

5

SPURENMESSUNG IN DER BODENNAHEN LUFT

J. Bieringer¹, T. Steinkopff², A. Dalheimer², H. Wershofen³, D. Zapata-Garcia³

¹Bundesamt für Strahlenschutz

Leitstelle für die Überwachung der atmosphärischen Radioaktivität (Leitstelle B)

²Deutscher Wetterdienst, Zentrale Offenbach/Main

Leitstelle für Luft und Niederschlag (Leitstelle A)

³Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Leitstelle für Aktivitätsnormale und Radionuklidaten (Leitstelle B)

Eine ausführliche Darstellung der Messergebnisse für die Jahre 2017 bis 2019 ist den Berichten des BMU über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung zu entnehmen [50,51,52].

Spurenmessstelle Freiburg/Schauinsland (BfS)

Edelgase

Bei den im Rahmen der Spurenanalyse durchgeführten Edelgasmessungen werden Luftproben unter anderem auf ihren Gehalt an radioaktivem Xenon und ⁸⁵Kr untersucht. Während ⁸⁵Kr überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt wird, stellt ¹³³Xe mit einer Halbwertszeit von 5,27 Tagen den Hauptbestandteil im bestimmungsgemäßen Betrieb der Edelgasableitungen von Kernkraftwerken und Isotopenproduktionsanlagen dar.

Die beim BfS in Freiburg durchgeführten Messungen des radioaktiven Xenons und Kryptons ergaben im Berichtszeitraum in der Regel keine auffälligen Ergebnisse. Die Messwerte der Aktivitätskonzentrationen von ¹³³Xe lagen - mit Ausnahme der Messwerte nach der Reaktorkatastrophe von Fukushima - zwischen 1 und 100 mBq/m³ Luft. Als Beispiel ist in Abbildung 5.1 die Zeitreihe der Aktivitätskonzentration von ⁸⁵Kr an der Messstation Schauinsland dargestellt. Der Medianwert der ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration an der Messstation Schauinsland lag in den letzten Jahren bei ca. 1,6 Bq/m³. Kurzzeitige Schwankungen im zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen sind auf Emissionen aus den europäischen Wiederaufbereitungsanlagen für Kernbrennstoffe (La Hague/Frankreich und Sellafield/England) zurückzuführen.

Von Zeit zu Zeit werden erhöhte ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentrationen in der bodennahen Luft an einzelnen oder zeitweise auch allen deutschen Sammelstationen beobachtet. Ein Beispiel für erhöhte Messwerte an mehreren deutschen Stationen ist der Probenentnahmezeitraum vom 13.08. bis 20.08.2018, dabei wurde die höchste ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration mit 6,15 Bq/m³ in Trier (DWD) erreicht. Der Jahreshöchstwert in Freiburg betrug

3,65 Bq/m³ in diesem Probenentnahmezeitraum. Diese Beobachtung passt zu den ⁸⁵Kr-Emissionswerten der Wiederaufbereitungsanlage in La Hague, die auf eine hohe Auslastung der Anlage im Juli und August hindeuten.

Unabhängig von den Spurenmessungen des BfS wird im Rahmen der Überwachung der Einhaltung des Kernwaffenteststoppabkommens (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty, CTBT) an der Station Schauinsland des BfS eine Radionuklidmessstation (RN 33) betrieben. Sie ist die einzige derartige Station in Mitteleuropa und beinhaltet automatisch arbeitende Systeme für den nuklidspezifischen Nachweis aerosolpartikelgebundener Radioaktivität sowie für den Nachweis der radioaktiven Xenon-Isotope ¹³⁵Xe, ^{133m}Xe, ¹³³Xe und ^{131m}Xe (SPALAX-System). In den Tagesproben werden mit dem RASA-System typischerweise Nachweisgrenzen von ca. 1,6 µBq/m³ Luft für das aerosolgebundene ¹³⁷Cs erreicht. Für die radioaktiven Xenon-Isotope liegen die Nachweisgrenzen zurzeit bei ca. 0,3 mBq/m³ Luft, bezogen auf ¹³³Xe.

Im Jahr 2018 wurde der bisher verwendete Messcontainer durch ein festes Gebäude ersetzt (Abbildung 5.2), welches das Stationsgebäude auf dem Schauinsland ergänzt. Mit dem neuen Gebäude wurde ein neues RASA-System installiert und das gesamte System im Oktober 2018 nach den Vorgaben der CTBTO re-zertifiziert. Ein Parallelbetrieb beider RASA-Systeme diente der Qualitätssicherung, im Anschluss wurde das alte System deinstalliert und der Container zurückgebaut.

Aerosolpartikelgebundene Radionuklide

Für spurenanalytische Messungen der aerosolgebundenen Radioaktivität werden wöchentlich beaufschlagte Staubfilter verwendet, die zunächst gammaspektrometrisch ausgewertet werden. Hierzu werden an der Messstation auf dem Schauinsland und in Freiburg Hochvolumen-

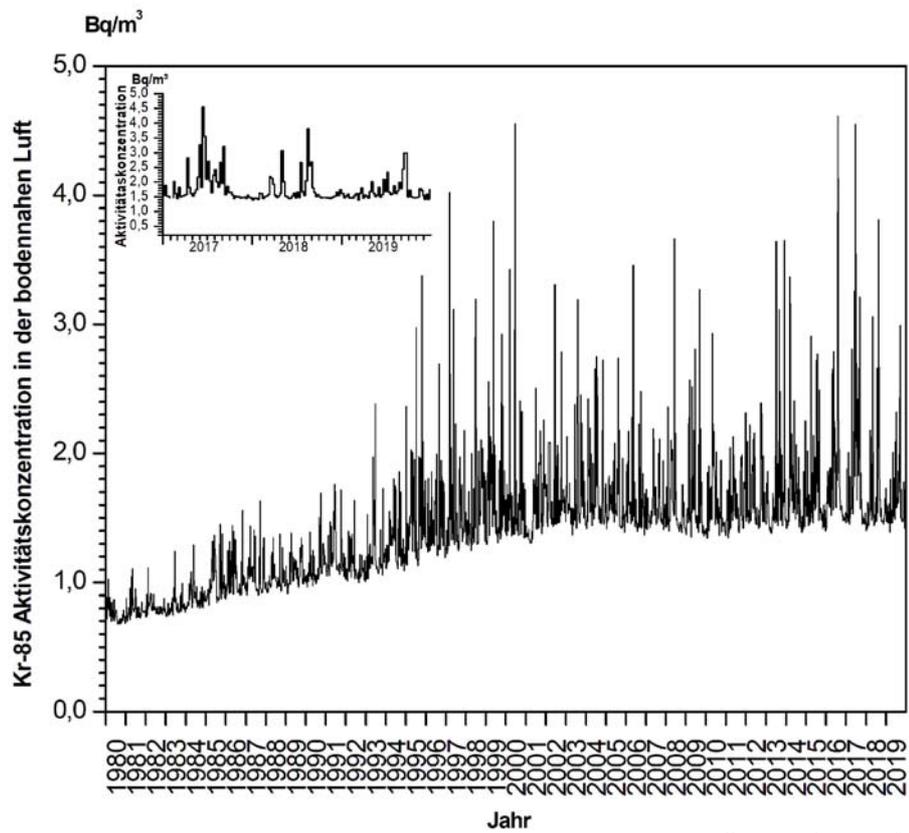


Abbildung 5.1
 Zeitverlauf der ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration an der BfS-Messstation auf dem Schauinsland

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz



Abbildung 5.2
 BfS-Messstation auf dem Schauinsland

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

sammler betrieben. Die Nachweisgrenzen für diese Messungen liegen für ^{137}Cs bei etwa $0,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, im Jahresmittel liegen die Aktivitätskonzentrationen an der Station Schauinsland bei etwa $0,2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und in Freiburg bei $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. In Abbildung 5.3 sind die Zeitreihen der Aktivitätskonzentrationen des anthropogenen ^{137}Cs und des kosmogenen ^7Be an der Station Schauinsland dargestellt; die Messwerte lagen in dem für die Station üblichen Schwankungsbereich.

Die mittlere Aktivitätskonzentration für ^{90}Sr lag bei ca. $0,03 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Im Mai 2018 wurde der höchste Wert im Berichtszeitraum mit $0,47 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ermittelt. Dieser lässt sich durch die wetterbedingte erhöhte Resuspension mit verstärktem Eintrag von Bodestaub in die Atmosphäre erklären, was durch die in diesem Zeitraum ebenfalls erhöhten ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen bestätigt wurde.

Die gemessenen Aktivitätskonzentrationen für die Uranisotope ^{234}U und ^{238}U lagen zwischen $0,013 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,26 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Deren Nachweisgrenzen bewegten sich zwischen $0,0002 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,009 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Das Radionuklid ^{235}U wurde mit Aktivitätskonzentrationen zwischen $0,004 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,02 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ nachgewiesen, die Nachweisgrenzen lagen zwischen $0,0002 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ bis $0,01 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$.

Für ^{238}Pu sowie für $(^{239+240})\text{Pu}$ wurden keine Aktivitätskonzentrationen oberhalb der erreichten Nachweisgrenzen zwischen $0,0002 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,01 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ beobachtet.

Spurenmessstellen Potsdam und Offenbach (DWD)

Gammastrahlende künstliche Radionuklide mit Aktivitätskonzentrationen von nur wenigen Mikrobecquerel pro Kubikmeter Luft ließen sich nur anhand von Schwebstofffiltern messen, die mit Luftdurchsätzen von mehreren $100 \text{m}^3/\text{h}$ über eine Woche beaufschlagt wurden. An den Spurenmessstellen Potsdam und Offenbach sind (im Rahmen der EU-Berichterstattung) Aerosolsammler mit einem Luftdurchsatz von ca. $1000 \text{m}^3/\text{h}$ im Einsatz. Hier reduziert sich die Nachweisgrenze für die gammaspektrometrischen Messungen um den Faktor 10 auf ca. $0,2 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ bezogen auf ^{137}Cs . Die Nachweisgrenze für ^{90}Sr lag bei $0,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und für $(^{239+240})\text{Pu}$ bei $0,05 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$.

Tatsächliche Messwerte für ^{137}Cs , ^{234}U und ^{238}U sind in der Regel auf resuspendierten Feinstaub zurückzuführen, der abhängig von meteorologischen Bedingungen atmosphärisch verfrachtet

wird. Für die Spurenmessstellen Potsdam und Offenbach werden exemplarisch für die Jahre 2017, 2018 und 2019 die Ergebnisse der Messungen von ^7Be , ^{40}K , ^{137}Cs , ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U graphisch dargestellt (Abbildungen 5.4 und 5.5). Die normalerweise auftretende typische Erhöhung der ^7Be -Aktivitätskonzentration im Frühjahr und Sommer tritt auch in den Jahren 2017, 2018 und 2019 schwach ausgeprägt auf.

Spurenmessstelle Braunschweig (PTB)

Auch in den Jahren 2017 bis einschließlich 2019 wurde neben den üblichen Schwankungen der regelmäßig messbaren Radionuklide wiederholt ein Anstieg der Aktivitätskonzentration des natürlichen Radionuklids Blei-210 (^{210}Pb) beobachtet. Die Jahresmittelwerte der in Wochenproben gemessenen Aktivitätskonzentration lagen im Bereich von $285 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (2019) bis $374 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (2018). Die Maximalwerte innerhalb der wöchentlichen Messreihen lagen zwischen $862 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (2019) und $1351 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (2017). Aktivitätskonzentrationen in dieser Größe werden oft bei Inversionswetterlagen erreicht. Dann erhöhen sich auch oft die Aktivitätskonzentration von ^{40}K und des an Bodensaub gebundenen ^{137}Cs , das aus bekannten Freisetzungen wie dem Kernwaffen-Fallout oder dem Kernkraftwerk-Unfall in Tschernobyl stammt. Auch aus der Verbrennung von Holz, das mit ^{137}Cs aus Tschernobyl belastet ist, sind Beiträge denkbar. Die beobachteten Minima der Aktivitätskonzentration von ^{210}Pb sind meist niederschlagsbedingt und betragen im Berichtszeitraum nur $65 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (2019) bis ca. $100 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (2017 und 2018). ^{210}Pb kommt nicht nur in Bodensaub vor, sondern z. B. auch in Flugaschen aus Kohlekraftwerken, kohlebefeuchten privaten Heizanlagen, an Stäuben aus der Baustoffindustrie oder in Flugstaub aus der Eisen- und Stahlgewinnung. Radioökologische und dosimetrische Aspekte zur Nutzung natürlich radioaktiver Stoffe sind in [11] beschrieben.

Anfang 2019 wurde das Radiochemielabor der PTB-Spurenmessstelle zur Durchführung umfangreicher Umbau und Sanierungsmaßnahmen außer Betrieb genommen. Daher liegen monatliche Aktivitätskonzentrationen von ^{90}Sr , Uran- und Plutoniumisotopen nur bis Dezember 2018 vor. Die Aktivitätskonzentrationen des ^{90}Sr lagen zwischen $0,017 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,056 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Die erreichten Nachweisgrenzen liegen im Bereich von $0,001 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ bis $0,003 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$.

Die messbaren Aktivitätskonzentrationen von ^{238}Pu lagen im Bereich von $0,00006 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ bis $0,00048 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Für dieses Radionuklid wurden

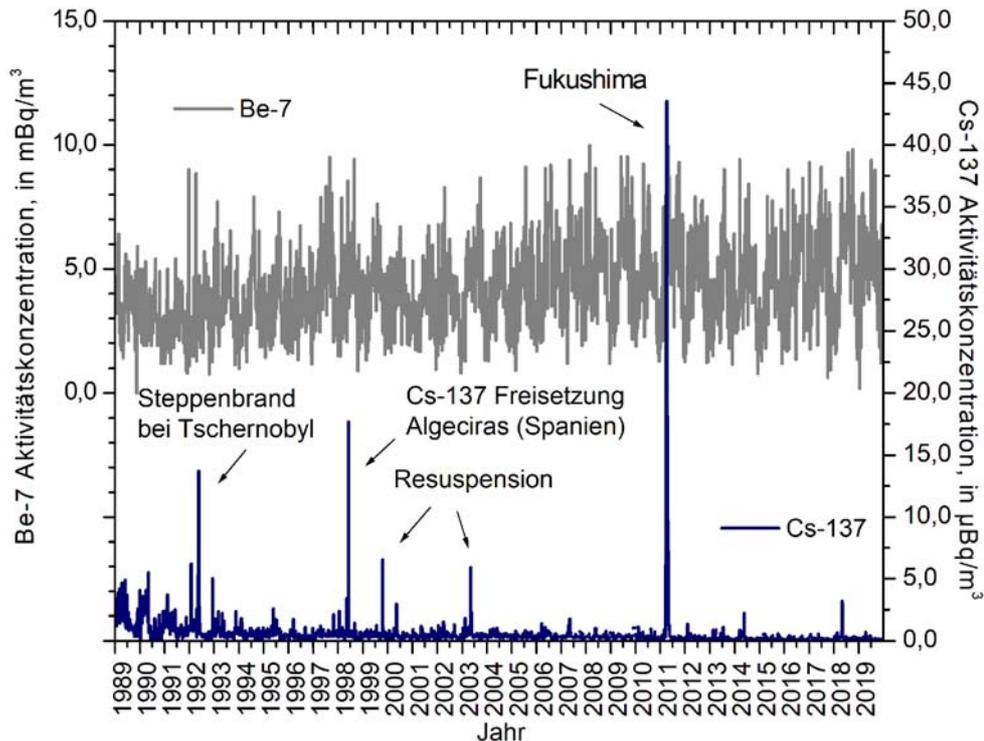


Abbildung 5.3

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Zeitverlauf der Aktivitätskonzentrationen von ^7Be und ^{137}Cs an der BFS-Messstation auf dem Schauinsland

Nachweisgrenzen zwischen $0,00003 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,00021 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ erreicht. Die Messergebnisse für $(^{239}+^{240})\text{Pu}$ bewegten sich 2018 im Bereich zwischen $0,00009 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,00624 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Hier wurden Nachweisgrenzen zwischen $0,00004 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,00026 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ erreicht.

Die Aktivitätskonzentrationen von ^{234}U und ^{238}U lagen im Berichtszeitraum zwischen $0,0414 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,8141 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Deren erreichte Nachweisgrenzen fallen in den Bereich zwischen $0,00010 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,00023 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Das Radionuklid ^{235}U war in Aktivitätskonzentrationen zwischen $0,0019 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und $0,0404 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ messbar. Für die Aktivitätskonzentration dieses Isotops wurden Nachweisgrenzen im Bereich von $0,00004 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ bis $0,000011 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ erreicht. Die gemessenen Aktivitätsverhältnisse $A(^{234}\text{U})/A(\text{U-238})$ und $A(^{235}\text{U})/A(^{238}\text{U})$ liegen unter Berücksichtigung der Messunsicherheiten bei den zu erwartenden natürlichen Verhältnissen.

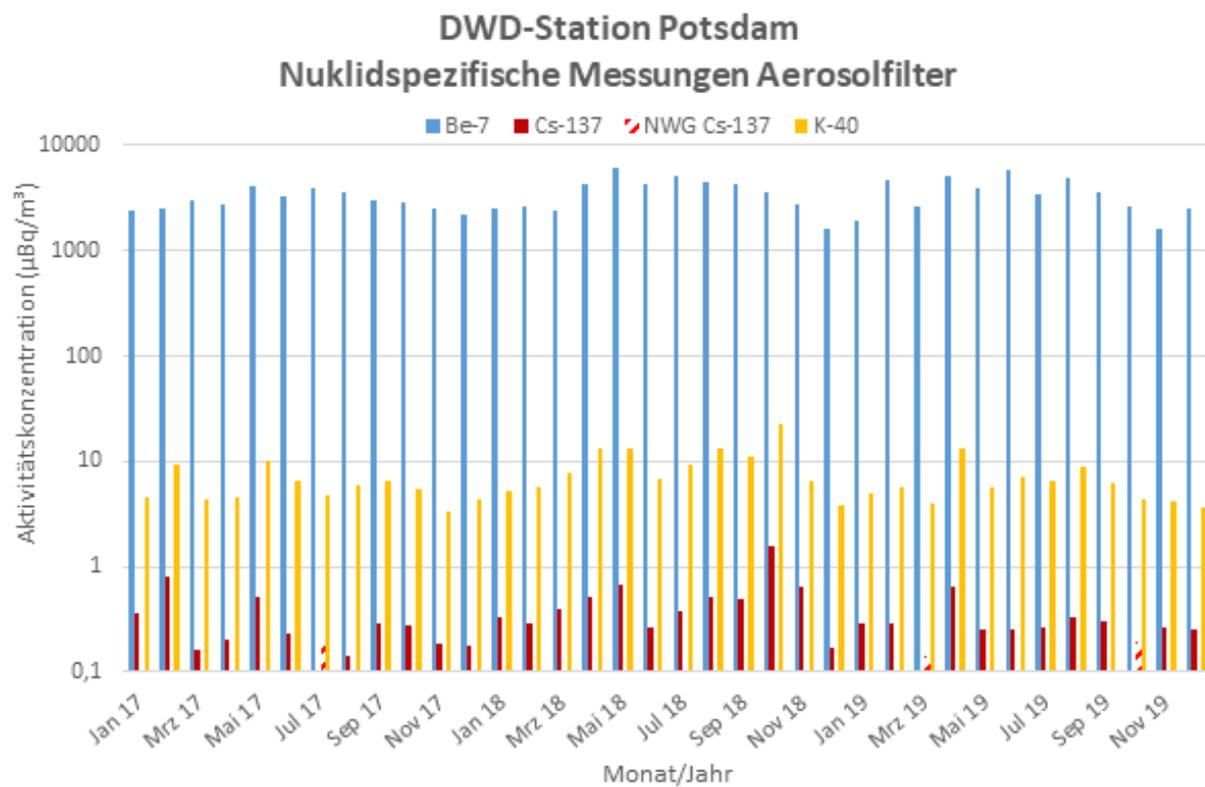
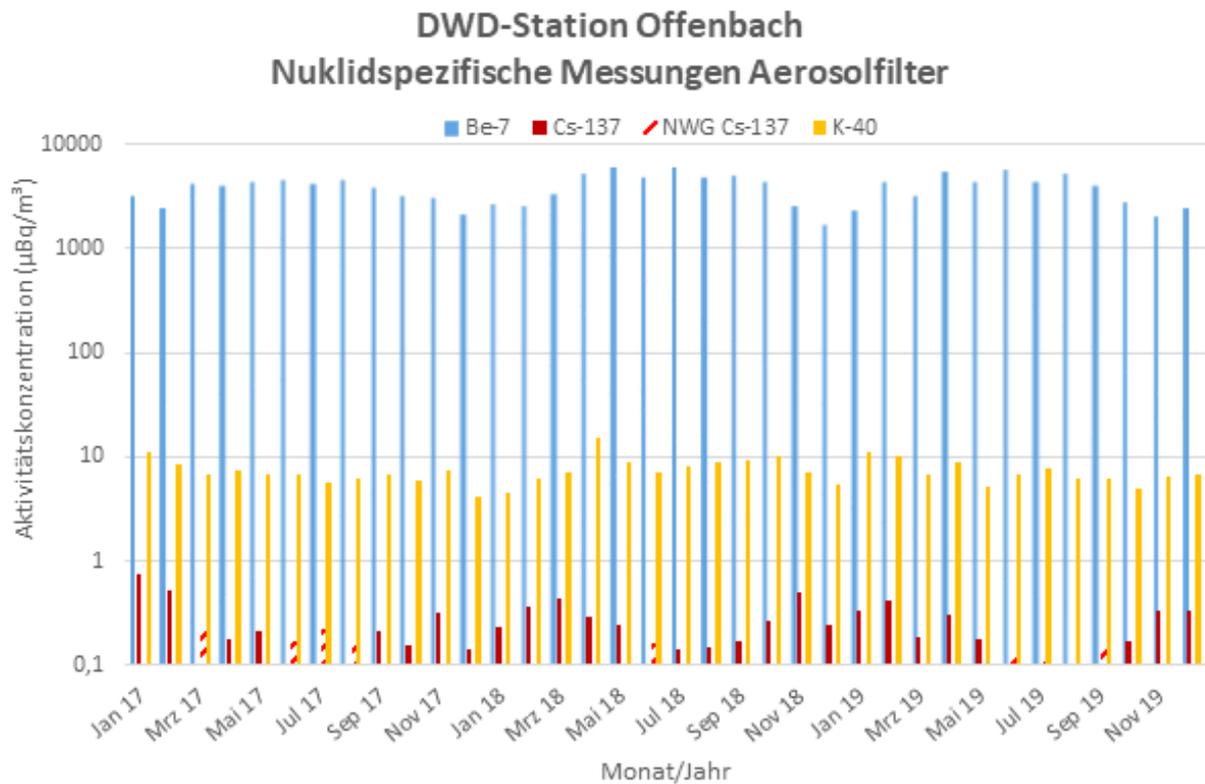
Die im Vergleich zu den Vorjahren deutlich höheren Aktivitätskonzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope sind auf die Trockenheit und die erhöhte Resuspension von Bodenstaub im Sommer des Berichtsjahres zurückzuführen. Der

maximale Staubgehalt in der Luft trat im August auf.

Dagegen verläuft der Pegel der Aktivitätskonzentration des ^{90}Sr im Jahresverlauf gleichmäßiger. Die im Januar und Februar 2018 gemessenen Aktivitätskonzentrationen erscheinen im Vergleich mit denen der Uran- und Plutoniumisotope relativ hoch. Ursachen dafür konnten nicht ermittelt werden. Zur Qualitätssicherung durchgeführte Nulleffekt-Kontrollmessungen sowie radiochemisch bestimmte Blindwerte zeigten keinen Hinweis auf Beiträge aus diesen möglichen Quellen.

Auffällige Beobachtungen im Bereich der Spurenanalyse

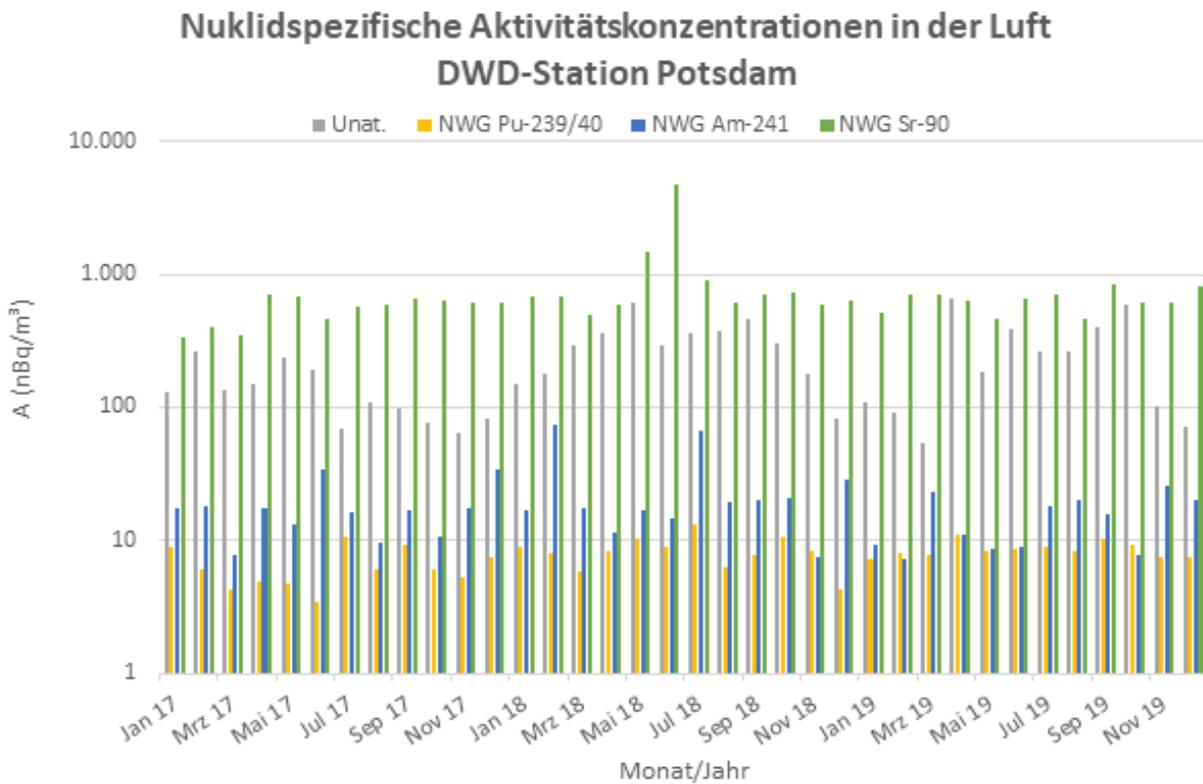
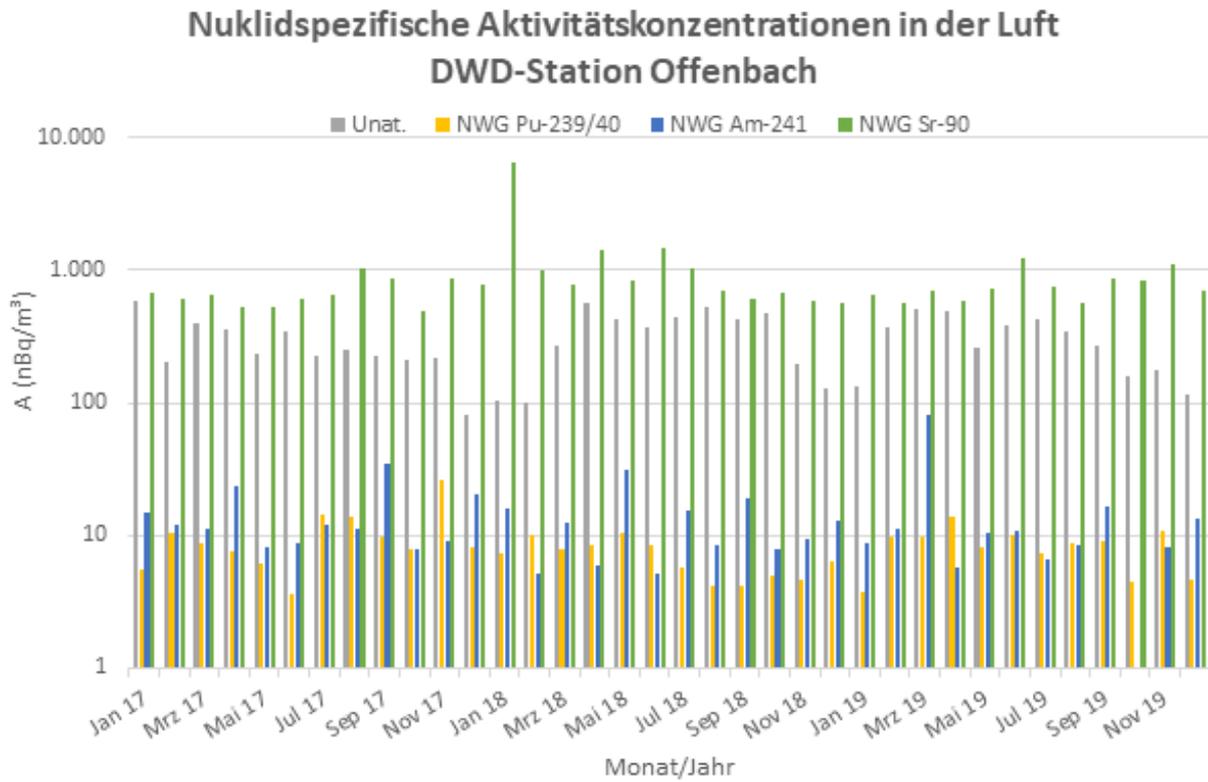
^{106}Ru : Das herausragende Ereignis im Bereich der Spurenmessung, das auch ein lebhaftes Medieninteresse fand, war eine Freisetzung von Ruthenium-106 (^{106}Ru) im Herbst 2017. Ende September bis Anfang Oktober 2017 wurden an verschiedenen Spurenmessstellen in Ost-, Mittel- und Südeuropa ^{106}Ru detektiert. Auch in Deutschland wurde in dieser Zeit an mehreren Messstellen des DWD ^{106}Ru nachgewiesen. Die Aktivitätskonzentrationen lagen zwischen wenigen Mikrobecquerel und einigen Millibecquerel pro Kubikmeter Luft. Der Maximalwert wurde an der DWD-Station



Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 5.4

Zeitlicher Verlauf der mittleren wöchentlichen Aktivitätskonzentrationen von ^7Be , ^{137}Cs , ^{40}K an den Spurenmesststellen des DWD in Potsdam und Offenbach



Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 5.5

Zeitlicher Verlauf der mittleren wöchentlichen Aktivitätskonzentrationen von U_{nat} , $^{239/40}\text{Pu}$, ^{241}Am und ^{90}Sr an den Spurenmessstellen des DWD in Potsdam und Offenbach

on Görlitz im Zeitraum vom 25.09.2017 bis 02.10.2017 mit 49 mBq/m^3 ^{106}Ru erreicht. Bemerkenswert ist in diesem Zusammenhang, dass auf Grund der Wetterlage die belasteten Luftmassen zwar Norddeutschland trafen, aber zunächst an Braunschweig vorbeizogen und erst in einem späteren Zeitraum die Spurenmessstelle der PTB trafen. Zu diesem Zeitpunkt waren sie jedoch bereits so verdünnt, dass auch dort kein ^{106}Ru nachgewiesen werden konnte. An den Sammelstationen des BfS auf dem Schauinsland und in Freiburg wurde kein Ru-106 nachgewiesen.

Berechnungen zur Ausbreitung von radioaktiven Stoffen in der Atmosphäre deuteten schon frühzeitig auf einen Ursprung im südlichen Ural hin, auch ein Ursprungsort im südlichen Russland konnte zunächst nicht ausgeschlossen werden. Abschätzungen ergaben eine Quellstärke von $100 \text{ TBq } ^{106}\text{Ru}$. Die Herkunft des ^{106}Ru ist bis heute trotz internationaler Bemühungen nicht abschließend geklärt [12, 13, 14, 15].

^{131}I : Im Januar 2018 wurden Spuren von ^{131}I in Finnland und Mittel-Norwegen nachgewiesen, wie über den „Ring of 5“, einem informellen Zu-

sammenschluss europäischer Spurenmessstellen, berichtet wurde. Die Aktivitätskonzentrationen lagen bei etwa $1 \text{ } \mu\text{Bq/m}^3$ und darunter. Im Zeitraum vom 05.02. bis 12.03.2018 wurden in einigen Ländern erneut Spuren von ^{131}I nachgewiesen. Messergebnisse oberhalb der Nachweisgrenze meldeten Finnland, Polen, Norwegen und die Tschechische Republik. Die maximale Aktivitätskonzentration in einer Probe lag bei $4,5 \text{ } \mu\text{Bq/m}^3$. Da es sich i.d.R. um Wochenproben handelt, ist die Ermittlung einer Quelle durch Ausbreitungsrechnungen nur sehr eingeschränkt möglich.

Von den deutschen Spurenmessstellen wurden keine ^{131}I -Nachweise berichtet.

Nachweise von ^{131}I sind nicht ungewöhnlich, da es in großen Mengen für medizinische Zwecke produziert und gehandhabt wird. Dabei sind Freisetzungen im Rahmen der jeweiligen Genehmigung möglich. Je nach Wetterlage können diese Freisetzungen mit den Methoden der Spurenanalyse detektiert werden. In den Wintermonaten wird dies - bedingt durch die Wetterlage - in Nordeuropa wiederholt beobachtet.