

# Unmittelbare Messung der natürlichen und künstlichen Radioaktivität der atmosphärischen Luft

HELMUT STOCKBURGER und ALBERT SITTKUS

Max-Planck-Institut für Kernphysik, Außenstelle Freiburg-Schauinsland

(Z. Naturforsch. 21 a, 1128—1132 [1966]; eingegangen am 21. März 1966)

*Professor Dr. W. GENTNER zum 60. Geburtstag gewidmet*

Das radioaktive Aerosol der atmosphärischen Luft wird nach dem Filterverfahren abgeschieden. Während der Durchsaugung wird die gesamte  $\beta$ -Strahlung, die  $\alpha$ -Strahlung von RaA und RaC' und die des ThC' getrennt gemessen. Das konstante  $\alpha/\beta$ -Verhältnis der Zerfallsraten der natürlichen Strahler wird benutzt, um die von Spaltprodukten herrührende  $\beta$ -Aktivität direkt zu bestimmen.

Die Messung der Radioaktivität der atmosphärischen Luft erfolgt bevorzugt nach dem Filterverfahren<sup>1</sup>. Den überwiegenden Beitrag zur natürlichen Aktivität liefert die Ra-Emanation und ihre Folgeprodukte. Die Aktivität beträgt in Bodennähe über dem Festland im Langzeitmittel etwa  $10^{-10}$  Curie/m<sup>3</sup>. Sie schwankt, abhängig von der örtlichen Lage der Meßstelle und den Wetterbedingungen, zwischen etwa  $10^{-11}$  und  $10^{-9}$  Curie/m<sup>3</sup>. Für die Ra-Emanation und ihre kurzlebigen Folgeprodukte (RaA, RaB, RaC, RaC') kann radioaktives Gleichgewicht in der Luft angenommen werden. Beim langlebigen RaD wirkt sich die gegenüber der Halbwertszeit kurze Verweilzeit in der Atmosphäre so aus, daß für RaD, RaE und RaF bei der hier verwendeten Meßmethode vernachlässigbar kleine Aktivitäten von  $10^{-14}$  und  $10^{-15}$  Curie/m<sup>3</sup> auftreten<sup>2-4</sup>.

Einen weiteren Beitrag zur natürlichen Aktivität liefert die Th-Em und ihre Folgeprodukte. Hier ist ThB das langlebigste Isotop in der Zerfallsreihe. Radioaktives Gleichgewicht mit den kurzlebigen Vorfprodukten ThA und Th-Em wird meist nicht bestehen, während zwischen ThB und den Folgeprodukten keine großen Abweichungen zu erwarten sind. Da ThA (0,158 sec) nur sehr wenig zur Filteraktivität beiträgt, wird bei dieser Methode der ThB-Gehalt der Luft erfaßt.

Andere natürliche radioaktive Beimengungen der Luft tragen zur Aktivität weniger als  $10^{-14}$  Curie/m<sup>3</sup> bei.

<sup>1</sup> O. HAXEL, Z. angew. Phys. 5, 241 [1953].

<sup>2</sup> O. HAXEL u. G. SCHUMANN, Z. Phys. 142, 127 [1955].

<sup>3</sup> J. H. BLIFFORD, L. B. LOCKHART JR. u. H. B. ROSENSTOCK, J. Geophys. Res. 57, 499 [1952].

<sup>4</sup> L. LEHMANN u. A. SITTKUS, Naturw. 1, 9 [1959].

Die künstliche Aktivität der Luft rührte bisher im wesentlichen von Atombombenexplosionen her. Abhängig von der Zahl, der Stärke und der Entfernung wurden in Westdeutschland mittlere  $\beta$ -Aktivitäten bis zu einigen  $10^{-11}$  Curie/m<sup>3</sup> beobachtet. Die Lebensdauer dieser Produkte übersteigt meist einige Tage.

Während bei den Folgeprodukten der Ra- und Th-Emanation vergleichbare  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Intensitäten auftreten, überwiegen in den Atombombenschwaden  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlen. Die Unterschiede in der Strahlenzusammensetzung und Energie eignen sich zur Entwicklung von Verfahren zur direkten Bestimmung der Einzelkomponenten<sup>5</sup>. Die von uns verwandte Methode benutzt die Unterschiede der  $\alpha$ -Energien von RaC' und ThC' zur Trennung der Anteile der Ra- und Th-Emanation. Für die Bestimmung der Spaltproduktaktivität wird ausgenutzt, daß in den Atombombenschwaden im Gegensatz zu den Emanations-Folgeprodukten der  $\alpha$ -Anteil verschwindend klein ist. Daten für die bei der Messung wesentlichen Isotope sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Mit der unmittelbaren Messung der radioaktiven Komponenten wurde 1958<sup>6</sup> begonnen. Auf der Meßstation Schauinsland (1200 m über NN) bei Freiburg wird Luft aus 2,5 m Höhe über dem Erdboden durch ein feststehendes Aerosolfilter (Millipore Typ RA, Porenweite 1,2  $\mu\text{m}$ ) angesaugt. Die Filterfläche beträgt 300 cm<sup>2</sup>. Die Förderleistung wird auf 65 m<sup>3</sup>/h konstant gehalten. Über dem Filter sind in 14 mm Abstand drei Methandurchflußzählrohre gleicher

<sup>5</sup> R. EHRET, H. KIEFER u. R. MAUSHART, Kerntechnik 3, 97 [1963].

<sup>6</sup> H. STOCKBURGER u. A. SITTKUS, Vortrag auf der Arbeits- tagung Schwebstofftechnik, Mainz 1958.



1. Natürlich radioaktive Isotope					
Isotop	Halbwertszeit	Zerfall %	$\alpha$ -Energie MeV	mittlere $\alpha$ -Reichw. in Luft cm	max. $\beta$ -Energie MeV
RaA	3,05 m	$\alpha$	5,998	4,657	—
RaB	26,8 m	$\beta$	—	—	0,65
RaC	19,7 m	$\beta$	—	—	3,15
RaC'	$1,55 \cdot 10^{-4}$ sec	$\alpha$	7,6802	6,907	—
ThB	10,6 h	$\beta$	—	—	0,355 0,589
ThC	60,5 m	$33,7 \alpha$ $66,3 \beta$	6,054	4,730	2,2
ThC'	$3 \cdot 10^{-7}$ sec	$\alpha$	8,7759	8,570	—
ThC''	3,1 m	$\beta$	—	—	1,792

2. Spaltproduktisotope					
Zeitlich veränderliches Gemisch vieler radioaktiver Isotope mit max. $\beta$ -Energien von 0,14 bis 2,2 MeV. Für nicht zu alte Produkte ist eine max. $\beta$ -Energie von etwa 0,5 bis 0,7 MeV eine brauchbare Näherung.					

Tab. 1.

Fläche in Sandwichform angebracht und allseitig mit 5 cm Blei abgeschirmt (vgl. Abb. 1). Die Zählrohre arbeiten im Proportionalbereich derart, daß das untere Zählrohr  $\alpha$ -Strahlung von RaA, RaC', ThC und ThC', das mittlere Zählrohr nur  $\alpha$ -Strahlen von ThC' erfaßt. Das obere Zählrohr mißt die durch 10 mg/cm<sup>2</sup> gefilterte  $\beta$ -Strahlung der Ra-Em- und Th-Em-Folgeprodukte und der Spaltprodukte. Für die während des Betriebes gemessene Filteraktivität ist neben der Konzentration in der Luft auch die Halbwertszeit der abgeschiedenen Isotope maßgebend. Für den Grenzfall, daß die Halbwertszeit klein gegen die Saugdauer ist, stellt sich bei konstanter Konzentration der Luft Filtergleichgewicht ein. Die Aktivität ist dann proportional der Luftaktivität. Im anderen Grenzfall sehr langlebiger Aerosole ist der Anstieg der Filteraktivität proportional der Konzentration in der Luft<sup>7</sup>.

Die Messung der ThB-Aktivität erfolgt über die  $\alpha$ -Strahlung von ThC' im mittleren Zählrohr. Für das Erreichen des Sättigungswertes auf dem Filter ist die Halbwertszeit von ThB (10,6 h) maßgebend. Daher kann nicht immer mit Filtergleichgewicht gerechnet werden. Es können Änderungen der Konzentration der Luft auftreten, bevor der Gleichgewichtszustand erreicht ist. Eine Bestimmung der momentanen Luftaktivität ist jedoch möglich, wenn man außer der Zerfallsrate auf dem Filter auch deren zeitliche Änderung berücksichtigt.

Zur Messung der Ra-Em-Aktivität wird die im unteren Zählrohr erfaßte  $\alpha$ -Zählrate benutzt. Dabei wird mit Hilfe des ThC'-Zählrohres der störende Anteil von ThC und ThC' ermittelt und subtrahiert. Abgesehen von kurzezeitigen Störungen bei schnellen Konzentrationsänderungen der Luft besteht bei den Ra-Em-Produkten Filtergleichgewicht. Die Zerfallsrate entspricht der momentanen Aktivität in der Luft.

Betrachtet man das Verhältnis der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Zerfallsraten der Ra-Em-Produkte auf dem Filter, so bleibt dieses auch bei kleinen Abweichungen vom Filtergleichgewicht praktisch konstant. In der ThB-Reihe wirken sich Störungen im Filtergleichgewicht noch weniger aus. Daher kann auch hierfür ein konstanter Wert (verschieden vom Wert der Ra-Em-Produkte) angenommen werden<sup>8</sup>. Dann kann aus der Messung der  $\alpha$ -Strahlung der Ra-Em- und ThB-Produkte der Anteil, den sie zur  $\beta$ -Strahlung im oberen Zählrohr beitragen, bestimmt und von der gemessenen Brutto- $\beta$ -Impulsrate abgezogen werden. Die Differenz ist die Spaltproduktaktivität. Bei dieser Methode läßt sich die exakte Subtraktion der beiden natürlichen Aktivitätsanteile allein in den elektronischen Bauteilen der Anlage einstellen. Das Verfahren bleibt dadurch flexibel und läßt sich leicht verschiedenen Aerosolfiltertypen (Änderungen der Eindringtiefe) und Zählrohrkonstruktionen (Geometrie und Fensterdicke) anpassen. Unter Verzicht auf eine ThB-Messung wurde die Subtraktion zur Ermittlung

<sup>7</sup> G. SCHUMANN, Arch. Meteorol. Geophys. Bioklimatol. Ser. A, 9, 204 [1956].

<sup>8</sup> J. H. SPAÄ, Genfer Konferenz P/1473 [1958].

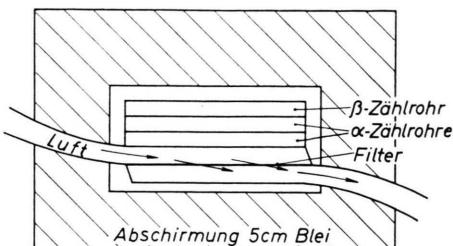
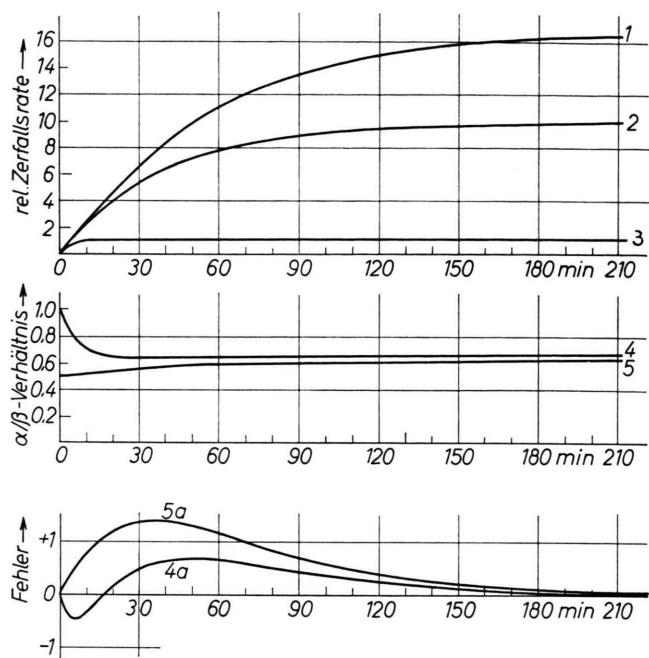


Abb. 1. Meßkopf.

Abb. 2. Zeitlicher Verlauf der Filteraktivität bei sprunghafter Änderung der Ra-Em-Konzentration. (1) RaC und RaC', (2) RaB und (3) RaA-Anklingkurven. (4)  $\alpha/\beta$ -Verhältnis, wenn alle Komponenten gleichmäßig gemessen werden, und daraus resultierende Fehlerkurve (4 a) für die Spaltproduktmessung. (5)  $\alpha/\beta$ -Verhältnis ohne Berücksichtigung von RaA und daraus resultierende Fehlerkurve (5 a).

der momentanen Spaltproduktaktivität von SPAA<sup>8,9</sup> mit nur einer  $\alpha$ -Messung durchgeführt. Durch passende Wahl von *Absorberfolien* vor dem  $\beta$ -Zählrohr erreicht er dabei, daß das Verhältnis der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Impulsraten für die beiden natürlichen Reihen gleich wird.

Die direkte Spaltproduktmessung nach der Differenzmethode setzt konstantes  $\alpha/\beta$ -Verhältnis in den natürlichen Reihen voraus. Bei Änderungen der Konzentration der Luft ist diese Bedingung nicht exakt erfüllt. Bis sich die neuen Filtergleichgewichte einstellen ist daher die Spaltproduktmessung verfälscht. Der extremste Fehler tritt bei einer sprunghaften Änderung des Ra-Em-Gehaltes der Luft ein. In Abb. 2 ist der Anstieg der einzelnen Komponenten für einen solchen Fall dargestellt. Die Kurve 1 zeigt, daß keine Beeinflussung der Differenzmessung eintritt, wenn nur die  $\alpha$ -Strahlung von RaC' und die  $\beta$ -Strahlung von RaC gemessen wird. In diesem Fall müssen alle  $\beta$ -Energien unter 0,65 MeV abgeschnitten werden. Damit wird aber auch der überwiegende Teil an Spaltprodukten von der Messung ausgeschlossen. Der zeitliche Verlauf des  $\alpha/\beta$ -Wertes für den Fall, daß alle Ra-Em-Folgeprodukte gleichmäßig gut erfaßt werden, ist in Kurve 4 dargestellt. Wenn die Nachweisempfindlichkeit für RaA sehr klein ist, er-



gibt sich Kurve 5. Die Auswirkung der beiden Grenzfälle auf den Verlauf der Differenzmessung zeigen die Kurven 4 a und 5 a. Die geringsten Störungen der Spaltproduktregistrierung durch Schwankungen des Ra-Em-Gehaltes erhält man, wenn RaA möglichst gut mitgemessen wird. Eine sprunghafte Änderung der Ra-Em-Konzentration der Luft um  $10^{-10}$  Curie/m<sup>3</sup> (eines der seltenen Beispiele ist in Abb. 3 wiedergegeben) ergibt in der ersten Stunde bei der Spaltproduktmessung einen Fehler von etwa  $5 \cdot 10^{-12}$  Curie/m<sup>3</sup>. Bei Mittelung über längere Zeiträume verringert sich der Fehler proportional der Zeit. Im allgemeinen erfolgen die Konzentrationsänderungen langsamer (Abb. 4). Dadurch wird der Fehler bei der momentanen Bestimmung der Spaltproduktkonzentration noch verkleinert.

Für Messungen der  $\alpha$ -Aktivität ist eine geringe Eindringtiefe der abgeschiedenen Aerosole im Filter notwendig. Auch im Betrieb darf sich das Energiespektrum der austretenden  $\alpha$ -Strahlung nicht ändern, wenn die abgeschiedene Staubmenge wächst. Untersuchungen der Eindringtiefe von radioaktiv markiertem Aerosol<sup>10</sup> ergaben, daß in unserer Anordnung 80% des Aerosols in einer Filterschicht von etwa 0,3 mg/cm<sup>2</sup> absorbiert werden. Auch bei dem Aufbau der Staubschicht, die nun ihrerseits als Filter

<sup>8</sup> J. H. SPAA, Health Phys. 4, 25 [1960].

<sup>10</sup> A. SITTKUS u. K. BACKHEUER, Staub 23, (Nr. 9) 419 [1963].

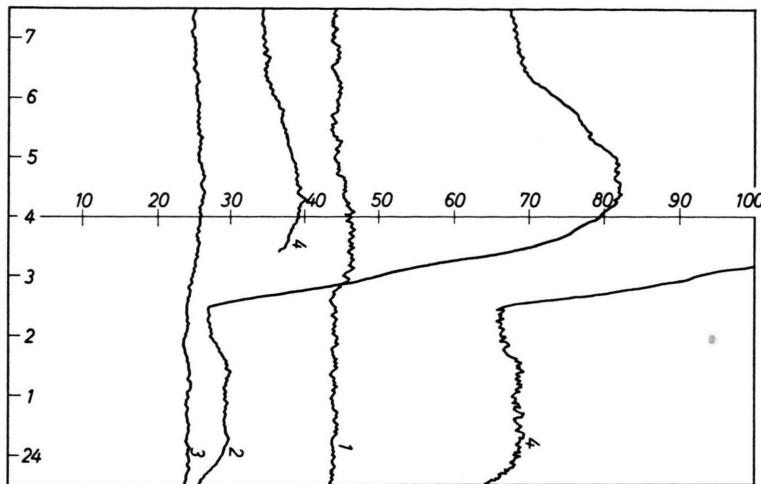


Abb. 3. Störung der Spaltproduktregistrierung bei einer sprunghaften Ra-Em-Konzentrationsänderung von 0,4 auf  $1,4 \cdot 10^{-10}$  Curie/m<sup>3</sup>. (1) Spaltproduktaktivität (eine Steigung von 1 Skt/h entspricht  $4,5 \cdot 10^{-12}$  Curie/m<sup>3</sup>). (2) Ra-Em-Aktivität. (3) ThB-Aktivität. (4) Brutto-β-Aktivität. Die Änderung erfolgte bei einem Einbruch kontinentaler Kaltluft am 21. 2. 1963 um 02<sup>30</sup> WZ.

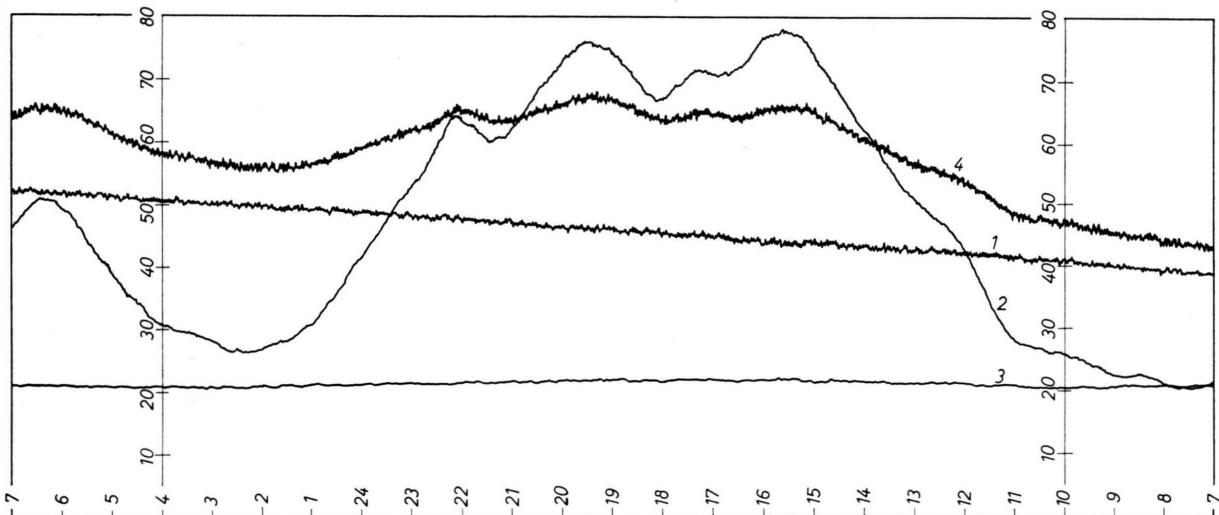


Abb. 4. Verlauf der Filteraktivität vom 1. 2. 1963, 07<sup>00</sup> WZ, bis 2. 2. 1963, 07<sup>00</sup> WZ. (1) Spaltproduktaktivität  $8,3 \cdot 10^{-12}$  Curie/m<sup>3</sup> (konstant). (2) Ra-Em-Aktivität, langsame Schwankungen zwischen  $0,3$  und  $1,3 \cdot 10^{-10}$  Curie/m<sup>3</sup>. (3) ThB-Aktivität ( $< 10^{-14}$  Curie/m<sup>3</sup>). (4) Brutto-β-Aktivität.

wirkt, trat für das auf dem Schauinsland erfaßte Aerosol darin keine Änderung ein. Ein Einfluß auf den gemessenen  $\alpha/\beta$ -Wert tritt daher nur dann ein, wenn der Zuwachs der Staubschicht so schnell erfolgt, daß für früher abgeschiedene  $\alpha$ -Strahler merkbliche Absorption eintritt. Sieht man von den ThB-Folgeprodukten ab, deren Beitrag zur Filteraktivität gegenüber den Ra-Em-Folgeprodukten für die folgende Abschätzung vernachlässigt werden kann, so ist die Halbwertszeit von RaB für das maximal zulässige Wachstum der Aerosolschicht maßgebend.

Soll der bei der Spaltproduktmessung auftretende Fehler durch die abgeschiedene Aerosolschicht bzw. deren Wachstumsschwankung bei wechselndem Staubgehalt der Luft die Größe des Fehlers durch Ra-Em-Konzentrationsschwankungen nicht überschreiten, so darf die Staubbelaadung des Filters bis  $5 \cdot 10^{-5}$  mg/cm<sup>2</sup>·sec betragen. Die Wahl der Filterfläche und der Durchflußmenge muß daher nach dem am Aufstellungsort der Apparatur vorherrschenden mittleren Staubgehalt erfolgen. Bei der hier beschriebenen Apparatur (Filterfläche 300 cm<sup>2</sup>, Durchflußmenge

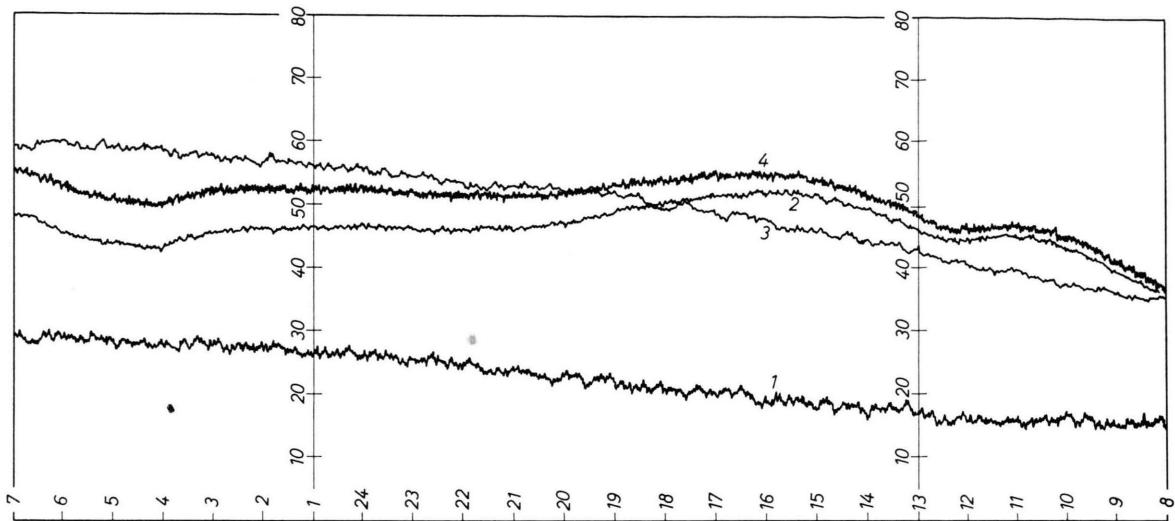


Abb. 5. Verlauf der Filteraktivität vom 19. 9. 1963, 08<sup>00</sup> WZ, bis 20. 9. 1963, 07<sup>00</sup> WZ, bei höherer Ra-Em- und ThB-Konzentration. (1) Spaltproduktaktivität (eine Steigung von 1 Skt/h entspricht  $4,5 \cdot 10^{-12}$  Curie/m<sup>3</sup>). (2) Ra-Em-Aktivität (1,8 bis  $2,7 \cdot 10^{-10}$  Curie/m<sup>3</sup>). (3) ThB-Aktivität (0,7 bis  $1,8 \cdot 10^{-12}$  Curie/m<sup>3</sup>). (4) Brutto-β-Aktivität. [Die Kurven (2) und (4) sind in einem unempfindlicheren Meßbereich gemessen.]

65 m<sup>3</sup>/h) beträgt der zulässige Staubgehalt der Luft etwa 1 mg/m<sup>3</sup>. Gewichtsbestimmungen der auf den Filtern am Meßort abgeschiedenen Aerosolmengen ergaben Tageswerte bis zu 0,1 mg/m<sup>3</sup> (Stadtluft 0,2 – 25 mg/m<sup>3</sup>), so daß eine ausreichende Sicher-

heit für den ungestörten Betrieb der Anlage vorhanden ist.

Die Untersuchungen wurden mit Unterstützung der Schutzkommision beim Bundesministerium des Innern durchgeführt.