

Der Fallout und sein ^{90}Sr -Gehalt in Mitteldeutschland von 1961 bis 1974

Wilhelm Römer und Günther Schilling

Summary

The radioactive fall-out and its ^{90}Sr -content in Central Germany from 1961 to 1974

From October 1, 1961, until December 31, 1974, precipitations were continuously collected in the town area of Jena (until 31.12.1971) and subsequently in that of Halle by use of four enamel dishes of 452 cm² bottom size each. The water was analysed for radioactive fall-out and its ^{90}Sr content. The beta-activity of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ standard preparations was chosen as a reference basis. Maximum values for both fall-out and ^{90}Sr activity were recorded in 1963. They were registered eight to nine months after the last atomic bomb tests carried out by the USA and the USSR in the atmosphere. Afterwards, fall-out values decreased within two years from 21 kBq m⁻²a⁻¹ (520 Bq m⁻²a⁻¹ ^{90}Sr) to values around 2 kBq m⁻²a⁻¹ i.e. 160 Bq m⁻²a⁻¹ ^{90}Sr . During the following ten years approximately 0,4 kBq m⁻²a⁻¹ were measured as fall-out or approx. 70 Bq m⁻²a⁻¹ ^{90}Sr . The fall-out data in the months April and May 1988 after the reactor accident in Chernobyl were five times higher than the maximum values for the corresponding months of 1963 in the comparable geographic region. ^{90}Sr , however, was found in traces only.

Zusammenfassung

Vom 1.10.1961 bis 31.12.1974 sind die Niederschläge in vier Emailleschalen (je 452 cm² Grundfläche) kontinuierlich im Stadtgebiet von Jena (bis 31.12.1971), anschließend in dem von Halle, gesammelt und auf ihren Fallout sowie dessen ^{90}Sr -Gehalt untersucht worden. Als Meßbasis diente die Beta-Aktivität von $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ Standardpräparaten. Das Maximum sowohl des Fallout als auch der ^{90}Sr -Aktivität lag im Jahr 1963 und wurde acht bis neun Monate nach den letzten Atombombentests der USA und UdSSR in der Atmosphäre ermittelt. Danach sank der Fallout innerhalb von zwei Jahren von 21 kBq m⁻²a⁻¹ (520 Bq m⁻²a⁻¹ ^{90}Sr) auf Werte von ca. 2 kBq m⁻²a⁻¹ bzw. ca. 160 Bq m⁻²a⁻¹ ^{90}Sr ab. Innerhalb der folgenden zehn Jahre wurden ca. 0,4 kBq m⁻²a⁻¹ als Fallout bzw. ca. 70 Bq m⁻²a⁻¹ ^{90}Sr gemessen. Die Falloutwerte der Monate April und Mai 1988 nach dem Reaktorunfall in Chernobyl lagen im vergleichbaren geographischen Raum etwa fünfmal über den Höchstwerten der gleichen Monate des Jahres 1963. Allerdings trat ^{90}Sr nur in Spuren auf (Werte des SAAS).

1. Einleitung

Die Reaktorkatastrophe von Chernobyl hat der Welt schlaglichtartig die Gefahr, die auch von der friedlichen Nutzung der Atomenergie ausgehen kann, vor Augen geführt. Das radioaktive Material breitete sich innerhalb von Stunden bzw. Tagen über Tausende von

Kilometern in der Atmosphäre aus und bedeckte bald als Fallout Boden, Pflanzen, Tiere, Menschen usw., eben alles, was in der Folge mit dem atmosphärischen Niederschlag in Berührung kam. Dieses Ereignis hat mit aller Deutlichkeit noch einmal klargemacht, daß Schadstoffe in der Umwelt nicht an Landesgrenzen haltmachen, sondern von globaler Bedeutung sind. Diese Erkenntnis ist nicht neu, waren doch die radioaktiven Spaltprodukte, die von den Atombombenversuchen der Großmächte in den 50er und 60er Jahren in der Atmosphäre herrührten, überall auf der Erde meßbar. Auch auf dem Territorium der ehemaligen DDR wurden Fallout-Messungen vorgenommen, und insbesondere wurde die Kontamination von Böden und Pflanzen mit ^{90}Sr wegen dessen relativ großer Halbwertszeit und hohen biologischen Toxizität verfolgt. Der Übertritt von ^{90}Sr aus dem Boden in die Pflanzen und damit in die Nahrungskette ist systematisch untersucht worden (SCHILLING und RICHTER, 1965).

Für 1964 (1) gab es eine Einschätzung, daß sich noch ca. 6×10^6 Ci radioaktives Strontium in der Atmosphäre unterhalb von 30.000 m befänden, mit deren Niedergehen auf die Erde in den folgenden Jahren gerechnet werden müsse. Es erschien deshalb sinnvoll, die im Jahr 1961 in Jena begonnene Erfassung der Gesamtradioaktivität im Niederschlag und der Radioaktivität in Form des ^{90}Sr (4) (SCHILLING und RICHTER, 1965) fortzuführen, um den jeweils möglichen aktuellen Verseuchungszustand zu kennen. Als 1975 eine Veröffentlichung der Meßreihen erwogen wurde, sind diese und die Fortsetzung der Messungen von Amts wegen untersagt worden. Da es jedoch offenbar kaum veröffentlichte Fallout-Meßwerte für das Gebiet der ehemaligen DDR gibt, halten wir die Bekanntgabe der o. g. Ergebnisse auch heute noch für sinnvoll.

2. Material und Methoden

2.1. Bestimmung der Radioaktivität in den Niederschlägen

Die Sammlung der atmosphärischen Niederschläge erfolgte wochenweise in vier emaillierten Schalen (\varnothing 24 cm). Nach einer Woche ist der Inhalt von je zwei Schalen vereinigt und bis fast zur Trockne eingedampft worden. Diese Lösung wurde 1:1 mit konz. HCl versetzt, anschließend filtriert (mittleres Filter) und nach dem Waschen des Filters wieder bis fast zur Trockne eingedampft. Die konzentrierte Lösung ist auf jeweils vier eingewogene Präparateschälchen überspült und im Trockenschrank bei 70 - 80°C eingengt worden. Die Messung der Radioaktivität erfolgte mittels Endfensterzählrohr VA-Z-310 (in Bleiabschirmkammer) und Meßgerät VA-M-16 des VEB Meßelektronik, Dresden. Die Errechnung der Gesamtaktivität des Fallout (Beta-Aktivität) basierte auf der vorher ermittelten Meßausbeute der genannten Meßanordnung unter Verwendung von Meßpräparaten, die aus ^{90}Sr - ^{90}Y -Lösungen¹⁾ bekannter absoluter Radioaktivität bei verschiedenen Schichtdicken angefertigt waren. Der Bezug je m^2 ergab sich aus der Fläche der Auffangschalen.

¹⁾ ^{90}Sr , ein reiner β -Strahler, zerfällt mit einer Halbwertszeit von 28 Jahren in ^{90}Y , welches seinerseits durch β -Umwandlung in stabiles ^{90}Zr übergeht ($t_{1/2} = 65$ h). Deshalb sind ^{90}Sr und ^{90}Y stets vergesellschaftet in ^{90}Sr Präparaten. Da der Fallout auch andere Nuklide enthält, die infolge abweichender Strahlungsart und -energie zu anderen Zählausbeuten führen, geben die Meßwerte bei Verwendung eines Endfensterzählrohres nur ein angenähertes Bild von der tatsächlich vorhandenen Radioaktivität.

2.2. Messung des ^{90}Sr in den atmosphärischen Niederschlägen

Die Abtrennung des Sr aus dem gesamten Niederschlagsgemisch erfolgte nach LUDWIEG (2). Die Einzelheiten der sehr langwierigen Prozedur sind dort nachzulesen. Hier soll nur der prinzipielle Weg mitgeteilt werden. Er besteht zunächst in der Abtrennung der Alkalielemente (Cs-137), dann des Eisens und Aluminiums mit den Elementen der Seltenen Erden und schließlich in der Trennung der einzelnen Erdalkalielemente. Bei den eigenen Analysen sind die Meßpräparate des Fallout eines Monats (zwei Parallelen) mit verdünnter HCl gelöst und mit Sr-Träger (100 mg Sr als Chlorid) versetzt worden. Es folgte eine Fällung mit Oxalsäure und NH_4OH . Im Filtrat verbleiben die Alkalimetalle, die nicht weiter verfolgt wurden. Nach Glühen und Wiederauflösen des Niederschlages mit HNO_3 erfolgt die Fällung von Fe und der genannten Elemente mittels NH_4OH . Die im Filtrat gelösten Erdalkalien wurden mit $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ gefällt. Zur Abtrennung des Ca wurden die Karbonate in Nitrate überführt. Ca NO_3 wird mittels Alkohol/Ether-Gemisch abgetrennt. Nach Ba-Trägerzugabe erfolgt dessen Fällung als Chromat. Das im Filtrat befindliche Sr wird als Karbonat ausgefällt und bei 600°C geglüht, um die chemische Ausbeute zu ermitteln (vgl. unten). Für die Bestimmung der Radioaktivität wird das Karbonat wieder mit verdünnter HCl gelöst und zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ für achtzehn Tage aufbewahrt.

Die salzsaure Sr-Lösung wird nun mit Eigenträger (Fe als Chlorid) und mit konz. NH_4OH versetzt. Der Niederschlag, der das ^{90}Y enthält, wird mittels Hahnscher-Nutsche (mittleres Filter) abfiltriert und auf ein Meßschälchen überführt. Dieses Meßpräparat muß innerhalb von zwei Stunden nach der Fe-Fällung gemessen werden (10 min), da die Halbwertszeit nur 65 h beträgt. Aus der Impulsrate/min für ^{90}Y ($I_1^{90}\text{Y}$) wird die absolute Aktivität A für ^{90}Sr wie folgt errechnet:

$$A_{^{90}\text{Sr}} = \frac{I_1^{90}\text{Y}}{C \cdot W}$$

Hierbei bedeutet C die chemische Ausbeute des Sr, also

$$C = \frac{\text{gefundenene Menge Träger-Sr}}{\text{zugesetzte Menge Träger-Sr}}$$

und W den Wirkungsgrad der Zählordnung (Umrechnung auf absolute Aktivität). Zur Bestimmung von W wurde aus einem im radioaktiven Gleichgewicht befindlichen $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Standardpräparat mit bekannter absoluter Radioaktivität, wie oben beschrieben, das ^{90}Y mittels Fe-Träger und NH_4OH -Zugabe gefällt und gemessen.

Dann ist

$$W = \frac{\text{gemessene Impulse/min}}{\text{absolute Zerfälle/min}}$$

Die Radioaktivität wird in Bq angegeben ($1 \text{ n Ci} = 37 \text{ Bq}$).

Bei diesem Meßverfahren wird also aus der Radioaktivität des ^{90}Y auf diejenige des ^{90}Sr geschlossen. Das erscheint deshalb sinnvoll, weil das in jedem ^{90}Sr -Präparat vorhandene ^{90}Y die Meßwerte verfälschen würde, und reine ^{90}Sr -Bestimmungen mit dem Fensterzählrohr daher kaum möglich sind.

3. Ergebnisse und ihre Bewertung

Aus Tab. 1 und Abb. 1 geht hervor, daß die Radioaktivität im Niederschlag im 2. und 3. Quartal 1963 im untersuchten Meßzeitraum ihr Maximum erreicht hatte. Der Höchstwert

lag 6 bis 9 Monate nach den letzten Atomwaffenexplosionen in der Atmosphäre (USA: 4.11.1962; UdSSR: 25.12.1962).

Tabelle 1: Der Fallout und sein ⁹⁰Sr-Gehalt in Jena (1961-1971) und in Halle (1972-1974) nach Quartalen

Jahr	Quartal	Fallout Bq/m ²	⁹⁰ Sr Bq/m ²	Jahr	Quartal	Fallout Bq/m ²	⁹⁰ Sr Bq/m ²
1961	4	4417	167	1968	1	140	11
					2	438	16
					3	249	13
					4	74	9
					Σ	901	49
1962	1	3845	92	1969	1	137	13
	2	4114	79		2	429	15
	3	4001	86		3	359	9
	4	3628	86		4	86	8
	Σ	15588	343		Σ	1011	45
1963	1	3072	62	1970	1	255	11
	2	8820	250		2	223	20
	3	7649	188		3	226	35
	4	1191	18		4	160	22
	Σ	20732	518		Σ	864	88
1964	1	1017	38	1971	1	82	8
	2	2422	263		2	224	14
	3	1086	43		3	625	24
	4	465	17		4	433	10
	Σ	4990	361		Σ	1364	56
1965	1	562	45	1972	1	134	3
	2	1008	78		2	90	63
	3	606	28		3	73	35
	4	185	12		4	39	12
	Σ	2361	163		Σ	336	113
1966	1	115	10	1973	1	68	26
	2	249	20		2	55	9
	3	317	13		3	63	3
	4	122	0		4	89	0
	Σ	803	43		Σ	275	38
1967	1	106	5	1974	1	90	22
	2	58	6		2	119	29
	3	168	6		3	100	19
	4	69	9		4	57	6
	Σ	401	26		Σ	366	76

Danach sank die Radioaktivität im Niederschlag von jährlich 21 kBq/m² innerhalb von 3 Jahren auf ca. 1 kBq/m² (1966), um dann bis in die 70er Jahre nur noch langsam auf ca. 0,3 kBq/m² abzusinken (Abb. 1). Das entspricht einer Abnahme um den Faktor 70. Die ⁹⁰Sr-Radioaktivität sank im gleichen Zeitraum von 518 Bq/m² auf ca. 70 Bq/m². Das entspricht einer Abnahme nur um den Faktor 7,4. Dieser Unterschied hat seine Ursache ohne Zweifel in der größeren Halbwertszeit des ⁹⁰Sr (28 Jahre) im Vergleich zu der der erfaßten anderen Spaltprodukte. Insgesamt hat also der Kernwaffenteststop in der Atmosphäre zu einem starken Rückgang der Kontamination der Erdoberfläche durch den Fallout geführt.

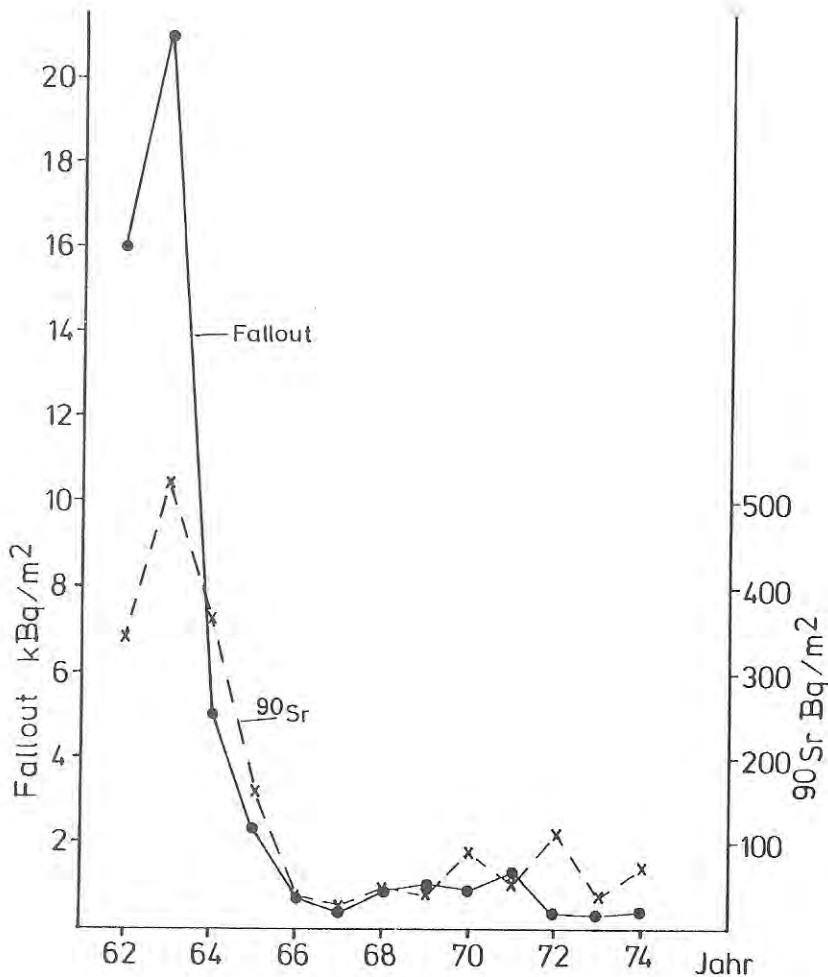


Abbildung 1: Fallout (kBq/m² . a) und ⁹⁰Sr-Aktivität (Bq/m² . a) von 1962-1971 in Jena und von 1972-1974 in Halle/Saale

Dies ist insbesondere bedeutsam für die ^{90}Sr -Kontamination von pflanzlicher Kost, die in Einzelfällen im mitteldeutschen Raum 1963 durchaus Werte von 49% der damals empfohlenen Werte der maximal zulässigen Konzentration (MZK) erreicht hatte (SCHILLING und RICHTER, 1965). Wie fällt ein Vergleich der Falloutmessungen aus der Zeit der atmosphärischen Atombombentests bzw. der Zeit nach dem 12-jährigen Aussetzen dieser Tests und der Zeit nach dem Reaktorunfall von Chernobyl aus? Tabelle 2 gibt einige Resultate wieder. Wenn auch die absolute Vergleichbarkeit der eigenen Werte mit denen des Staatlichen Amtes für Atomsicherheit und Strahlenschutz (SAAS) nur mit Vorsicht vorgenommen werden kann, da die Meßmethoden verschieden waren, zeigt sich aber doch, daß bei dem Unfall in Chernobyl große Mengen an Radioaktivität freigesetzt worden sind. Die Fallout-Werte lagen deutlich über denen der vergleichbaren Jahreszeit der Jahre 1962 und 1963, als die Atomtests in der Atmosphäre die damaligen Höchstwerte verursacht hatten. Bemerkenswert ist jedoch, daß im Fallout 1988 so gut wie kein ^{90}Sr nachgewiesen werden konnte, die Radioaktivität sich vorzugsweise auf relativ kurzlebige Nuklide beschränkte. Unter anderem war auch dadurch die Empfehlung mit abgeleitet worden, daß es in der DDR zu keinem Zeitpunkt eine Gefährdung der Bevölkerung durch kontaminierte Nahrung gegeben hat. MIETTINEN (3) war zu dem Schluß gekommen, daß "no one anywhere outside the Soviet Union has been exposed to radiation doses hazardous to health". Das mag mit großer Wahrscheinlichkeit zutreffen. Trotzdem macht dieser Reaktorunfall deutlich, daß andere Methoden der Energieproduktion nötig sind. Doch sollten wir uns davor hüten, weniger sichere Alternativen für sicherer zu halten.

Tabelle 2: Meßergebnisse des Fallout im mitteldeutschen Raum nach verschiedenen Autoren

Zeitraum ^{*)}	Ort	kBq/m ²	Autor
1962	Jena	2,9 ¹⁾	eigene Untersuchung
1963	Jena	4,6 ¹⁾	eigene Untersuchung
1964	Jena	1,3 ¹⁾	eigene Untersuchung
1974	Halle	0,06 ¹⁾	eigene Untersuchung
1988	Gera	24,6 ²⁾	(5)

^{*)} stets 1.4. bis 31.5. (2 Monate)

¹⁾ Messung basierte auf Meßvergleich mit $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Standardpräparaten

²⁾ Verursacht durch ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs und ^{140}La ; Messungen basieren auf Brutto-Beta-Aktivitätsmessungen bzw. Gamma-Spektrometriemessungen

LITERATUR

1. BÄRWOLF, A., 1964: Der Regen bleibt gefährlich. DIE WELT vom 18.8.1964
2. LUDWIEG, F., 1958: Die quantitative Bestimmung von Strontium-89, Strontium-90, Barium-140 und Cäsium-137 in Pflanzen und Milch. Landw. Forsch. 11, S. 257-264
3. MIETTINEN, J.K., 1988: The Risks of Radiation. Isotopenpraxis 24, S. 39-41
4. SCHILLING, G.; RICHTER, D., 1965: Einige Gedanken zum Stand der ^{90}Sr -Kontamination im Raume der Deutschen Demokratischen Republik. Wiss. Z. der Friedrich-Schiller-Universität Jena, Math.-Nat.-Reihe 14, S. 129-132
5. Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz (SAAS), 1988: Results of Radiation Monitoring in the German Democratic Republic after Chernobyl. Isotopenpraxis 24, S. 33-38

Anschrift der Verfasser:
Dr. sc. Wilhelm Römer
Institut für Agrikulturchemie der
Georg-August-Universität Göttingen
von-Siebold-Str. 6

~~W-3400~~ Göttingen

37075

Prof. Dr. habil. Günther Schilling
Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg
Landwirtschaftliche Fakultät
Institut für Pflanzenernährung und Düngung
A.-Kuckhoff-Str. 17b
O-4020 Halle/S.

awroemer@web.de