

Radon: das Schöne und das Biest

AUTOREN

Annette Röttger
Stefan Röttger
Florian Mertes
Ute Karstens
Valeria Gruber
Ingeborg Levin

ZUSAMMENFASSUNG

Das Projekt traceRadon will präzise Online-Daten über Radon-Werte in der Außenluft für den Strahlenschutz wie auch für die Klimabeobachtung ermöglichen. Die besondere messtechnische Herausforderung für die Atmosphärenbeobachtung und den allgemeinen Strahlenschutz stellen die niedrigen Radon-Aktivitätskonzentrationen in der Umwelt von 1 Bq m^{-3} bis maximal 100 Bq m^{-3} dar. Außerdem fehlt die metrologische Infrastruktur zur Kalibrierung von Radon-Flussmessungen aus dem Boden. Hochaufgelöste Karten des Radon-Flusses wären neben der Verwendung in Transport- und Klimamodellen von großem Nutzen für die Umsetzung und Ressourcenlenkung der EU-Mitgliedsstaaten im Rahmen des jeweiligen nationalen Radon-Maßnahmenplans.

SUMMARY

Radon: The Beauty and the Beast

The traceRadon project aims to provide precise online data on radon levels in the outdoor air for the benefit of radiation protection as well as climate monitoring. The metrological challenge for atmospheric observation and general radiation protection is the low radon activity concentrations in the environment from 1 Bq m^{-3} to a maximum of 100 Bq m^{-3} . In addition, the metrological infrastructure to calibrate radon flux measurements from the ground is lacking. High-resolution maps of radon flux, in addition to their use in transport and climate models, would be of great benefit for implementation and resource management by EU member states under their respective national radon action plans.

Das Projekt traceRadon

Zwischen Klimabeobachtung und Strahlenschutz der Bevölkerung bildet das natürlich vorkommende Edelgas ^{222}Rn (im weiteren Radon) eine Brücke: Mit dem radioaktiven Tracer Radon lassen sich Austauschprozesse sowohl zwischen Boden und Atmosphäre als auch in der Atmosphäre selbst untersuchen; teilweise ist sogar die Abschätzung von Treibhausgasflüssen möglich. Dies liefert neue Eingangsdaten für die Klimamodellierung.



Das europäische Metrologie-Projekt EMPIR 19ENV01 traceRadon

Durch das europäische Metrologie-Projekt EMPIR 19ENV01 traceRadon¹⁾ werden Radon-Messungen in der Außenluft auf das SI-Einheitensystem rückgeführt. Metrologie ist die Wissenschaft des Messens, und zwar bezüglich absoluter Werte mit der zugeordneten Unsicherheit dieser Messung. Im Allgemeinen wird dies durch Kalibrierungen erreicht. Man bezeichnet den Vorgang der Kalibrierung deshalb auch als Rückführung auf das internationale Einheitensystem SI (Système international d'unités).

Ziele des Projektes traceRadon

Was aber tun, wenn es nichts gibt, gegen das man kalibrieren kann?

Dann braucht man, metrologisch gesprochen, eine neue Rückführung. Dies

ist das erste große Ziel des Projektes traceRadon [1], eine Rückführung mittels neuer Kalibrierverfahren für Klimabeobachtung und Strahlenschutz zu entwickeln.

Mit der Anwendung dieser

Rückführung auf Radon-Messungen in den Klimabeobachtungs-Netzwerken,

Internationales Einheitensystem SI

¹⁾ This project has received funding from the EMPIR programme co-financed by the Participating States and from the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme. 19ENV01 traceRadon denotes the EMPIR project reference.

wie z. B. dem Europäischen Integrated Carbon Observation System (ICOS), entstehen so zum ersten Mal Daten zu Radon-Aktivitätskonzentrationen in der Atmosphäre und zu Radon-Flüssen aus dem Boden, die im metrologischen Sinne validiert und somit vergleichbar

Mess-technischer Glücksfall

sind. Zusätzlich bieten die Fluss-, aber auch die Atmosphärenmessungen die Möglichkeit, die Kartierung und Ausweisung von Radon-Gebieten, sogenannte Radon Priority Areas, europaweit zu verbessern. Dies zu erproben, ist das zweite große Ziel des Projektes traceRadon.

So betrachtet ist das radioaktive Radon für die Klimabeobachtung ein messtechnischer Glücksfall und im Sinne dieses Artikels „das Schöne“.

Der Strahlenschutz erlebt das Edelgas Radon ganz anders: Eine hohe Radon-Aktivitätskonzentration in der Umgebungsluft gilt als Risikofaktor für die Entstehung von Lungenkrebs. So stützen sich die jeweilige nationale und europäische Gesetzgebung auf Empfehlungen der Internationalen Atomenergiebehörde IAEA und der Welt-

gesundheitsorganisation WHO zur Reduzierung des Radons in Gebäuden. Das zu erreichen ist häufig aufwendig, teuer und fast immer messtechnisch eine Herausforderung. So ist Radon für den Strahlenschutz in der Tat „das Biest“.

In diesem Artikel treffen unterschiedliche wissenschaftliche Welten aufeinander, die voneinander bisher wenig wussten: Klimabeobachtung und Strahlenschutz. Dabei verbindet sie ein gemeinsamer Bedarf an Metrologie. So wird dieser Artikel aus der Sicht dreier Disziplinen geschrieben, die dabei noch eine ganz andere Herausforderung zu bewältigen haben: eine gemeinsame Sprache zu finden!

Motivation für das gemeinsame Projekt traceRadon

Im Rahmen der Erdsystemforschung sind in den letzten Jahrzehnten zunehmend genauere Untersuchungen der Austauschprozesse, die sogenannten Flüsse der Treibhausgase (THG), in den Fokus gerückt. Kontinuierliche Messungen von THG-Flüssen (CO_2 , CH_4 , N_2O) zwischen verschiedenen Ökosystemen und der Atmosphäre sind ausgesprochen heterogen, da sie

durch die lokalen Gegebenheiten sowie die meteorologischen Bedingungen dominiert werden. Lokale THG-Flussmessungen auf der Meter- bis Kilometer-Skala sind deshalb oft nicht repräsentativ für die regionalen Austauschraten auf der Skala etlicher Kilometer.

Hier kann das natürlich vorkommende Edelgas Radon als Tracer genutzt werden, weil Radon außer seinem Zerfall keine natürliche Senke hat. Eine Senke entsteht durch Aufnahmeprozesse im Ökosystem, wie beispielsweise die Reduzierung der Konzentration von CO_2 in der Luft durch den Prozess der Photosynthese.

Für Radon gibt es keinen solchen Prozess. Deshalb kann man es nutzen, um bei bekanntem Radon-Fluss aus dem Boden nächtliche Treibhausgasflüsse aus atmosphärischen Beobachtungen abzuleiten. Dies bezeichnet man als Radon-Tracer-Methode. Ebenso können regionale atmosphärische Transportmodelle, wie sie z. B. in der Wettervorhersage verwendet werden, mit Radon als Transport-Tracer überprüft werden.

Im Rahmen des im Jahr 2020 gestarteten EMPIR-Projekts traceRadon werden neue Rückführungen bzgl. der Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre sowie für den Radon-Fluss aus dem Boden entwickelt. Rückführung im metrologischen Sinne bedeutet, dass das Messverfahren an das SI-Einheitensystem im zu erwartenden Messbereich angeschlossen ist. Wichtiger Bestandteil der Kalibrierung und der Messung ist dann die Zuordnung einer Unsicherheit, die alle einzelnen Unsicherheitsbeiträge (Statistik der Messung, Unsicherheit der Kalibrierung, Nulleffekt etc.) enthält. Da Radon sich als Tracer für die Klima-

Edelgas Radon als Tracer

Empfindliche Radon-Monitoren

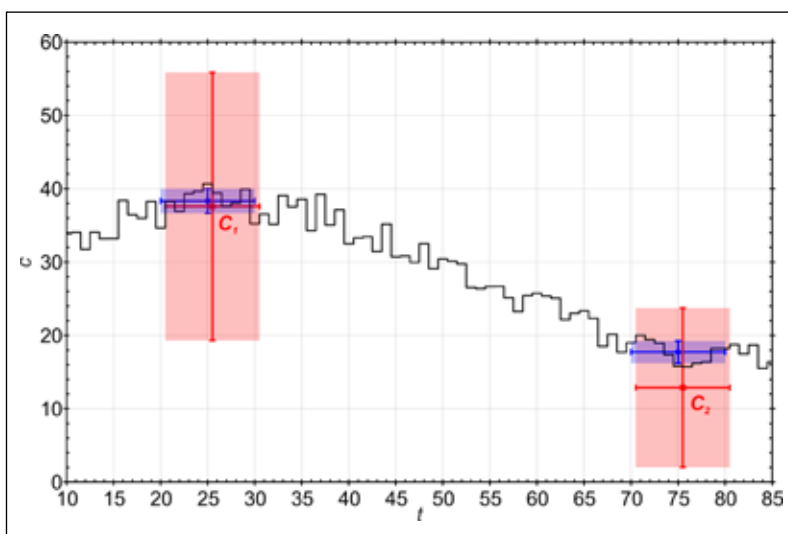


Abb. 1: Schematische Darstellung von Anzeigewerten (c in Schwarz) eines Messsystems, den Mittelwerten und der statistischen Unsicherheit bei einer Mittelung über 10 Werte im Bereich relativer Stabilität (\bar{c}_a in Blau) und der berechneten Aktivitätskonzentration mit der Unsicherheit für die absoluten Werte (c_1 und c_2 in Rot), wobei $c_{1,2} = k \cdot (\bar{c}_a - c_0)$ mit dem Kalibrierfaktor k Abzug des Nulleffekts c_0 berechnet wird; Unsicherheiten nach [2]

beobachtung so gut eignet, wurden zu diesem Zweck sehr empfindliche Radon-Monitore entwickelt. Empfindlich heißt, dass selbst bei kleinen Aktivitätskonzentrationen kleine Veränderungen in kurzer Zeit beobachtet werden können. Die Fähigkeit, relative Änderungen mit einer kleinen Unsicherheit zu beobachten, sagt aber nichts über die Unsicherheit des Absolutwertes aus (Abb. 1).

Bei der Annahme, dass die Aktivitätskonzentration c_a aus der Anzeige des Messgerätes c_a nach Abzug des Eigennulleffekts c_0 multipliziert mit einem Kalibrierfaktor k bestimmt werden kann, also $c = k \cdot (c_a - c_0)$, wird schnell klar, dass der Kalibrierfaktor und seine Unsicherheiten bei der Betrachtung von Quotienten von Werten eines Messsystems c_1/c_2 sich herauskürzen. Deshalb sind relative Schwan-

kungen auch deutlich leichter zu messen als absolute Werte. Trotzdem ist die Unsicherheit des Nulleffekts auch bei der Betrachtung relativer Werte eine Ursache

von Messunsicherheit. Das bedeutet, dass die bisher fehlende Rückführung verhindert, dass die Radon-Messungen geräteunabhängig verglichen werden können.

Da die Messgeräte meist fest an einem Standort installiert sind, ist es Ziel des Projektes, eine transportable Kalibriermöglichkeit für sie zu entwickeln.

Auch wenn Radon mit seinen Folgeprodukten am meisten zur natürlichen Strahlenexposition des Men-

schen beiträgt, wurde es wegen der Anreicherung in Gebäuden historisch nur als Innenraum-Schadstoff betrachtet. Auch die Netzwerke des radiologischen Notfallschutzes besitzen

keine geeignete Außenluft-Messtechnik, obwohl die Radon-Folgeprodukte den größten Anteil an der Variation

der Ortsdosisleistung aus natürlichen Quellen ausmachen. Dies ist insbesondere auch deshalb relevant, da das niederschlagsbedingte Auswaschen von Radon-Folgeprodukten für den Hauptanteil aller Fehlalarme verantwortlich ist. Trotzdem stellen die zeitlich dynamischen Ortsdosisleistungs-Karten das Vorbild für die Entwicklung von dynamischen europäischen Radon- und Radon-Fluss-Karten dar.

Die besondere metrologische Herausforderung für die Atmosphärenbeobachtung und den allgemeinen Strahlenschutz nach der europäischen Strahlenschutzgesetzgebung sind die niedrigen Radon-Aktivitätskonzentrationen in der Außenluft von 1 Bq m^{-3} bis maximal 100 Bq m^{-3} sowie die grundsätzlich fehlende metrologische Infrastruktur zur Kalibrierung von Radon-Fluss-Messungen aus dem Boden. Hoch aufgelöste Karten des Radon-Flusses wären neben der Verwendung in Transport- und Klimamodellen auch von großem Nutzen für die Umsetzung und Ressourcenlenkung der EU-Mitgliedsstaaten im Rahmen des jeweiligen nationalen Radon-Maßnahmenplans.

Warum ist Radon für die Klimabeobachtung interessant?

Radon ist das gasförmige Folgeprodukt der natürlichen ^{238}U -Zerfallsreihe. Nachdem es im festen Bodenmaterial durch Zerfall von ^{226}Ra (im weiteren Radium) gebildet wurde, kann Radon durch Rückstoß beim Zerfall oder durch Fehlstellen aus den Bodenkörnern in den mit Luft gefüllten Porenraum des Bodens entweichen und gelangt von dort über Diffusion in die Atmosphäre. Hier nimmt das radioaktive Edelgas während seiner Lebensdauer von 5,5 d (was einer Halbwertszeit $T_{1/2} = \ln(2) = 3,8 \text{ d}$ entspricht) ebenso wie andere Gase, die in Bodennähe freigesetzt werden, an allen (turbulenten) Transportprozessen teil.

Im Gegensatz zu den klimarelevanten Treibhausgasen, wie z. B. Kohlend-

oxid (CO_2), welches von Pflanzen sowohl aufgenommen (Photosynthese) als auch abgegeben (Respiration) wird, hat Radon aber nur eine wohlbekannte Senke, den radioaktiven Zerfall. Mit seiner nahezu idealen Lebensdauer, die einerseits lang genug ist, um sich bei z. B. schlechter Durchmischung der Atmosphäre nachts in Bodennähe anzureichern, andererseits aber kurz genug, um in der Atmosphäre deutliche vertikale und horizontale (zwischen maritimen und kontinentalen Luftmassen) Gradienten aufzubauen, ist seine zeitliche wie auch örtliche Verteilung hauptsächlich durch atmosphärischen Transport bestimmt. Mit dieser Eigenschaft stellt es einen idealen Tracer zur Untersuchung der damit verbundenen Mischungsprozesse dar. Zur Veranschaulichung sind in Abbildung 2 (links) parallele Messungen von Radon, CO_2 und CH_4 (Methan) zusammen mit der Windgeschwindigkeit dargestellt. Die Messungen wurden 30 m über dem Boden auf dem Dach des Instituts für Umweltphysik der Universität Heidelberg im Sommer 1996 durchgeführt.

Der Gleichlauf der Konzentrationsvariationen (Abb. 2, links) sowie die gute Korrelation aller 3 Gase (Abb. 2, rechts) mit stark unterschiedlichem Quell- und Senken-Verhalten zeigen, dass diese Variationen hauptsächlich durch die Variation der atmosphärischen Mischung zustande kommen: Bei sehr schwachem Wind, besonders in den Nächten vom 15. bis 16. und vom 16. bis 17.8.1996, hat sich jeweils eine stabile Schichtung in der bodennahen Atmosphäre ausgebildet, in der alle am Boden emittierten Gase akkumulieren. Bei genauer Kenntnis des Radon-Flusses aus dem Boden im Einzugsgebiet der Station können aus den Steigungen der Korrelationen die nächtlichen Treibhausgas-Flüsse bestimmt werden (Radon-Tracer-Methode).

Atmosphärischer Transport

Unsicherheit des Nulleffekts

Auswaschen von Radon-Folgeprodukten

Vereinfacht lässt sich dies in folgender Formel darstellen, wobei j für die Flüsse und für die Änderung der Konzentration von Radon bzw. des betrachteten THGs stehen:

$$\dot{J}_{THG} = \dot{J}_{Rn} \frac{c_{THG}}{c_{Rn}}$$

Es ist darüber hinaus wichtig zu bemerken, dass es insbesondere die nächtlichen Inversionswetterlagen sind, die in den atmosphärischen Transportmodellen noch unzureichend simuliert werden können. Daher kann mithilfe gut vergleichbarer Radon-Aktivitätskonzentrationsmessungen in der Atmosphäre bei bekannter Verteilung des Radon-Aktivitätsflusses aus dem Boden die Zuverlässigkeit der atmosphärischen Modelle überprüft und verbessert werden.

Die Herausforderung der metrologischen Rückführung

Eine metrologische Rückführung der Aktivitätskonzentration des Radons in der Außenluft von ca. 1 Bq m^{-3} bis 10 Bq m^{-3} und des Radon-Flusses aus dem Boden im Bereich von ca. $20 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ stellt wegen der kleinen Ereigniszahlen große Herausforderungen an die Darstellung mittels Aktivitätsnormalen und an die Weitergabe über Transfornormale (im Allgemeinen Messgeräte).

Zur Illustration der Problematik der kleinen Ereigniszahlen nehme man an, dass ein Radon-Messgerät über ein aktives Volumen von 1 Liter verfüge, so sind bei 10 Bq m^{-3} Zählraten von 36 h^{-1} zu erwarten, was allein statistisch eine Unsicherheit (bei Poisson-Statistik) von 17 % bei einer Messzeit von einer Stunde ergibt. Da man bei einem solchen System zusätzlich die Unsicherheit des Eigenulleffekts, der Linearität und der Kalibrierung berücksichtigen muss, sind die Gesamtmessunsicherheit sowie

Kleine Ereigniszahlen

die Nachweis- und Erkennungsgrenze eines solchen Systems selbst bei idealen Kalibrierbedingungen wenig geeignet, dynamische Vorgänge in der Aktivitätskonzentration in der Außenluft nachzuweisen.

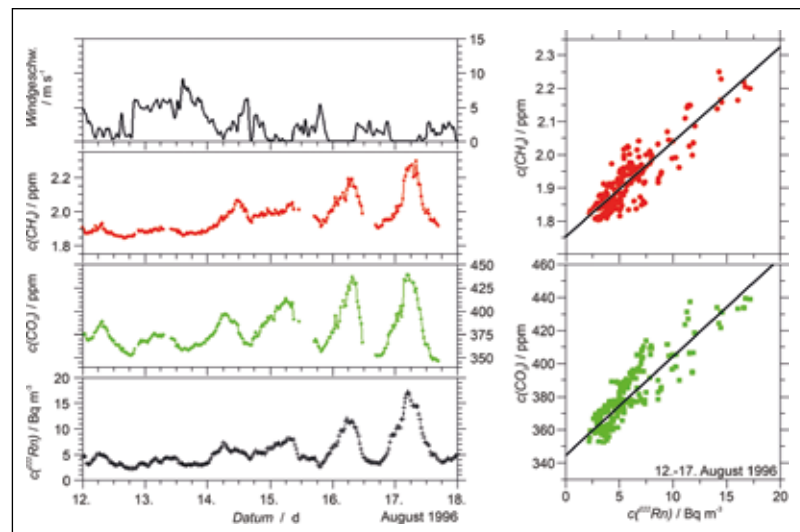


Abb. 2: Verlauf der Windgeschwindigkeit, der CH_4 -, der CO_2 -Konzentration und der Radon-Aktivitätskonzentration in der Außenluft ca. 30 m über dem Boden am Institut für Umweltphysik in Heidelberg (links) und die Korrelation von Radon und CO_2 bzw. CH_4 (rechts); die gute Korrelation aller 3 Komponenten zeigt, dass die Tagesgänge hauptsächlich durch Variationen der atmosphärischen Mischung verursacht wurden; Darstellung angepasst aus [3].

die Nachweis- und Erkennungsgrenze eines solchen Systems selbst bei idealen Kalibrierbedingungen wenig geeignet, dynamische Vorgänge in der Aktivitätskonzentration in der Außenluft nachzuweisen.

Radon-Aktivitätskonzentrations-Messgeräte

Dabei ist die Lösung des statistischen Problems noch vergleichsweise einfach: Durch Vergrößerung des aktiven Volumens für die Radon-Direktmessung oder die Messung der Folgeprodukte mit erhöhtem Durchfluss lassen sich die Zählraten stark erhöhen. Solche Detektoren sind die ANSTO-Monitore (aktives Volumen zwischen 200 L und 1.500 L) und der Atmospheric Radon Monitor ARMON oder der Heidelberg Radon Monitor HRM.

Diese sensitiven Monitoren müssen jedoch unabhängig vom Ort und damit auch von den klimatischen Bedingungen rückführbar kalibriert werden. Somit liegt eine der hauptsächlichen Herausforderungen die Kalibrierung von Radon-Aktivitätskonzentrations-Messgeräten in dem niedrigen Aktivitätskonzentrationsbereich der Atmosphäre in der bodennahen Grenzschicht. Die

Kalibrierung in höheren Aktivitätskonzentrationsbereichen erfolgt klassisch mithilfe von Radon-Gas-Aktivitätsstandards. Eine genau definierte Aktivität von Radon-Gas wird in ein genau bekanntes Volumen überführt und die dadurch erzeugte Aktivitätskonzentration für die Kalibrierung des Gerätes verwendet. Bei einer geringen Aktivitätskonzentration und der relativ kurzen Halbwertszeit des Radons ist wiederum aus statistischen Gründen eine solche Kalibrierung mit kleinen Unsicherheiten nicht möglich. Der Ausweg in diesem Fall ist, eine niedrige, aber konstante Radon-Aktivitätskonzentration herzustellen. Dieses gelingt z. B. mittels Radium-Quellen, die Radon emanieren und somit in einem bekannten Volumen eine zeitlich konstante Aktivitätskonzentration einstellen [4]. Für eine Kalibrierung in der Größenordnung der Außenluft-Aktivitätskonzentration bedeutet dieses aber, dass man einerseits die eingesetzte Radium-Aktivität im Becquerel-Bereich mit der gewünschten Unsicherheit von eini-

Radon-Aktivitätskonzentration?

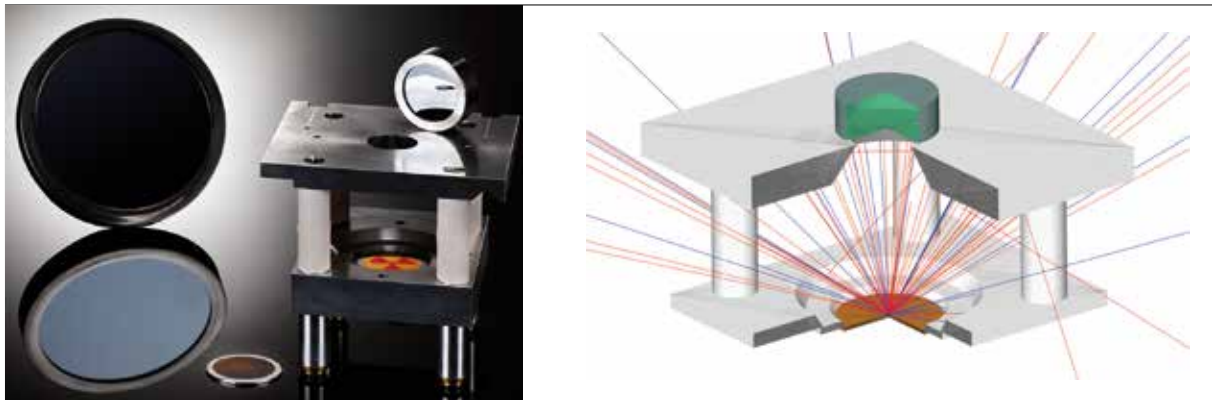


Abb. 3: Das Foto (links) zeigt Silizium-Halbleiterdetektoren in verschiedenen Größen sowie ein geometrisch exakt definiertes und präzise vermessenes Blendensystem, mit dessen Hilfe die absolute Aktivität einer α -Teilchen emittierenden Quelle bestimmt wird. Rechts ist die schematische Darstellung einer Monte-Carlo-Simulation dieses Messsystems abgebildet.

gen Prozent genau bestimmen muss. Zusätzlich muss man andererseits die Emanationsrate der Quelle kennen, also die Menge des abgegebenen Radons, mit vergleichbar kleiner Unsicherheit. Die Bestimmung der Radium-Aktivität erfolgt durch ein primäres Verfahren, die Alpha-Zählung unter definiertem Raumwinkel. Ein Verfahren, welches ohne eine Kalibrierung auskommt, wird in der Metrologie als primär bezeichnet und stellt die Spitze einer jeden Kalibrierhierarchie dar. Hierfür werden ionenimplantierte Silizium-Halbleiterdetektoren verwendet, deren Raumwinkel zur Quelle durch ein präzise vermessenes Blendensystem genau definiert ist [5]. Dadurch wird die Nachweiswahrscheinlichkeit durch Monte-Carlo-Simulationen mit Unsicherheiten $< 1\%$ bestimmbar (Abb. 3).

Quelle-Detektorkombination

Die Emanation der Quelle wird bestimmt, indem man die Aktivität der in der Radium-Quelle verbliebenen Folgeprodukte des Radiums misst. Bei den hier benötigten niedrigen Aktivitäten, alles weit unterhalb der Freigrenze, benötigt man höchste

eine neuartige, in der PTB entwickelte Kombination aus Quelle und Detektor eingesetzt. Ein ionenimplantierter Silizium-Halbleiterdetektor wird hierfür definiert mit $^{226}\text{RaCl}_2$ mittels thermischen Aufdampfens direkt auf die Totschicht des Detektors beschichtet. Damit ist der Detektor selbst die Quelle des Radons. Gleichzeitig ist er der spektrometrische Detektor für die entstehende Alpha-Strahlung. Er misst sowohl den Zerfall des Radiums als auch den des Radons und seiner Folgeprodukte. Das erstmalig mit einer Quelle-Detektor-Kombination aufgenommene Alpha-Spektrum ist in Abbildung 4 zu sehen. Dargestellt ist die Impulshöhenverteilung über der Energie der Alpha-Teilchen. Aufgrund ihrer Energie

kann man ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{218}Po und ^{214}Po identifizieren.

Zur exakten Bestimmung der Emanation ist die Lösung eines zeitlich gestörten Systems aus gekoppelten Differenzialgleichungen notwendig. Dazu wird ein numerisches Verfahren auf der Basis eines Kalman-Filters verwendet, um auch im Nichtgleichgewicht die Abgabe von Radon-Gas in das Kalibriervolumen zu bestimmen. Mithilfe dieses Ansatzes werden neue statistische Methoden auf der Basis des Bayesschen Filters (Kalman-Filter, Assumed density filtering [6]) eingesetzt, die es erlauben, aus einer Zeitreihe von spektrometrischen Daten eine angenäherte Wahrscheinlichkeitsverteilung für das emanierende Radon zu berech-

Detektor ist Quelle des Radons

nachweiswahrscheinlichkeiten und geringste Unsicherheiten. Zum ersten Mal wird deshalb in diesem Projekt

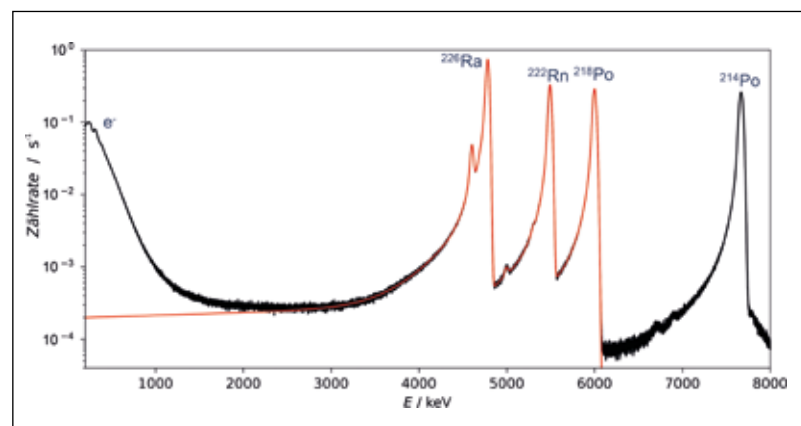


Abb. 4: Alpha-Spektrum einer Quelle-Detektor-Kombination zur Bestimmung des zeitlichen Verlaufs sehr geringer Radon-Emanationen; das schwarze Histogramm zeigt die Häufigkeitsverteilung (Zählrate) in Abhängigkeit von der Energie der α -Teilchen. Die aus dem Fit (rot) bestimmte Halbwertsbreite beträgt 40 keV.

nen, bevor das radioaktive Gleichgewicht erreicht wird. Damit ist dieses Verfahren sowohl für α - als auch γ -spektrometrische Messungen einsetzbar. Abbildung 5 zeigt Daten basierend auf gemessenen Spektren einer Radium-Quelle. Die Aktivität des emanieren Radons mit der zugeordneten Un-

Einsatz im Feld

sicherheit wird online aus den Daten berechnet. In der Darstellung ist dies durch die großen Unsicherheiten bei der Menge des emanieren Radons bei nicht stationären Zuständen sichtbar. Dadurch eignet sich das Verfahren auch für den Einsatz und unter wechselnden klimatischen Bedingungen im Feld.

Ob der Prototyp der Quelle-Detektor-Kombination im Feldeinsatz erfolgreich ist, wird der weitere Verlauf des Projektes zeigen. Erste Ergebnisse dazu werden Ende 2021 erwartet. Sind die in den Messnetzen vorhandenen Radon-Aktivitätskonzentrations-Messgeräte erst einmal rückführbar kalibriert, ist die Voraussetzung für die Vergleichbarkeit der Ergebnisse gelegt. Damit sind valide Daten zur großflächigen Kartierung verfügbar.

Von der Messung zur Kartierung

Der Fluss von Radon aus dem Boden in die Atmosphäre ist zum einen abhängig von der Radium-Konzentration im Bodenmaterial sowie von seiner grundsätzlichen Textur (z. B. Anteil von Sand, Löß oder Lehm), zum anderen aber von variablen Größen wie dem freien Porenvolumen, in dem sich

das Radon im Boden bewegen und schließlich in die Atmosphäre diffundieren kann (Abb. 6). Dieses freie Porenvolumen hängt neben der Textur sehr stark von dem im Boden befindlichen

Wasseranteil ab, der je nach Niederschlagshäufigkeit einen Teil des freien Porenvolumens einnimmt und

Transport von Radon behindert

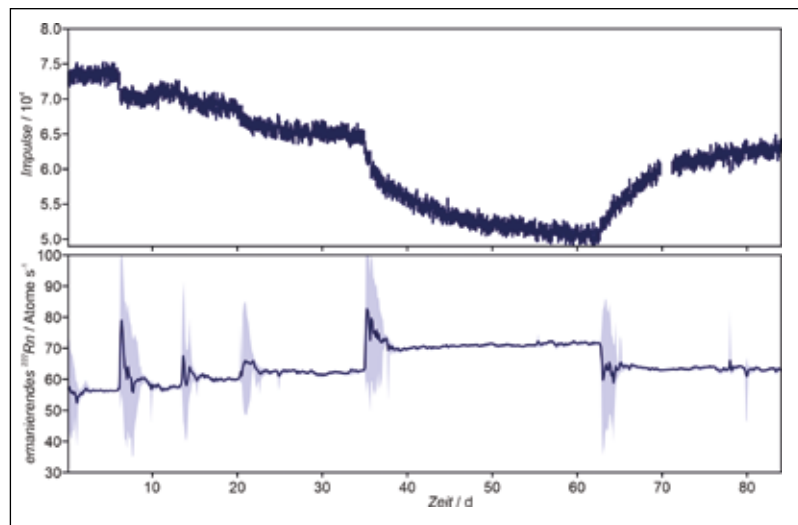


Abb. 5: Das obere Diagramm zeigt die integrale Zählrate. Diese Zählrate enthält nur noch Ereignisse von Radon und seinen Folgeprodukten. Die Variation der Zählraten ist durch Variation von Umweltparametern bedingt. Die untere Grafik zeigt die Menge des emanieren Radons in Atomen/s aus der Quelle, die eigentlich zu bestimmende Größe. Der blauschwarze Streifen markiert das 90 %-Konfidenzintervall der Unsicherheit nach [2].

den Transport von Radon in die Atmosphäre behindert. Den Einfluss des Wassergehalts auf die Bodenluft-Aktivitätskonzentration zeigt Abbildung 6 (Darstellung angepasst aus [7]). Es handelt sich um Messungen am Institut für Umweltphysik bei verschiedenen Bodenfeuchten. Im feuchten Boden ist der Transport in die Atmosphäre behindert und das im Boden gebildete Radon akkumuliert sich und erreicht bereits in 50 cm bis 70 cm Tiefe einen Gleichgewichtswert. Der Fluss aus dem Boden lag in diesen Fällen bei etwa $7 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Bei trockenem Boden (Abb. 6, links) kann auch Radon aus größerer Tiefe noch in die Atmosphäre gelangen und der gemessene Fluss in die Atmosphäre ist in diesen Situationen mehr als doppelt so groß wie im Fall hoher Bodenfeuchte [7].

Aufgabe in traceRadon

Eine wichtige Aufgabe in traceRadon ist es, die Transportprozesse von Radon im Boden und seinen Fluss in die Atmosphäre anhand vorliegender Bodenparameterkarten sowie der sich verändernden Bodenfeuchte zu modellieren und damit u. a. die für die Radon-Tracer-Methode benötigten Verteilungen der Flüsse bereitzustellen.

Eine auf bodenphysikalischen Prozessen und aktuellen Parametern wie Bodenfeuchte basierende dynamische Flusskarte kann aber auch die Ausweisung von Gebieten mit hohem Radon-Potenzial verbessern. Die modellierten Flüsse aus der Bodenkarte müssen jedoch durch möglichst viele repräsentative und untereinander vergleichbare Bodenflussmessungen überprüft werden, um die Prozessmodellierung zu bestätigen oder ggf. zu verbessern. Hierzu dienen Messkampagnen, die die örtliche und die zeitliche Variabilität der Flüsse untersuchen sollen. Abbildung 7 zeigt, wie sich unterschiedliche Informationen zu Daten über den Radon-Fluss verbinden lassen.

Gebiete mit erhöhtem Radon-Potenzial:

Radon Priority Area (RPA)

Da die nationale Bezeichnung auch im deutschsprachigen Raum nicht einheitlich ist, werden im Folgenden die Gebiete mit erwarteten oder realen erhöhten Radon-Aktivitätskonzentrationen entsprechend der Richtlinie 2013/59/Euratom [8] als Radon Priority Area (RPA) bezeichnet. Diese 2014 veröffentlichte europäische Richtlinie

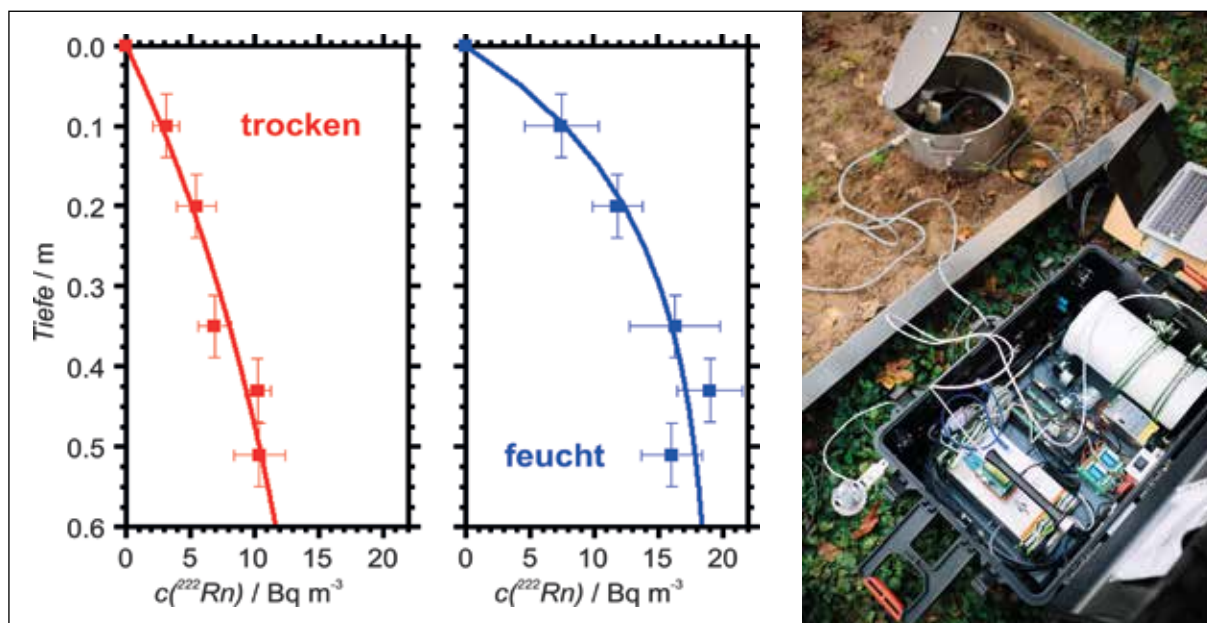


Abb. 6: Links: 2 typische Tiefenprofile (Tiefe d in m) von der Radon-Aktivitätskonzentration c in der Bodenluft, links bei trockenem (ca. 12 Vol.-% Wasser), in der Mitte bei feuchtem (ca. 31 Vol.-% Wasser) Boden. Im feuchten Boden wird mehr Radon im Boden zurückgehalten, wodurch der Fluss in die Atmosphäre hier nur etwa halb so groß ist wie bei trockenem Boden; angepasst aus [7]; rechts: System zur automatisierten Messung des Radon-Flusses aus dem Boden; Foto: F. Freundt

enthält neue Vorgaben zum Radon-Schutz.

Artikel 103 (3) legt fest, dass die Mitgliedsstaaten Gebiete ermitteln müssen, für die erwartet wird, dass die Radon-Aktivitätskonzentration (im Jahresmittel) in einer beträchtlichen Zahl von Gebäuden den einschlägigen nationalen Referenzwert überschreitet. In diesen Gebieten müssen Mitgliedsstaaten verlangen, dass Radon-

Messungen an Arbeitsplätzen, die sich im Erd- oder Kellergeschoss befinden, durchgeführt werden (Artikel 54 (2)). Die Festlegung von RPAs ist daher ein wichtiger Schritt bei der Umsetzung der Richtlinie und in den Radon-Maßnahmenplänen der Mitgliedsstaaten.

Karten mit direktem oder indirektem Bezug zu Radon existierten in vielen Mitgliedsländern schon lange vor der Implementierung der europäischen Richtlinie. Sie sind ein wichtiger Teil

nationaler Radon-Strategien als Werkzeug für die Priorisierung von Radon-Schutzmaßnahmen wie z. B.

- bauliche Vorsorgemaßnahmen,
- Radon-Messungen,
- Awareness-Kampagnen für Entscheidungsträger und Öffentlichkeit.

Die Erstellung und Darstellung von Radon-Karten und die Festlegung von RPAs können mit sehr unterschiedlichen Methoden erfolgen, abhängig vom Verwendungszweck der Karte und von den verfügbaren Daten [9, 10]. Viele Karten und die Festlegung von

Radon-Karten

RPAs basieren auf Radon-Innenraummessungen in Wohngebäuden, teilweise verknüpft mit Information zu Gebäudecharakteristika (z. B. Österreich).

Andere Länder stützen die Festlegung auf Daten zu Radon in der Bodenluft (z. B. Tschechien und Deutschland). Eine weitere Methode für die Charakterisierung eines Gebiets hinsichtlich seines Radon-Potenzials ist die Verknüpfung von verschiedenen radonrelevanten Parametern wie z. B.

- Radon in der Bodenluft,
- Bodenpermeabilität,
- Konzentration von Radionukliden im Boden und
- Bodencharakteristika.

Dies wird oft als geogenes Radon-Potenzial bezeichnet und im Zuge des Projekts MetroRADON [11] wurden Methoden dazu weiterentwickelt wie z. B. der Radon Hazard Index, RHI.

Forschungsstelle der Europäischen Kommission

Auch die gemeinsame Forschungsstelle der Europäischen Kommission (EC JRC) sammelt seit vielen Jahren Daten zu Radon und natürlicher Radioaktivität aus den Mitgliedsstaaten und aus verfügbaren europäischen Datenbanken, um diese auf europäischer Ebene harmonisiert darzustellen. Dies dient auch dem Ziel, die Bevölkerung mit der sie umgebenden natürlichen Radioaktivität vertraut zu machen. Die Veröffentlichung besteht aus digitalen Karten, die regelmäßig aktualisiert werden, wenn neue Daten verfügbar sind,

Geogenes Radon-Potenzial

Vorgaben zum Radon-Schutz

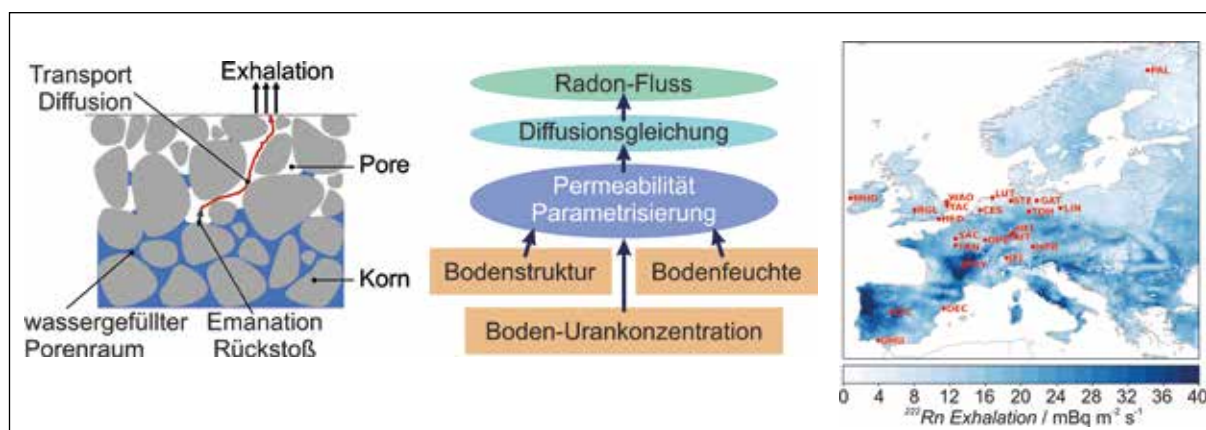


Abb. 7: Schematische Darstellung der Entwicklung einer Radon-Fluss-Karte und der verwendeten Eingangsdaten (links); Karte mit Stationen, die Radon in der Atmosphäre messen, hinterlegt mit einer Radon-Fluss-Karte (rechts)

und seit 2020 auch als Enzyklopädie in Buchform [12].

traceRadon

In den diskutierten Methoden und Veröffentlichungen wurden bisher Radon-Außenluft-Messungen und Radon-Fluss-Messungen nicht berücksichtigt, da die Daten nicht verfügbar und vor allem nicht robust und vergleichbar waren. Im Rahmen von traceRadon wird evaluiert, ob und wie diese Daten zukünftig in Methoden und Modellen zur Radon-Kartierung und Festlegung von RPAs verwendet werden können. Die Berücksichtigung von dynamischen Bodenparametern (z. B. Bodenfeuchte) auf die Radon-Transportprozesse und somit auf die Radon-Aktivitätskonzentration in der Bodenluft kann wesentlich zur Charakterisierung des Radon-Potenzials beitragen. Außerdem ist geplant, die Radon-Außenluft-Messstationen, ähnlich wie die Gamma-Ortsdosisleistung über EURDEP [13], online zugänglich zu machen.

Das generierte Wissen und die neuen Daten aus dem Projekt werden in Zukunft für die Darstellung und das Monitoring des natürlichen radiologischen Risikos genutzt werden und den Experten und Entscheidungsträgern als Grundlage für eine mögliche Verbesserung der Charakterisierung des Radon-Potenzials zur Verfügung stehen.

Ausblick und Danksagung

Das Projekt traceRadon ist im Sommer 2020 gestartet. Unterstützung erhält es von einer weltweiten breiten wissenschaftlichen Gemeinschaft aus Klimaforschung, Strahlenschutz und Metrologie. Alle Akteure eint das Ziel, neue und verbesserte Daten für die Wissenschaft, die Bevölkerung und die Entscheidungsträger bereitzustellen. Die ersten Ergebnisse im Bereich neuer Technologien zur Kalibrierung der hochsensitiven Radon-Monitoren liegen vor. Die Autoren bedanken sich bei den Projektpartnern und den Kooperationspartnern von traceRadon sowie bei allen Institutionen, die das Projekt mit Empfehlungen unterstützt haben. Ein großer Dank geht an die beteiligten Beschäftigten für die herausfordernde Arbeit. Ein weiterer Dank geht an EURAMET e. V., die Europäische Vereinigung nationaler Metrologieinstitute, die mit dem Rahmenprogramm EMPIR ein solches Projekt überhaupt erst möglich gemacht haben.

Sie wollen auf dem Laufenden bleiben?

Folgen Sie uns mit #traceradon auf Twitter! ■

STICHWORTE

Klimabeobachtung, Radon, Tracer

LITERATUR

[1] traceRadon – Radon metrology for use in climate change observation and radiation

protection at the environmental level. 2020, <http://traceradon-empir.eu/>

[2] Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. Bekannt als GUM, JCGM 100:2008, www.bipm.org/en/publications/guides

[3] Levin, I.; Glatzel-Mattheier, H.; Marik, T.; Cuntz, M.; Schmidt, M.; Worthy, D. E.: Verification of German methane emission inventories and their recent changes based on atmospheric observations. In: *J. Geophys. Res.*, 104, D3, S. 3447–3456, 1999, <https://doi.org/10.1029/1998JD100064>

[4] Linzmaier, D.; Röttger, A.: Development of a low-level radon reference atmosphere. In: *Applied Radiation and Isotopes*, 2013, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.032>

[5] Mertes, F.; Röttger, S.; Röttger, A.: A new primary emanation standard for Radon-222. In: *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 156, 108928, 2020, <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.108928>

[6] Barber, D.: Expectation Correction for Smoothed Inference in Switching Linear Dynamical Systems. In: *Journal of Machine Learning Research*, 7, S. 2515–2540, 2006, www.sciencedirect.com/science/article/pii/S096980431930346X

[7] Karstens, U.; Schwingshackl, C.; Schmithüsen, D.; Levin, I.: A process-based ^{222}Rn radon fluxmap for Europe and its comparison to long-term observations. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 15, S. 12845–12865, 2015, www.atmos-chem-phys.net/15/1/2015/, doi:10.5194/acp-15-1-2015

[8] Rat der Europäischen Kommission (EK): Richtlinie 2013/59/Euratom des Rates vom

5. Dezember 2013 zur Festlegung grundlegender Sicherheitsnormen für den Schutz vor den Gefahren einer Exposition gegenüber ionisierender Strahlung und zur Aufhebung der Richtlinien 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom und 2003/122/Euratom. Amtsblatt der Europäischen Union, L 13/1

[9] Bossew, P.: Radon priority areas – definition, estimation and uncertainty. In: Nuclear Technology & Radiation Protection 33, 3, S. 286–292, 2018, <http://doi.org/10.2298/NTRP180515011B>

[10] Dubois, G.: An overview of radon surveys in Europe. Publications Office of the European Union, European Commission (Ed.), 2005, ISBN 92-79-01066-2

[11] MetroRADON – Metrology for Radon Monitoring. 2020, www.metroradon.eu/

[12] European Commission, Joint Research Centre, <https://remon.jrc.ec.europa.eu/About/Atlas-of-Natural-Radiation/Digital-Atlas>
Auch: Cinelli, G.; De Cort, M.; Tollefsen, T.: European Atlas of Natural Radiation. Publication Office of the European Union, Luxembourg 2020, ISBN 978-92-76-08259-0, <https://doi.org/doi:10.2760/520053>

[13] European Commission, Joint Research Centre: EURDEP – European Radiological Data Exchange Platform. <https://remon.jrc.ec.europa.eu/About/Rad-Data-Exchange>

AUTORINNEN UND AUTOREN



Annette Röttger

Dr. rer. nat. Annette Röttger; Studium der Physik und Promotion (1995) an der TU Braunschweig; wissenschaftliche

Mitarbeiterin am CERN und der PTB, in der PTB bis 2015 Leiterin der Arbeitsgruppen „Radon-Messtechnik“, bis 2016 der „Alpha- und Gamma-spektrometrie“ und danach bis 2020 Leitung der Arbeitsgruppe „Dosimetrie bei niedrigen Dosisleistungen“ und des Fachbereichs „Strahlenschutzdosimetrie“, ab 2020 Leitung der Abteilung „Ionisierende Strahlung“, Leitung der EURADOS Subgroup, WG3.3 „Radon“, Leiterin des Sektors 5 der KBS „Strahlenschutz“, Mitglied der SSK und Vorsitzende des SSK-A4, Koordinatorin von EMPIR 19NET03 supportBSS und 19ENV01 traceRadon

ANSCHRIFT DER AUTORIN

Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Bundesallee 100
38116 Braunschweig

Tel.: +49/531/592-60 10
E-Mail: annette.roettger@ptb.de



Stefan Röttger

Dr. rer. nat. Stefan Röttger; Studium der Physik und Promotion (1997) an der TU Braunschweig; wissenschaftliche Mitarbeit im AVOGADRO-Projekt, in der CEA-Saclay DSM/DAPNIA/SPHN und der zerstörungsfreien prompt (n, γ)-Isotopenanalyse, bis 2016 im Bereich Ionenbeschleuniger und Referenzstrahlungsfelder für Neutronenmetrologie, seit 2016 im Bereich Radioaktivität für α - und γ -Spektrometrie beteiligt an den EMPIR-Projekten MetroRADON, traceRadon, remoteALPHA und supportBSS

ANSCHRIFT DES AUTORS

Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Bundesallee 100
38116 Braunschweig
Tel.: +49/531/5 92-61 30
E-Mail: stefan.roettger@ptb.de



Florian Mertes

Florian Mertes; Studium der Chemie an der Universität Regensburg mit Abschluss als M. Sc. Chemie 2017, Promotionsstudium

an der Leibniz Universität Hannover am Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, ausgeführt an der PTB im Bereich Radioaktivität; wissenschaftliche Mitarbeit in den EMPIR-Projekten MetroRADON und traceRadon

ANSCHRIFT DES AUTORS

Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Bundesallee 100
38116 Braunschweig
Tel.: +49/531/5 92-61 07
E-Mail: florian.mertes@ptb.de



Ute Karstens

Dr. rer. nat. Ute Karstens; Studium der Meteorologie und Promotion (1993) an der Christian-Albrechts-Universität

zu Kiel; wissenschaftliche Mitarbeiterin am Helmholtz-Zentrum Geesthacht, am Max-Planck-Institut für Meteorologie und am Max-Planck-Institut für Biogeochemie in den Bereichen „Atmosphärenmodellierung“ und „Kohlenstoffkreislauf“, seit 2015 am ICOS Carbon Portal an der Universität Lund, Schweden

ANSCHRIFT DER AUTORIN

Lunds Universitet
Sölvegatan 12
22362 Lund, Schweden
Tel.: +46/46/2 22 95 96
E-Mail: ute.karstens@nateko.lu.se



Valeria Gruber

Dr. nat. techn. Valeria Gruber; Studium der Physik an der TU Wien, Promotion an der Universität für Bodenkultur (BOKU)

Wien; 2004–2010 wissenschaftliche Mitarbeiterin im Low-Level-Counting Labor Arsenal und 2008–2010 Leiterin des Prüflabors für Umweltradioaktivität und Strahlenschutz der BOKU; 2010–2013 Post-Doc an der Gemeinsamen Forschungsstelle der Europäischen Kommission (EC JRC), Radioactivity Environmental Monitoring (REM); seit 2013 in der Abteilung Radon & Radioökologie der AGES; Mitarbeit in wissenschaftlichen Projekten (MetroRADON, traceRadon, RADONORM) und Arbeitsgruppen (EURADOS, AKNAT) sowie Expertentätigkeit (EC, IAEA)

ANSCHRIFT DER AUTORIN

Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit (AGES)
Abteilung Radon und Radioökologie
Wieningerstraße 8
4020 Linz, Österreich
Tel.: +43/50555/4 19 06
E-Mail: valeria.gruber@ages.at



Ingeborg Levin

Dr. rer. nat. Ingeborg Levin; Studium der Physik mit Promotion (1984) und Habilitation (1994) an der Ruprecht-Karls-

Universität Heidelberg; Dozentin und Leiterin der Arbeitsgruppe „Kohlenstoff-Kreislauf“ am Institut für Umweltphysik der Universität Heidelberg

ANSCHRIFT DER AUTORIN

Universität Heidelberg
Institut für Umweltphysik
Im Neuenheimer Feld 229
69120 Heidelberg
Tel.: +49/6221/54 63 30
E-Mail: ingeborg.levin@iup.uni-heidelberg.de