

# Die Geschichte der Spurenmessstelle

Herbert Wershofen\*

## Die Motivation

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

## Die Geräte und Verfahren

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



Bild 1:  
Großflächenfilter im Staubprobensammler der Spurenmessstelle.

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

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



Bild 2:  
Luftstaub-Ascheprobe und Bohrloch-Detektor.

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

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

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



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



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



Bild 5:  
Heutiger Gammaskopogrammetrie-Messraum.

raum, der Platz für 10 Gammaskpektrometer bietet.

Zur Senkung der Eigenaktivität eines Detektorsystems, die im Wesentlichen durch die in seinen Komponenten enthaltenen natürlichen Radionuklide der Zerfallsreihen von Uran und Thorium sowie von K-40 bestimmt wird, hat die PTB in langjähriger enger Zusammenarbeit mit den Herstellern zu Beginn Detektoreigenbauten entwickelt. Für den Bau der Detektorendkappe wurden teilweise Materialien wie Beryllium oder Magnesium eingesetzt. In Zusammenarbeit mit Aluminiumherstellern wurde strahlungsarmes Aluminium gefunden, das heute neben Carbonfasermaterialien im Detektorbau eingesetzt wird. Mittlerweile sind solche „Low-level (LL)-Detektoren“ bei allen Herstellern in unterschiedlichsten Ausführungen erhältlich. Gleichzeitig mit der Verbesserung der Gammaskpektrometer wurden die Staubprobensammler laufend optimiert. Besondere Aufmerksamkeit galt der Erhöhung des Luftdurchsatzes, der schließlich ca. 1000 m<sup>3</sup>/h erreichte. Dabei ist zu bedenken, dass dieser Wert für ein frisch aufgelegtes Filter gilt. Im Verlauf der Probenahme setzt sich das Filter notwendigerweise mit Staub, der ja möglichst vollständig gesammelt werden soll, zu. Daher ist gegen Ende der Probenahme der Volumenstrom deutlich geringer. In seltenen Fällen, wenn der Staubgehalt der Luft sehr hoch ist, kann das Filter sogar verstopfen. Inzwischen sind auch kommerzielle Hochvolumen-Luftstaubsammler verfügbar, deren Luftvolumenstrom je nach Bauart zwischen einigen Hundert bis zu 1000 m<sup>3</sup>/h liegen. Die Staubsammler der PTB (siehe Bild 1 auf Seite 41) werden im Dauerbetrieb mit einem Volumenstrom von 900 m<sup>3</sup>/h betrieben.

### Messziele im Wandel der Zeiten

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

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

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

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

Tabelle 1:

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

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

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

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

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

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

### Zusammenfassung

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

### Literaturverzeichnis

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