

## Tritiummessungen an Regenwasser ohne Isotopenanreicherung

VON H. v. BUTTLAR, W. STAHL UND B. WIIK

Institut für Technische Kernphysik  
der Technischen Hochschule Darmstadt

(Z. Naturforschg. 17 a, 91–92 [1962]; eingegangen am 14. Dezember 1961)

Die Tritiumkonzentration im Regenwasser schwankte im Sommer 1961 um einen Wert von etwa 80 TE (Tritium-Einheiten;  $1 \text{ TE} = 10^{-18}$  Atome T/Atom H). Um solche niedrigen Konzentrationen nachzuweisen, war es bisher notwendig, die schweren Isotope des Wasserstoffs im Wasser anzureichern. Dies erfordert einen langwierigen Prozeß (z. B. Elektrolyse) und verursacht eine beträchtliche Unsicherheit in der Auswertung, da es schwierig ist, den Anreicherungsfaktor genau zu bestimmen.

Mit einem großen Zählrohr<sup>1</sup>, das ähnlich dem von HOUTERMANS und OESCHGER<sup>2</sup> beschriebenen konstruiert ist und einen geringen Nulleffekt sowie eine hohe Ansprechwahrscheinlichkeit für die Tritium- $\beta$ -Strahlung aufweist, war es möglich, Tritiumkonzentrationen von Regenproben ohne Isotopenanreicherung bei einer Zählzeit von 10 Std. mit einem einfachen statistischen Fehler von etwa 10% zu messen. Das Zählrohr hat ein Gesamtvolumen von 11 l und ein geometrisches Zählvolumen von 2,9 l (begrenzt durch die Kapillaren um den Zentralzählrohrdraht und eine 8,9 mg/cm<sup>2</sup> Cu-Folie, die die Wand zwischen Zentralzählvolumen und Antikoinzidenzählvolumen bildet).

Von den Regenproben (vom Dach des Darmstädter Institutsgebäudes) wurden je etwa 10 cm<sup>3</sup> destilliert und über Mg bei 550 °C zu Wasserstoffgas reduziert. Der Wasserstoff wurde durch ein Pd-Ventil von etwaigen Verunreinigungen befreit und direkt in das Zählrohr gegeben.

Das Zählrohr arbeitet im GEIGER-Bereich bei einer Füllung von 30 Torr C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, 40 Torr Argon und bis zu 760 Torr H<sub>2</sub>-Gas. Die Impulse werden elektronisch gelöscht (Löschimpulsdauer 7 msec im Antikoinzidenzkreis und 11 ms im Zentralzählkreis). Als Abschirmung gegen die Höhen- und Umgebungsstrahlung dient ein mit 5 cm Pb ausgekleidetes Eisenhaus von 30 cm Wanddicke.

Den mit dieser Anordnung gemessenen Nulleffekt zeigt Abb. 1 als Funktion des Wasserstoffpartialdrucks. Als Füllgas für diese Messungen diente Tankwasser-

stoff aus einer Druckflasche (SIG Frankfurt) oder aus Laborleitungswasser (weniger als 5 TE) hergestellter Wasserstoff. Alle Meßpunkte liegen auf einer Geraden, von der der zu einem bestimmten Wasserstoffpartialdruck gehörige Nulleffekt mit einem Fehler von 0,03 Imp/min abgelesen werden kann.

Die Ansprechwahrscheinlichkeit der Anordnung für Tritiumstrahlung wurde mit mehreren Verdünnungen aus einem Standard<sup>3</sup> (NBS, Washington D.C., Eichdatum 20. 8. 1954) unter Zugrundelegung einer Tritium-Halbwertszeit von 12,26 Jahren zu  $(90 \pm 2)\%$  bestimmt.

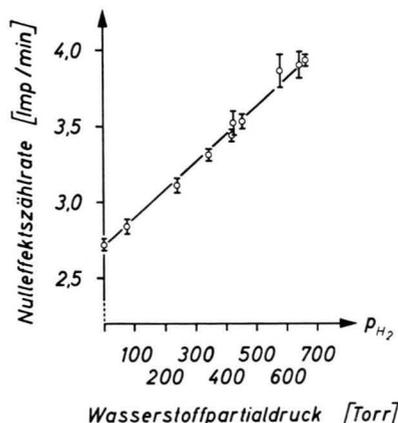


Abb. 1. Nulleffektszählrate in Abhängigkeit vom Wasserstoffpartialdruck. Das Zählrohr arbeitet im GEIGER-Bereich bei 30 Torr C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, 40 Torr Argon und bis zu 760 Torr H<sub>2</sub>.

Die Probeneffekte lagen zwischen 0,4 und 1,8 Imp/min. Die Ergebnisse (Einzelheiten über Zählraten und Korrekturen siehe<sup>4</sup>) sind in Tab. 1 zusammengestellt. Zwischen den Probenmessungen wurde insgesamt 6-mal der Nulleffekt kontrolliert. Dabei wich eine Nulleffektmessung (am 23. 10. 1961) von allen vorher und nachher gemessenen Werten, die immer innerhalb der Fehlergrenzen auf der Geraden (Abb. 1) lagen, um 0,2 Imp/min ab. Daraufhin haben wir die Fehlerangaben bei den Proben, die zwischen 23. 10. und 1. 11. 1961 gemessen wurden, entsprechend erhöht. Die nächste Nulleffektmessung am 2. 11. 1961 lag wieder auf der Geraden.

Nach früheren Messungen<sup>5–10</sup> ist zu erwarten, daß die Tritiumkonzentration im Regenwasser durch die

<sup>1</sup> H. v. BUTTLAR u. W. STAHL, A Low-Level Geiger-Counter for Tritium, Proc. IAEA Symposium on the Detection and Use of Tritium, Wien, Mai 1961, im Druck.

<sup>2</sup> F. G. HOUTERMANS u. H. OESCHGER, Helv. Phys. Acta 31, 317 [1958].

<sup>3</sup> Zwei Verdünnungen des Originalstandards wurden uns freundlicherweise von Herrn Dr. BEGEMANN, Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz, zur Verfügung gestellt. Diese wurden weiterverdünnung und insgesamt 8 verschiedene Messungen durchgeführt. Der angegebene Fehler rührt zum größten Teil vom Fehler des Standards her. Einzelheiten siehe<sup>4</sup>.

<sup>4</sup> W. STAHL, Diplomarbeit, Institut für Technische Kernphysik, Darmstadt 1961.

<sup>5</sup> R. M. BROWN u. W. E. GRUMMITT, Canad. J. Chem. 34, 220 [1956].

<sup>6</sup> H. v. BUTTLAR u. W. F. LIBBY, J. Inorg. Nucl. Chem. 1, 75 [1955].

<sup>7</sup> F. BEGEMANN u. W. F. LIBBY, Geochim. Cosmochim. Acta 12, 277 [1957].

<sup>8</sup> H. v. BUTTLAR u. I. WENDT, Trans. Amer. Geophys. Un. 39, 660 [1958].

<sup>9</sup> H. v. BUTTLAR, J. Geophys. Res. 64, 1031 [1959].

<sup>10</sup> F. BEGEMANN u. A. TURKEVICH, Tritium Assays of Natural Waters. Measured in 1956–1957, AFOSR TR 58–41.



Datum des Regens	Datum der Messung	Ausbeute der Reduktion $\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2$ (%)	Zählrohrdruck (Torr)	Tritium-Konzentration (TE)
22. 8. 61	9. 11. 61	95	455	$71 \pm 7$
28. 9. 61	1. 11. 61	97,5	655	$64 \pm 18$
11. 10. 61	18. 10. 61	95	600	$76 \pm 8$
18. 10. 61	19. 10. 61	95,5	635	$87 \pm 9$
	26. 10. 61	95,5	585	$66 \pm 20$
	28. 10. 61	95	640	$77 \pm 19$
	20. 10. 61	95,5	630	$93 \pm 6$
19. 10. 61	20. 10. 61	92	610	$46 \pm 19$
24. 10. 61	25. 10. 61	95	610	$52 \pm 16$
28. 10. 61	30. 10. 61	63	385	$(51 \pm 11)$
1. 11. 61	6. 11. 61	92	545	$71 \pm 8$
4. 11. 61	7. 11. 61	97	400	$246 \pm 13$
7. 11. 61	8. 11. 61	94	450	$143 \pm 11$
12. 11. 61	13. 11. 61	96,5	450	$186 \pm 8$
13. 11. 61	15. 11. 61	90	390	$265 \pm 43$
28. 11. 61	30. 11. 61			

Tab. 1. Meßergebnisse der Tritiumkonzentration von Darmstädter Regenwasserproben.

letzte russische Kernwaffentestserie stark ansteigen sollte. Für den Anstieg ist hauptsächlich die Explosion von Wasserstoffbomben verantwortlich. So wurde nach der „Operation Castle“ im Frühjahr 1954 im Chicagoer Regen innerhalb von 1 bis 2 Wochen nach Beginn der Explosionen ein Sprung um mehrere hundert TE gefunden, in Ottawa (Canada) sogar ein Sprung um 3000 TE. Nach LIBBY<sup>11</sup> wurden damals Bomben mit einer Sprengkraft von insgesamt etwa 60 MT zur Explosion gebracht; rund die Hälfte der freigesetzten Energie stammte aus Kernspaltprozessen (Atombomben). Es handelte sich damals hauptsächlich um Explosionen, die an der Erdoberfläche stattfanden; daher wurde die Troposphäre stark verseucht, während nur verhältnismäßig wenig Tritium in die Stratosphäre gelangte<sup>7</sup>. Da die Troposphäre durch Regenfälle schnell gereinigt wird (Zeitkonstante etwa 40 Tage), ist der sprunghafte Anstieg der Tritiumkonzentration im Regen verständlich.

Bei der zweiten großen Testserie im Herbst 1958 explodierten Bomben von insgesamt über 70 MT, zwei Drittel davon jedoch in der Atmosphäre, so daß die Feuerbälle bis in die Stratosphäre stiegen. Der Austausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre erfolgt langsam (Zeitkonstante Monate bis Jahre) und zeigt einen Jahresgang mit einem Maximum im Frühjahr<sup>12</sup>. So erreichte die Tritiumkonzentration im Regen erst im Frühjahr 1959 ihr Maximum von 1000 TE<sup>13</sup>. Auch die im Frühjahr (etwa März bis Juli) 1960 und 1961 gefallenen Regen wiesen noch ein relatives Maximum der Tritiumkonzentration auf<sup>14, 15</sup>.

Es schien uns interessant, festzustellen, ob die Tritiumkonzentration des Regenwassers infolge der letzten russischen Testserie, bei der laut Pressemeldungen

Bomben von insgesamt über 100 MT zur Explosion kamen, einen plötzlichen Anstieg zeigte oder nicht.

Tab. 1 zeigt, daß die vielen (etwa 10) russischen Explosionen „im Megatonnenbereich“, die zwischen Anfang September und Mitte Oktober 1961 stattfanden, offenbar keinen Einfluß auf die Tritiumkonzentration des Regenwassers in Darmstadt hatten. Werte zwischen 50 und 100 TE wurden auch im Frühjahr und Sommer 1961 im Darmstädter Regenwasser gemessen<sup>15</sup>. Möglicherweise handelt es sich bei allen diesen Bomben um Uranbomben. Hierfür könnten auch die bisher veröffentlichten Werte der von Spaltprodukten herrührenden Radioaktivität der Luft<sup>16</sup> sprechen, die erstaunlich hoch liegen.

Die erste merkliche Erhöhung der Tritiumkonzentration erfolgte bei dem Regen am 7. 11. 1961, also etwa 2 Wochen nach der ersten mit etwa 30 MT angegebenen Superbombe (Explosion am 23. 10. 1961) und eine Woche nach der zweiten noch stärkeren Explosion am 30. 10. 1961. Der Anstieg der Tritiumkonzentration ist in seiner Größe wesentlich kleiner als z. B. 1954, was vermuten läßt, daß die Feuerbälle wohl sehr große Höhen erreicht und das meiste Tritium in die Stratosphäre befördert haben. Wäre viel Tritium in der Troposphäre geblieben, sollte es trotz des polaren Explosionsortes im hiesigen Regen gefunden worden sein, da inzwischen Kaltluftinbrüche aus dem Norden stattgefunden haben. Aus der Analogie zur Testserie von 1958 ist zu erwarten, daß bis zum kommenden Frühjahr 1962 die Tritiumkonzentration im Regen weiter ansteigt. Durch eine weltweite Beobachtung der Tritiumkonzentration im Regenwasser wird man weiteren Aufschluß über die Strömungsverhältnisse in der Stratosphäre erhalten können.

<sup>11</sup> W. F. LIBBY, Proc. Nat. Acad. Sci., Wash. **45**, 959 [1959].

<sup>12</sup> W. GEORGII, Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft, Heft Strahlenschutz **18**, 56 [1961].

<sup>13</sup> R. M. BROWN, Geochim. Cosmochim. Acta **21**, 199 [1961].

<sup>14</sup> G. OESTLUND, Stockholm Natural Tritium Measurements I, 1. Apr. 1961.

<sup>15</sup> H. v. BUTTLAR, unveröffentlicht.

<sup>16</sup> Atom- und Wasser-Informationen des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft, Sept.—Nov. 1961.