

Mitt. österr. geol. Ges.	79 (1986) Umweltgeologie- Band	S. 343–357 9 Abb.	Wien, Dezember 1986
--------------------------	--------------------------------------	----------------------	---------------------

## Isotopenverhältnisse und Radionuklide – Spuren in der Umwelt

Von Dieter RANK\*)

Mit 9 Abbildungen

### Zusammenfassung

Isotopenverhältnisse und Radionuklide sind geeignete Indikatoren zur Untersuchung und Beschreibung von Wechselwirkungen in der Umwelt. In den meisten Fällen selbst nicht als Schadstoffe einzustufen – dies gilt auch für Radionuklide in Umweltkonzentrationen –, erleichtern sie Vorhersagen über mögliche unerwünschte Ausbreitungsvorgänge für schädliche Stoffe. Als Beispiele werden die Isotopenverhältnisse im natürlichen Wasserkreislauf, der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt als Indikator für den Anteil von fossilem Kohlenstoff, die Radioaktivität in Gebäuden und einige Radionuklide aus dem Brennstoffkreislauf behandelt.

### Abstract

Isotope ratios and radionuclides are useful tracers investigating and describing environmental interactions. In most cases these tracers (including radionuclides at an environmental level) are not pollutants themselves but they may help in predicting undesired spreading of toxic pollutants. Following examples are discussed: isotope ratios in the natural water cycle,  $^{14}\text{C}$ -content as an indicator for the fossile carbon fraction, radioactivity in buildings, and several radionuclides from the nuclear fuel cycle.

### Inhalt

Einleitung . . . . .	343
Die Isotopenverhältnisse im natürlichen Wasserkreislauf . . . . .	344
Radiokohlenstoff – $^{14}\text{C}$ – als Indikator für die „ $\text{CO}_2$ -Verschmutzung“ der Luft . . . . .	350
Radioaktivität in Häusern – die Radonfrage . . . . .	350
Radionuklide aus dem Brennstoffkreislauf . . . . .	352

### Einleitung

Mit der veränderten Einstellung des Menschen zu seiner Umwelt steigt der Bedarf an Methoden, die sich zur Untersuchung und objektiven Beschreibung von Wechselwirkungen in der Umwelt eignen und die es gestatten, „Meinungskriege“ auf der Grundlage meßbarer Größen auszutragen. Ein Weg bei der Bearbeitung solcher Fragestellungen ist das Verfolgen von Spuren – Indikatoren –, die die Natur selbst vorzeichnet. Isotopenverhältnisse und Radionuklidkonzentrationen in der Umwelt

\*) Adresse des Verfassers: Dipl.-Ing. Dr. D. RANK, Bundesversuchs- und Forschungsanstalt Arsenal, Postfach 8, A-1031 Wien.

sind solche Indikatoren, die kennzeichnend sind für Wechselwirkungen und natürliche Kreisläufe ( $H_2O$ , C, N, S usw.). Sie stellen selbst keine Schadstoffe dar – dies gilt auch für die meisten Radionuklide in Umweltkonzentrationen –, ihre Untersuchung ermöglicht es aber, das Verhalten von Schadstoffen in der Umwelt vorherzusagen. In manchen Fällen kann auch aus in der Natur festgeschriebenen Chronologien (z. B. bei Gletschern und Bäumen) der zeitliche Ablauf von Umweltvorgängen nachvollzogen und auf zukünftige Entwicklungen geschlossen werden.

Einbezogen seien hier auch die durch die Tätigkeit des Menschen erzeugten Radionuklide. Wohl handelt es sich hiebei um künstliche Radioaktivität, doch hat der Bearbeiter von Umweltfragen keine Kontrolle über ihre Erzeugung und über die Art der Abgabe an die Umwelt.

Die folgenden – willkürlich ausgewählten – Beispiele erheben keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Sie sollen die methodische Vorgangsweise veranschaulichen und zur vermehrten Anwendung von Isotopen-Indikatoren bei der Bearbeitung von Umweltfragen anregen.

### Die Isotopenverhältnisse im natürlichen Wasserkreislauf

Bei allen Umweltvorgängen, an denen Wasser beteiligt sind, bieten sich die Isotopenverhältnisse des Wasserstoffs und des Sauerstoffs als Indikatoren an. Neben dem „leichten“ Wassermolekül  $^1H_2^{16}O$  tragen die „schweren“ Moleküle  $^1H^2H^{16}O$  und  $^1H_2^{18}O$  mit ungefähr 0,32 bzw. 2,0‰ zur Zusammensetzung der natürlichen Wässer bei. Da das aus schweren Molekülen bestehende Wasser einen geringeren Dampfdruck hat als leichtes Wasser, sind Isotopentrennprozesse überall dort im Wasserkreislauf zu erwarten, wo Phasenumwandlungen – Schmelzen, Erstarren, Verdampfen usw. – stattfinden. Beispielsweise kommt es beim Verdampfen und Kondensieren zu einer Anreicherung der schweren Moleküle in der flüssigen und zu einer Abreicherung in der gasförmigen Phase. Das Ausmaß der Isotopenfraktionierung ist dabei umso größer, je niedriger die Temperatur bei der Phasenumwandlung ist. Tatsächlich findet man in natürlichen Wässern für das  $^1H^2H^{16}O$ -Molekül eine Schwankungsbreite von 0,18 bis 0,34‰ und für  $^1H_2^{18}O$  eine solche von 1,88 bis 2,01‰ (DROST et al., 1972).

Für den Wasserkreislauf führen diese Überlegungen zu folgenden Schlüssen (Abb. 1): Der von freien Wasserflächen aufsteigende Wasserdampf ist ärmer an schweren Molekülen als die Oberflächenwässer. Beim Transport feuchter Luftmassen landeinwärts hat der zuerst fallende Niederschlag den höchsten Gehalt an schweren Molekülen, die verbleibende Luftfeuchtigkeit wird durch Ausregnen immer leichter (Kontinentaleffekt). Eine ähnliche Erscheinung tritt auch mit zunehmender Regenmenge auf (Mengeneffekt). Die Temperaturabhängigkeit der Isotopenfraktionierung führt zu einer Abhängigkeit des Isotopengehaltes im Niederschlag von der geographischen Breite und von der Jahreszeit (Breiten- und Temperatureffekt). Der Jahresgang der Monatsmittelwerte zeigt im allgemeinen ein Minimum im Winter und ein Maximum im Sommer. Die Isotopengehalte der Einzelniederschläge können davon stark abweichen, bedingt durch den jeweiligen klimatischen Zustand während des Niederschlagsereignisses. Der Vergleich der  $^{18}O$ -Werte von verschiedenen hoch gelegenen Beobachtungsstationen weist auf den Einfluß von orographischen

Erhebungen auf die Isotopenzusammensetzung im Niederschlag hin (Höheneffekt, Abb. 1). Dafür können drei Faktoren verantwortlich sein: die Temperaturabnahme mit zunehmender Höhe, das Ausregnen der schweren Moleküle beim Aufsteigen von feuchten Luftmassen an einem Hang und die teilweise Verdunstung der fallenden Tropfen, die mit zunehmender Fallhöhe zur Anreicherung an schweren Molekülen führt.

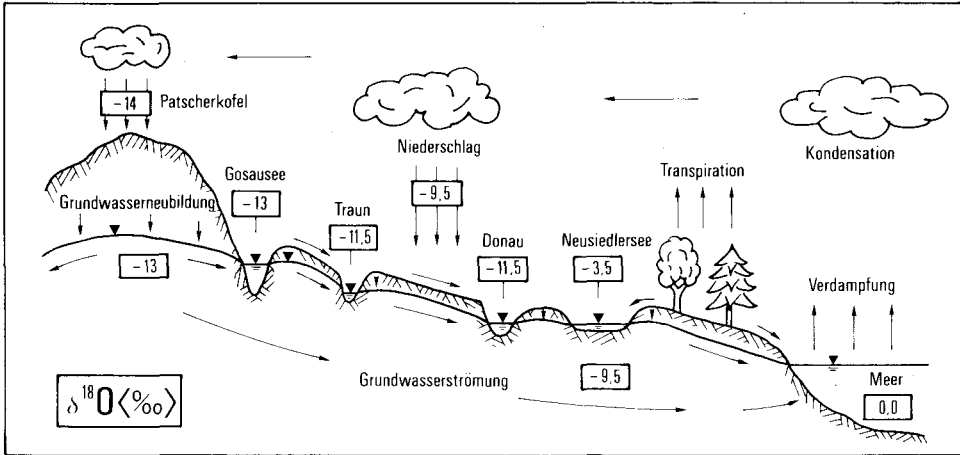


Abb. 1: Schwankung des  $^{18}\text{O}$ -Gehaltes im Wasserkreislauf; schematische Darstellung \*) (D. RANK, 1986).

Als Folge des charakteristischen Jahresganges im Niederschlagswasser zeigen auch Oberflächen- und Grundwässer mehr oder weniger ausgeprägte Schwankungen der Isotopenverhältnisse (D. RANK, 1986). Während der Verlauf des Isotopengehaltes von Flachlandflüssen mit entsprechender Dämpfung dem jahreszeitlichen Gang in den Niederschlägen folgt, weisen Flüsse mit hochgelegenen Einzugsgebieten als Folge der Schneeschmelze ein ausgeprägtes Minimum im Frühsommer auf. Im Vergleich dazu zeigen Grundwässer, bei denen kein unmittelbarer Einfluß des Niederschlags vorliegt, keine jahreszeitlichen Schwankungen im Isotopengehalt; ähnliches gilt auch für die Abflüsse aus größeren Seen. Bei stehenden Oberflächengewässern mit geringen Wassertiefen kommt es durch den Verdunstungsprozeß zu einer deutlichen Anreicherung der schweren Isotope, beispielsweise ist das Isotop  $^{18}\text{O}$  im Wasser des Neusiedlersees gegenüber dem  $^{18}\text{O}$ -Mittel im Niederschlag um ungefähr 6‰ angereichert (Abb. 1).

Zwischen  $^2\text{H}$ - und  $^{18}\text{O}$ -Gehalt der Niederschläge besteht die lineare Beziehung

$$\delta^2\text{H} = 8 \cdot \delta^{18}\text{O} + t,$$

wobei für Mitteleuropa  $t \approx 10$  gilt. Abweichungen von dieser Beziehung treten auf, wenn eine Phasenumwandlung nicht unter Gleichgewichtsbedingungen abläuft –

\*) Der  $^{18}\text{O}$ -Gehalt wird als Relativwert zu einem Standard (V-SMOW) angegeben:

$$\delta^{18}\text{O} = \frac{R_{\text{Probe}} - R_{\text{Standard}}}{R_{\text{Standard}}} \cdot 1000 (\text{‰})$$

$R_{\text{Probe}}$  und  $R_{\text{Standard}}$  sind darin die Isotopenverhältnisse [ $^{18}\text{O}$ ]/[ $^{16}\text{O}$ ] in Probe und Standard.

beispielsweise liegt bei starker Verdunstung über Seeoberflächen der Gehalt an  $^{18}\text{O}$  im See über dem aus dem  $^2\text{H}$ -Gehalt errechneten Wert (z. B. beim Neusiedlersee). – Abweichungen von der  $\delta^2\text{H}$ - $\delta^{18}\text{O}$ -Beziehung im Niederschlag können auch auftreten, wenn in Ausnahmefällen ein Isotopenaustausch zwischen Grundwasser und im Grundwasserleiter chemisch oder physikalisch gebundenen Wassermolekülen stattfindet (z. B. mit zwischen den Gitterschichten adsorbiertem Wasser bei Montmorillonit). Der verschieden starke und temperaturabhängige Isotopenaustausch bietet auch die Möglichkeit, die Herkunft von Salzwässern zu klären und zu unterscheiden, ob es sich um fossile Tiefenwässer, Formationswässer mariner Sedimente, Meereswasser, Abwässer oder Wasser von Salzseen handelt.

In sehr geringen Konzentrationen tritt in natürlichen Wässern ein anderes schweres Molekül auf,  $^1\text{H}^3\text{HO}$ . Das Verhältnis  $[\text{H}^3]/[\text{H}]$  schwankt zwischen 0 und  $1 \cdot 10^{-17}$  bzw.  $1 \cdot 10^{-14}$  unter Einbeziehung des Kernwaffentritiums.  $^3\text{H}$  ist ein radioaktives Isotop des Wasserstoffes, das mit einer Halbwertszeit von 12,43 Jahren zerfällt. Es wird in der oberen Atmosphäre durch die Einwirkung der kosmischen Strahlung erzeugt und oxidiert bald nach seiner Entstehung zu Wasser. Als Teil des Wassermoleküls macht es den Wasserkreislauf mit. Seit 1952 wird der  $^3\text{H}$ -Gehalt der Niederschläge durch die bei den Kernwaffenversuchen freigesetzten  $^3\text{H}$ -Mengen bestimmt. Die  $^3\text{H}$ -Konzentration stieg dadurch im Jahr 1963 bis auf das 1000fache des natürlichen  $^3\text{H}$ -Gehaltes an und liegt derzeit (1985) noch etwa um den Faktor 3 über dem natürlichen Gehalt (Abb. 2). Auch der  $^3\text{H}$ -Gehalt der Niederschläge zeigt

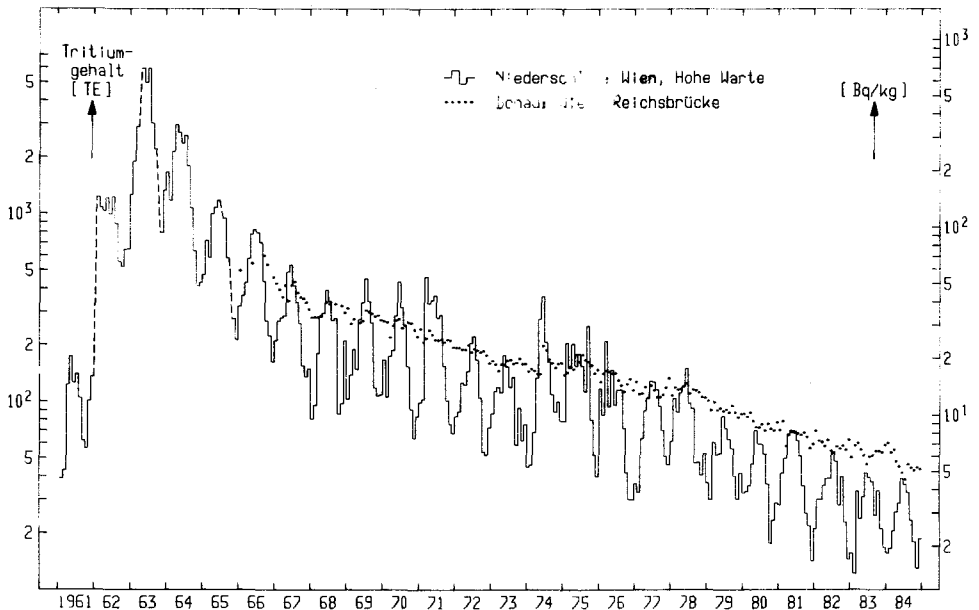


Abb. 2: Langfristiger Verlauf der  $^3\text{H}$ -Konzentration im Niederschlag (Monatsmittel) und im Oberflächenwasser (monatliche Stichproben)\*\*) (D. RANK et al., 1985).

\*\*\*) 1 TE (Tritiumeinheit, TU) entspricht einer Konzentration von einem  $^3\text{H}$ -Atom in  $10^{18}$  Wasserstoffatomen bzw. 0,118 Bq/kg für Wasser.

jahreszeitliche Schwankungen. Diese sind im wesentlichen nicht wie bei  $^2\text{H}$  und  $^{18}\text{O}$  auf Isotopenfraktionierungseffekte, sondern auf den jahreszeitlich unterschiedlichen Luftmassenaustausch zwischen Stratosphäre ( $^3\text{H}$ -Reservoir) und Troposphäre zurückzuführen. Der Jahresgang der Monatsmittel weist ein Maximum im späten Frühjahr und ein Minimum im Spätherbst auf. Die Werte der Einzelniederschläge können davon erheblich abweichen. – Die Oberflächen- und Grundwässer zeigen einen im Vergleich zum Niederschlag stark gedämpften  $^3\text{H}$ -Jahresgang.

Der  $^3\text{H}$ -Gehalt des Niederschlagswassers nimmt nach dem Gesetz des radioaktiven Zerfalls ab; es können somit aus dem  $^3\text{H}$ -Gehalt von Grundwässern bei Kenntnis der Aktivität des infiltrierenden Niederschlags Rückschlüsse auf die Verweilzeit des Wassers im Untergrund gezogen werden. Der Aussagezeitraum reicht von wenigen Monaten bis zu annähernd 50 Jahren, mit Hilfe von Modellrechnungen kann der Zeitraum auf etwa 100 Jahre ausgedehnt werden.

Die Isotopenverhältnisse mit ihren örtlichen und zeitlichen Schwankungen bedeuten eine weltweite Markierung der Wässer des natürlichen Kreislaufes. Die Isotopenzusammensetzung in Grund- und Oberflächenwässern ist durch die Werte der Niederschläge in ihren Einzugsgebieten und deren Modifikation durch Mischungsvorgänge und Isotopenfraktionierung – bei  $^3\text{H}$  auch durch den radioaktiven Zerfall – auf dem Weg des Wassers vom Einzugsgebiet bis zur Meßstelle gegeben. Während die Wasserchemie bei Grundwässern im wesentlichen Aussagen über den vom Wasser durchflossenen Grundwasserleiter liefert, geben die Isotopendaten Auskunft über das Wasser selbst, über seine Herkunft und seinen Weg. Aus dem  $^3\text{H}$ -Gehalt können zusätzlich Rückschlüsse auf das Alter von Grundwässern gezogen werden.

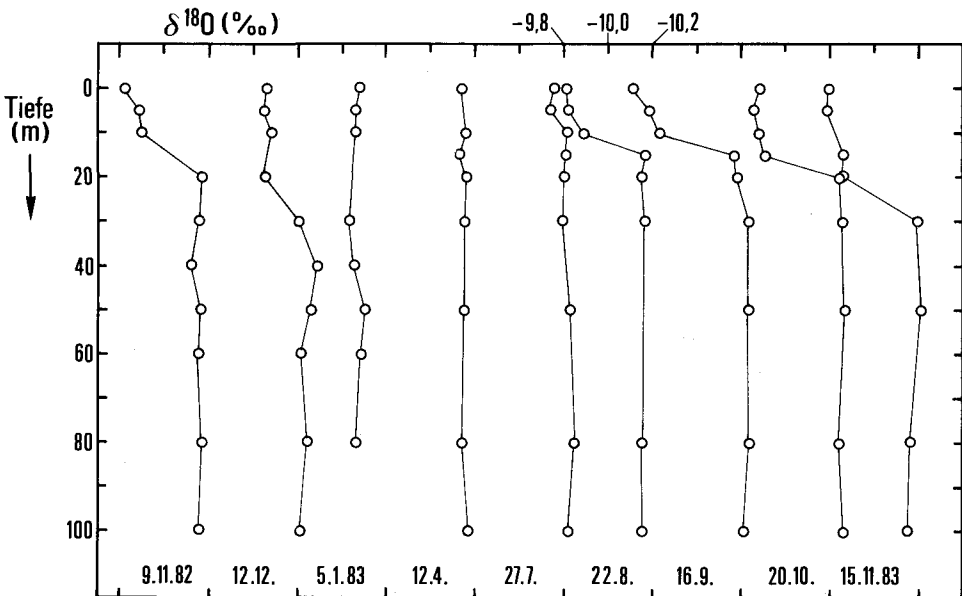


Abb. 3: Hinweise aus  $^{18}\text{O}$ -Messungen auf die Ausbildung von Schichtungen im Attersee (die Wasserproben wurden durch das Limnologische Institut der Akademie der Wissenschaften entnommen) (D. RANK, 1986).

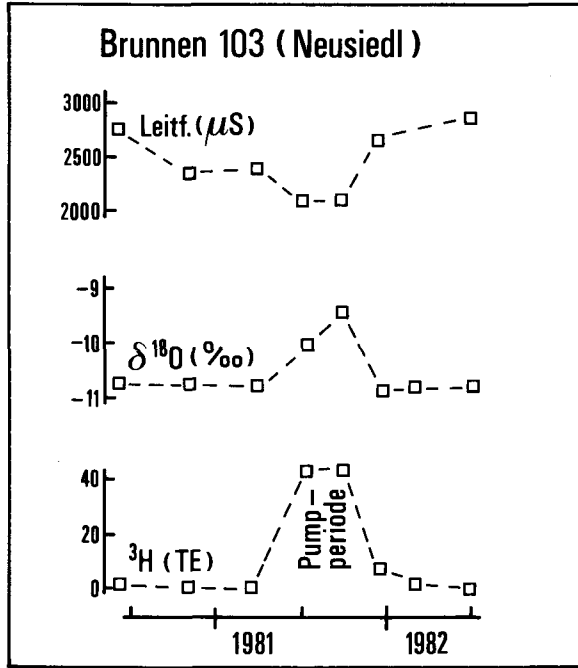


Abb. 4: Zeitliche Änderung von Leitfähigkeit,  $^3\text{H}$ - und  $^{18}\text{O}$ -Gehalt im Brunnen 103 in Neusiedl während einer länger andauernden Wasserentnahme (D. RANK, V. RAJNER, 1984).

Die Anwendung von Isotopenmessungen ist zunächst überall dort hilfreich, wo es um die Abgrenzung von Wasserkörpern oder die Untersuchung von Mischvorgängen geht. Voraussetzung ist dabei, daß sich die beteiligten Wässer in zumindest einem der Isotopenverhältnisse unterscheiden. So lassen sich unter anderem Schichtungsprozesse in Seen verfolgen, beim Attersee beispielsweise ist aus dem Verlauf des  $^{18}\text{O}$ -Gehaltes in Abhängigkeit von der Wassertiefe deutlich eine Schichtungsabildung im Sommer und die Rückkehr zur vollständigen Durchmischung im Winter zu erkennen (Abb. 3). Mit Isotopenmessungen ist es auch möglich, die Auswirkung von Gießgängen bei Donaukraftwerken oder des geplanten Marchfeldkanales für die Dotierung des Grundwassers über längere Zeiträume zu verfolgen, da sich das aus einem höher gelegenen Einzugsgebiet stammende infiltrierende Donauwasser in seinem  $^{18}\text{O}$ -Gehalt deutlich von den autochthonen Grundwässern unterscheidet (Abb. 1).

Auch bei der Klärung von Herkunftsfragen läßt sich die Bestimmung von Isotopenverhältnissen erfolgreich einsetzen. Beispielsweise kam es bei einem Brunnen in Neusiedl, in dem normalerweise altes,  $^3\text{H}$ -freies Wasser gefördert wird, während einer länger andauernden Wasserentnahme zu einer Veränderung der Isotopenverhältnisse und der Leitfähigkeit (Abb. 4). Mit zunehmender Entnahmemenge bzw. Entnahmedauer wird dort neben altem Wasser auch junges oberflächennahes Wasser

gefördert, was einerseits für eine geringe Ergiebigkeit des tieferen Horizontes spricht und andererseits auf mögliche Umweltbeeinflussungen der Wasserqualität hinweist. Nach Beendigung der Wasserentnahme stellten sich allmählich wieder die ursprünglichen Werte ein.

Ein breites Anwendungsgebiet für Isotopenmessungen ist die Bestimmung von Verweilzeiten – „Wasseraltern“ – für Grundwässer. Hiefür kann zunächst die jahreszeitliche Schwankung der Isotopenverhältnisse im Niederschlag als Eingangssignal verwendet werden, solange – bei nicht zu hohen Verweilzeiten – im Grundwasserleiter ein entsprechendes Ausgangssignal nachweisbar ist. Unmittelbare Altersinformation können  $^3\text{H}$ -Messungen liefern, beispielsweise enthalten  $^3\text{H}$ -freie Grundwässer keine jungen Anteile, d. h. kein Wasser, das aus Niederschlägen seit Beginn der Wasserstoffbombenversuche – seit 1952 – stammt.  $^3\text{H}$ -Zeitreihen von Grundwässern über mehrere Jahre können neben Hinweisen auf die mittlere Verweilzeit des Wassers zusätzlich Einblick in das hydraulische Geschehen geben.

In Sonderfällen erlauben Isotopenmessungen auch die retrospektive Untersuchung von Umweltereignissen. So kam es beispielsweise in den Ostalpen in den Niederschlägen vom Mai 1974 zu einer regional begrenzten, starken Anhebung des  $^3\text{H}$ -Gehaltes (BAUER et al., 1975). Aus der Überlegung heraus, daß sich dieser  $^3\text{H}$ -Anstieg im betroffenen Gebiet in den Jahresringen der Bäume abgezeichnet haben müßte, wurde Zellulose – unterliegt mit Ausnahme der OH-Gruppen keinem Isotopenaustausch – aus den entsprechenden Jahresringen isoliert und untersucht. Für das betroffene Gebiet wurde ein deutlich höherer  $^3\text{H}$ -Gehalt im Jahresring 1974 festgestellt als für die nicht betroffene Umgebung (Abb. 5).

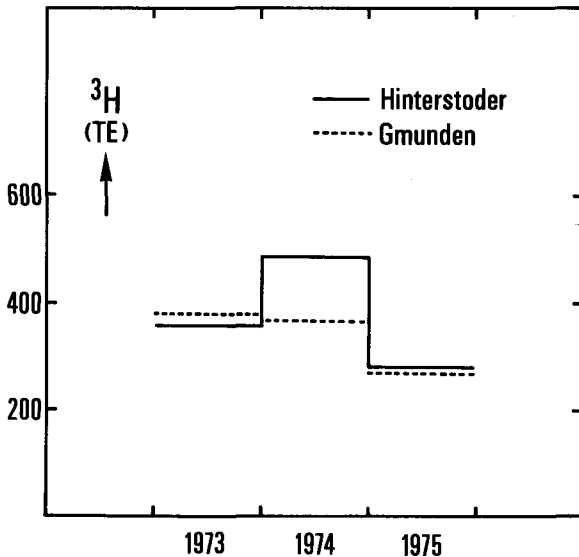


Abb. 5:  $^3\text{H}$ -Gehalt der Jahresringe von Bäumen innerhalb (Hinterstoder) und außerhalb (Gmunden) des Gebietes mit erhöhter  $^3\text{H}$ -Konzentration im Niederschlag vom Mai 1974 (D. RANK et al., 1986).

## Radiokohlenstoff – $^{14}\text{C}$ – als Indikator für die „ $\text{CO}_2$ -Verschmutzung“ der Luft

Aus dem weiten Anwendungsbereich von Messungen der Kohlenstoffisotope –  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{C}$  – soll hier nur ein neuerer umweltbezogener Aspekt aufgegriffen werden, nämlich der  $^{14}\text{C}$ -Gehalt als Maß für den von fossilen Brennstoffen stammenden Kohlenstoffanteil in der Umwelt.  $^{14}\text{C}$  mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahren entsteht wie  $^3\text{H}$  in der Atmosphäre durch die Einwirkung der kosmischen Strahlung und verbindet sich rasch mit Sauerstoff zu Kohlendioxid  $^{14}\text{CO}_2$ , das sich am natürlichen Kohlendioxidkreislauf beteiligt. Über die Photosynthese wird  $^{14}\text{C}$  von den Pflanzen aufgenommen, ihre  $^{14}\text{C}$ -Konzentration steht im Gleichgewicht mit der der Atmosphäre.

Die bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe an die Atmosphäre abgegebene Menge an  $\text{CO}_2$  übersteigt bei weitem die der schädlicheren Komponenten wie  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CO}$  und Kohlenwasserstoffe. Dieses  $\text{CO}_2$  ist  $^{14}\text{C}$ -frei, und über eine  $^{14}\text{C}$ -Messung kann bereits ein Anteil von einem Prozent fossilen Kohlenstoffes nachgewiesen werden. Der wesentliche Vorteil bei der Anwendung von  $^{14}\text{C}$  ist, daß eine einzige Messung einen Mittelwert für den Grad der Luftverschmutzung über einen längeren Zeitraum liefern kann. Solche Mittelwerte könnten sonst nur durch ausgedehnte Reihen von kontinuierlichen Direktmessungen von  $\text{CO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  usw. erhalten werden. Die zweckmäßigste Methode ist die Exposition einer  $\text{NaOH}$ -Lösung für den gewünschten Zeitraum. Auf diese Weise kann der mittlere Verschmutzungsgrad der Luft beispielsweise für Tag- und Nachtzeiten, für Sommer- und Winterperioden bestimmt werden. Für Übersichtsuntersuchungen eignet sich auch die  $^{14}\text{C}$ -Analyse von Pflanzenteilen, zum Beispiel Blättern (J. C. VOGEL, I. UHLITZSCH, 1974). Weiters kann durch Bestimmung des  $^{14}\text{C}$ -Gehaltes der Jahresringe von an geeigneten Plätzen gewachsenen Bäumen die Entwicklung des Verschmutzungsgrades in der Vergangenheit studiert werden.

## Radioaktivität in Häusern – die Radonfrage

Es ist schon lange bekannt, daß die natürliche Radioaktivität der Luft in geschlossenen Räumen, vor allem in Kellerräumen, deutlich höher ist als im Freien. Ursache dafür sind zwei Isotope des Edelgases Radon –  $^{220}\text{Rn}$  mit 56 s und  $^{222}\text{Rn}$  mit 3,8 d Halbwertszeit –, die als Mitglieder der natürlichen Zerfallsreihen von  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  aus den Poren des Bodens und des Baumaterials in die Luft übertreten (Exhalation). Diese Rn-Isotope bilden ihrerseits wieder eine ganze Kette radioaktiver Zerfallsprodukte, die sich als feste Stoffe auch in der Lunge ablagern können.  $^{222}\text{Rn}$  mit seinen Folgeprodukten liefert dabei den Hauptbeitrag. Die Rn-Konzentration in Wohnungen ist in den letzten Jahren in den Mittelpunkt des Strahlenschutzinteresses gerückt. Einerseits wurden in einzelnen Häusern extrem hohe Werte gefunden, andererseits gewinnt die Rn-Frage mit den Maßnahmen zur Einsparung von Energie – Abdichtung der Wohnungen und damit verbundene Verringerung des Luftwechsels – zunehmend an Bedeutung. Es soll hier nicht auf die Auswirkung des Rn-Pegels auf das Krebsrisiko der Bevölkerung eingegangen werden, unter Strahlenschutzfachleuten herrscht heute aber die einhellige Auffassung, daß Radon in Häusern die wichtigste Rolle bei der Strahlenexposition des Menschen spielt – wichtiger als alle anderen natürlichen und künstlichen Strahlenquellen.



Im Grunde genommen ist das Auftreten überhöhter Rn-Konzentrationen in Wohn- und Arbeitsräumen ein geologisches Risiko. Es ist Aufgabe des Geologen, Gebiete mit hohen natürlichen U- und Th-Gehalten zu erkennen und zu untersuchen, wie Rn durch das Gestein und den Boden ins Innere von Gebäuden gelangen kann. Poröses Bodenmaterial, verwittertes Gestein, Bruchzonen usw. begünstigen den Austritt von Rn. Auch mit Tiefenwässern können größere Rn-Mengen zur Erdoberfläche gelangen. Der Geologe ist ebenso bei der Auswahl von mineralischen Rohstoffen zur Herstellung von Baumaterialien gefordert, in Zusammenarbeit mit Strahlenmeßlaboratorien die Erzeugerfirmen zu beraten, sodaß nicht Material mit hoher Eigenaktivität zu Baustoffen verarbeitet wird.

Tabelle 1 gibt eine Übersicht über die natürliche Radioaktivität von einigen Materialien, die im Rahmen des Ausbaues des Niedrigpegellaboratoriums – Laboratorium zum Nachweis niedriger Radioaktivitätskonzentrationen – der BVFA-Arsenal untersucht wurden. Bei diesem Projekt wurde besonders sorgfältig auf die Auswahl von aktivitätsarmen Baumaterialien und eine zweckmäßige Lüftung zur Herabsetzung des Rn-Gehaltes der Laborluft geachtet. Der Erfolg dieser Maßnahmen ist aus Abb. 6 zu ersehen. Die Auswahl der Bau- bzw. Abschirmmaterialien nach radiologischen Gesichtspunkten und eine entsprechende Lüftung führen zu einer erheblichen Senkung des Gammastrahlenpegels, noch stärker ist die Reduktion des Rn-Gehaltes der Laborluft (H. AIGINGER et al., 1986).

Tab. 1: Natürliche Radioaktivität von einigen Baustoffen und Gesteinen.

B, in Vielfachen des in OECD 1979 definierten „repräsentativen Strahlungspegels“ für Baumaterialien

$$\frac{C_K}{1500} + \frac{C_{Ra}}{150} + \frac{C_{Th}}{100} = 1,$$

ist ein Maß für den Beitrag zur Strahlenexposition von Personen (C in Bq/kg).

	<sup>40</sup> K(Bq/kg)	<sup>226</sup> Ra(Bq/kg)	<sup>232</sup> Th(Bq/kg)	B
<b>Sande:</b>				
Dolomitsand	<1	5	<0,3	0,03
Quarzsand	509	10	11	0,52
Marchsand	378	11	11	0,43
<b>Zemente:</b>				
Zement 1	237	60	19	0,75
Fondu Lafarge	11	118	133	2,1
Contragress 275	134	53	7	0,51
Weißzement	199	52	14	0,62
Stahl	<1	<0,3	<0,7	<0,01
Holz (Spanplatte)	28	<1	<1	<0,04
<b>Gipskarton (Alt Erlaa)</b>				
	154	14	4	0,23
<b>Bodenfliese (Ricchetti)</b>				
	902	57	49	1,5

Granit (Waldviertel)	2695	332	190	5,9
Braunkohle (Sakog)	176	261	39	2,2
Olivinsand (Hawaii)	7	0,3	0,4	0,01

### Radionuklide aus dem Brennstoffkreislauf

Wegen des aktuellen Anlasses – Kraftwerksunfall in Tschernobyl am 26. 4. 1986 – soll an dieser Stelle noch kurz auf Radionuklide aus dem nuklearen Brennstoffkreislauf, im besonderen auf die Abgabe in Aerosolform, eingegangen werden – allerdings aus geowissenschaftlicher Sicht, nicht aus der des Strahlenschutzes.

Bei den verschiedenen Prozessen des Brennstoffkreislaufes können Radionuklide in die atmosphärische und die aquatische Umwelt gelangen. Einige dieser freigesetzten Radionuklide können sich infolge der Größenordnung ihrer Halbwertszeit und ihrer Mobilität in der Umwelt bzw. ihrer Beteiligung an natürlichen Kreisläufen weltweit ausbreiten. Zieht man als Kriterien die an die Umwelt abgegebenen Mengen, die physikalische Halbwertszeit, die Verweilzeit der Radionuklide im Transportmedium und die Möglichkeit der Resuspension bzw. Anreicherung der Radionuklide in der Umwelt heran, so sind vor allem die Nuklide  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{129}\text{J}$  von regionalem und globalem Interesse (IAEA, 1983). Bei diesen Radionukliden ist auch bei einer Freisetzung lokaler Natur mit einer weltweiten Ausbreitung zu rechnen, ehe die Aktivität durch den radioaktiven Zerfall abgeklungen ist. Möglicherweise trifft dies auch für  $^{99}\text{Tc}$  zu, doch ist bis jetzt nur wenig über dessen Mobilität in der Umwelt bekannt.

Auch andere beim Brennstoffkreislauf freigesetzte Radionuklide können im globalen Maßstab von Bedeutung sein, wenn der Begriff „globaler Maßstab“ auch auf Radionuklide ausgedehnt wird, die mindestens einmal die Erde umkreisen können, bevor sie durch radioaktiven Zerfall abgeklungen sind. In diesen Fällen hängen die Konzentrationen stark vom Ort der Freisetzung ab und nehmen normalerweise mit wachsendem Abstand ab. Bei atmosphärischen Freisetzungen sind die Nuklide  $^{131}\text{J}$  und  $^{133}\text{Xe}$  in Gasform sowie  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{140}\text{Ba}$  in Partikelform von Bedeutung. Bei Freisetzungen in die Hydrosphäre kann es bei  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{237}\text{Np}$  zur Ausbreitung im globalen Maßstab kommen.

Die freigesetzten Aerosole gehören im allgemeinen dem Submikrobereich an, so daß die gravitationsbedingte Deposition keine entscheidende Rolle spielt. Die ausschlaggebenden Ablagerungsprozesse sind die trockene Deposition bei der Berührung einer radioaktiven Wolke mit einer Land- oder Wasseroberfläche und die nasse Deposition durch Auswaschung. Das abgelagerte radioaktive Material kann entweder in den Boden infiltrieren, über den Abfluß die Oberflächengewässer erreichen, in die terrestrische Nahrungskette aufgenommen werden oder wieder in die Atmosphäre gelangen. Zu dieser Klasse von Radionukliden gehören beispielsweise Spaltprodukte wie  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  oder Aktivierungsprodukte wie  $^{60}\text{Co}$ .

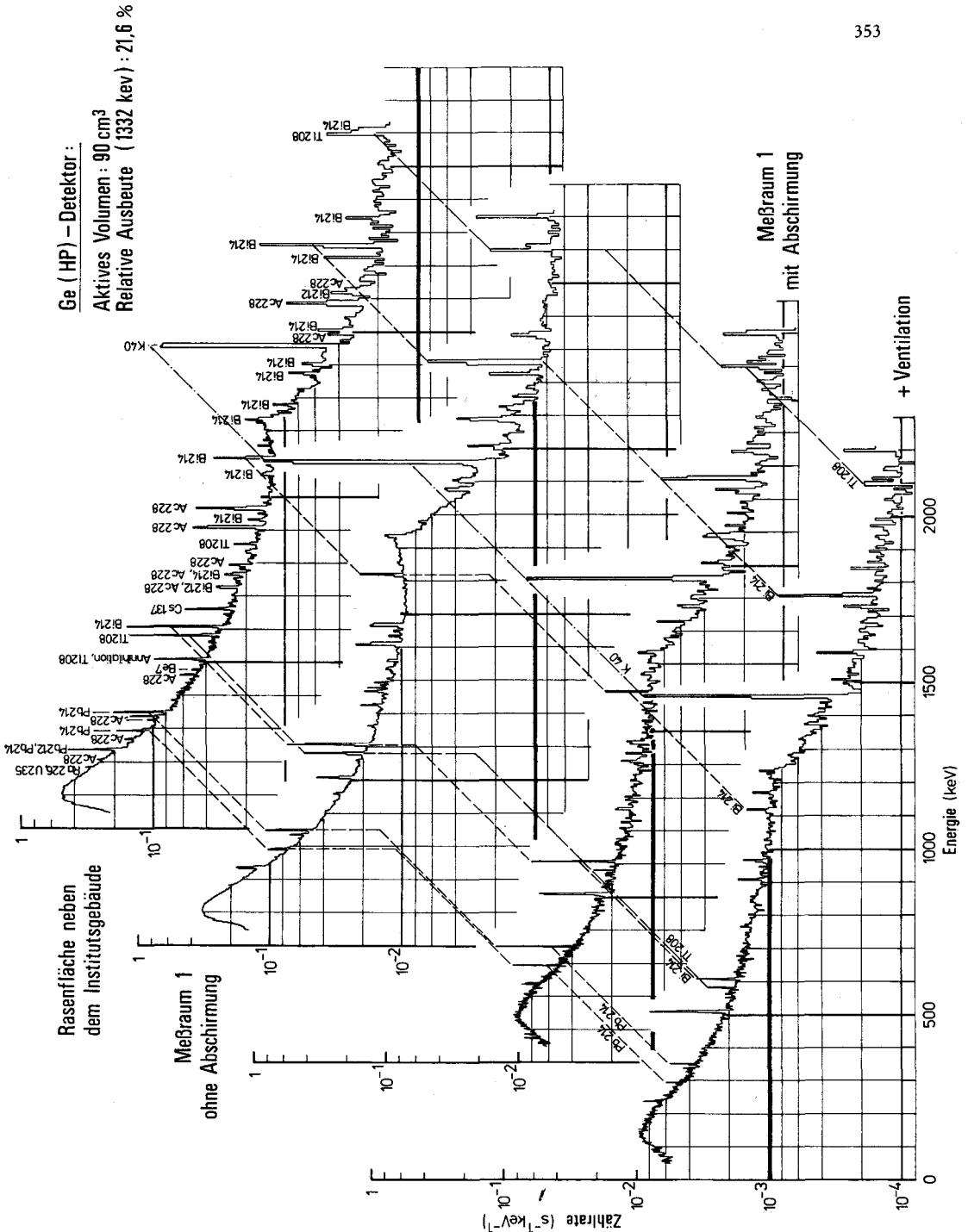


Abb. 6: Spektrum der natürlichen Gammastrahlung außerhalb und innerhalb eines Gebäudes am Beispiel des neuen Niedrigpegellaboratoriums der BVFA-Arsenal; Wirkung von Abschirm- und Lüftungsmaßnahmen (H. AIGINGER et al., 1986).

Vom Standpunkt des Geowissenschaftlers ist die Freisetzung von Radionukliden in die Atmosphäre beim Kraftwerksunfall in Tschernobyl als überregionaler Markierungsversuch anzusehen. Die radioaktiven Aerosole wurden in Mitteleuropa innerhalb von wenigen Tagen – 30. 4. und die ersten Maitage – aus der Troposphäre ausgewaschen, dies führt zu einer scharfen Zeitmarke in den rezenten Sedimenten – schärfer als jene von den Kernwaffenversuchen der sechziger Jahre stammende, als die radioaktiven Stoffe in die Stratosphäre gelangten und erst über Jahre verteilt die Erdoberfläche erreichten.

Zunächst können die Radionuklide aus Tschernobyl zum Studium des Eindringens von Schadstoffen in den Boden dienen. Die Messung der Verteilung von  $^{103}\text{Ru}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in einem grasbewachsenen, tonigen Boden läßt erkennen, daß zwei Monate nach dem Unfall der Großteil der radioaktiven Stoffe nach wie vor in der allerersten Bodenschicht anzutreffen ist (Abb. 7).

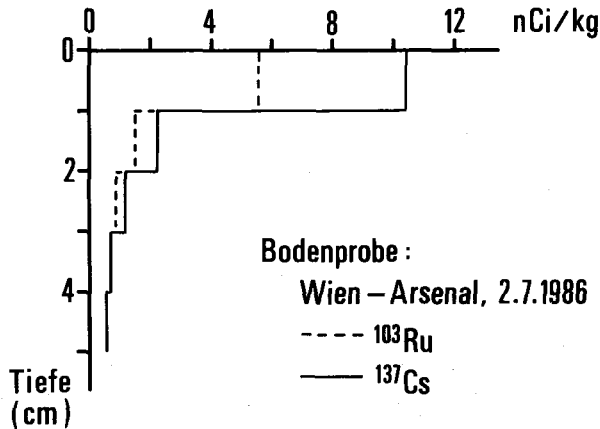


Abb. 7: Spaltproduktverteilung in einem Bodenprofil zwei Monate nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl. Die Werte beziehen sich auf bei Normaltemperatur an der Luft getrocknetes Bodenmaterial (sandig-kalkiger Boden mit hohem Tonanteil). Die  $^{103}\text{Ru}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration des an dieser Stelle wachsenden Grasses (Trockensubstanz) betrug zur gleichen Zeit 3,0 bzw. 8,2 nCi/kg.

Die Messung künstlicher Radionuklide kann auch für die Untersuchung von Sedimentationsraten in Seen und Stauräumen erfolgreich eingesetzt werden. Beispielsweise brachte eine Aufnahme der  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in Sedimentprofilen aus dem Neusiedlersee-Gebiet im Jahre 1967 den Hinweis, daß im offenen See keine Ablagerung stattfindet, während im Schilfbereich und in windgeschützten Teilseen mit hohen Sedimentationsraten zu rechnen ist (Abb. 8).

Die Radioökologie bedient sich der künstlichen Radionuklide zur Untersuchung von Stoffwechseln in Ökosystemen, beispielsweise der Aufnahme von Schadstoffen

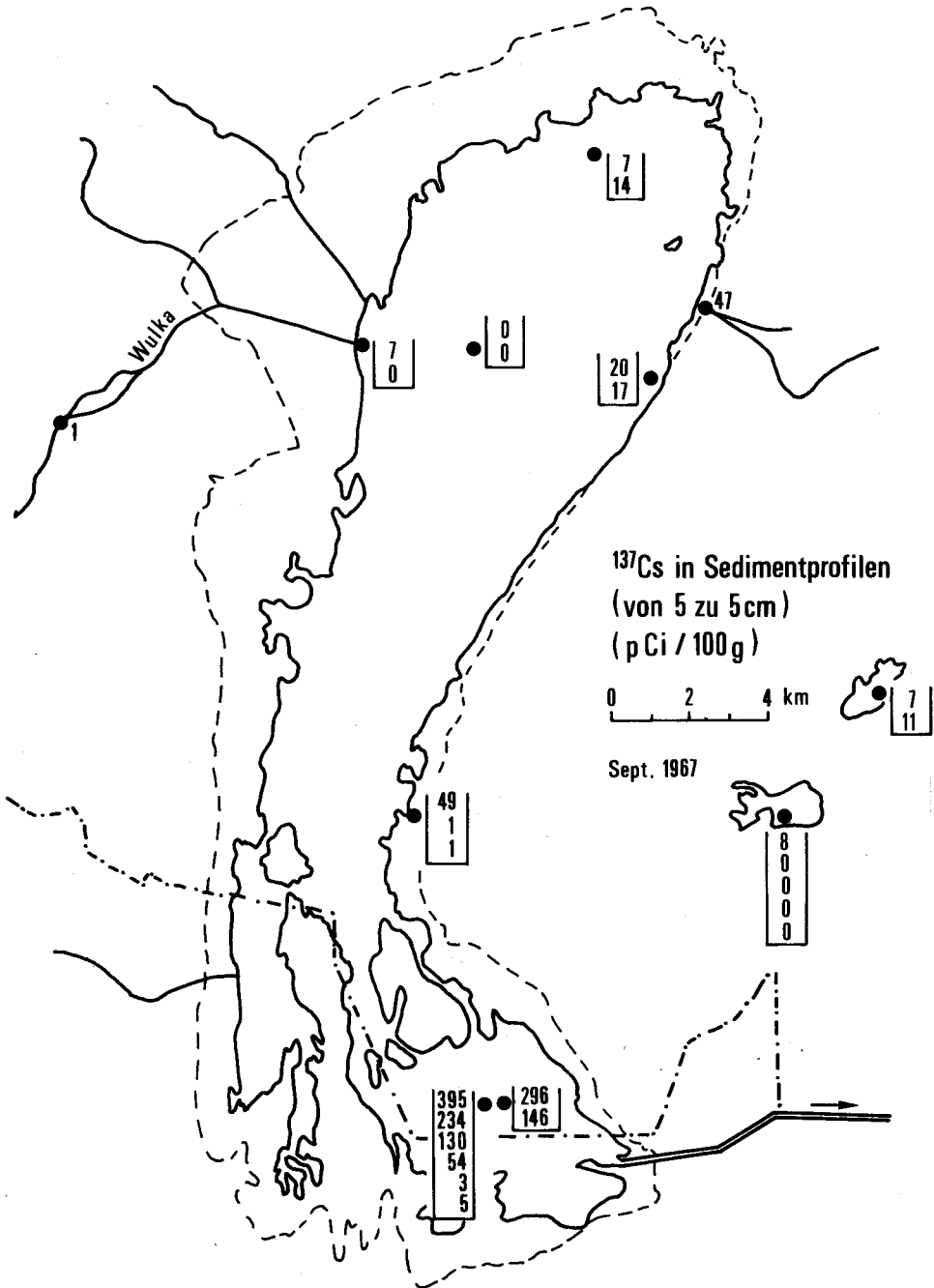


Abb. 8:  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in Sedimentprofilen aus dem Neusiedlersee-Gebiet. Die Werte beziehen sich auf getrocknetes Material ohne Berücksichtigung der Korngrößenverteilung (D. RANK, 1967).

aus der Umwelt in die Nahrungsketten. Auch hierfür ist das in erster Näherung abflußlose Neusiedlersee-Becken ein gutes Untersuchungsbeispiel, die Entfernung von Radionukliden wie  $^{137}\text{Cs}$  aus dem System erfolgt nur durch den radioaktiven Zerfall. Erste Meßergebnisse von Proben aus dem Neusiedlersee-Gebiet lassen aufgrund der großen Konzentrationsunterschiede eine breite Palette von Anwendungsmöglichkeiten erkennen (Tabelle 2).

Die Anwendung von Radionukliden bei der Bearbeitung von Umweltfragen setzt die Kenntnis ihrer Eigenschaften voraus. Welche Rolle unterschiedliches geophysikalisches und geochemisches Verhalten spielt, ist beispielsweise an der Verschiedenartigkeit der zeitlichen Konzentrationsverläufe von  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  im Donauwasser zu erkennen (Abb. 9). Während der  $^3\text{H}$ -Gehalt nur geringe jahreszeitliche Schwankungen aufweist, zeigt der  $^{90}\text{Sr}$ -Gehalt einen ausgeprägten Jahresgang und der Verlauf des  $^{137}\text{Cs}$ -Gehaltes scharfe Maxima. Der Unterschied zwischen  $^{90}\text{Sr}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationsverlauf ist dabei auf die unterschiedlich starke Wechselwirkung dieser Nuklide mit dem Sediment zurückzuführen.

Insgesamt liegt es am Geschick des einzelnen Geowissenschaftlers, rechtzeitig die Anwendungsmöglichkeiten zu erkennen, die ihm eine gewollte oder ungewollte Freisetzung von Radionukliden in die Umwelt bietet, und sie so gut wie möglich für sein Arbeitsgebiet auszunützen.

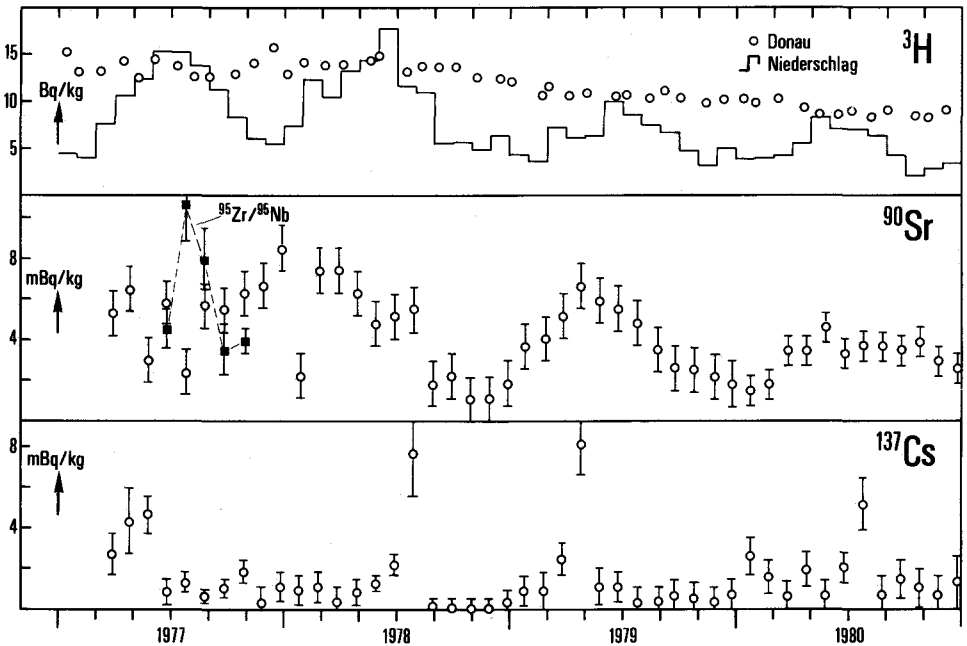


Abb. 9: Aktivitätskonzentrationen von  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$  und  $^{137}\text{Cs}$  im Donauwasser sowie  $^3\text{H}$ -Monatsmittel des Niederschlags (Wien) (K. BUCHTELA et al., 1981).

Tab. 2: Konzentration von künstlichen Radionukliden im Ökosystem Neusiedlersee als Folge des Reaktorunfalls von Tschernobyl; Probenahme vom 3. 7. 1986 (Angaben in nCi/kg\*) für – die Wasserproben ausgenommen – getrocknetes Probenmaterial

	Radionuklid (Halbwertszeit)		
	<sup>103</sup> Ru(39,35d)	<sup>134</sup> Cs(2,06a)	<sup>137</sup> Cs(30,17a)
Schlamm (Kornfraktion <0,02 mm):			
Neusiedlersee (Illmitz)	27,8	19,9	44,4
Darscholacke	31,7	26,1	50,5
Oberflächenwasser (filtriert, Weißband- filter):			
Neusiedlersee (Illmitz)	0,0133	0,0038	0,0083
Albersee	0,0657	0,0209	0,0426
Schilf (Illmitz):			
am Rand des offenen Sees	0,6	0,4	0,9
aus einem dichten Schilfbestand	2,1	1,3	2,8
Fadenalgen (Illmitz):	16,4	5,4	11,1
Wasserschlauch (Utricularia) (Illmitz):	9,3	6,1	12,9
Gras (bei Darscholacke):	48,1	52,7	101,4

\*) Die österreichische Strahlenschutzgesetzgebung verwendet derzeit noch die Aktivitätseinheit „Curie“. Zur leichteren Vergleichbarkeit mit den nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl in die Öffentlichkeit gelangten Aktivitätsdaten wird auch hier die Aktivität in Nanocurie angegeben (1 nCi = 37 Bq).

## Literatur

- AIGINGER, H., MARINGER, F., RANK, D., UNFRIED, E.: A new laboratory for routine low-level measurements (BVFA-Arsenal, Wien). Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 17, 435–437, Amsterdam 1986.
- BAUER, F., RAJNER, V., RANK, D.: Ungewöhnliche Tritium-Verteilung im Niederschlag in den Ostalpen. Die Naturwissenschaften, 62, 526, Stuttgart 1975.
- BUCHTELA, K., RAJNER, V., RANK, D., TSCHURLOVITS, M., UNFRIED, E.: Nuklidspezifische Radioaktivitätsuntersuchungen im österreichischen Donauabschnitt. Wissenschaftliche Kurzberichte, 22. Arbeitstagung der Internationalen Arbeitsgemeinschaft Donauforschung, 67–70, Basel 1981.
- DROST, W., MOSER, H., NEUMAIER, F., RAUERT, W.: Isotopenmethoden in der Grundwasserkunde. Informationsheft des Büro Eurisotop 61, 178 S., Brüssel 1972.
- IAEA: Regional and Global Environmental Behaviour of Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle. TECDOC 279, IAEA, 72 S., Wien 1983.
- OECD: Exposure to Radiation from the Natural Radioactivity in Building Materials. Bericht einer NEA-Expertengruppe. OECD, Paris 1979.
- RANK, D.: Interner Bericht (unveröffentlicht), Bundesversuchs- und Forschungsanstalt Arsenal, Wien 1967.
- RANK, D.: Isotopenverhältnisse im natürlichen Wasserkreislauf. Österr. Wasserwirtschaft, 38, H. 7/8, Wien 1986.
- RANK, D., RAJNER, V.: Isotopenhydrologische Voruntersuchungen am Westufer des Neusiedlersees. Biologisches Forschungsinstitut für Burgenland, Illmitz; Bericht 51, 123–128, Illmitz 1984.
- RANK, D., RAJNER, V., LUST, G.: Der Tritiumgehalt der Niederschläge und der Oberflächenwässer in Österreich im Jahre 1984. Bericht IG 85/01, Bundesversuchs- und Forschungsanstalt Arsenal, 27 S., Wien 1985.

# ZOBODAT - [www.zobodat.at](http://www.zobodat.at)

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: [Austrian Journal of Earth Sciences](#)

Jahr/Year: 1986

Band/Volume: [79](#)

Autor(en)/Author(s): Rank Dieter

Artikel/Article: [Isotopenverhältnisse und Radionuklide - Spuren in der Umwelt. 343-357](#)