

# 4.2

## URAnet aero

D. Lienhard, P. Beuret, S. Estier, M. Müller, P. Steinmann

Sektion Umweltradioaktivität, URA / BAG, Bern

### Zusammenfassung

Die 15 Aerosolmonitore und fünf  $^{131}\text{I}$  Monitore des Messnetzes URAnet aero haben im Jahr 2022 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  $^{131}\text{I}$  blieb unterhalb der Nachweisgrenze von ca. 90 mBq/m<sup>3</sup>. 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  $^{214}\text{Pb}$  aus der Uran-Radium-Zerfallskette und  $^{212}\text{Pb}$  aus der Thorium-Zerfallskette zeigt, dass in den Wintermonaten vergleichsweise wenig  $^{212}\text{Pb}$  in der Luft vorhanden ist, übereinstimmend mit der Beobachtung im vorangegangenen Jahr. Weiter wurde in gewissen Fällen auch kosmogenes  $^7\text{Be}$  nachgewiesen, mehrheitlich in jenen Phasen, bei denen auch die Ergebnisse der Hochvolumensammler erhöhte Werte für  $^7\text{Be}$  gemessen haben.

### 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 Iod-Monitor, welche aus dem Vorgängermessnetz RADAIR in das Messnetz URAnet aero integriert wurden. Diese Iod-Monitore vermessen die  $^{131}\text{I}$  Konzentrationen in der Gasphase der Umgebungsluft.

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 von URAnet aero Monitoren mit 16 bis 18 m<sup>3</sup>/h viel tiefer liegt als derjenige von Hochvolumensammlern (ca. 500 m<sup>3</sup>/h bei 1 Woche Sammelzeit, siehe Kapitel 4.1), liegen die Nachweisgrenzen der Aerosolmonitore höher, 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. In der ersten Jahreshälfte 2022 wurde der Iod-Monitor der Station Fribourg in die Station Aarau integriert. Abbildung 1 zeigt die Messstationen von URAnet aero 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 an die Sektion Umweltradioaktivität transferiert, von wo aus sie für die Analyse, Visualisierung und gegebenenfalls eine Alarmvalidierung verfügbar gemacht werden.

Die 12-Stunden-Mittelwerte der Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  und  $^{214}\text{Pb}$  sind auf der Internet-Plattform Radenviro für die Öffentlichkeit einsehbar ([www.radenviro.ch](http://www.radenviro.ch)).

## Messtechnik

### Aerosolsammler:

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 und von einem O-Ring luftdicht an das untere Bleigehäuse gedrückt. Via einen Ansaugkopf mit einem grobmäschigen 1mm-Gitter – um dem Ansaugen von Insekten oder Schneeflocken vorzubeugen – passiert die Umgebungsluft während einer Bestaubungszeit von 12 Stunden das Glasfaser-Filterband mit einer Durchflussrate von 16 bis 18 m<sup>3</sup>/h. Nach Ablauf der Bestaubungszeit wird der Messstellenring durch die Druckluft eines Kompressors 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 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.

Die Gamma-Spektrometrie mit Germanium-Kristallen erlaubt die Aufnahme von hochaufgelösten Spektren im Energie-Bereich zwischen 30 und 2'000 keV mit Peak-Halbwertsbreiten zwischen 0.8 keV im niedrigen Energiebereich und 2.5 keV im hohen Energiebereich. 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.

Nach jedem Filterbandvorschub beginnt die Pumpe mit dem Ansaugen von Aussenluft und der Detektor mit der kontinuierlichen Akquisition des Spektrums. 20 Minuten nach Filterbandvorschub und danach alle 5 Minuten wird das Spektrum neu ausgewertet und auf Grenzwertüberschreitungen geprüft, womit die Information der zeitlichen Entwicklung der Fläche des Peaks in der Auswertung abgespeichert ist.

Die Temperaturschwankungen der angesogenen Umgebungsluft während einer 12h-Bestaubungszeit führen auch beim Vorverstärker des Germaniumdetektors zu geringen Temperaturschwankungen. Dadurch kann sich die Energiekalibration während der Bestaubungszeit geringfügig verändern. Das Messsystem regelt die Energiekalibration anhand der Peaks der Radontöchter <sup>214</sup>Bi und <sup>214</sup>Pb und einer eingebauten schwachen <sup>40</sup>K Quelle automatisch nach. Auf die Halbwertsbreiten haben diese Modulationen keinen signifikanten Einfluss.

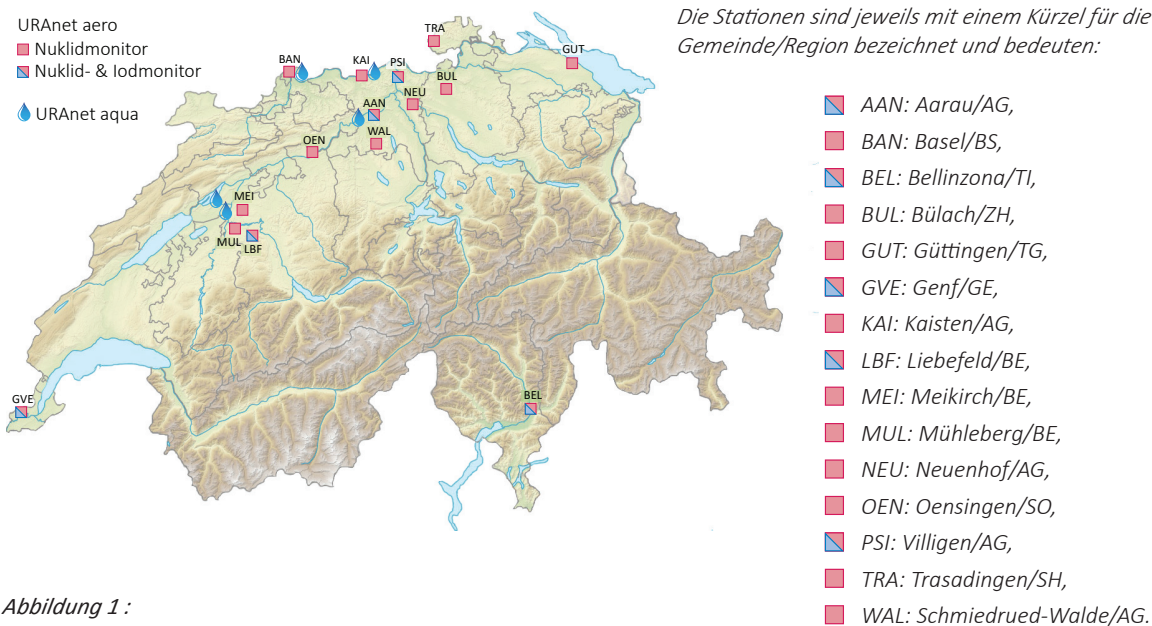


Abbildung 1 :  
Standorte der 15 Aerosol- und fünf Iod-Monitore von URAnet aero.

Diese Messgeräte des Herstellers Thermo Fisher wurden mit Germaniumdetektoren und elektrischen Kühleinheiten der Firma Ortec geliefert. Sowohl die Temperaturschwankungen der Umgebungsluft als auch im Messraum wirken sich auf die Temperatur des Germanium-Kristalls aus. Um eine optimale Funktionsfähigkeit zu garantieren, muss der Germanium-Kristall mit einem Vakuum vor den Temperaturschwankungen geschützt werden. Ein integriertes Molekularsieb und Getter-Material adsorbieren zwar einen Teil der Moleküle, die durch die Isolation des Detektors durchdringen und verlängern dadurch die Aufrechterhaltung des Vakuums. Trotzdem muss das Vakuum von Zeit zu Zeit erneuert werden. Die Erneuerung des Vakuums wird in den Labors der URA durchgeführt.

Im Jahr 2019 wurden die Aerosolmonitore durch die URA weiterentwickelt und sind nun auch kompatibel mit den Germaniumdetektoren der Firma Mirion. Aktuell sind 3 Stationen mit Detektoren der Firma Mirion ausgerüstet, welche bislang eine höhere Beständigkeit gegenüber Temperatur- und Feuchtigkeitsschwankungen aufweisen. Zusätzlich ist durch die intelligente Temperaturregulierung der Geräte von Mirion der Energieverbrauch deutlich kleiner, obwohl der Germanium-Kristall bei einer niedrigeren Temperatur gehalten wird.

### <sup>131</sup>I-Monitor:

Eine Pumpe saugt Umgebungsluft mit einer Durchflussrate von ca. 10 m<sup>3</sup>/h an. Diese Luft passiert dabei eine zylindrische Kartusche mit AgNO<sub>3</sub>-Granulaten, auf welchen grasförmiges <sup>131</sup>I adsorbiert, falls dieses in der Umgebungsluft vorhanden sein sollte. In der Mitte der zylindrischen

drischen Kartusche ist ein NaI-Detektor installiert, der die Gammaquanten von <sup>131</sup>I bei 364.49 keV registriert. Aus der Zählrate und dem gefilterten Luftvolumen kann dann die Aktivitätskonzentration des <sup>131</sup>I in der Umgebungsluft berechnet werden.

## Messresultate

Abbildung 2 zeigt das Spektrum der Messstation Basel am Ende der 12h-Bestaubungszeit am Mittag des 3. März 2022. Die Linien von <sup>214</sup>Pb und <sup>214</sup>Bi und deren Compton-Kontinuen dominieren das Spektrum und den Untergrund. Die Auswertungs-Software identifizierte 16 Linien von <sup>214</sup>Pb und 47 Linien von <sup>214</sup>Bi. Weiter sind auch die Peaks von <sup>212</sup>Pb, <sup>212</sup>Bi, <sup>208</sup>Tl, <sup>40</sup>K, <sup>7</sup>Be und der Annihilations-Peak im Spektrum zu finden. Die Hauptlinie von <sup>212</sup>Pb bei 238.6 keV befindet sich unmittelbar neben einer starken Linie von <sup>214</sup>Pb bei 242.0 keV und bedarf einer stabilen Regelung der Energiekalibration, um Schwierigkeiten durch eine Peak-Überlappung zu vermeiden. Die Aktivitätskonzentrationen betragen 0.31(± 0.01) Bq/m<sup>3</sup> für <sup>212</sup>Pb, 0.30(± 0.01) Bq/m<sup>3</sup> für <sup>212</sup>Bi. Da <sup>212</sup>Bi nur zu 35.9% zu <sup>208</sup>Tl zerfällt (zu 64.1% zu <sup>212</sup>Po), liegt die Aktivitätskonzentration von <sup>208</sup>Tl bei 0.11(± 0.01) Bq/m<sup>3</sup>.

Abbildung 3 zeigt den Jahresverlauf von <sup>214</sup>Pb, <sup>212</sup>Pb und den meteorologischen Parametern Windgeschwindigkeit und Niederschlag der beiden Stationen in Güttingen und Aarau. Windigere Verhältnisse und Auswaschung aus der Atmosphäre durch Niederschlag führen bei beiden Nuklid-Isotopen zu niedrigeren Tagesmittelwerten. In den kälteren Monaten zwischen November und Februar ist deutlich

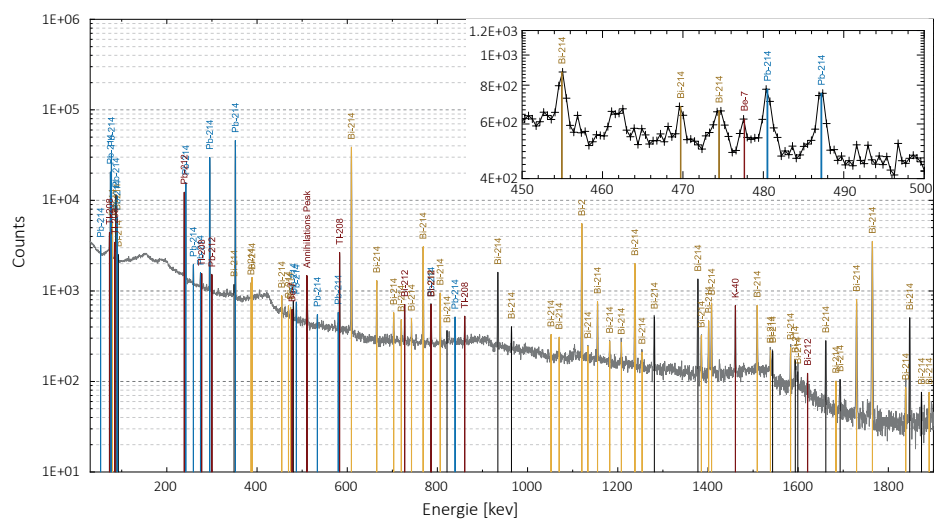


Abbildung 2 :

Spektrum der Messstation Basel vom 3. März 2022 um 12:00 Uhr. Die Linien von <sup>214</sup>Pb und <sup>214</sup>Bi aus der Uran-Radium-Zerfallskette sind gelb und blau markiert, alle anderen rot. Der Bereich um die Linie von <sup>7</sup>Be bei 477.6 keV mit den naheliegenden Nebenlinien von <sup>214</sup>Pb und <sup>214</sup>Bi ist vergrößert dargestellt. Diese Nebenlinien erschweren die Detektion von <sup>7</sup>Be.

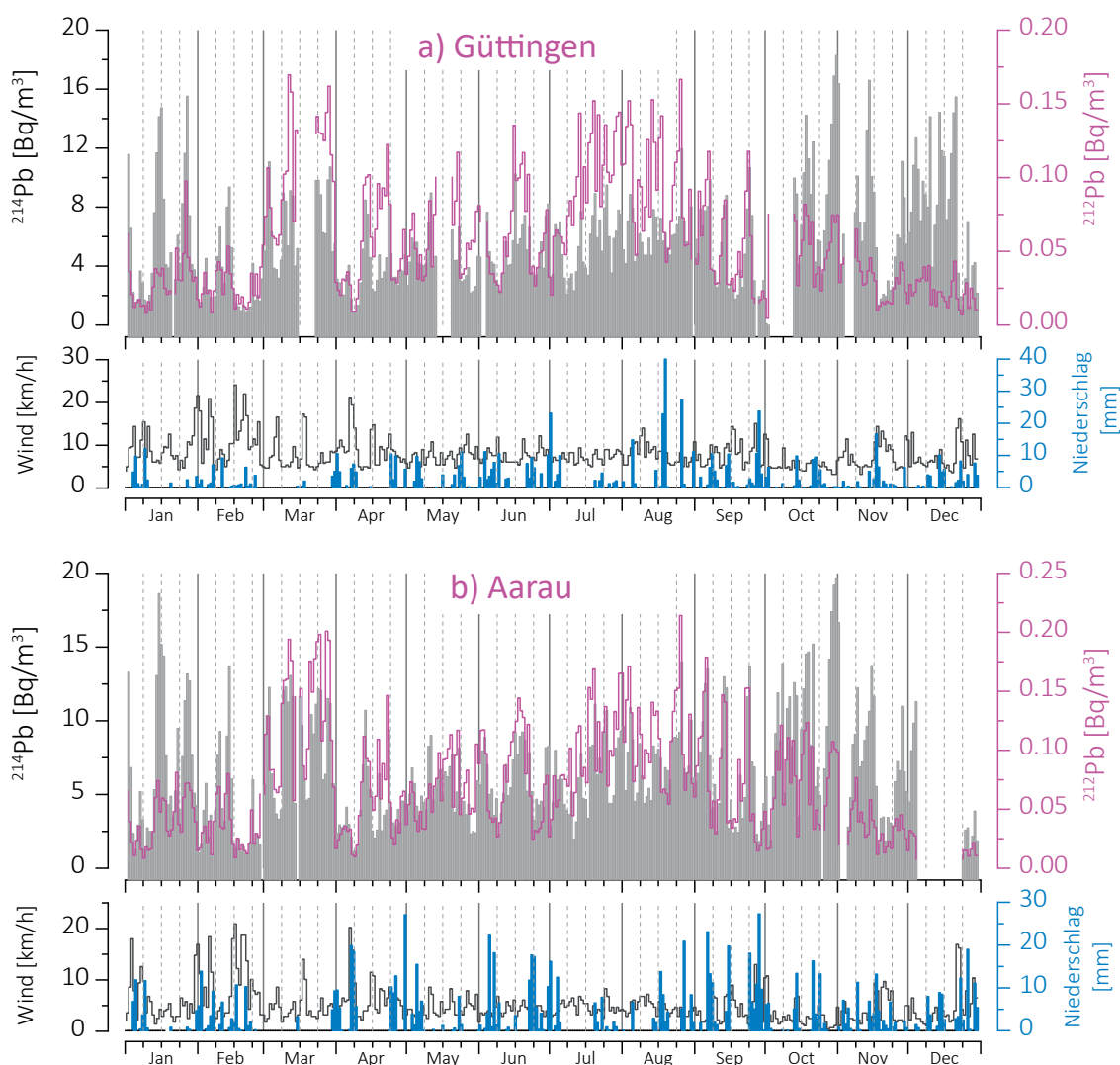


Abbildung 3 :

Zeitreihe der Tagesmittelwerte der  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{212}\text{Pb}$  Aktivitätskonzentrationen der Stationen a) Göttingen und b) Aarau für das Jahr 2022, zusammen mit den Tagesmittelwerten der Windgeschwindigkeiten und der 24h-Niederschlagssumme.

weniger  $^{212}\text{Pb}$  in der Umgebungsluft vorhanden, als dies aus der guten Korrelation zwischen  $^{212}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Pb}$  über die restlichen Monate vermutet werden könnte. Die Wind- oder Niederschlagsverhältnisse scheinen nur wenig Einfluss auf diesen Unterschied zwischen kälteren Monaten und dem Rest des Jahres zu haben. Die längeren Messunterbrüche in Göttingen im Oktober und in Aarau im Dezember hängen damit zusammen, dass die Detektoren ausgewechselt werden mussten, da sich das Vakuum zur Temperatur-Isolierung des Germanium-Kristalls verschlechterte und erneuert werden musste. Beide Stationen sind nun mit einem Detektor von Mirion ausgestattet.

Abbildung 4 zeigt die Werte der Monate November, Dezember, Januar und Februar als Kreuze und für die

restlichen Monate als Kreise für die Stationen Göttingen, Trasadingen, Basel und Aarau. Bei allen vier abgebildeten Stationen bestätigt sich der oben beschriebene Trend für niedrigere  $^{212}\text{Pb}$  Aktivitätskonzentrationen während den kälteren Monaten. Wir vermuten, dass dieser Trend mit den unterschiedlichen Halbwertszeiten der zwei verschiedenen Radon-Isotope aus der Thorium- und der Uran-Radium-Zerfallsreihe zusammenhängt. In der Uran-Radium-Zerfallsreihe hat das gasförmige  $^{222}\text{Rn}$  eine Halbwertszeit von mehr als drei Tagen, das  $^{220}\text{Rn}$  aus der Thorium-Zerfallsreihe weniger als eine Minute. Sowohl die Migration und Exhalation aus dem Boden als auch die Verteilung auf den Aerosolpartikeln in den Luftschichten können dadurch unterschiedlich ausfallen, in Abhängigkeit der meteorologischen Parameter und der Bodenbeschaffenheit.

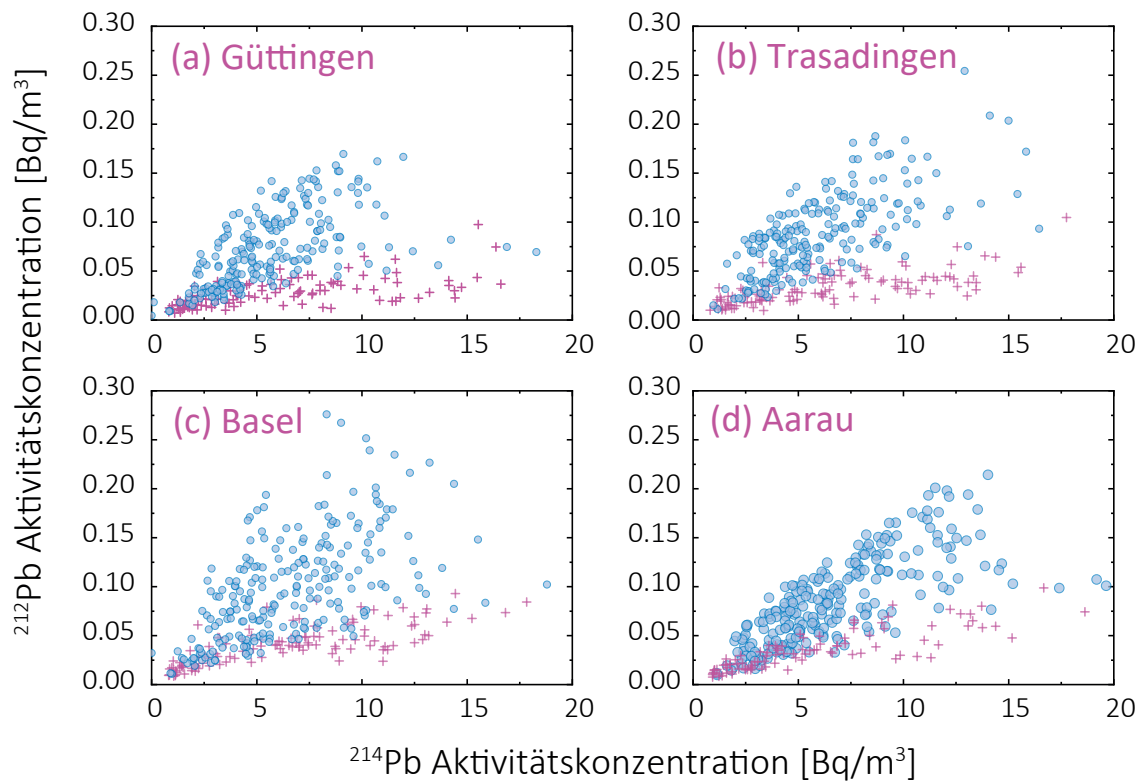


Abbildung 4 :

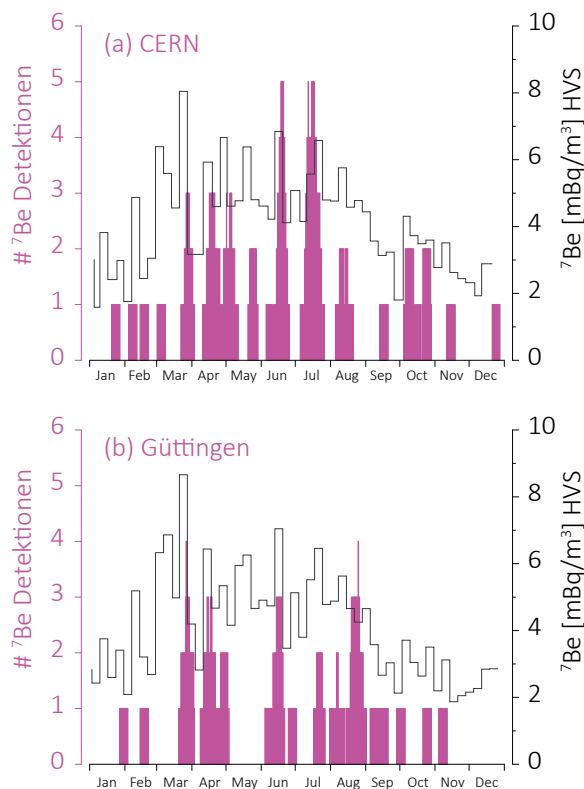
12h-Mittelwerte der Aktivitätskonzentration von  $^{212}\text{Pb}$  als Funktion der Werte von  $^{214}\text{Pb}$  auf den Stationen (a) Göttingen, (b) Trasadingen, (c) Basel und (d) Aarau. Die Kreuze stehen für die Wintermonate Januar, Februar, November und Dezember 2022, die Kreise für die übrigen Monate in diesem Jahr.

Der vergrößerte Ausschnitt in Abbildung 2 zeigt den Bereich um die Linie von  $^7\text{Be}$  bei 477.6 keV. Der Nachweis von  $^7\text{Be}$  im Spektrum ist noch anspruchsvoller als jener des oben beschriebenen  $^{212}\text{Pb}$ , da sowohl der Peak von  $^{214}\text{Pb}$  bei 480.4 keV als auch der Peak von  $^{214}\text{Bi}$  bei 474.4 keV den Nachweis erschweren. Abhängig vom Untergrund des Spektrums liegt die Nachweisgrenze von  $^7\text{Be}$  in der Regel nahe bei den tatsächlichen Aktivitätskonzentrationen in der Umgebungsluft, d.h. in der Region von wenigen mBq/m<sup>3</sup>. Der Nachweis von  $^7\text{Be}$  und die oben erwähnte präzise Vermessung der Hauptlinie von  $^{212}\text{Pb}$  bestätigen die hohe Qualität der Spektren trotz der teilweise anspruchsvollen Bedingungen in den Messkabinen.

Abbildung 5 zeigt die Anzahl  $^7\text{Be}$  Detektionen der Stationen in Göttingen und am CERN am Ende der jeweiligen 12h-Bestaubungszeit als gleitende Summe über 7 Tage. Im Frühling und im Sommer konnte vermehrt Be-7 detektiert werden, im Winter jedoch weniger. Dieses Muster ist konsistent mit den Wochenmitteln der  $^7\text{Be}$  Aktivitätskonzentrationen der Hochvolumenssammlern der gleichen Stationen, welche in den Wintermonaten generell geringere  $^7\text{Be}$  Aktivitätskonzentrationen gemessen haben und somit in dieser Periode auch der Nachweis von  $^7\text{Be}$  durch den Aerosolmonitor schwieriger, d.h. unwahrscheinlicher, wird. Auf der Station am CERN ist eine relativ gute Übereinstimmung zwischen den Peaks in den  $^7\text{Be}$  Aktivi-

tätskonzentrationen der Hochvolumenssammler und der Anzahl Detektionen durch den Aerosolmonitor erkennbar. Die zusätzliche Information aus den 12h-Messintervallen der Aerosolmonitore könnte zukünftig genutzt werden, um Perioden mit viel  $^7\text{Be}$  zeitlich einzugrenzen und mit anderen Parametern in einen Zusammenhang zu bringen. Aufgrund der aktuellen Datenlage ist es jedoch schwierig, einen konkreten Rhythmus aus den Messungen dieser beiden Messmittel herauszulesen. Die Wochenmittelwerte durch die Hochvolumenssammler sind wenig sensibel für kurzfristige Events mit hohen Aktivitätskonzentrationen; die Aerosolmonitore können hingegen eine längere Periode mit leicht erhöhten Aktivitätskonzentrationen gänzlich verpassen, falls die Radontöchter den Untergrund der Spektren zu sehr beeinflussen.

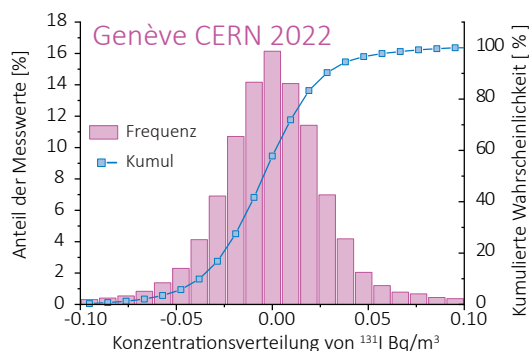
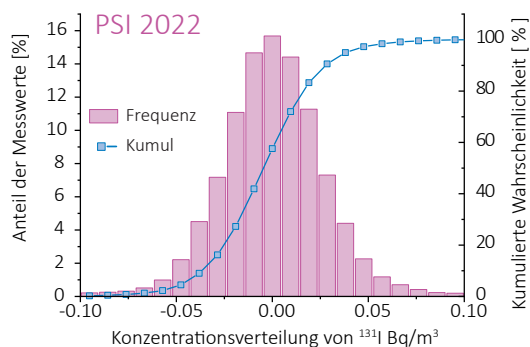
Die fünf Iod-Monitore der Stationen in Bellinzona, Genf, Fribourg, Liebefeld und PSI haben zu keinem Zeitpunkt im Jahr 2022 gasförmiges  $^{131}\text{I}$  nachgewiesen. Die Absenz von  $^{131}\text{I}$  in der Luft bestätigen auch die Histogramme der durchschnittlichen  $^{131}\text{I}$  Konzentration gemessen auf den Stationen in Fribourg und Bellinzona in Abbildung 6, die eine Gaußsche Glockenkurve mit einem Mittelwert von Null zeigen.



**Abbildung 5 :**  
Gleitende 7-Tagessumme der Anzahl Detektionen durch den URAnet aero Monitor, verglichen mit dem Zeitverlauf der Wochenmittelwerte der  $^7\text{Be}$  Aktivitätskonzentrationen des Hochvolumensammlers auf den Stationen in (a) CERN und (b) Güttingen.

## Schlussfolgerung

Die 15 nuklidspezifischen Aerosolmonitore des Messnetzes URAnet aero haben im Jahr 2022 zuverlässig Gamma-Spektren mit guter Auflösung erzeugt. Weder die Aerosolsammler noch die Iod-Monitore konnten 2022 künstliche Radionuklide feststellen. Die gute Justage und automatische Anpassung der Energiekalibration der Germanium-Detektoren erlaubt die Messung der Radontöchter  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{208}\text{Tl}$  aus der Thorium-Zerfallsreihe und teilweise auch von kosmogenem  $^7\text{Be}$  trotz der in den Spektren dominanten Peaks von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe. Die Zeitverläufe von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{212}\text{Pb}$  sind in den Wintermonaten entkoppelt, was wahrscheinlich mit der unterschiedlichen Halbwertszeit der Radon-Isotope aus den beiden Zerfallsreihen und der Bodenbeschaffenheit zusammenhängt. Die Detektionslimite der Aerosolmonitore für  $^7\text{Be}$  reicht gerade aus, um in einigen Fällen die höheren Aktivitätskonzentrationen im Frühling und im Sommer nachzuweisen. Die Anzahl Detektionen pro Zeiteinheit folgt in etwa den mit den Hochvolumensammlern gemessenen Aktivitätskonzentrationen.



**Abbildung 6 :**  
Histogramm der Durchschnittskonzentration von  $^{131}\text{I}$  auf den Stationen PSI und CERN im Jahr 2022.