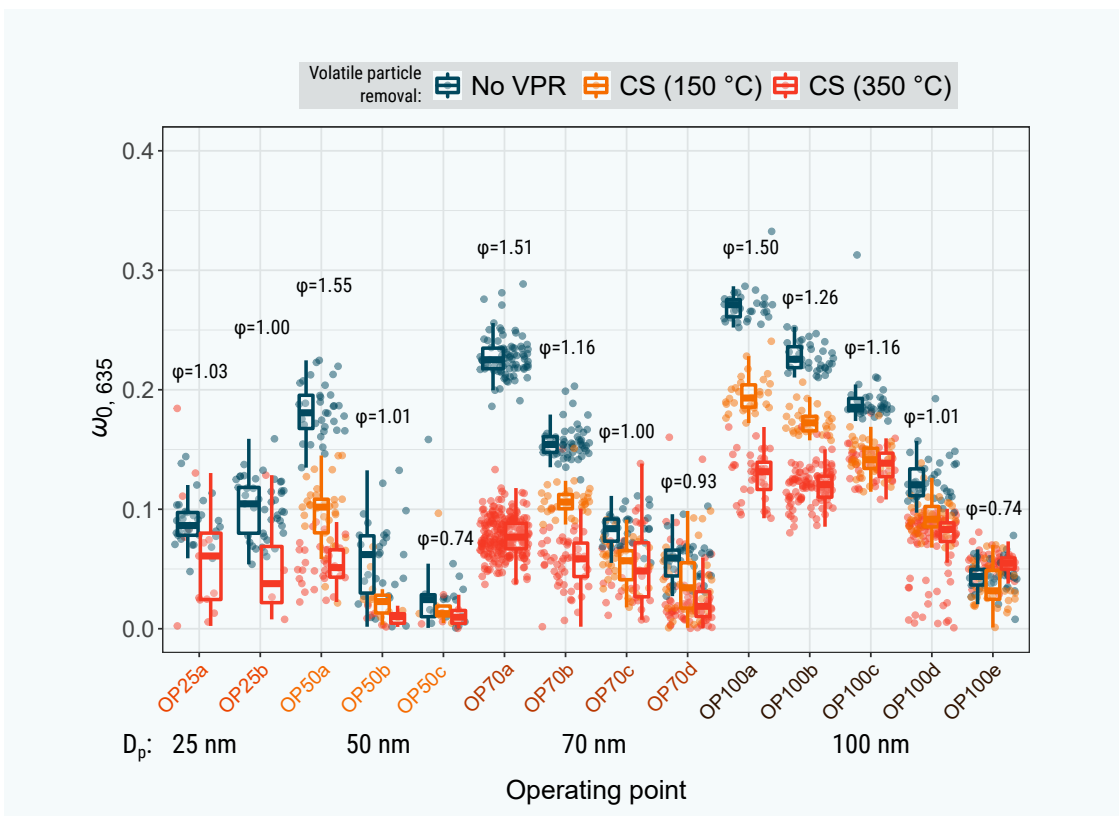


Figure 6: Single scattering albedo (SSA) at 870 nm wavelength measured by PAX vs. particle count mean diameter measured by a differential electrical mobility classifier (DEMC). The SSA is a measure for the blackness of soot at a certain wavelength, $SSA = 0$, means totally black aerosol, $SSA = 1$ means absolutely white aerosol.

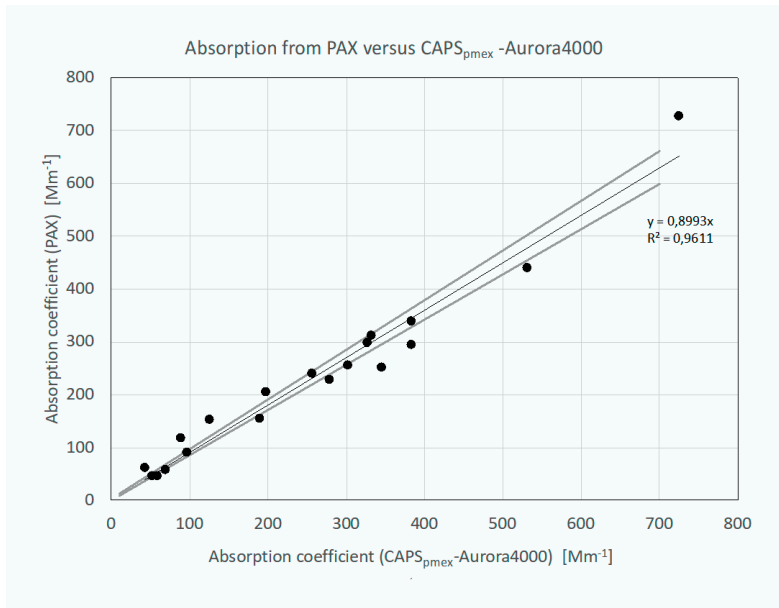


Figure 7: Absorption from PAX versus CAPS_{pmex}-Aurora4000. The points represent single experiments with different particle size and organic to elemental carbon ratio. The black line is the linear regression line for both methods and the grey lines indicates the $\pm 5\%$ uncertainty range of CAPS_{pmex}-Aurora4000.

of Black Carbon aerosol metrics for air quality and climate modelling, which aims to provide the necessary standardization frame for BC mass and aerosol light absorption measurement. In parallel the topic will be addressed in the European Metrology Network (EMN) for [Climate and Ocean Observation](#) as a one of essential climate variables (ECVs) to continue the collaboration between stakeholders and NMIs in this field.

Acknowledgement

The authors would like to acknowledge the fruitful collaboration within the 16ENV02 “Black Carbon” project of the European Union through the European Metrology Programme for Innovation and Research (EMPIR).

References

- [1] T.C. Bond, S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Kärcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schultz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, ... C. S. Zender, *Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment*, Journal of Geophysical Research: Atmospheres **118**, 11, 5380–5552, American Geophysical Union (AGU) (2013), <https://doi.org/10.1002/jgrd.50171>
- [2] D. Baumgardner, O. Popovicheva, J. Allan, V. Bernardoni, J. Cao, F. Cavalli, J. Cozic, E. Diapouli, K. Eleftheriadis, P. J. Genberg, C. Gonzalez, M. Gysel, A. John, T. W. Kirchstetter, T. A. J. Kuhlbusch, M. Laborde, D. Lack, T. Müller, R. Niessner, ... M. Viana, *Soot reference materials for instrument calibration and intercomparisons: a workshop summary with recommendations*, Atmospheric Measurement Techniques **5**, 8, pp.1869–1887 (2012). Copernicus GmbH, <https://doi.org/10.5194/amt-5-1869-2012>
- [3] M. Collaud Coen, E. Weingartner, A. Apituley, D. Ceburnis, R. Fierz-Schmidhauser, H. Flentje, J. S. Henzing, S.G. Jennings, M. Moerman, A. Petzold, O. Schmid, U. Baltensperger, *Minimizing light absorption measurement artifacts of the aethalometer: evaluation of five correction algorithms*, Atmospheric Measurement Techniques **3**, 2, pp.457–474 (2010), Copernicus GmbH, <https://doi.org/10.5194/amt-3-457-2010>
- [4] IPCC, 2021: *Climate change 2021: The physical science Basis. Contribution of Working Group I to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change* [V. Masson-Delmotte, P. Zhai, A. Pirani, S. L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M. I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J. B. R. Matthews, T. K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, B. Zhou (eds.)], Cambridge University Press, in press
- [5] H. Moosmüller, R. K. Chakrabarty, W. P. Arnott, *Aerosol light absorption and its measurement: A review*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **110**, 11, pp. 844–878). (2009), Elsevier BV, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.035>
- [6] E. Weingartner, H. Saathoff, M. Schnaiter, N. Streit, B. Bitnar, U. Baltensperger, *Absorption of light by soot particles: determination of the absorption coefficient by means of aethalometers*. Journal of Aerosol Science **34**, 10, pp. 1445–1463 (2003), Elsevier BV, [https://doi.org/10.1016/s0021-8502\(03\)00359-8](https://doi.org/10.1016/s0021-8502(03)00359-8)
- [7] World Health Organization (European Office): *Health effects of black carbon*, WHO, Copenhagen, Denmark, ISBN: 9789289002653 (2012)

 **PTB** mitteilungen

Impressum

Die PTB-Mitteilungen sind metrologisches Fachjournal der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, Braunschweig und Berlin. Als Fachjournal veröffentlichen die PTB-Mitteilungen wissenschaftliche Fachaufsätze zu metrologischen Themen aus den Arbeitsgebieten der PTB. Die PTB-Mitteilungen stehen in einer langen Tradition, die bis zu den Anfängen der Physikalisch-Technischen Reichsanstalt (gegründet 1887) zurückreicht.

Herausgeber

Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB)

ISNI: 0000 0001 2186 1887

Postanschrift:

Postfach 33 45,
38023 Braunschweig

Lieferanschrift:

Bundesallee 100,
38116 Braunschweig

Redaktion/Layout

Presse- und Öffentlichkeitsarbeit, PTB

Dr. Fabian Plag (wissenschaftlicher Redakteur)

Dr. Dr. Jens Simon (verantwortlich)

Sabine Siems (Redaktion / Lektorat)

Sebastian Baumeister / stilsicher.design (Layout / Satz)

Telefon: (05 31) 592-82 02

Telefax: (05 31) 592-30 08

E-Mail: sabine.siems@ptb.de

Erscheinungsweise und Copyright

Die PTB-Mitteilungen erscheinen viermal jährlich. 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

Die fachlichen Aufsätze aus dieser Ausgabe der PTB-Mitteilungen sind auch online verfügbar unter:
doi: 10.7795/310.20220399



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Klimaschutz

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



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Klimaschutz

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



Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Nationales Metrologieinstitut

Bundesallee 100
38116 Braunschweig

Presse- und Öffentlichkeitsarbeit

Telefon: (05 31) 592-82 02
Fax: (05 31) 592-30 08
E-Mail: presse@ptb.de
www.ptb.de