

Jubiläumsschrift 20 Jahre Geologische Zusammenarbeit Österreich – Ungarn			A 20 éves magyar-osztrák földtani együttműködés jubileumi kötete		
Redaktion: Harald Lobitzer & Géza Császár			Szerkesztette: Harald Lobitzer & Géza Császár		
Teil 1	S. 379–384	Wien, September 1991	1. rész	pp. 379–384	Bécs, 1991. szeptember
ISBN 3-900312-76-1					

Baumringe als Zeugen kurzzeitiger Kontaminationen der Umwelt mit Tritium

Von TAMÁS BIRÓ, FERENC GOLDER, KRISTÓF KOZÁK, VINZENZ RAJNER, DIETER RANK & FRIEDRICH STAUDNER*)

Mit 5 Abbildungen und 1 Tabelle

*Alpenordrand
Umweltkontrolle
Baumringe
Niederschlag
Tritium*

Österreichische Karte 1:50.000
Blätter 66, 96, 98

Inhalt

Zusammenfassung	379
Összefoglalás	379
Abstract	380
1. Einleitung	380
2. Die Tritiumverteilung in den Monatsniederschlägen vom Mai 1974	381
3. Methodik	382
4. Ergebnisse	383
5. Schlußfolgerungen	384
Dank	384
Literatur	384

Zusammenfassung

Die retrospektive Abschätzung von lokalen Tritiumkontaminationen der Umwelt kann aus verschiedenen Gründen notwendig sein, beispielsweise zur Verifikation von Aufzeichnungen von Überwachungsgeräten bei kerntechnischen Anlagen oder wenn in einem Gebiet Meßdaten über den Tritiumgehalt in der Umwelt fehlen. Die Analyse der Jahresringe von Bäumen bietet sich für solche Zwecke an, da das Zellulose-gebundene Tritium die Tritiumkonzentration in der Umwelt gut widerspiegelt und Bäume in den meisten Gegenden anzutreffen sind. Eine ungewöhnliche Tritiumverteilung in den Monatsniederschlägen vom Mai 1974 in Österreich bot die Möglichkeit, die Eignung der Baumringanalyse für den Nachweis kurzzeitiger Kontaminationen zu studieren. Für das betroffene Gebiet wurde ein signifikant höherer Tritiumgehalt im Jahresring 1974 festgestellt als für die nicht betroffene Umgebung, und im langjährigen Tritiumverlauf zeichnet sich das Ereignis als deutliches Maximum ab. Somit kann dieses Verfahren als Kontrollmethode für Tritiumabgaben der Kernindustrie an die Umwelt eingesetzt werden.

Évgyűrűk, mint a környezet rövid időtartamú tríciumszennyeződésének tanúi

Összefoglalás

A környezet helyi tríciumszennyeződésének utólag végzett felmérésére különböző okokból lehet szükség, például nukleáris létesítmények kibocsátási adatainak ellenőrzésére, vagy, ha valamely területen a környezet tríciumtartalmára vonatkozó mérési adatok hiányzanak. Fák évgyűrűinek elemzése alkalmasnak mutatkozik ilyen célokra, mivel a cellulózhoz kötött trícium jól tükrözi a környezet tríciumkoncentrációját és mert fák a legtöbb vidéken megtalálhatók.

Az 1974. évi májusi havi csapadékokban mutatkozó szokatlan tríciumeloszlás Ausztriában lehetőséget kínált arra, hogy tanulmányozzuk a fák évgyűrűinek alkalmasságát rövid időtartamú szennyeződések kimutatására. Az érintett területen jellemzően magasabb tríciumtartalmat állapítottak meg az 1974. évi évgyűrűkben, mint a vonatkozó területen kívül, és a sokéves tríciumgörbében az esemény világos maximumként rajzolódik ki. Így ez az eljárás ellenőrző módszerként alkalmazható az atomipar által a környezetbe leadott tríciumtartalomnak a meghatározására.

*) Anschriften der Verfasser: Dr. TAMÁS BIRÓ, Dipl.-Ing. FERENC GOLDER, Dr. KRISTÓF KOZÁK, Institut für Isotope der Ungarischen Akademie der Wissenschaften, Konkoly Thege ut 29–31, H-1121 Budapest; Ing. VINZENZ RAJNER, Dipl.-Ing. Dr. DIETER RANK, FRIEDRICH STAUDNER, Bundesversuchs- und Forschungsanstalt Arsenal, Postfach 8, A-1031 Wien.

Tree Rings as Witnesses for Short-Term Contaminations of the Environment with Tritium

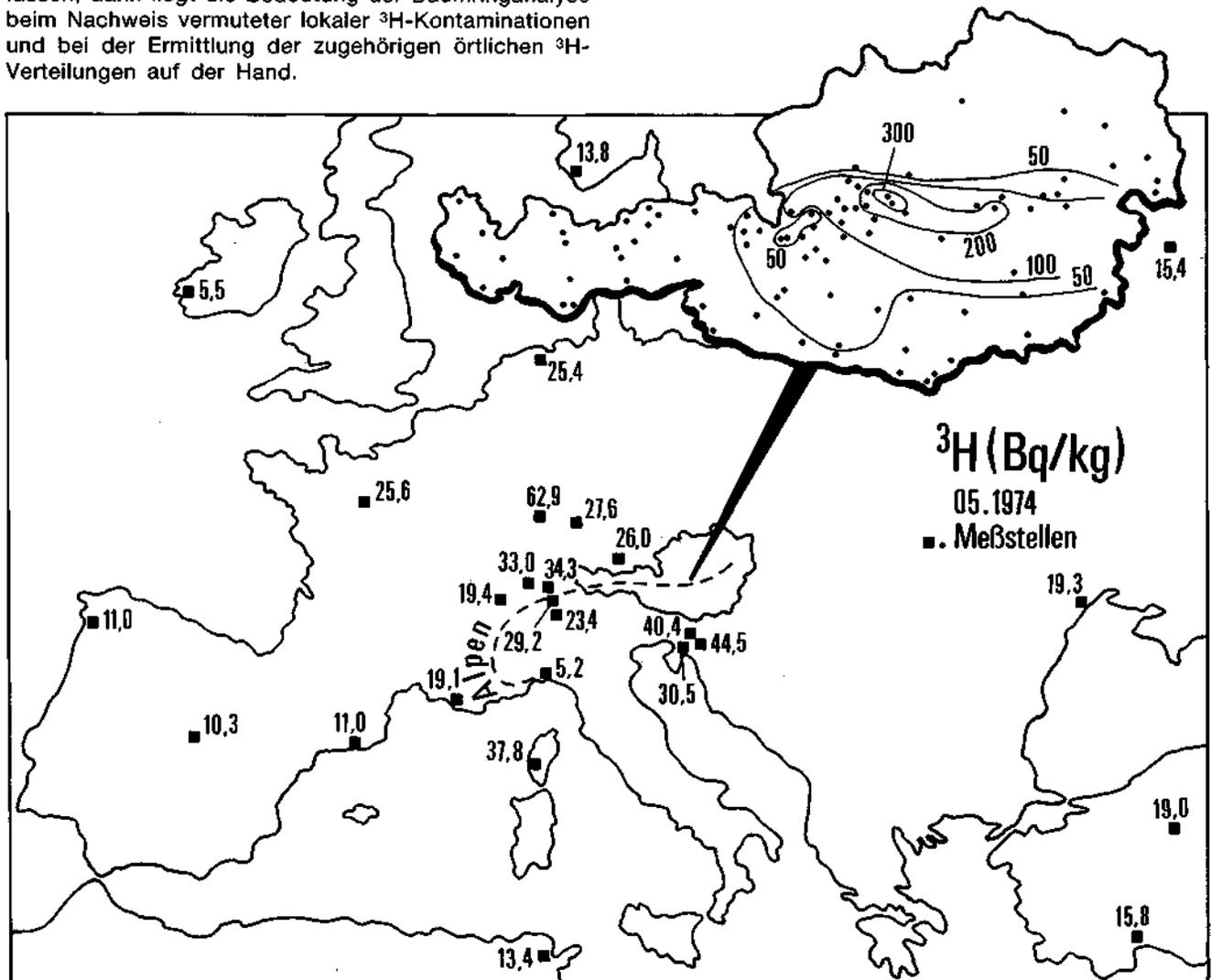
Abstract

A retrospective assessment of local environmental tritium contamination might be required for various reasons, such as the verification of facility monitoring records or because of the lack of data. Tree ring analysis is a possible candidate, since cellulose-bound tritium well reflects environmental levels and trees can usually be found in many areas. The unusual tritium fallout observed in the Austrian Alps in May 1974 offered an opportunity to study the feasibility of tree ring analysis for short-term effects. Data evaluation reveals a significant increase of tritium concentration in 1974 tree rings at the exposed area.

1. Einleitung

Seit langem ist bekannt, daß Wasserstoffatome in C-H-Bindungen, beispielsweise Zellulose, stark fixiert sind (J. MANN, 1971). Somit werden Änderungen des ^3H -Gehaltes der Biosphäre in Baumringen chronologisch festgehalten, was eine retrospektive Ermittlung des ^3H -Pegels in der Umwelt sowohl auf globaler als auch auf lokaler Basis ermöglicht (R. M. BROWN, 1979; K. KOZAK, 1982). Bedenkt man, daß das weltweite Meßnetz für ^3H in den Niederschlägen zu weitmaschig ist, um lokale oder auch regionale ^3H -Anhebungen zu erfassen, dann liegt die Bedeutung der Baumringanalyse beim Nachweis vermuteter lokaler ^3H -Kontaminationen und bei der Ermittlung der zugehörigen örtlichen ^3H -Verteilungen auf der Hand.

Am Institut für Isotope in Budapest wurde die Baumringanalyse adaptiert und weiterentwickelt (K. KOZAK, 1982). Dabei wurde sichergestellt, daß die zeitliche Verteilung der globalen ^3H -Kontamination sich in den Baumringen entsprechend widerspiegelt und daß der Austausch zwischen benachbarten Baumringen vernachlässigbar ist. Eine Reihe von Fragen sind noch offen, beispielsweise der Einfluß der lokalen Standortbedingungen von Bäumen, Unterschiede zwischen verschiedenen Baumarten, und auch einige Probleme bei der Probenaufbereitung, z. B. Kontaminationen, sind noch nicht zufriedenstellend gelöst.



Die ungewöhnliche ^3H -Verteilung vom Mai 1974 in den Niederschlägen in den Ostalpen (F. BAUER et al., 1975; D. RANK, 1980; D. RANK & J. E. M. SAS-HUBICKI, 1984) bot eine einzigartige Möglichkeit, die Eignung der Baumringmethode zum Nachweis eines in die Vegetationsperiode fallenden Einzelereignisses zu überprüfen. Diese ^3H -Verteilung war an der BVFA Arsenal, Wien, an Hand der Niederschlagsproben von ungefähr 100 Beobachtungsstationen dokumentiert worden.

In einem gemeinsamen Projekt der BVFA Arsenal, Wien, und des Institutes für Isotope, Budapest, wurde ungefähr 10 Jahre nach dem Auftreten der ^3H -Kontamination des Niederschlags im Jahre 1974 eine Baumringstudie durchgeführt mit dem Ziel, das Ausmaß der zusätzlichen ^3H -Kontamination der Baumringe im betroffenen Gebiet festzustellen und die Bedingungen zu definieren, die für einen solchen Nachweis erfüllt sein müssen (z. B. Probenahmeprogramm) (K. KOZÁK et al., 1986a+b; D. RANK et al., 1986). Das Projekt wurde von der Internationalen Atomenergieorganisation, Wien, finanziell unterstützt.

2. Die Tritiumverteilung in den Monatsniederschlägen vom Mai 1974

In den Monatsniederschlägen von Mai und Juni 1974 wurden räumlich begrenzte starke Anhebungen des ^3H -Pegels festgestellt (F. BAUER et al., 1975). Die Monatsmittel von ca. 100 Niederschlagssammelstationen in Österreich im Mai 1974 variierten zwischen 20 und 360 Bq/kg, gegenüber 10 bis 25 Bq/kg im Mai 1973. Die Maximalwerte traten im Bereich des Toten Gebirges auf (Hinterstoder), die Anhebungen erstreckten sich auf ein Gebiet von ungefähr 20.000 km² (Alpenbereich von Salzburg ostwärts, Abb. 1). Die zeitliche Verteilung der Niederschläge im Mai 1974 und die ^3H -Gehalte im Folgemonat deuten darauf hin, daß die erhöhte ^3H -Gehalte gegen Monatsende aufgetreten sind. Im Juni variierten die Monatsmittel zwischen 20 und 75 Bq/kg, wobei die Maxima im östlichsten Teil Österreichs – ein Gebiet mit geringen Niederschlagsmengen – auftraten. Aufgrund der hohen Niederschlagssummen

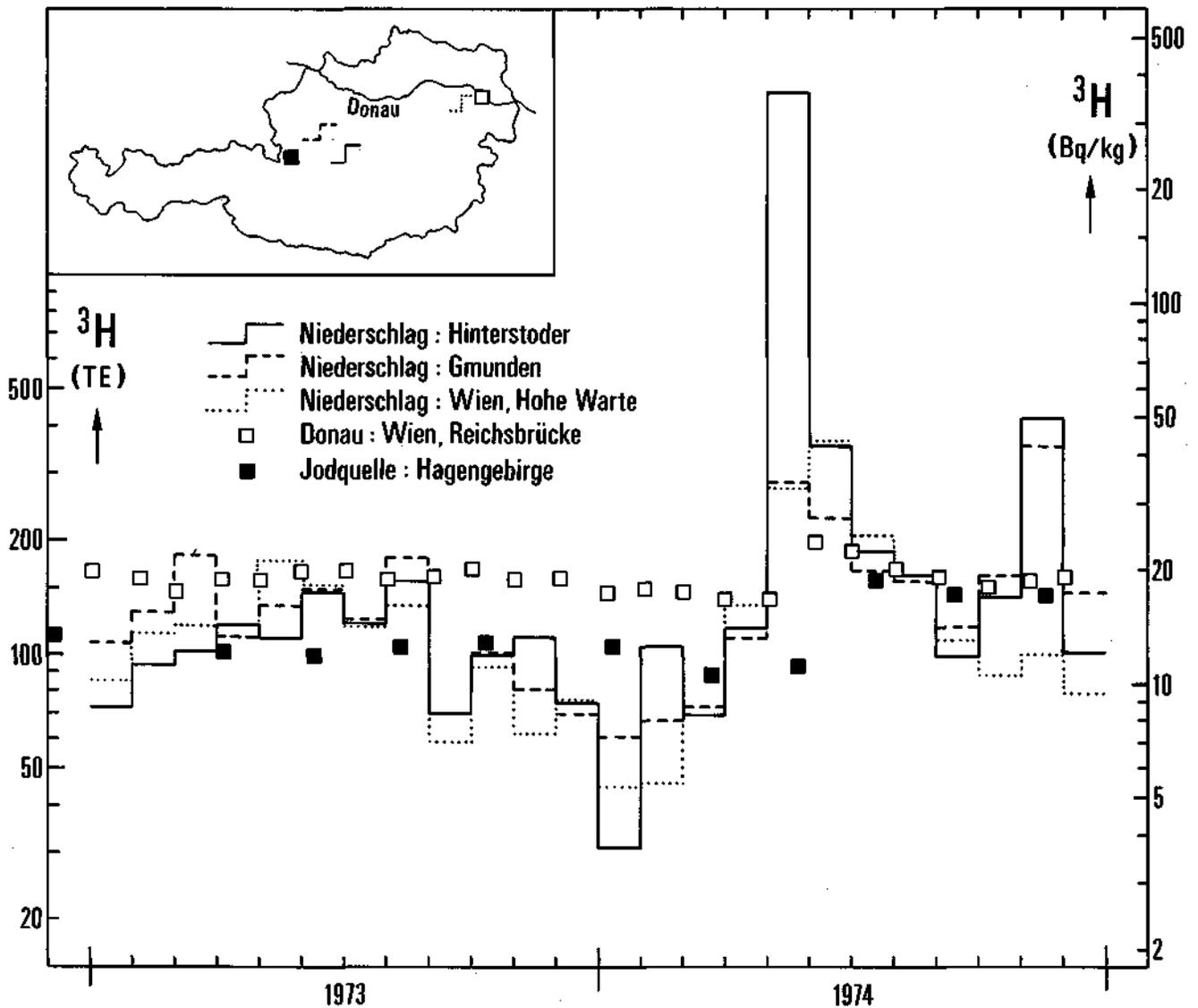


Abb. 2. Auswirkungen des erhöhten ^3H -Gehaltes in den Niederschlägen vom Mai 1974 in der Donau und einer Karstquelle am Rande des betroffenen Gebietes. Niederschläge: Monatsmittel; Donau und Jodquelle: monatliche Stichproben.

im Mai 1974 wirkte sich die abnorme Verteilung auch im Jahresmittel deutlich aus. Eine grobe Abschätzung des ^3H -Überschusses in dem Gebiet, das im Vergleich mit der Umgebung erhöhte Konzentrationen aufweist, ergibt etwa 400 TBq. Aus den westlichen Nachbarländern wurden keine ähnlichen Anhebungen des ^3H -Pegels bekannt (Abb. 1), im benachbarten Slowenien wurde eine vergleichsweise geringfügige Erhöhung des ^3H -Gehaltes der Niederschläge festgestellt. Aus den östlichen Nachbarländern liegen keine Werte vor.

Auf die Auswirkung in den Oberflächenwässern kann nur indirekt geschlossen werden, da aus dem betroffenen Gebiet für den in Frage kommenden Zeitraum kein Probenmaterial zur Verfügung gestanden ist. Bei Karstquellen am Rande des Gebietes traten deutliche Sprünge im ^3H -Gehalt auf, und auch die Donau zeigt im gleichen Zeitraum einen Sprung in der ^3H -Konzentration, dessen Ausmaß weit über die Auswirkung eines „normalen“ Sommermaximums hinausgeht (Abb. 2). Hieraus kann geschlossen werden, daß im Zentrum des betroffenen Gebiets in den Oberflächenwässern ein An-

stieg der ^3H -Konzentration um mindestens eine Größenordnung aufgetreten sein muß.

Die Herkunft dieser zwar aus der Sicht des Strahlenschutzes nicht bedenklichen aber doch erheblichen ^3H -Kontamination der Niederschläge konnte noch nicht geklärt werden, die bekanntgewordenen Kernwaffenversuche kommen dafür nicht in Frage. Auch eine Analyse der Niederschlagsdaten und der Wetterlagen führte nicht zum Ziel, vor allem konnte der Zeitraum der Kontamination nicht näher eingegrenzt werden.

3. Methodik

Die Untersuchungen wurden an Fichten und Lärchen ausgeführt. Beide Baumarten haben breite Jahresringe (Abb. 3) und weiches Holz, was die Probenbearbeitung erleichtert. Als Probenahmestellen wurden Hinterstoder, Bad Ischl und Gmunden ausgewählt, Bereiche, die die höchste, eine mittlere und eine „normale“ ^3H -Kon-

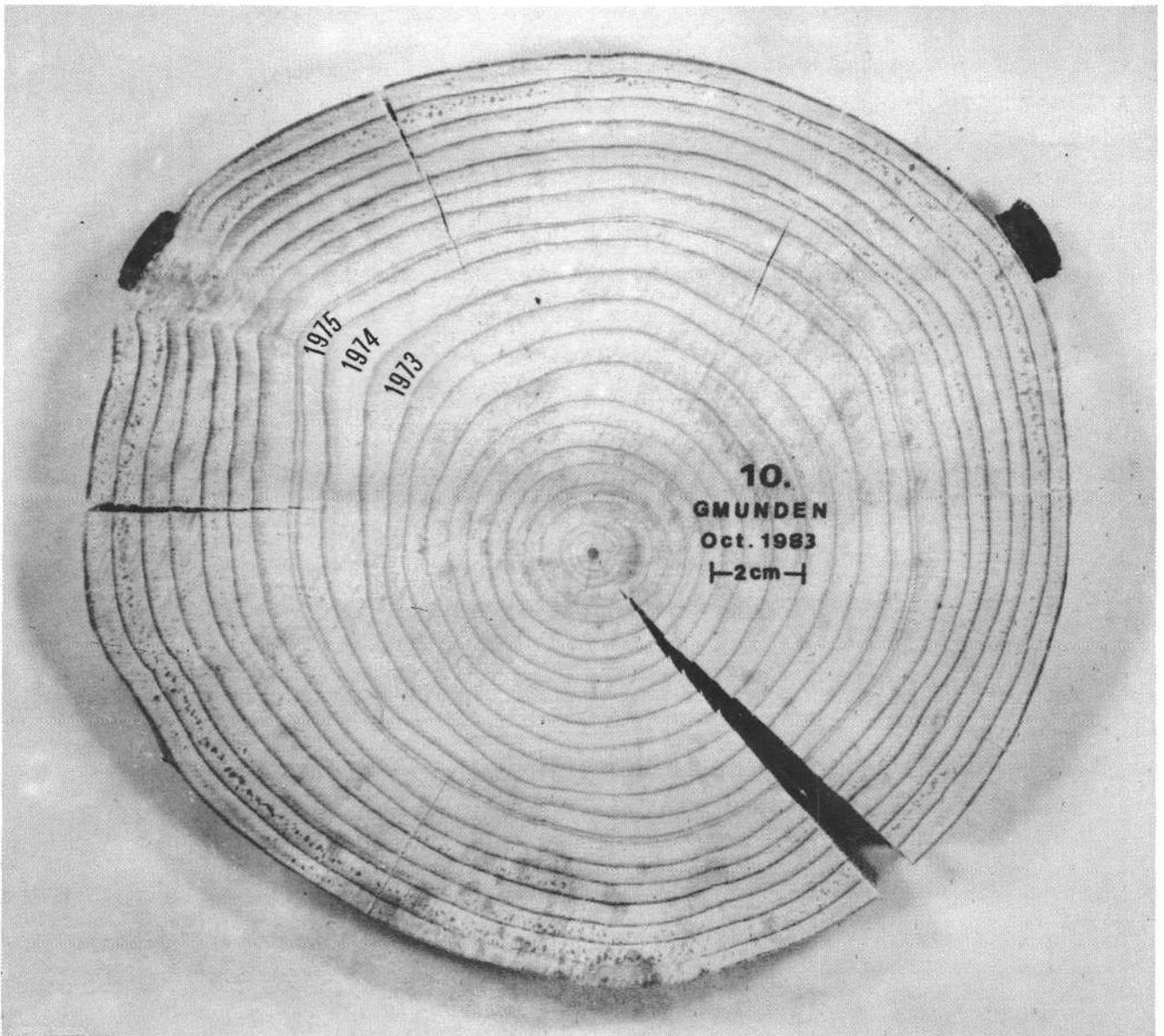


Abb. 3. Stammquerschnitt (Fichte) mit Kennzeichnung der Jahresringe 1973, 1974 und 1975.

Tabelle 1.
 ^3H -Gehalt des Niederschlages in Hinterstoder, Bad Ischl und Gmunden im Jahre 1974.
 1 TE entspricht 0,118 Bq/kg.

Monat	^3H -Gehalt [TE]/Niederschlagssumme [mm]		
	Hinterstoder	Bad Ischl	Gmunden
Jänner	31/150	50/184	61/ 53
Februar	105/ 53	86/ 61	67/ 54
März	69/ 51	77/ 74	73/ 42
April	117/ 49	131/ 75	111/ 47
Mai	3034/133	1156/272	283/169
Juni	354/236	378/328	230/217
Juli	188/168	165/280	166/199
August	163/138	160/105	156/100
September	99/102	103/125	118/100
Oktober	142/ 62	152/204	161/108
November	418/ 95	228/136	353/102
Dezember	102/356	102/348	145/167

zentration im Niederschlag vom Mai 1974 repräsentieren (Tab. 1).

Eine sorgfältige Auswahl der zu untersuchenden Bäume war wichtig, hierbei waren auch die lokalen Umweltbedingungen zu berücksichtigen (möglichst freistehende Bäume, ca. 30 Jahre alt, keine Muldenstandorte, Standort in der Nähe der zum Vergleich herangezogenen örtlichen Niederschlagssammelstation usw.).

Ungefähr 1 m lange Stücke der Baumstämme wurden ins Laboratorium nach Budapest transportiert, anschließend wurden die Jahresringe identifiziert und isoliert. Die Zellulosepräparation erfolgte nach dem üblichen Sulfatprozeß, der lose gebundene Wasserstoff (OH-Gruppe) wurde mit Hilfe von ^3H -freiem Wasser ausgetauscht (Einzelheiten der Probenaufbereitung siehe in K. KOZÁK et al., 1986). Die getrocknete Zellulose wurde verbrannt, das dabei entstehende Wasser aufgefangen und auf seinen ^3H -Gehalt untersucht. Die Verbrennung ist der kritische Schritt in der Probenaufbereitung, weil hier leicht Kontaminationen der Proben durch Umwelttritium auftreten können. Zur Absicherung der Ergebnisse wurde die hergestellte Zellulose geteilt und in beiden Laboratorien (Isotopeninstitut Budapest, BVFA Arsenal Wien) weiterverarbeitet, die Meßergebnisse beider Laboratorien wurden miteinander verglichen. Die ^3H -Aktivitätsmessungen erfolgten wegen der geringeren Kontaminationen und der besseren Nachweisgrenze dann vorwiegend an der BVFA-Arsenal.

4. Ergebnisse

Für einen Baumstamm aus Hinterstoder wurde der Langzeitverlauf des ^3H -Gehaltes in den Baumringen untersucht (Abb. 4). Die Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit dem Langzeitverlauf des ^3H -Gehaltes in den Niederschlägen von Wien, Unterschiede in den Absolutwerten sind vor allem auf jahreszeitliche Schwankungen des ^3H -Gehaltes der Troposphäre und auf den Einfluß des Grundwassers zurückzuführen. Ein signifikanter Unterschied im zeitlichen Verlauf tritt nur – wie erwartet – im Jahre 1974 auf, weil Hinterstoder

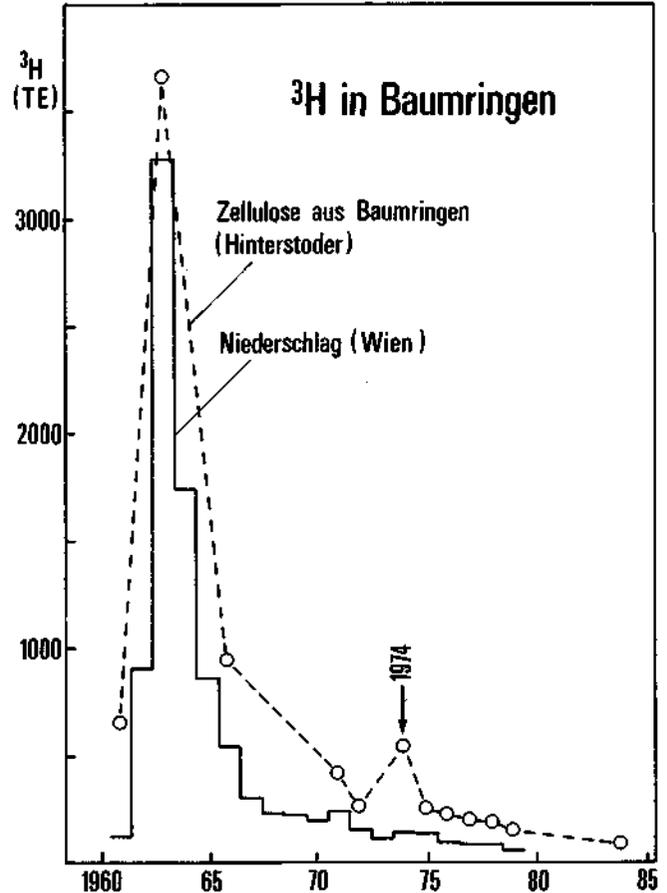


Abb. 4.
 ^3H -Chronologie in Bäumen.
 Verlauf des ^3H -Gehaltes in der Zellulose von Baumringen für Hinterstoder.
 Nachweis des erhöhten ^3H -Gehaltes im Niederschlag von Hinterstoder im Mai 1974.

durch die ^3H -Kontamination der Mainiederschläge betroffen war und Wien nicht.

Die weiteren Untersuchungen beschränkten sich auf die Jahresringe 1973, 1974 und 1975 von Fichten und

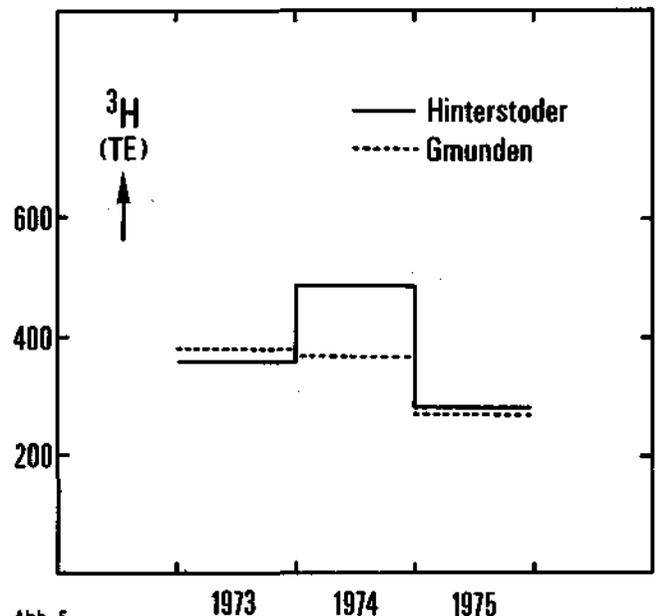


Abb. 5.
 ^3H -Gehalt der Jahresringe von Bäumen innerhalb (Hinterstoder) und außerhalb (Gmunden) des Gebiets mit erhöhter ^3H -Konzentration im Niederschlag vom Mai 1974.

Lärchen. Für das Jahr 1974 wurde ein signifikanter Unterschied der ^3H -Konzentration von Baumringen in dem von der Kontamination betroffenen Gebiet (Hinterstoder) und der nicht betroffenen Umgebung (Gmunden) festgestellt (Abb. 5). Bei den Werten der Jahresringe 1973 und 1975 traten solche Unterschiede nicht auf. Die statistische Auswertung der Meßdaten wird in K. KOZÁK et al. (1986) ausführlich behandelt.

5. Schlußfolgerungen

- ① Die ungewöhnliche Tritiumverteilung in den Mainiederschlägen von 1974 spiegelt sich im ^3H -Gehalt der Baumringe wider. In Gebieten mit hohem ^3H -Gehalten im Niederschlag weisen auch die 1974er Baumringe signifikant höhere ^3H -Konzentrationen auf.
- ② Die Methode eignet sich zum retrospektiven Nachweis von Kurzzeitkontaminationen der Umwelt mit ^3H , wenn diese in die Vegetationsperiode fallen und zumindest um eine Größenordnung (Faktor 10) höhere ^3H -Konzentrationen in der Umwelt bewirken als es dem „normalen“, durch den globalen „Fallout“ verursachten Pegel entspricht.
- ③ Unterschiedliche Laboratoriumsvoraussetzungen (Kontaminationen) beeinflussen zwar die gemessenen Absolutwerte, sie haben aber nur einen beschränkten Einfluß auf den Nachweis der Signifikanz einer ^3H -Kontamination von Baumringen.
- ④ Zur Zeit gibt es keine Information über die Anwendbarkeit der Methode bei Kurzzeitkontaminationen der Umwelt, die außerhalb der Vegetationsperiode auftreten.
- ⑤ Zur Aufstellung einer mathematischen Beziehung zwischen dem ^3H -Gehalt des monatlichen Niederschlages und dem der Baumringe liegt zu wenig statistisches Material vor, außerdem ist zu wenig über den Einfluß von Umweltfaktoren bekannt.
- ⑥ Der Langzeitverlauf des ^3H -Gehaltes in den Baumringen von Hinterstoder stimmt gut mit dem der monatlichen Niederschläge von Wien überein (Abb. 4), mit Ausnahme des Jahresringes 1974. Auch dies ist ein Hinweis auf eine lokale Kontamination.
- ⑦ Versuche, die Herkunft der ungewöhnlichen ^3H -Verteilung in den Niederschlägen vom Mai 1974 zu klären, schlugen fehl. Es bleibt offen, ob es sich dabei um Abgaben der Kernindustrie bzw. bei kerntechni-

schen Anwendungen gehandelt hat, oder um den Einfluß stratosphärischen Tritiums unter besonderen lokalen Wetterbedingungen.

Dank

Die Autoren danken den Dienststellen der Österreichischen Bundesforste für ihre Unterstützung bei der Probenahme. Weiterer Dank gilt der Internationalen Atomenergieorganisation, Wien, Hydrologische Sektion, für die finanzielle Unterstützung des Projektes.

Literatur

- BAUER, F., RAJNER, V., RANK, D.: Ungewöhnliche Tritium-Verteilung im Niederschlag in den Ostalpen. – *Die Naturwissenschaften*, **62**, H. 11, 526, 1 Abb., 1975.
- BROWN, R. M.: Environmental tritium in trees. – In: *Proc. Symp. Behaviour of Tritium in the Environment*, 405–418, 4 Abb., Wien (Internationale Atomenergieorganisation, IAEA) 1979.
- KOZÁK, K.: Analysis of tritium in tree rings. – *Acta Phys. Hung.*, **52**, 429–434, Budapest 1982.
- KOZÁK, K., BIRÓ, T., GOLDER, F., RAJNER, V., RANK, D. & STAUDNER, F.: Evaluation of anomalous local tritium fallout by tree ring analysis. – *Acta Phys. Hung.*, **59**, 59–62, 2 Abb., Budapest 1986.
- KOZÁK, K., RANK, D., BIRÓ, T., GOLDER, F., RAJNER, V. & STAUDNER, F.: A feasibility study on the retrospective evaluation of anomalous local tritium fallout by the analysis of tree rings from selected districts in Austria and Hungary. – *Schlufbericht an die Internationale Atomenergieorganisation, Kontrakte 3451/RB und 3452/RB*, 34 S., 6 Abb., Budapest (Isotopeninstitut der Ungar. Akad. d. Wiss) – Wien (Bundesversuchs- und Forschungsanstalt Arsenal) 1986.
- MANN, J.: Deuteration und Tritiation. – In: BIHALES, N. M. & SEGAL, L. (Hrsg.): *Cellulose and Cellulose Derivatives. High Polymers V, Teil IV*, 89–116, New York (Wiley Interscience) 1971.
- RANK, D.: Ergebnisse von Tritiumanalysen an Wasserproben aus dem österreichischen Bundesgebiet. – *ÖSRAD-Bericht 5/6*, 23–36, 10 Abb., Wien (Österreichischer Verband für Strahlenschutz) 1980.
- RANK, D., RAJNER, V., STAUDNER, F., KOZÁK, K., BIRÓ, T. & GOLDER, F.: Relation between tree ring records and short-term ^3H -contamination of precipitation. – *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **B17**, 554–555, 3 Abb., Amsterdam 1986.
- RANK, D. & SAS-HUBICKI, J. E. M.: Behaviour of tritium in water systems. – In: *Seminar on the Environmental Transfer to Man of Radionuclides released from Nuclear Installations*, Band 2, 619–638, 9 Abb., Luxemburg (Kommission der Europäischen Gemeinschaften) 1984.