

4.2

URAnet aero

D. Lienhard, P. Beuret, J. Beuret, S. Estier, M. Müller, P. Steinmann
Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, Bern

Zusammenfassung

Die 15 Aerosolmonitore und fünf ^{131}I Monitore des Messnetzes URAnet aero haben im Jahr 2023 keine erhöhte künstliche Radioaktivität in der Umgebungsluft festgestellt. In den Spektren konnten keine Peaks nachgewiesen werden, die eindeutig einem künstlichen Radionuklid zugeordnet werden können. Auch die Konzentration von gasförmigem ^{131}I blieb unterhalb der Nachweisgrenze von ca. 90 mBq/m^3 . Somit blieben alle Aktivitätskonzentrationen unter den in der StSV festgelegten Immissionsgrenzwerten.

Auf allen Stationen wurden die natürlich vorkommenden Radontöchter aus der Uran-Radium- und der Thorium-Zerfallskette täglich nachgewiesen, was die Funktionsfähigkeit der Aerosolmonitore bestätigt. Ein Vergleich der Tagesmittelwerte von ^{214}Pb aus der Uran-Radium-Zerfallskette und ^{212}Pb aus der Thorium-Zerfallskette zeigt, dass in den Wintermonaten vergleichsweise wenig ^{212}Pb in der Luft vorhanden ist, übereinstimmend mit der Beobachtung im vorangegangenen Jahr. Weiter wiesen die Aerosolmonitore vor allem in den Sommermonaten teilweise auch kosmogenes ^7Be nach.

Einführung

Das im Jahr 2018 offiziell in Betrieb genommene Messnetz URAnet aero überwacht die Radioaktivität in der Umgebungsluft. Das Messnetz besteht aus 15 über die ganze Schweiz verteilten Messstationen, auf denen Aerosolmonitore kontinuierlich die Aktivitätskonzentrationen der auf Luftpartikeln gebundenen Radionuklide messen und die Messwerte per Mobilfunknetz übertragen. Fünf Messstandorte verfügen zusätzlich über einen ^{131}I Monitor, welche die ^{131}I Konzentrationen in der Gasphase der Umgebungsluft messen.

Das Ziel von URAnet aero ist einerseits die Überwachung der Immissionen in der Luft zur Abschätzung der Dosis für die gesamte Bevölkerung, andererseits eine rasche und zuverlässige Alarmübertragung und Alarmvalidierung im Falle einer erhöhten Aktivitätskonzentration eines künstlichen Radionuklids. Die eingesetzte Messtechnik erlaubt die Identifizierung und Quantifizierung von Radionukliden mit den von internationalen Empfehlungen geforderten Nachweisgrenzen. Da der Luftdurchsatz der Aerosolmonitore von URAnet aero mit 16 bis $18 \text{ m}^3/\text{h}$ viel niedriger ist als derjenige von Hochvolumensammlern (ca. $500 \text{ m}^3/\text{h}$ bei 1 Woche Sammelzeit, siehe Kapitel 4.1), liegen die Nachweisgrenzen der Aerosolmonitore zwar höher, bewegen sich aber immer noch weit unter den gesetzlichen Immissionsgrenzwerten.

Von den 15 Messstationen befinden sich eine Station nördlich des Juras (Basel), eine Station südlich der Alpen (Bellinzona) und die restlichen Stationen im Mittelland zwischen Genf und dem Bodensee, mit einer besonderen Verdichtung des Messnetzes in der Umgebung der Kernkraftwerke. Abbildung 1 zeigt die Standorte der URAnet aero Stationen (Aerosolmonitore und ^{131}I Monitore) und URAnet aqua Stationen (siehe Kapitel 4.5) auf der Schweizer Karte.

Die Messgeräte sind eingebunden in das SwissMetNet der MeteoSchweiz. Innerhalb des SwissMetNet werden die Messwerte verarbeitet, im Data Warehouse von MeteoSchweiz gespeichert und gleichzeitig auf die Server der Sektion Umweltradioaktivität transferiert, von wo aus sie für die Analyse, Visualisierung und gegebenenfalls eine Alarmvalidierung verfügbar gemacht werden.

Die 12h-Mittelwerte der Radionuklide ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^7Be , ^{60}Co , ^{131}I , ^{214}Bi und ^{214}Pb sind auf der Internet-Plattform Radenviro für die Öffentlichkeit einsehbar (www.radenviro.ch).

Messtechnik

Aerosolmonitore:

Die Bandfilter-Messgeräte des Herstellers Thermo Fisher sind ausgestattet mit einem Reinstgermanium-Detektor mit 15% relativer Effizienz gegenüber einem 3x3" NaI-Detektor, über welchem sich in ca. 1cm Abstand die Bestaubungsstelle mit 5cm Durchmesser befindet. Zur Abschirmung der Umgebungsstrahlung ist dieser Detektor in einem zweiteiligen Bleigehäuse eingebaut. Die beiden Teile werden durch einen metallenen Messstellenring getrennt, über welchen das Filterband bewegt werden kann. Der Messstellenring wird im Messbetrieb von vier Schraubenfedern luftdicht an das obere Bleigehäuse gedrückt, während ein O-Ring die Lücke zum unteren Bleigehäuse luftdicht verschliesst. Ein Seitenkanalverdichter pumpt Umgebungsluft mit einer Durchflussrate von 16 bis 18 m³/h via einen Ansaugkopf mit einem grobmaschigen 1mm-Gitter – um das Ansaugen von Insekten oder Schneeflocken zu verhindern – durch das Glasfaser-Filterband. Nach Ablauf der Bestaubungszeit von 12h wird der Messstellenring durch die von einem Kompressor generierte Druckluft gegen den O-Ring nach unten gepresst, wodurch das Filterband frei bewegt und soweit vorgeschoben werden kann, dass sich die bereits bestaubte Stelle ausserhalb des Bleigehäuses befindet und eine frische Filterfläche für die nächsten 12h bestaubt werden kann. Der Teil des Bleigehäuses oberhalb des Messstellenrings verfügt über einen Einlass für die Luftansauglinie, während der untere Teil einen Ausgang für den Luftabzug hat.

Nach jedem Filterbandvorschub beginnt die kontinuierliche Akquisition des Gamma-Spektrums zwischen ca. 30 und 2'000 keV. Die Auswertung des Spektrums wird 20 Minuten nach Filterbandvorschub und danach alle 5 Minuten durchgeführt. Die eingesetzten Reinstgermanium-Kristalle erlauben die Aufnahme von hochaufgelösten Spektren mit Peak-Halbwertsbreiten zwischen 0.8 keV im niedrigen Energiebereich und 2.5 keV im hohen Energiebereich. Diese Peak-Halbwertsbreiten liegen somit nur unwesentlich höher als jene, die in einem Labor unter kontrollierten Bedingungen aufgenommen werden könnten, obwohl die Temperaturschwankungen der angesogenen Umgebungsluft und der Messkabine während einer 12h-Bestaubungszeit den sensiblen Vorverstärker beeinflussen und damit die Energiekalibrierung verschieben können. Das Messsystem regelt die Energiekalibrierung anhand der Peaks der Radontöchter ²¹⁴Bi und ²¹⁴Pb und einer eingebauten schwachen ⁴⁰K Quelle automatisch nach.

Durch die hohe Auflösung gibt es wenige Überlappungen der einzelnen Peaks, was die eindeutige Zuordnung zu den verschiedenen Radionukliden vereinfacht. Anhand der Peak-Fläche und des gefilterten Luftvolumens kann dann die Aktivitätskonzentration der Radionuklide in der Umgebungsluft berechnet werden. Bei jeder Auswertung werden die aus den Spektren bestimmten Aktivitätskonzentrationen auf Grenzwertüberschreitungen geprüft.

Die Aerosolmonitore des Herstellers Thermo Fisher wurden mit Germaniumdetektoren und elektrischen

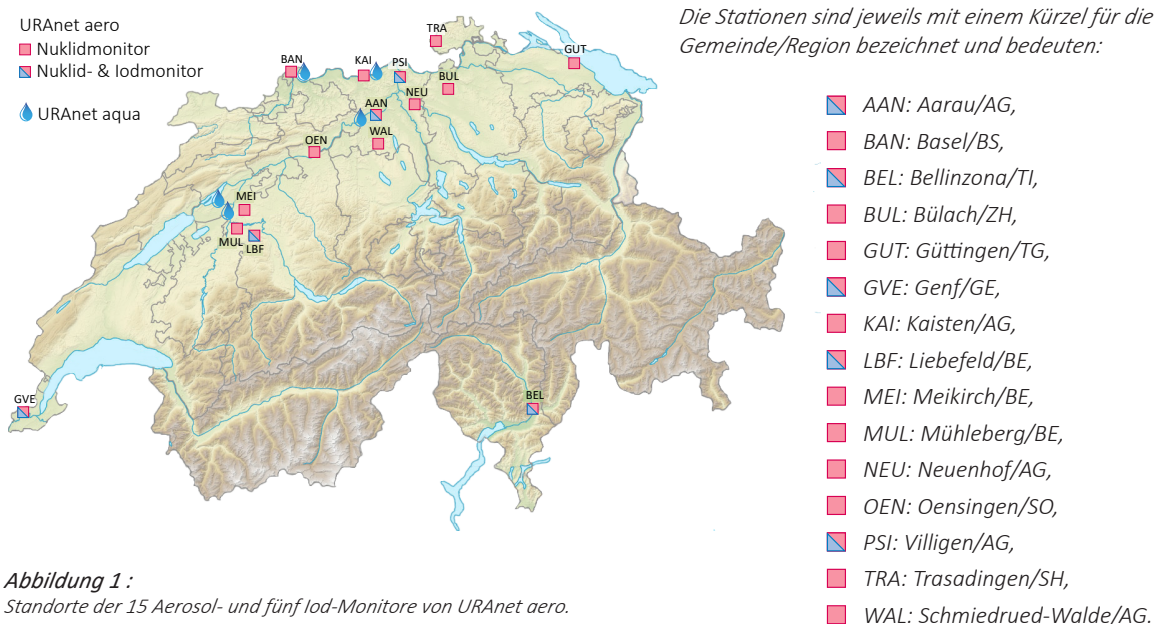


Abbildung 1 :
Standorte der 15 Aerosol- und fünf Iod-Monitore von URAnet aero.

Kühleinheiten der Firma Ortec geliefert. Um eine optimale Funktionsfähigkeit zu garantieren, muss der Germanium-Kristall auf sehr tiefe Temperaturen von unter -150°C gekühlt werden. Um diese Temperaturen zu erreichen, muss der Kristall mit einem Vakuum vor den Einflüssen der Umgebungstemperatur und deren Schwankungen geschützt werden. Die Sektion Umweltradioaktivität (URA) verfügt über eine geeignete Membranvakuumpumpe um das Vakuum zu erneuern. Diese Vakuum-Erneuerung ist angezeigt, sobald sich Kondensation an der Aluminium-Kapsel des Detektors bildet. Zur Verstärkung des Vakuums und Verlängerung von dessen Haltbarkeit sind ein Zeolith-Molekularsieb und ein Palladium-Absorber in der Aluminium-Kapsel des Detektors eingebaut.

Auch zur Temperatur-Isolierung der Kontaktstelle zwischen der elektrischen Kühleinheit und dem Detektor ist ein Vakuum notwendig. Dieses wird alleine durch ein Zeolith-Molekularsieb generiert, welches zu diesem Zweck ebenfalls zuerst auf tiefere Temperaturen (typischerweise unter -40°C) abgekühlt werden muss. Dieses Vakuum ist dadurch weniger stark als jenes der Detektor-Kapsel. Aus diesem Grund muss dieses Molekularsieb häufig ausgetauscht werden, kann aber bei 150°C regeneriert und danach wiederverwendet werden.

Ohne Temperaturregulierung der Messkabine würde die hohe Wärmeproduktion des Seitenkanalverdichters rasch zu einer Überhitzung des Messgeräts führen und die Kristalle auch bei optimalem Vakuum letztlich zu stark aufwärmen. Vor allem in den Sommermonaten kann der Messbetrieb nur mit gut funktionierenden Klimageräten aufrechterhalten werden. Durch den Ausfall des Klimageräts der Messkabine in Basel konnte diese Station in der ersten Hälfte 2023 während ca. zwei Monaten nicht betrieben werden.



Die Aerosolmonitore wurden durch die URA weiterentwickelt und sind nun auch kompatibel mit den Germanium-detektoren der Firma Mirion. Aktuell sind die Stationen Kaisten, Aarau und Güttingen mit Detektoren der Firma Mirion ausgerüstet. Sie weisen bislang eine höhere Beständigkeit gegenüber Temperatur- und Feuchtigkeitsschwankungen auf, was damit zusammenhängen könnte, dass die Kühleinheit fest mit dem Detektor verbunden ist und somit nur ein Vakuum notwendig ist. Zusätzlich ist durch die intelligente Temperaturregulierung der Geräte von Mirion der Energieverbrauch deutlich kleiner, obschon der Germanium-Kristall bei einer niedrigeren Temperatur als bei den Ortec-Geräten gehalten werden kann. 2023 wurden weitere Germaniumdetektoren der Firma Mirion beschafft, um defekte Ortec-Geräte ersetzen zu können.

¹³¹I-Monitore:

Die fünf ¹³¹I Monitore werden nach einem ähnlichen Prinzip wie die Aerosolsammler betrieben. Bei einer Abgabe an die Umwelt durch ein Kernkraftwerk würde ¹³¹I überwiegend in gasförmiger Form vorliegen und könnte somit nicht von einem Aerosolfilter zurückgehalten werden. Aus diesem Grund sind die ¹³¹I Monitore mit einer zylindrischen Kartusche ausgestattet, die mit AgNO_3 -Granulaten aufgefüllt wird, auf welche das ¹³¹I adsorbiert. In der Mitte der zylindrischen Kartusche befindet sich ein NaI-Detektor, dessen Kanäle im Energiebereich von ca. 350 keV bis 380 keV gezielt nach der 364.49 keV-Linie von ¹³¹I abgesehen werden. Aus der Zählrate und dem gefilterten Luftvolumen – bei den ¹³¹I Monitoren ca. $10\text{ m}^3/\text{h}$ – kann dann die Aktivitätskonzentration des ¹³¹I in der Umgebungsluft berechnet werden. Der NaI-Detektor muss nicht gekühlt werden und ist weniger anfällig auf Schwankungen der Temperatur oder Luftfeuchtigkeit in der Messkabine.

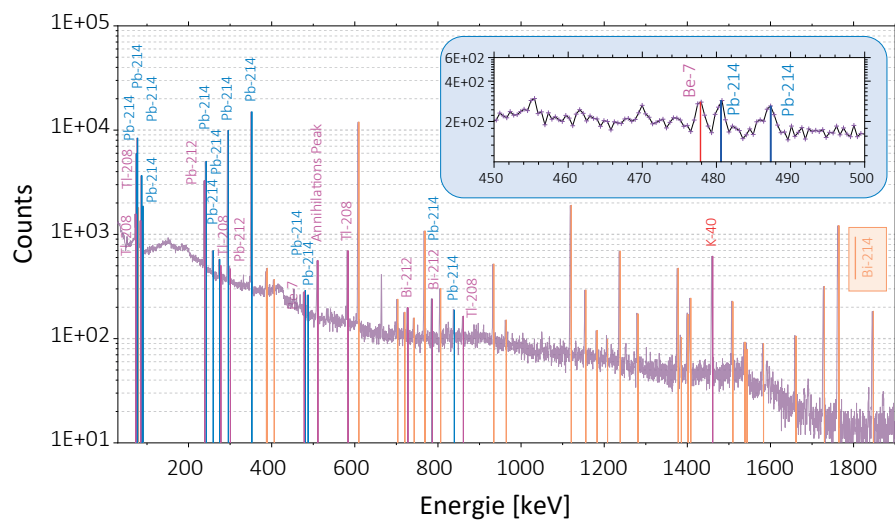


Abbildung 2 :

12h-Spektrum der Messstation Mühleberg vom 18. Juni 2023 um 00:00 Uhr. Die Linien von ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi aus der Uran-Radium-Zerfallskette sind orange und blau markiert, alle anderen rot. Der Bereich um die Linie von ⁷Be bei 477.6 keV mit den naheliegenden Nebenlinien von ²¹⁴Pb ist vergrößert dargestellt. Die Auswertungs-Software konnte bei den beiden ²¹⁴Bi Linien von 469.8 keV und 474.4 keV noch keinen statistisch signifikanten Peak finden.



Abbildung 3:
Bandbreite der Aktivitätskonzentrationen von ^{214}Pb und ^{212}Pb (12h-Mittelwerte) der URAnet aero Stationen auf der Alpennordseite. Markiert sind ebenfalls die Perioden mit Niederschlag (blau) und höheren Windgeschwindigkeiten (orange)

Messresultate

Abbildung 2 zeigt das Spektrum des Aerosolmonitors der Messstation in Mühleberg am Ende der 12h-Bestaubungszeit vom 18. Juni 2023 um 00:00 Uhr. Die Linien von ^{214}Pb und ^{214}Bi und deren Compton-Kontinuen dominieren das Spektrum und den Untergrund. Die Auswertungs-Software identifizierte 13 Linien von ^{214}Pb und 34 Linien von ^{214}Bi . Weiter sind auch die Peaks von ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl , ^{40}K , ^7Be und der Annihilations-Peak im Spektrum zu finden. Die Hauptlinie von ^{212}Pb bei 238.6 keV befindet sich unmittelbar neben einer starken Linie von ^{214}Pb bei 242.0 keV und bedarf einer stabilen Regelung der Energiekalibration, um Schwierigkeiten durch eine Peak-Überlappung zu vermeiden. Die Aktivitätskonzentrationen in diesem Spektrum betragen 0.0604 (± 0.0034) Bq/m³ für ^{212}Pb , 0.0555 (± 0.0083) Bq/m³ für ^{212}Bi . Da ^{212}Bi nur zu 35.9% zu ^{208}Tl zerfällt (zu 64.1% zu ^{212}Po), liegt die Aktivitätskonzentration von ^{208}Tl bei 0.0186 (± 0.0013) Bq/m³.

Die graue Fläche in Abbildung 3 zeigt den Zeitverlauf des Wertebereichs der Aktivitätskonzentrationen von ^{212}Pb und ^{214}Pb über das Jahr 2023 für alle Stationen der Alpennordseite, d.h. sie deckt den ganzen Bereich zwischen dem höchsten und dem niedrigsten von den Messstationen gemessenen Wert zu jedem Zeitpunkt ab. Ebenfalls eingezeichnet sind Perioden mit Niederschlag und höheren Windgeschwindigkeiten. Obwohl diese meteorologischen Parameter einem Durchschnitt einer Reihe von Messstationen der MeteoSchweiz auf der gesamten Alpennordseite entsprechen und somit nur eine grobe Abschätzung darstellt, zeigt Abbildung 3 doch deutlich den Zusammenhang zwischen den Aktivitätskonzentrationen dieser Radontöchter und dem meteorologischen Einfluss. Windigere Verhältnisse und die Auswaschung aus der Atmosphäre durch Niederschlag führen zu niedrigeren 12h-Mittelwerten. Nach den meisten dieser Perioden mit Auswaschung oder windigeren Verhältnisse messen alle Messstationen sehr ähnliche (tiefe) Aktivitätskonzentrationen ^{212}Pb und

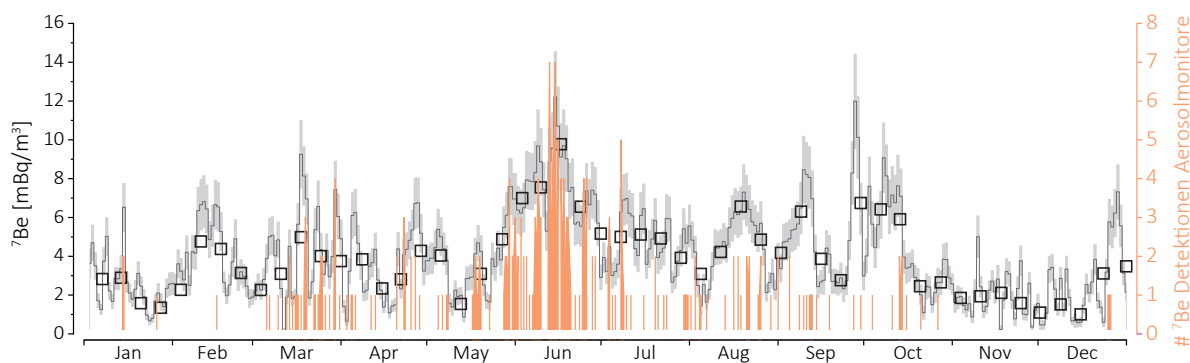


Abbildung 4 :

⁷Be Aktivitätskonzentrationen, gemessen auf den Aerosolfiltern eines Digital Aerosol Sammlers an der Morgartenstrasse in Bern (schwarze Linie, 95%-Konfidenzintervall in grau) und vom Hochvolumensammler in Liebefeld (Quadrate), und Anzahl ⁷Be Detektionen am Ende der 12h-Sammelperioden der Aerosolmonitoringstationen von URAnet aero (orange).

²¹⁴Pb. Höhere Aktivitätskonzentrationen und damit auch grössere Unterschiede zwischen den Messstationen treten erst auf, wenn über längere Zeit keine Auswaschung oder Durchmischung der Atmosphäre stattfindet

In den kälteren Monaten, vor allem Januar, November und Dezember werden in der Regel sehr tiefe ²¹²Pb Aktivitätskonzentrationen gemessen; beim ²¹⁴Pb ist dieser Effekt viel weniger ausgeprägt. Die Wind- oder Niederschlagsverhältnisse scheinen nur wenig Einfluss auf diesen Unterschied zwischen kälteren Monaten und dem Rest des Jahres zu haben. Vermutlich hängt dieser Trend mit den unterschiedlichen Halbwertszeiten der zwei verschiedenen Radon-Isotope aus der Thorium- und der Uran-Radium-Zerfallsreihe zusammen. In der Uran-Radium-Zerfallskette hat das gasförmige ²²²Rn eine Halbwertszeit von mehr als drei Tagen, das ²²⁰Rn aus der Thorium-Zerfallskette weniger als eine Minute. Sowohl die Migration und Exhalation aus dem Boden als auch die die Verteilung

auf den Aerosolpartikeln in den Luftschichten können dadurch unterschiedlich ausfallen, in Abhängigkeit der meteorologischen Bedingungen und der Bodenbeschaffenheit.

Der vergrösserte Ausschnitt in Abbildung 2 zeigt den Energiebereich um die Linie von ⁷Be bei 477.6 keV. Der Nachweis von ⁷Be im Spektrum ist noch anspruchsvoller als jener des oben beschriebenen ²¹²Pb, da sowohl die Linie von ²¹⁴Pb bei 480.4 keV als auch die Linie von ²¹⁴Bi bei 474.4 keV mit dem ⁷Be Peak interferieren können. Abhängig vom Untergrund des Spektrums liegt die Nachweisgrenze von ⁷Be in der Regel nahe bei den tatsächlichen Aktivitätskonzentrationen in der Umgebungsluft, d.h. in der Region von wenigen mBq/m³. Der gelegentliche Nachweis von ⁷Be und die oben erwähnte präzise Vermessung der Hauptlinie von ²¹²Pb bestätigen die hohe Qualität der Spektren trotz der teilweise anspruchsvollen Bedingungen in den Messkabinen.

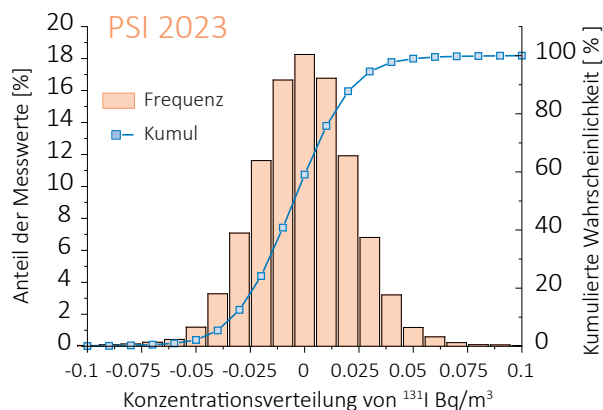
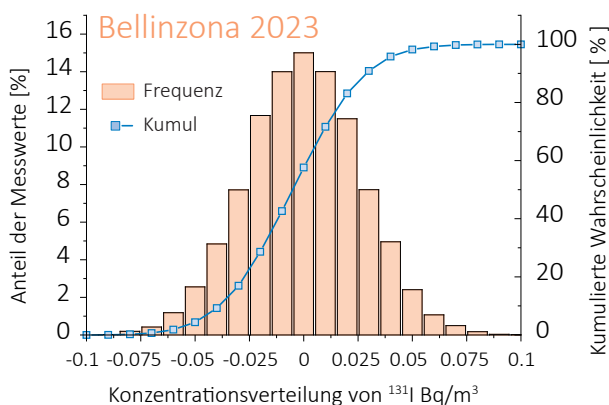


Abbildung 5 :

Histogramm der Durchschnittskonzentration von ¹³¹I auf den Stationen Bellinzona und PSI im Jahr 2023.

Abbildung 4 zeigt die Anzahl ^7Be Detektionen am Ende der 12h-Bestaubungszeiten von allen 15 Aerosolmonitoren, verglichen mit den Wochenmittelwerten vom Hochvolumensammler in Liebefeld (siehe Kapitel 4.1) und den Tagesmittelwerten von einem Digital Aerosolsammler in der Stadt Bern. Im Sommer detektieren die Aerosolmonitore ^7Be auffallend häufiger als während dem Rest des Jahres, obwohl nicht nur im Sommer sondern beispielsweise auch Ende September und anfangs Oktober ebenfalls hohe ^7Be Aktivitätskonzentrationen aufgetreten sind. Der Grund für diese Unterschiede liegt vermutlich in einer geringfügigen Jahresschwankung in der Nachweisgrenze von ^7Be .

Die fünf ^{131}I -Monitore der Stationen in Bellinzona, Genf, Aarau, Liebefeld und PSI haben zu keinem Zeitpunkt im Jahr 2023 gasförmiges ^{131}I in der Umgebungsluft feststellen können. Die Absenz von ^{131}I in der Umgebungsluft wird auch dadurch bestätigt, dass die Histogramme der durchschnittlichen ^{131}I Konzentrationen – in Abbildung 5 an den Beispielen der Stationen Bellinzona und PSI gezeigt – eine Gausssche Glockenkurve mit einem Mittelwert von Null zeigen.

Schlussfolgerung

Weder die Aerosolmonitore noch die ^{131}I Monitore des Messnetzes URAnet aero haben im Jahr 2023 künstliche Radionuklide in der Umgebungsluft festgestellt. Beide Messsysteme verfügen über zuverlässige automatische Regulierungen, die Schwankungen von Temperatur und Feuchte, die sich auf die Qualität der Spektren auswirken könnten, ausgleichen. Damit gewährleisten sie den Messbetrieb auch bei variierenden Bedingungen. Trotz teilweise schwierigen Bedingungen auf den Messstationen und den dominanten und möglicherweise interferierenden Peaks von ^{214}Pb und ^{214}Bi aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe vermessen die Aerosolmonitore auch die Radontöchter ^{212}Pb , ^{212}Bi und ^{208}Tl aus der Thorium-Zerfallsreihe. Die Zeitverläufe der Aktivitätskonzentrationen von ^{214}Pb und ^{212}Pb zeigen den Einfluss der meteorologischen Bedingungen, d.h. das Auswaschen der Radontöchter aus der Atmosphäre durch Niederschlag und in vielen Fällen auch die Durchmischung der Bodenluft. In den Wintermonaten liegen die ^{212}Pb Aktivitätskonzentrationen verhältnismässig tief, was wahrscheinlich mit der unterschiedlichen Halbwertszeit der Radon-Isotope aus den beiden Zerfallsreihen und der Bodenbeschaffenheit zusammenhängt. Die Detektionslimiten der Aerosolmonitore reichen vor allem in den Sommermonaten gerade aus, um ^7Be nachzuweisen.