

Mitt. österr. geol. Ges.	83 (1990) Themenband Umweltgeologie	S. 91-108 15 Abb., 1 Tab.	Wien, Februar 1991
--------------------------	---	------------------------------	--------------------

## „Umweltisotope“ — Fortschritte in Forschung und Anwendung

Von Dieter RANK<sup>\*)</sup>

Mit 15 Abbildungen und 1 Tabelle

### Zusammenfassung

Mit der zunehmenden Bedeutung von Umweltfragen nimmt auch die Bedeutung von Isotopenverhältnissen und Radionukliden als Indikatoren zur Untersuchung und Beschreibung von Vorgängen und Wechselwirkungen in der Umwelt zu ( $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{18}\text{O}$ ,  $^{34}\text{S}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  und andere). Wichtigstes Anwendungsgebiet sind nach wie vor Untersuchungen in allen Teilen des natürlichen Wasserkreislaufes. Durch Fortschritte in der Meßtechnik können dabei Isotopenuntersuchungen im großen Maßstab eingesetzt werden. Dies erschließt neue Anwendungsgebiete, wie die Untersuchung der Auswirkung von Einzelereignissen — Starkniederschläge, Schneeschmelze — in hydrologischen Systemen, die Verfolgung der Wasserbewegung in der ungesättigten Bodenzone oder die Abflußanalyse bei kleinen Einzugsgebieten. — Nach dem Tschernobyl-Unfall kommt dem Radiocäsium eine erhöhte Bedeutung als Umweltindikator zu. Einerseits bietet die flächenhafte Markierung die Möglichkeit, das Eindringen von Schadstoffen in den Untergrund zu studieren, andererseits hat die Abgabe von  $^{137}\text{Cs}$  an die Umwelt in den Ablagerungen der Oberflächengewässer eine ausgeprägte Zeitmarke hinterlassen, die für die nächsten 300 Jahre zur Datierung von Sedimenten und zur Bestimmung von Sedimentationsraten benützt werden kann.

### Abstract

“Environmental Isotopes“ — Progress in Research and Application

With the growing importance of environmental matters isotope ratios and radionuclides as indicators for the investigation and description of environmental processes and interactions also gain importance ( $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{18}\text{O}$ ,  $^{34}\text{S}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{222}\text{Rn}$  and others). Investigations concerning all parts of the natural water cycle are still the most important applications. Progress in the measuring technique has rendered isotope investigations possible at a large scale. This opens new fields of application, like the investigation of the effects of single events, for example heavy rainfalls or snowmelt on hydrological systems, the tracing of water movement in the unsaturated soil zone or the runoff analysis for small catchments. — After the Chernobyl accident radiocesium is of increased importance as an environmental tracer. On the one hand, the areal tracing offers the possibility to study the infiltration of pollutants into the subsoil. On the other hand, the release of  $^{137}\text{Cs}$  into the environment has left a distinct time marker in the sediments of surface waters which

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

can be used for the dating of sediments and the determination of sedimentation rates for the following 300 years.

### Inhalt

1. Einleitung .....	92
2. Einige „Umweltisotope“ und ihre Bedeutung für die Bearbeitung von Umweltfragen .....	92
3. „Umweltisotope“ in Hydrologie und Hydrogeologie .....	95
4. Radiocäsium ( $^{137}\text{Cs}$ ) in der Umwelt .....	104

### 1. Einleitung

Unter dem Begriff „Umweltisotope“ wird im allgemeinen Sprachgebrauch eine Reihe von Nukliden zusammengefaßt, deren Häufigkeitsschwankungen in der Natur sich für das Studium von Vorgängen und Wechselwirkungen in der Umwelt eignen. Dies schließt die Isotopenverhältnisse von Wasserstoff, Kohlenstoff, Stickstoff, Sauerstoff und Schwefel ebenso ein wie die natürliche Radioaktivität (z. B.  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ) und darüber hinaus auch Radionuklide aus dem nuklearen Brennstoffkreislauf (z. B.  $^3\text{H}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ). Die Bedeutung dieser Nuklide als Indikatoren für den Ablauf von Vorgängen in der Umwelt nimmt weiter zu. Die Entwicklung der Isotopenmeßtechniken im letzten Jahrzehnt hat es ermöglicht, daß die Messung von Isotopenverhältnissen und von Spurenradioaktivität heute auf breiter Basis zur Untersuchung von Umweltvorgängen eingesetzt werden kann.

Die vorliegende Arbeit schließt an die Ausführungen im Rahmen des Umweltgeologie-Bandes 1986 an (D. RANK, 1986) und soll einen Überblick über den derzeitigen Stand des Arbeitsgebietes geben. Die Auswahl der Beispiele ist willkürlich, die Darstellung erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Auf neuere Ergebnisse auf dem Gebiet der Isotopenhydrologie wird wegen der starken Anwendungsorientiertheit dieser Arbeitsrichtung näher eingegangen, ebenso auf die aktuelle Radiocäsiumverteilung in der Umwelt — einige Jahre nach dem Kernkraftwerksunfall von Tschernobyl.

### 2. Einige „Umweltisotope“ und ihre Bedeutung für die Bearbeitung von Umweltfragen

Wichtigstes Anwendungsgebiet für Isotopenmessungen ( $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{18}\text{O}$ ,  $^{14}\text{C}$ ) sind nach wie vor Untersuchungen in allen Bereichen des natürlichen Wasserkreislaufes. Hauptzielsetzungen sind dabei die Erforschung hydrologischer Zusammenhänge, der hydrogeologischen Verhältnisse, der Verweilzeit von Grundwässern und die Abschätzung eines möglichen Schadstofftransportes (siehe Abschnitt 3).

Neben seiner Bedeutung für hydrologische Untersuchungen ist  $^3\text{H}$  zunehmend auch als Indikator für die Tätigkeit der Kernindustrie anzusehen. Maßgebend hierfür ist die große Mobilität von  $^3\text{H}$  und das weitgehende Abklingen des Bombentritiums in der Umwelt (D. RANK et al., 1990). Zusätzlich zur Kontrolle von Niederschlägen, Oberflächen- und Grundwässern wird derzeit ein europäisches Netz für die Messung von  $^3\text{H}$  in Luftwasserdampf und Luftwasserstoff aufgebaut. Wichtig ist die Aufnahme von langfristigen Meßreihen, damit Trendänderungen frühzeitig erkannt werden können. Beispielsweise folgt der  $^3\text{H}$ -Gehalt der March bis 1985 der allgemeinen Abnahme der  $^3\text{H}$ -Konzentrationen in der

Umwelt (Abb. 1), ab diesem Zeitpunkt ändert sich das Verhalten signifikant und weist auf lokale Abgaben von  $^3\text{H}$  im Einzugsgebiet der March hin. Die Entwicklung des  $^3\text{H}$ -Gehaltes in bestimmten Regionen läßt sich auch retrospektiv ermitteln (z. B. zur langfristigen Kontrolle von kerntechnischen Anlagen). Hiezu eignen sich Untersuchungen an Baumringen (Abb. 2), an Gletschereis oder auch am Porenwasser von Stauraumsedimenten (Abb. 14).

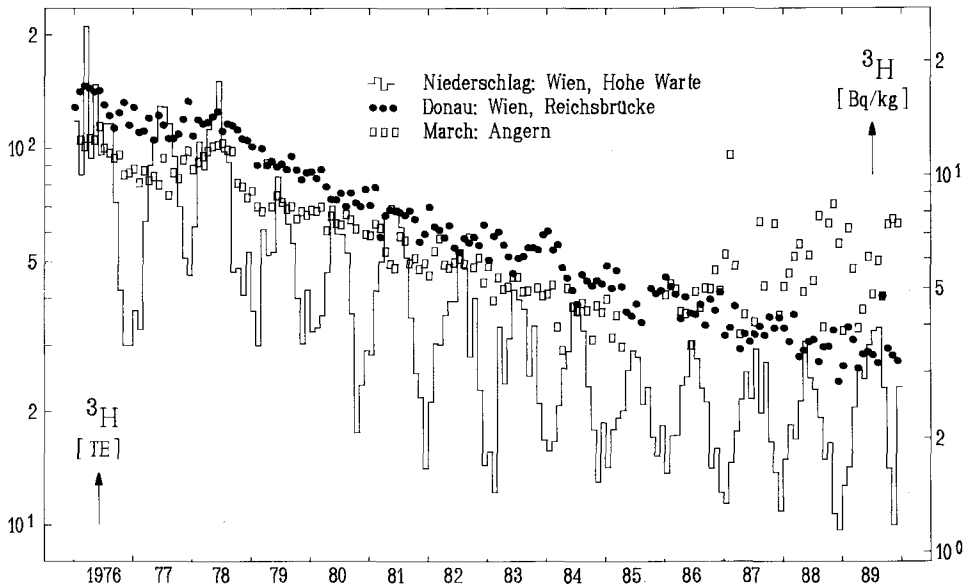


Abb. 1: Entwicklung des  $^3\text{H}$ -Gehaltes von March, Donau und Niederschlagswasser seit 1976 (Donau, March: monatliche Stichproben; Niederschlag: Monatsdurchschnittsproben). Ab 1985/86 ist ein deutlich veränderter Verlauf des  $^3\text{H}$ -Gehaltes der March zu erkennen: höhere und stark streuende Werte (D. RANK et al., 1990).

Die natürlich produzierten Radionuklide  $^7\text{Be}$  (53,3 d Halbwertszeit) und  $^{210}\text{Pb}$  (22,3 a), die aus der Atmosphäre ausgewaschen werden und in die Gewässer gelangen, eignen sich für Datierungszwecke bzw. die Bestimmung von Sedimentationsraten bei Fluß- und Seeablagerungen. Wegen der kurzen Halbwertszeit von  $^7\text{Be}$  lassen sich über  $^7\text{Be}$ -Messungen beispielsweise frisch gebildete Sedimente lokalisieren; dies kann hilfreich bei der Untersuchung kurzfristiger Sedimentationsabläufe bzw. Sedimentumlagerungen sein. Bei der Aufnahme eines Tiefenprofils im Stauraum Aschach, zwei Monate nach einem Hochwasser, konnte  $^7\text{Be}$  bis in zirka ein Meter Tiefe nachgewiesen werden (Abb. 3), was auf starke Sedimentation an dieser Stelle während des Hochwassers hindeutet. Die 22,3 Jahre Halbwertszeit von  $^{210}\text{Pb}$  ermöglichen eine Datierung von Sedimenten mit  $^{210}\text{Pb}$ -Messungen über den Zeitraum des industriellen Zeitalters hinweg. Neben der Abschätzung von Sedimentationsraten kann damit bei Bohrkernuntersuchungen die Entwicklung der Umweltbelastung durch Schadstoffe zeitlich eingeordnet werden. Zusätzliche Zeitmarken liefern Bomben-Cäsium (1963) und Tschernobyl-Cäsium (1986) (siehe Abschnitt 4).

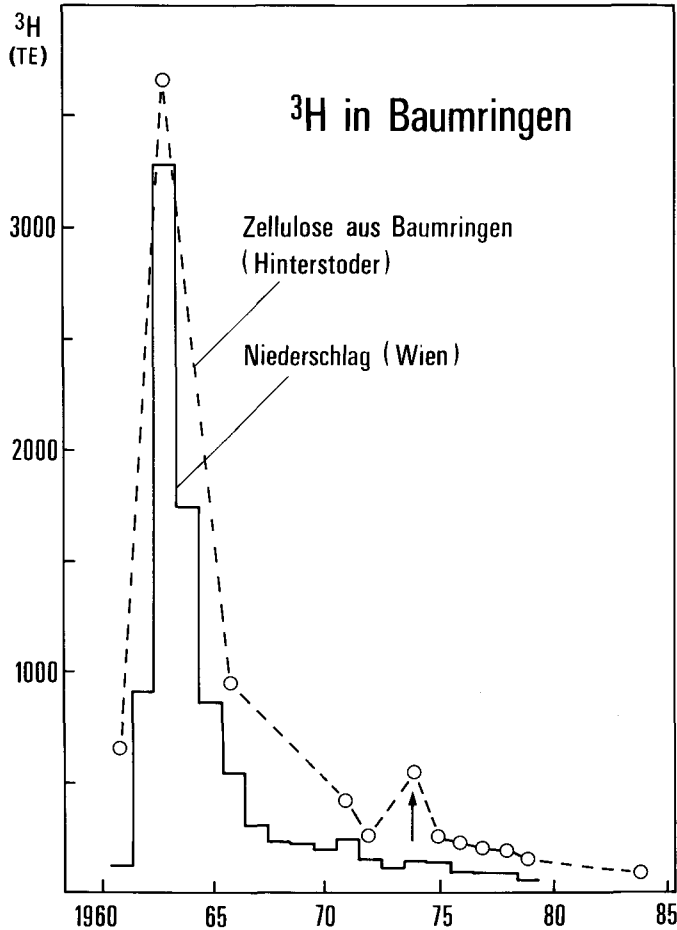


Abb. 2:  $^3\text{H}$ -Chronologie in Bäumen: Verlauf des  $^3\text{H}$ -Gehaltes in der Zellulose von Baumringen für Hinterstoder; Nachweis des erhöhten  $^3\text{H}$ -Gehaltes im Niederschlag von Hinterstoder im Mai 1974 (K. KOZÁK et al., 1986).

Ein weiteres Anwendungsfeld für Isotopenmessungen im Umweltsektor werden in Zukunft Untersuchungen an Bodengasen sein ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{Rn}$ ,  $\text{He}$  u. a.). Die Zielsetzungen reichen dabei von der Bestimmung der Herkunft der Gase über das Aufsuchen von geologischen Störungen — z. B. bei Deponiestandorten — bis zur Identifikation von Altlasten. Zum Beispiel schließt bei Gasaustritten im Neusiedlersee (83%  $\text{CH}_4$ , 16%  $\text{N}_2$ ) die Isotopenzusammensetzung ( $\delta^2\text{H} = -206,9\text{‰}$ ,  $\delta^{13}\text{C} = -54,5\text{‰}$ ,  $^{14}\text{C}$ -Alter  $> 30\,000$  a) einen Zusammenhang mit dem modernen See aus und deutet auf tertiäre Herkunft des Gases hin (D. RANK et al., 1986).

Beim Ferntransport von Schadstoffen in der Luft können Isotopenmessungen ( $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{34}\text{S}$ ) zur Feststellung von Verursachern beitragen. Aussagen über die Herkunft der Luftfeuchtigkeit können aus den H- und O-Isotopenverhältnissen abgeleitet werden. Neuer-

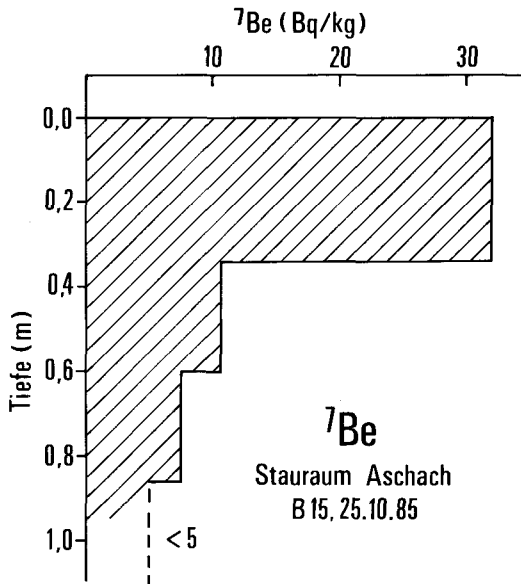


Abb. 3: Stauraum Aschach, Bohrung B 15 (Strom-km 2176,2, 25. Oktober 1985):  $^7\text{Be}$ -Aktivität der Kornfraktion  $< 20\mu\text{m}$  in Abhängigkeit von der Bohrlochtiefe (D. RANK, 1987).

dings wird im Rahmen eines Eurotrac-Projektes über den Ferntransport von Schadstoffen in die Alpen auch versucht, mit Hilfe von  $^{222}\text{Rn}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Messungen Information über den Bodenkontakt von Luftmassen zu erhalten. Hoher Gehalt an  $^{222}\text{Rn}$  (HWZ 3,7 d) deutet auf kurzfristig zurückliegenden Bodenkontakt der Luftmassen hin, bei Vorhandensein von  $^{210}\text{Pb}$  (Folgeprodukt von  $^{222}\text{Rn}$ ) und Fehlen von  $^{222}\text{Rn}$  liegt der Kontakt mit der Erdoberfläche länger zurück. Enthalten die Luftmassen auch kein  $^{210}\text{Pb}$ , so deutet dies auf Ferntransport in größerer Höhe hin.

Fragen im Zusammenhang mit der zunehmenden Nitratbelastung von Grund- bzw. Trinkwässern werden in nächster Zeit zu einer Einbindung von Isotopenanalysen an Stickstoff ( $^{15}\text{N}$ ) bei Grundwassererschließungs- und -sanierungsprojekten führen. Ein möglicher Ansatzpunkt sind dabei Unterschiede in der Stickstoffisotopenzusammensetzung von Kunstdüngern – werden aus Luftstickstoff synthetisiert – und der organischen Bestandteile des Bodens. Allerdings bedarf es zur Klärung der Herkunft von Nitraten im Grundwasser einer guten Kenntnis aller ökologischen Parameter des betreffenden Systems. Eine gleichzeitige  $^{18}\text{O}$ -Bestimmung am Nitrat kann zusätzlich Information liefern (R. LÉTOLLE, 1980).

### 3. „Umweltisotope“ in Hydrologie und Hydrogeologie

Die hydrologische Anwendung von Isotopenverhältnismessungen beruht auf den in natürlichen Wässern auftretenden Häufigkeitsschwankungen von  $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$  und  $^{18}\text{O}$  (siehe beispielsweise D. RANK, 1986). Als Folge der unterschiedlichen Isotopenzusammensetzung der Niederschläge treten auch in Oberflächen- und Grundwässern Schwankungen der Isotopenverhältnisse auf (Abb. 4), die sich für hydrologische und hydrogeologische Inter-

pretationen eignen. Die Fortschritte in der Meßtechnik haben dazu geführt, daß Isotopenmessungen im großen Maßstab für hydrologische Untersuchungen eingesetzt werden können. Hiedurch eröffnen sich auch neue Arbeitsfelder, die dem Anwender früher aus Kapazitäts- oder Kostengründen verschlossen waren, wie das Studium der Auswirkung von Einzelereignissen — Starkregen, Schneeschmelze — in einem hydrologischen System.

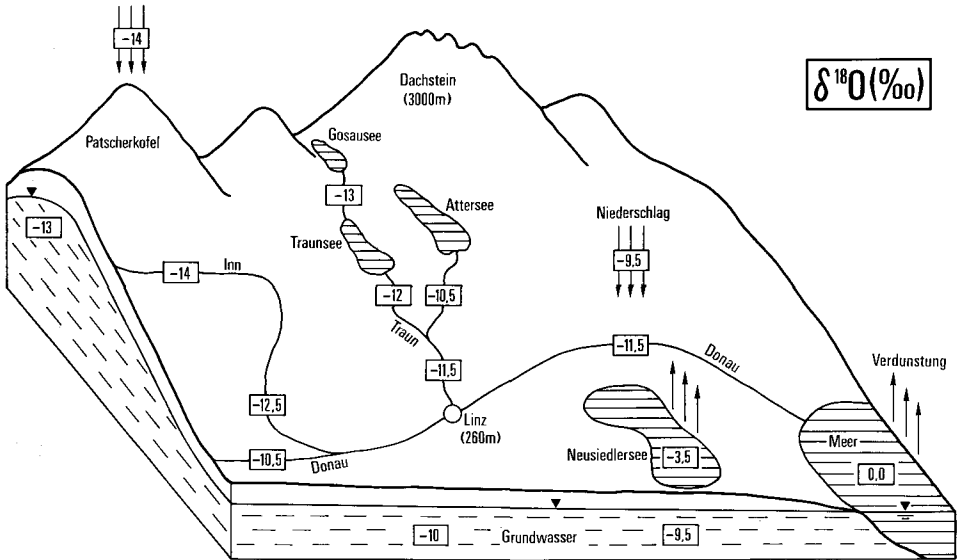


Abb. 4: Schwankung des  $^{18}\text{O}$ -Gehaltes im Wasserkreislauf; Auswirkung des Höheneffektes im Verlauf des  $^{18}\text{O}$ -Gehaltes innerhalb eines Flußsystems; schematische Darstellung (D. RANK, 1989).

Eine bei Umweltproblemen in Zusammenhang mit Wässern im Vordergrund stehende Frage ist die nach der Altersstruktur von Wässern. Im allgemeinen haben sowohl Karst- als auch Porengrundwässer kein einheitliches Wasseralter, sondern eine Altersverteilung (Abb. 5). Diese Altersverteilung hängt von den hydrogeologischen Bedingungen des Systems ab, häufig überlagern sich auch mehrere Altersverteilungen. Beispielsweise enthalten die Thermalwässer am Westrand des Wiener Beckens bei einem mittleren Wasseralter von einigen tausend Jahren auch junge Wasseranteile — erkenntlich am  $^3\text{H}$ -Gehalt. Isotopenuntersuchungen —  $^3\text{H}$ - und  $^{14}\text{C}$ -Bestimmungen, Aufnahme des zeitlichen Verlaufes der Isotopenverhältnisse — geben Einblick in die Altersstruktur, aus den ermittelten Verweilzeiten lassen sich unter anderem Aussagen über Grundwassererneuerung, hydraulische Eigenschaften des Grundwasserleiters, Umweltsicherheit von Wasservorkommen, Herkunft und zu erwartende Qualität von Wässern ableiten. Bei Umweltfragen spielen dabei meist die jüngsten Wasseranteile — kürzeste Durchgangszeit — die Hauptrolle, während für wasserwirtschaftliche Fragen die Langzeitspeicherung im Vordergrund des Interesses steht.

Eine wichtige Rolle kommt Isotopenmessungen bei der Klärung hydrogeologischer Zusammenhänge zu, wenn komplizierte Untergrundverhältnisse vorliegen. Vor allem beim heute für hydrologische Projekte üblichen Einsatz mathematischer hydrologischer

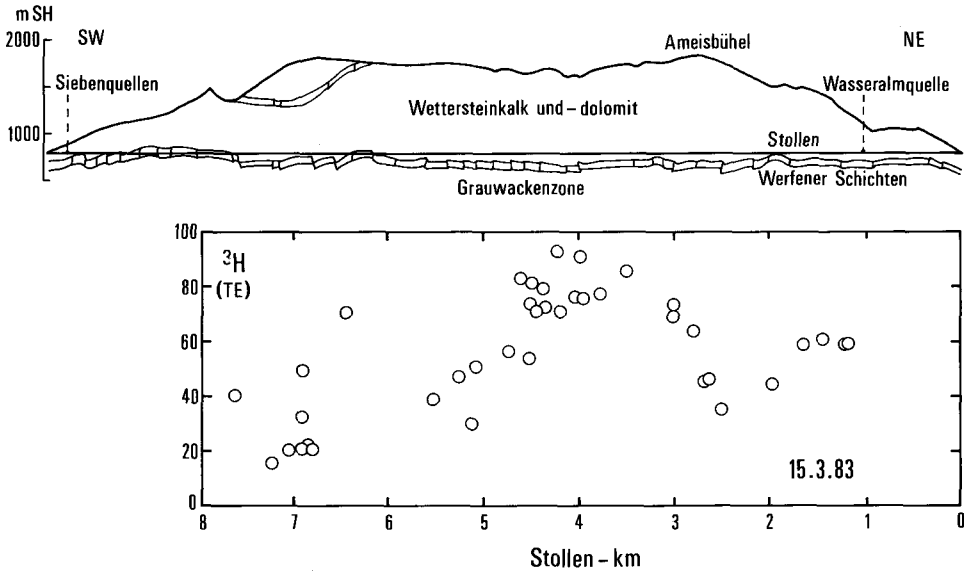


Abb. 5: Schneevalpe: Der unterschiedliche  $^3\text{H}$ -Gehalt der in den Stollen austretenden Wasser weist auf eine breite Altersverteilung der Wasser im Karstock hin. Bei einer mittleren Verweilzeit der austretenden Quellwasser von zwei bis vier Jahren haben einzelne Stollenwasser Alter von über 50 Jahren.

Modelle besteht die Gefahr, daß von ungenauen Voraussetzungen ausgegangen wird. Dies kann zu Fehlschlüssen führen, der Realitätsbezug des Modells geht verloren. Isotopenuntersuchungen sind ein geeignetes Mittel, entsprechende Randbedingungen für die Entwicklung solcher Modelle zu formulieren. Es sei dies am Beispiel der Grundwasserströmung im Seewinkel (Burgenland) kurz erläutert (S. BARANYI et al., 1986). Frühere Darstellungen der Grundwasserverhältnisse des Seewinkels und der Parndorfer Platte gingen von einer mehr oder weniger gleichmäßigen Grundwasserströmung in Richtung Neusiedlersee aus, wie sie aus dem Verlauf der Grundwasserschichtenlinien zu erwarten wäre (Abb. 6). So war zunächst auch das Aufstellen eines mathematischen Strömungsmodells für den Grundwasserzufluß zum See eines der wesentlichen Ziele eines 1980 begonnenen Forschungsprojektes, doch bereits die ersten Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen ließen dieses Vorhaben aussichtslos erscheinen. Die ermittelten Verweilzeiten brachten Hinweise auf außerordentlich inhomogene Untergrundverhältnisse (Abb. 6). Außerdem weist ein Teil der oberflächennahen Grundwasser in Seenähe überraschend hohe Alter auf, bis zu über 30000 Jahren. Diese Grundwasser sind somit aus Niederschlägen gegen Ende der letzten Eiszeit gebildet worden, zu einer Zeit also, in der auch der moderne Neusiedlersee entstanden ist. Alles in allem spricht dieses Ergebnis gegen das Vorhandensein eines einheitlichen, zusammenhängenden oberflächennahen Grundwasserhorizontes und für sehr geringen horizontalen Grundwassertransport. Wie gering die horizontalen Fließgeschwindigkeiten sind, läßt sich aus dem Ergebnis von  $^3\text{H}$ -Untersuchungen im Bereich der Eingabestelle eines Markierungsversuches bei der Höllacke ablesen. Zur Bestimmung der Grundwasserfließgeschwindigkeit in Richtung Neusiedlersee waren am 7. Mai 1964 in einem 15 Meter

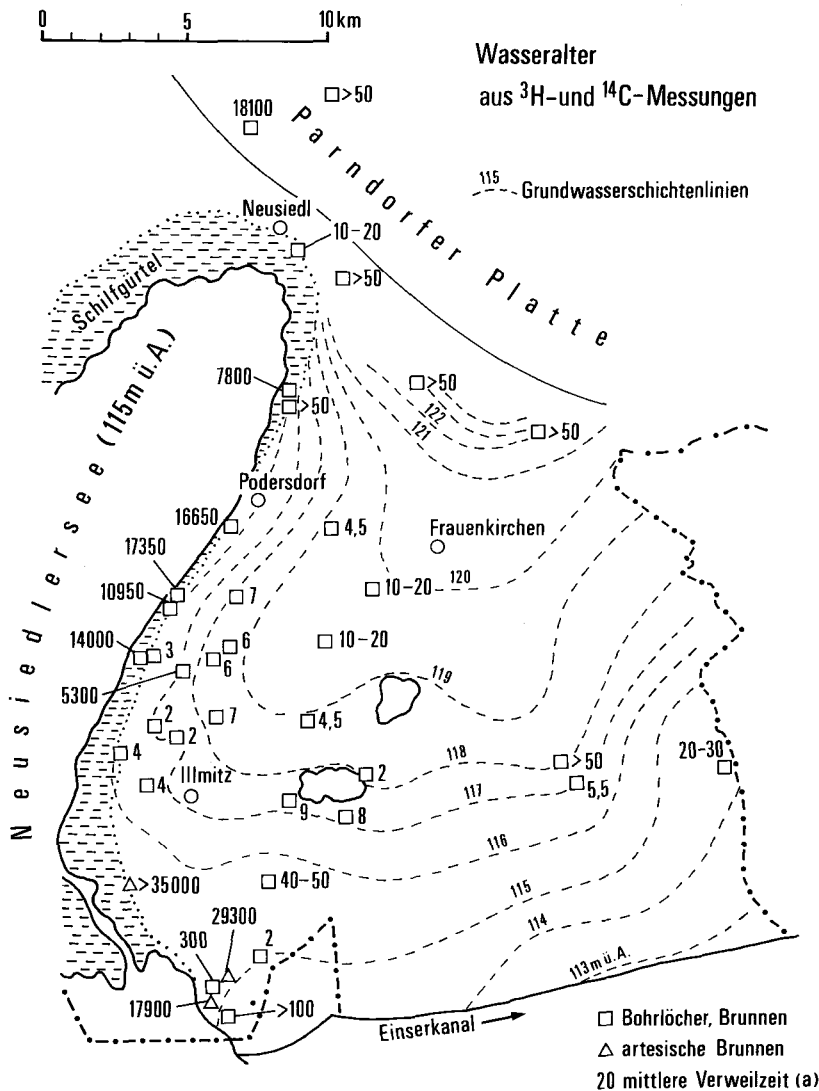


Abb. 6: Mittlere Verweilzeit der Grundwässer im Seewinkel (Burgenland), abgeschätzt aus  $^3\text{H}$ -Zeitreihen und  $^{14}\text{C}$ -Bestimmungen (D. RANK, 1986b).

tiefen Bohrloch in der Nähe der Höllacke 100 Ci  $^3\text{H}$  ins Grundwasser eingegeben worden, der Versuch hatte kein interpretierbares Ergebnis gebracht. Aus der Überlegung heraus, daß bei so hohen Verweilzeiten, wie sie im Rahmen der Isotopenuntersuchungen im Seewinkel festgestellt worden waren, noch immer ein Teil des eingebrachten  $^3\text{H}$  in der Umgebung der Eingabestelle nachzuweisen sein müßte, wurde im November 1983 der  $^3\text{H}$ -Gehalt des oberflächennahen Grundwassers bestimmt. Die  $^3\text{H}$ -Ergebnisse weisen extreme Konzentrationsunterschiede für die einzelnen Probenahmestellen aus (Abb. 7).



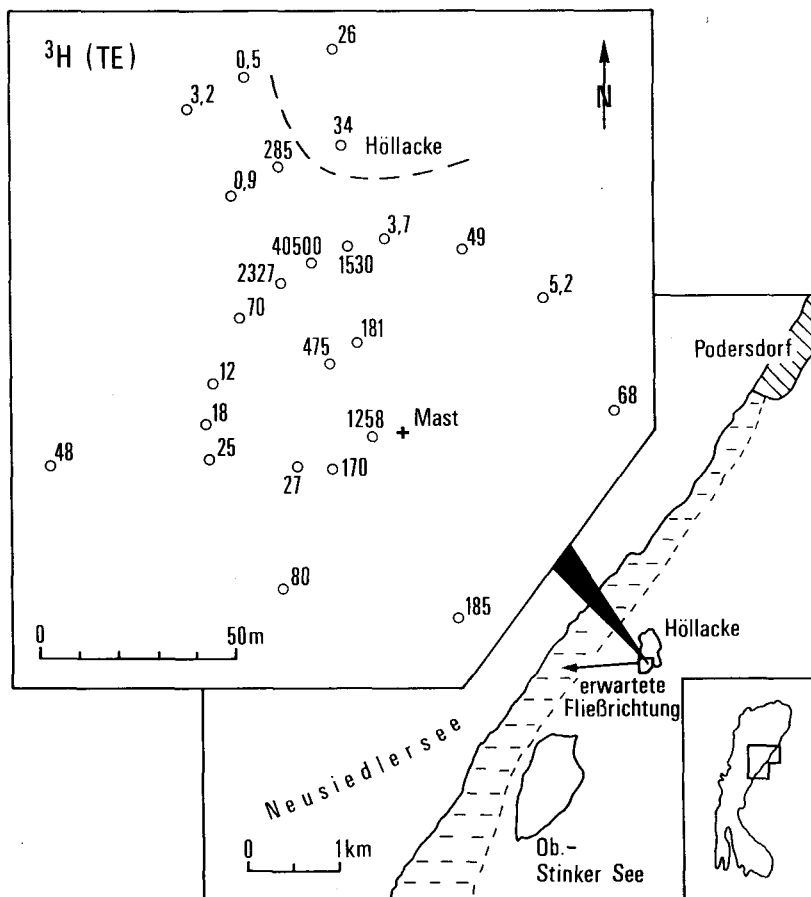


Abb. 7: Seewinkel (Burgenland):  $^3\text{H}$ -Gehalt des oberflächennahen Grundwassers im Bereich der Eingabestelle des Markierungsversuches vom 7. Mai 1964 bei der Höllacke (November 1983) (D. RANK, 1986b).

Die höchsten Werte — bis 40500 TE — sind eindeutig auf das Markierungsexperiment zurückzuführen. Daß in nur 25 Meter Abstand von der Stelle mit dem Maximalwert Werte um 0 TE auftreten, ist auch ein Hinweis auf die äußerst geringe Grundwasserbewegung in diesem Gebiet. Diese niedrigen Werte schließen auch aus, daß es in diesen Bereichen zu einer nennenswerten Grundwasserneubildung durch Versickerung kommt. Die Zusammenfassung der Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen führt schließlich zu einer Modellvorstellung über die hydrogeologischen Verhältnisse im Bereich des Ostufers des Neusiedlersees (Abb. 8). Wasserwirtschaftlich bedeutet dieses Ergebnis, daß der Grundwasserzufluß aus dem Seewinkel zum Neusiedlersee — und damit auch der Nähr- und Schadstoffeintrag über das Grundwasser — sehr gering ist und daß im Seewinkel nur beschränkt Grundwasserentnahmen möglich sind. Methodisch ist zu folgern, daß in Gebieten, in denen mit Inhomogenitäten im Untergrund zu rechnen ist, die Anwendung der üblichen geohydrolo-

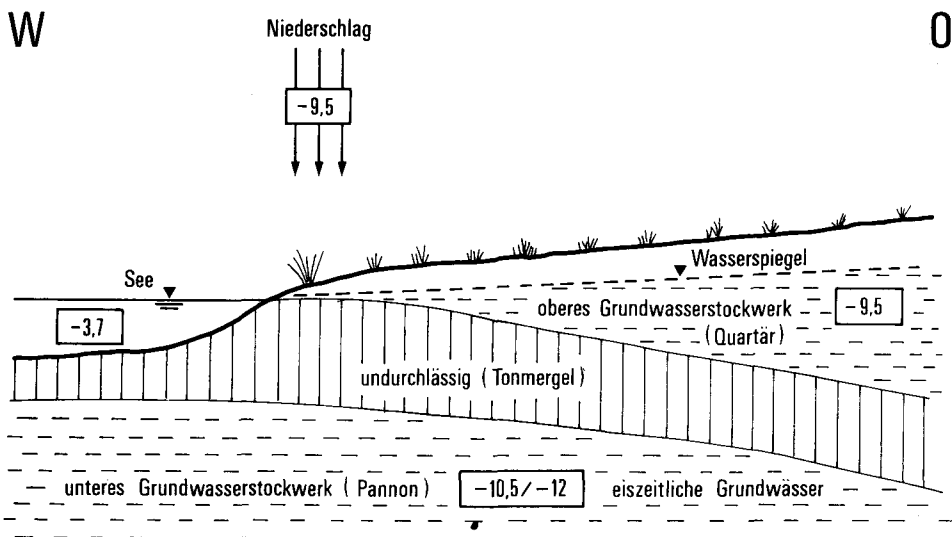


Abb. 8: Generalisierte Modellvorstellung über die hydrogeologischen Verhältnisse am Ostufer des Neusiedlersees mit Angabe der  $\delta^{18}\text{O}$ -Werte der verschiedenen Wässer (D. RANK, 1986b).

gischen Methoden allein zu Fehlschlüssen führen kann, selbst wenn der Verlauf der Grundwasserschichtenlinien scheinbar eine gleichmäßige Grundwasserbewegung erwarten läßt.

Der Einsatz automatischer Probensammler und die Rationalisierung der Isotopenmeßtechnik hat die Untersuchung von hydrologischen Einzelereignissen als neues Arbeitsfeld eröffnet. Die große Probenanzahl ergibt sich einerseits aus der zeitlichen Dichte der Probenahmen, andererseits daraus, daß die Proben „auf Verdacht“ gesammelt werden müssen, weil weder der Zeitpunkt, noch die Zeitdauer, noch die isotopische Signifikanz eines Ereignisses im vorhinein bekannt sind. Ziel solcher Untersuchungen ist es, zusätzlich zur rein mengenmäßigen Betrachtung des Ablaufes hydrologischer Ereignisse — Messungen von Niederschlagshöhen und Wasserständen bzw. Durchflüssen — Information über die Bewegung des einzelnen Wassermoleküls und damit über Verzögerungen bzw. Speicherung im hydrologischen System zu erhalten. Besonders anschaulich wird dieser Unterschied in der Betrachtungsweise beim Schüttungsverhalten von Karstquellen (Abb. 9). Während eines durch einen Föhnneinbruch verursachten Teilabschmelzens der Schneedecke zeigt die Dolomitquelle Q 170 — mit 3,5 Jahren mittlerer Verweilzeit das älteste Wasser in diesem Vergleich — den stärksten, aber nur kurzfristigen Schmelzwassereinfluß. Offensichtlich liegt hier ein quellnaher Einfluß von Schmelz- bzw. Niederschlagswasser vor, während unter Trockenwetterabflußbedingungen Reservoirwasser mit einem wesentlich höheren  $^3\text{H}$ -Gehalt abfließt. Im Gegensatz dazu liegt bei Q 400 (Erlaufursprung) mit einer mittleren Verweilzeit von nur einigen Monaten ein auch kurzfristig gut durchmischter großer Speicher vor. Zu Ende der Föhnperiode (5. Februar) — hier erreicht die Schüttung ihr Maximum — bleibt der  $^3\text{H}$ -Gehalt von Q 400 zunächst konstant. Erst am 9. Februar, als der Schmelzwasseranteil bei Q 170 bereits wieder stark abgesunken ist, wirkt sich bei zurückgehender Schüttung die Schneeschmelze mit Verzögerung und gedämpft im  $^3\text{H}$ -Gehalt von Q 400

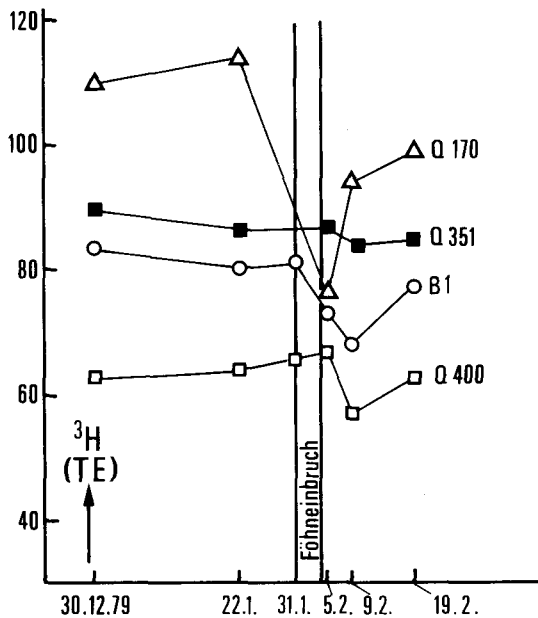


Abb. 9: Auswirkung eines hydrologischen Einzelereignisses: Verlauf des  $^3\text{H}$ -Gehaltes einiger Quellen des Erlaufgebietes und der Erlauf (B1) während eines durch einen Föhnwindbruch verursachten Teilabschmelzens der Schneedecke im Winter 1979/80 (D. RANK et al., 1982).

aus. Q351, eine Quelle aus dem Hangschutt, zeigt überhaupt keine Änderung im  $^3\text{H}$ -Gehalt und damit keinen unmittelbaren Einfluß von Schmelzwasser.

Voraussetzung für erfolgreiche Isotopenuntersuchungen bei Einzelereignissen sind Schwankungen der Isotopenverhältnisse bei der Eingangsgröße, dem Niederschlag. Die Abweichung der Isotopenverhältnisse der Einzelniederschläge vom durchschnittlichen Jahresgang hängt von der Herkunft der feuchten Luftmassen und vom jeweiligen klimatischen Zustand während des Niederschlagsereignisses ab. Selbst innerhalb ein und desselben Ereignisses treten zeitliche Änderungen der Isotopenverhältnisse auf, beispielsweise überstreicht der  $^{18}\text{O}$ -Gehalt des Niederschlagswassers während einer Starkregenperiode im August 1985 einen Schwankungsbereich in der Größenordnung der jahreszeitlichen Amplitude (Abb. 10). Ein Einzelniederschlag eignet sich — bei entsprechender Niederschlagsmenge — umso besser für isotopenhydrologische Untersuchungen, je stärker die Isotopenverhältnisse des Niederschlagswassers von den Mittelwerten im betrachteten hydrologischen System abweichen. Am Beispiel der Wulka, dem Oberflächenabfluß aus einem kleinen Einzugsgebiet, ist deutlich zu erkennen, wie sich die Auswirkungen von Niederschlagsereignissen als Spitzen dem gedämpften, näherungsweise sinusförmigen  $^{18}\text{O}$ -Jahresgang überlagern. (Abb. 11).

Fragen im Zusammenhang mit der Verschmutzung des Grundwassers durch in den Boden einsickernde Schadstoffe oder mit der Beurteilung von Deponiestandorten verlangen nach Methoden, mit denen die Bewegung des einzelnen Wassermoleküls in der ungesät-

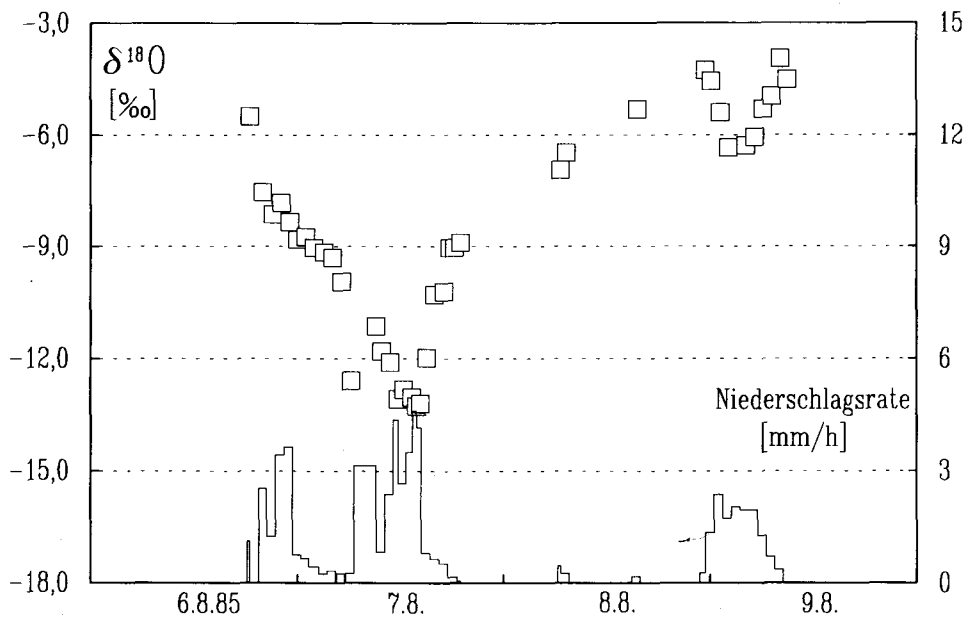


Abb. 10: Verlauf des  $^{18}\text{O}$ -Gehaltes in den Niederschlägen vom 6. bis 9. August 1985 (50 mm Niederschlagssumme); Sammelstation Wien-Arsenal.



Abb. 11: Zeitlicher Verlauf des  $^{18}\text{O}$ -Gehaltes in der Wulka (Wochendurchschnittsproben, Wulkaprodersdorf). Dem näherungsweise sinusförmigen Verlauf sind einzelne Spitzen als Auswirkung von Niederschlagsereignissen überlagert.

tigten Bodenzone verfolgt werden kann. Nur Isotopenuntersuchungen können diese Forderung erfüllen, sie können dabei auf mehreren Effekten aufbauen:

- Abbildung des Jahresganges der Isotopenverhältnisse der Niederschläge im Bodenwasser;
- Abbildung des langzeitlichen Verlaufes des  $^3\text{H}$ -Gehaltes der Niederschläge (Kernwaffentritium) im Bodenwasser;
- radioaktiver Zerfall von  $^3\text{H}$ , d. h. alte Wässer sind  $^3\text{H}$ -frei;
- Anreicherung von  $^{18}\text{O}$  bzw.  $^2\text{H}$  im Bodenwasser bei Verdampfungsprozessen;
- Verschiebung des Verhältnisses  $^2\text{H}/^{18}\text{O}$  bei Phasenumwandlungen (Verdampfung), die nicht im Gleichgewicht ablaufen;
- zusätzlich sind Markierungsversuche mit  $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$  oder  $^{18}\text{O}$  möglich.

Bei einer Handbohrung am Ostufer des Neusiedlersees — abgeteuft nach einer längeren Hitzeperiode — ist eine deutliche Altersgliederung — Zunahme des  $^3\text{H}$ -Gehaltes mit der Tiefe — zu erkennen (Abb. 12). Es handelt sich vorwiegend um schluffiges Material, das

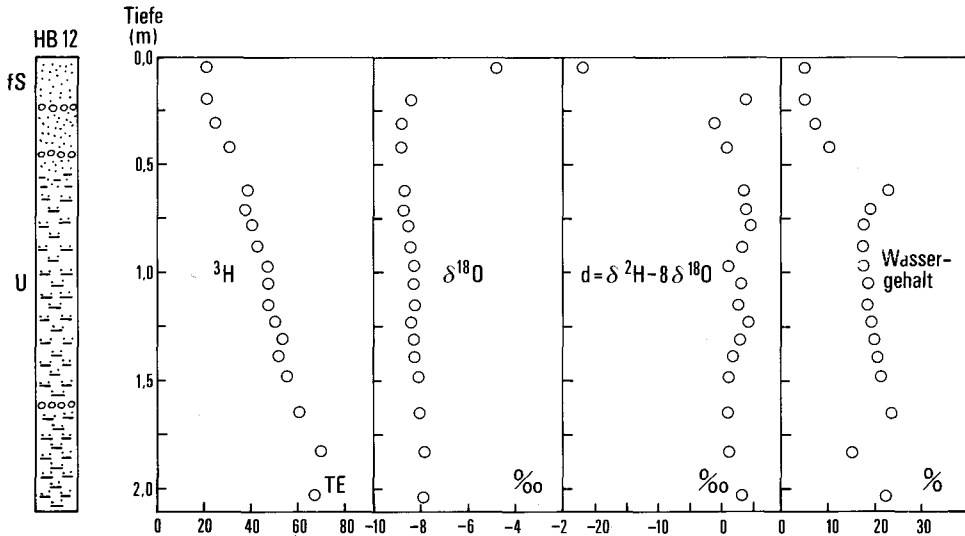


Abb. 12: Neusiedl, Handbohrung 12 neben Seedamm: Isotopendaten und Wassergehalt der ungesättigten Bodenzone. Gesättigte Bereiche wurden nicht angetroffen (J. DEÁK et al., 1989).

Wasseralter an der Basis der Bohrung dürfte bei 20-30 Jahren liegen. Die  $^{18}\text{O}$ -Werte zeigen generell leichte Anreicherungseffekte (Verdunstungseinflüsse), besonders stark wirken sich diese Einflüsse knapp unter der Geländeoberkante aus, es sind dies deutliche Anzeichen einer Verdunstung des Wassers aus der ungesättigten Zone heraus. Entsprechend sinkt der Wassergehalt ab. Auch an der Verschiebung des  $^2\text{H}/^{18}\text{O}$ -Verhältnisses — charakterisiert durch die Größe  $d = \delta^2\text{H} - 8 \cdot \delta^{18}\text{O}$  — ist deutlich der Verdunstungseinfluß zu erkennen. Dieses Ergebnis läßt den Schluß zu, daß im Bereich der Untersuchungen der Großteil des in den Untergrund einsickernden Wassers nach kurzer Zeit wieder verdunstet und kaum zur Grundwasserneubildung beiträgt.

#### 4. Radiocäsium ( $^{137}\text{Cs}$ ) in der Umwelt

Berücksichtigt man die Größenordnung der abgegebenen Aktivitätsmengen und die der physikalischen Halbwertszeit, so kommt derzeit von allen beim nuklearen Brennstoffkreislauf in der Form von Aerosolen freigesetzten Radionukliden als Folge der Kernwaffenversuche und des Tschernobyl-Unfalles dem Cäsiumisotop  $^{137}\text{Cs}$  die größte Bedeutung für erdwissenschaftliche Untersuchungen zu. Das Ergebnis einer Übersichtsanalyse an frisch gebildetem Bodensediment aus dem Donaustauraum Aschach fünf Monate nach dem Tschernobyl-Unfall zeigt, daß längerfristig die künstliche Radioaktivität der Sedimente durch die beiden Cäsiumisotope bestimmt wird (Tab. 1). Das aus Tschernobyl stammende  $^{137}\text{Cs}$  kann dabei über die kurzlebigeren Begleiträdonuklide — vor allem  $^{134}\text{Cs}$  — noch einige Jahre eindeutig identifiziert und vom Kernwaffen- $^{137}\text{Cs}$  unterschieden werden.

Tabelle 1: Gammaspktrometrische Bestimmung von Radionuklidkonzentrationen in frisch gebildetem Donausediment (Stauraum Aschach, Strom-km 2163,1, entnommen am 24. September 1986, Kornfraktion  $< 20\mu\text{m}$ ) (D. RANK, 1987).

Nuklid	Konzentration (Bq/kg)	Halbwertszeit
Künstliche Radioaktivität:		
$^{103}\text{Ru}$	$326 \pm 23$	39,28 d
$^{106}\text{Ru}$	$806 \pm 75$	372,6 d
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	$32 \pm 3$	249,8 d
$^{125}\text{Sb}$	$52 \pm 5$	2,76 a
$^{134}\text{Cs}$	$950 \pm 52$	2,07 a
$^{137}\text{Cs}$	$1880 \pm 110$	30,0 a
Natürliche Radioaktivität:		
$^{40}\text{K}$	$791 \pm 49$	$4,7 \cdot 10^{11}$ a
$^{226}\text{Ra}^*$	$54 \pm 5$	1600 a
$^{232}\text{Th}^{**}$	$60 \pm 5$	$1,405 \cdot 10^{10}$ a

\* Folgeprodukte  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  u. a.

\*\* Folgeprodukte  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  u. a.

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. Die Deposition des längerlebigen  $^{137}\text{Cs}$  auf der Erdoberfläche ist als langfristige, flächenhafte Markierung aufzufassen. Sie kann unter anderem zur Bestimmung der Eindringgeschwindigkeit von Schadstoffen in den Untergrund und zur Ermittlung von Sedimentationsraten in Oberflächengewässern benützt werden.

Die Infiltration von  $^{137}\text{Cs}$  in den Boden erfolgt nur sehr langsam, es wird dabei vorwiegend an Tonmineralien, Hydroxyden und organischer Substanz festgehalten. Ein Vergleich der Verteilungen der Cäsiumisotope in einem grasbewachsenen, tonigen Boden zwei Monate bzw. drei Jahre nach dem Tschernobyl-Unfall läßt erkennen, daß der Großteil nach wie vor in der obersten Bodenschicht anzutreffen ist (Abb. 13). In tiefere Bodenschichten gelangt Tschernobyl- $^{137}\text{Cs}$  in absehbarer Zeit nur durch eine entsprechende Bearbeitung dieser Böden. Das im unteren Teil des Profils von Abb. 13 angetroffene  $^{137}\text{Cs}$

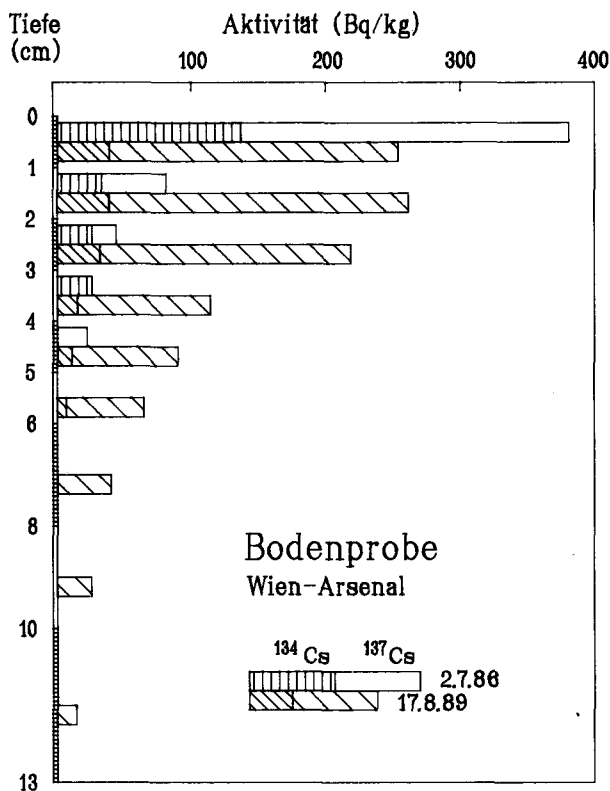


Abb. 13: Eindringen von Radiocäsium in den Boden. Verteilung von  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in einem Bodenprofil zwei Monate bzw. drei Jahre nach dem Tschernobyl-Unfall (grasbewachsener sandig-kalkiger Boden mit hohem Tonanteil); Proben von 1986 bei Umgebungstemperatur, Proben von 1989 bei 105 °C getrocknet. Die Unterschiede im Verhältnis von  $^{134}\text{Cs}$ - zu  $^{137}\text{Cs}$ -Gehalt der Proben von 1986 resultieren aus der kurzen Meßzeit bzw. dem großen statistischen Fehler.

stammt offensichtlich von den Kernwaffenversuchen der fünfziger und sechziger Jahre, da das für Tschernobyl- $^{137}\text{Cs}$  charakteristische Begleitnuklid  $^{134}\text{Cs}$  fehlt. Insgesamt ermöglicht das Studium des Eindringens von  $^{137}\text{Cs}$  in den Untergrund Rückschlüsse auf das Verhalten von anderen Stoffen — z. B. Schadstoffen —, die ähnliche chemische Eigenschaften besitzen.

Ein Großteil der in Oberflächengewässern transportierten radioaktiven Substanzen ist an die feinkörnigen Schwebstoffe gebunden und wird mit ihnen abgelagert. Dies führt zu einer Anreicherung von radioaktiven Stoffen in den Feinsedimenten (D. RANK, 1987).  $^{137}\text{Cs}$ -Untersuchungen am abgelagerten Material liefern – bei ruhiger Sedimentation – zwei ausgeprägte Zeitmarken: 1963/64 – Höhepunkt der atmosphärischen Kernwaffenversuche (Abb. 14) – und 1986 – Tschernobyl-Unfall (Abb. 15). Besonders gut ausgebildet ist die Tschernobyl-Zeitmarke in den Stauraumsedimenten der Donau, die  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentration von frisch gebildetem Sediment vom Oktober 1986 liegt mehr als zwei Größenordnungen über den „Vor-Tschernobyl-Werten“ und eine Größenordnung über dem von den Kernwaffenversuchen stammenden  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationsmaximum 1963/64 (D. RANK et al., 1987). Aufgrund der  $^{137}\text{Cs}$ -Halbwertszeit von 30 Jahren lassen sich die beiden Zeitmarken

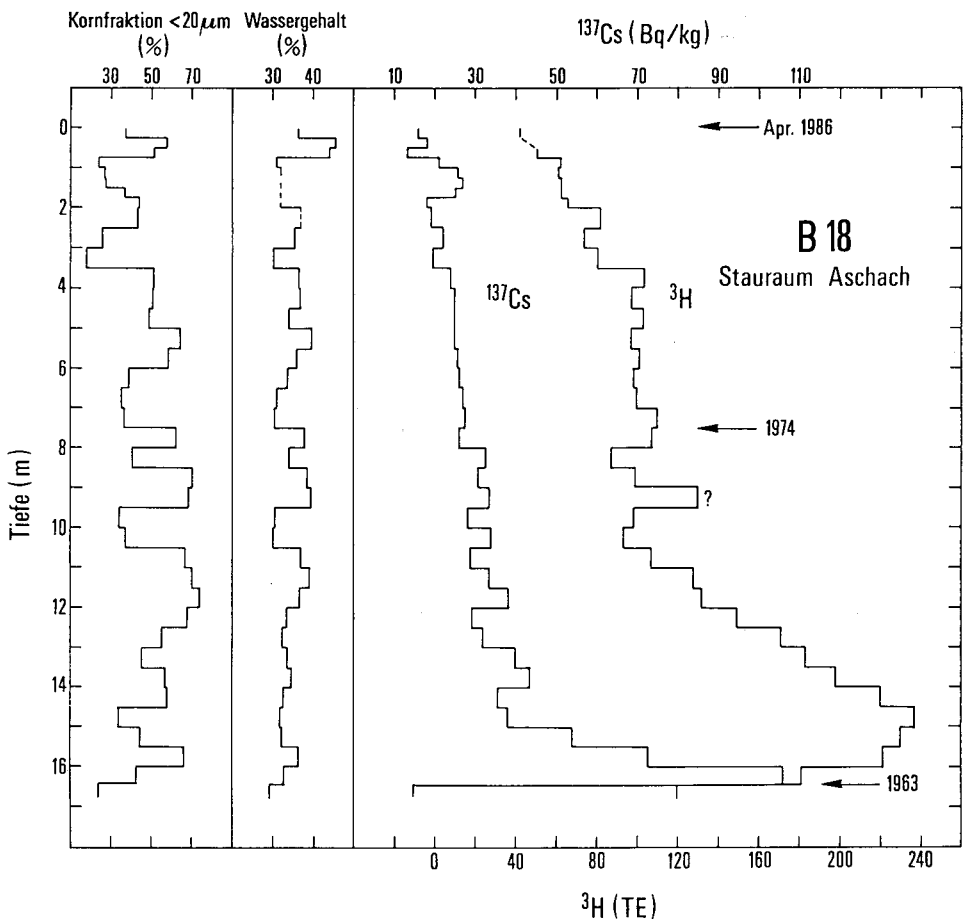


Abb. 14: Stauraum Aschach, Bohrung B 18 (22. April 1986): Kornfraktionsanteil  $< 20\mu\text{m}$ , Wassergehalt (in Prozent des Feuchtgewichtes),  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität der Kornfraktion  $< 20\mu\text{m}$  und  $^3\text{H}$ -Gehalt des Porenwassers in Abhängigkeit von der Bohrlochtiefe (D. RANK et al., 1987).



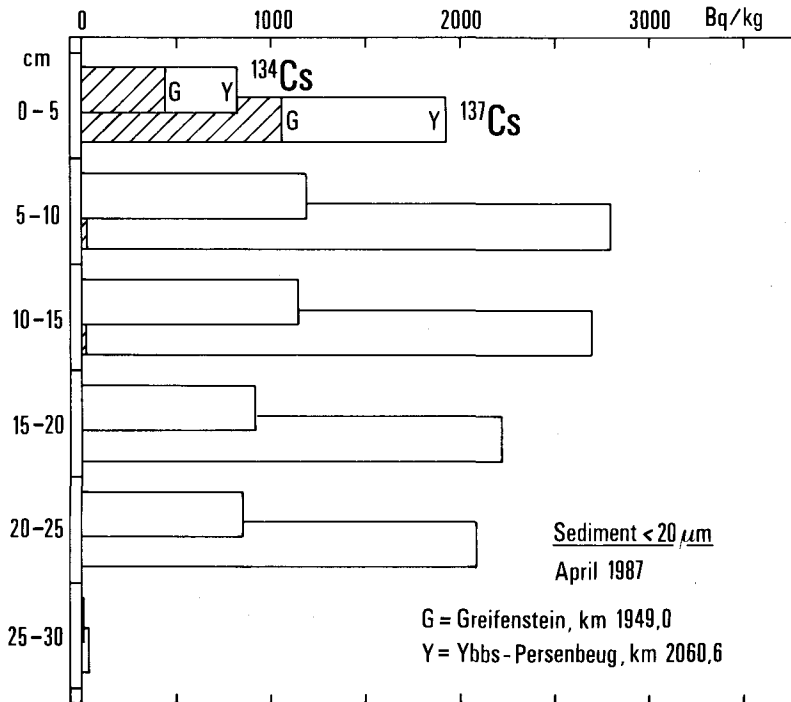


Abb. 15: Tschernobyl-Zeitmarke in Donausedimenten:  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität in Sedimentprofilen an Stellen mit niedriger (Greifenstein) und hoher (Ybbs-Persenbeug) Sedimentationsrate. Die Proben wurden ungefähr ein Jahr nach dem Tschernobyl-Unfall entnommen (D. RANK et al., 1989).

für die nächsten 200 bis 300 Jahre für die Datierung von Sedimenten in Oberflächengewässern und zur Bestimmung von Sedimentationsraten einsetzen.

### Literatur

- BARANYI, S., BOROVICZÉNY, F., DEÁK, J., DREHER, J., MAJOR, P., NEPEL, F., RAJNER, V., RANK, D., REITINGER, J.: Wasserhaushaltsstudie für den Neusiedlersee mit Hilfe der Geochemie und Geophysik 1980-1984. — Forschungsbericht 6, 80 S., Wien (Techn. Universität Wien, Institut für Hydraulik, Gewässerkunde und Wasserwirtschaft) 1986.
- DEÁK, J., KURCZ, I., PAGESCH, W., RAJNER, V., RANK, D., SCHWARZ, U.: Zur Versickerung und Verdunstung im Neusiedler-See-Gebiet. Messung der Isotopenverhältnisse in der ungesättigten Bodenzone. — Bericht 71, 53-60, Illmitz (Biologisches Forschungsinstitut für Burgenland) 1989.
- KOZÁK, K., RANK, D., BIRÓ, T., GOLDBERGER, 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. — Final Report. IAEA-Kontrakte 3451/RB und 3452/RB, 34 S., Wien (IAEA) 1986.
- LÉTOLLE, R.: Nitrogen-15 in the natural environment. — [In:] P. FRITZ und J. Ch. FONTES (Hrsg.): Handbook of Environmental Isotope Geochemistry. — Band 1, 407-433, Amsterdam (Elsevier) 1980.
- RANK, D.: Isotopenverhältnisse und Radionuklide — Spuren in der Umwelt. — Mitt. österr. geol. Ges., 79, 343-357, Wien 1986a.

- : Scheinbare Widersprüche zwischen Schlußfolgerungen aus Grundwasserschichtenplänen und Isotopenmessungen bei hydrologischen Untersuchungen. — Proceedings 5th International Symposium on Underground Water Tracing, 101-112, Athen (Institute of Geology and Mineral Exploration) 1986b.
- : Die Radioaktivität der Donausedimente. — Wasser und Abwasser, 31, 111-136, Wien (Bundesanstalt für Wassergüte) 1987.
- : Isotopenverhältnisse — die Fingerabdrücke des Wassers. — Schr. Ver. Verbr. natwiss. Kenntn. Wien, 127, 147-176, Wien (Verein zur Verbreitung naturwissenschaftlicher Kenntnisse in Wien) 1989.
- RANK, D., KRALIK, M., AUGUSTIN-GYURITS, K., KURCZ, I., MARINGER, F. J., RAJNER, V.: Investigation of sediment transport in the Austrian part of the Danube by using environmental isotopes. — Proceedings: International Symposium on the Use of Isotope Techniques in Water Resources Development. — IAEA-SM-299, 637-646, Wien (IAEA) 1987.
- RANK, D., MARINGER, F. J., TERLUNEN, J.: The radioactivity of sediments in Danube reservoirs in Austria before and after the Chernobyl accident. — Proceedings: International Conference on Water Pollution Control in the Basin of the River Danube, 238-245, Novi Sad (Yugoslav Association for Water Pollution Control) 1989.
- RANK, D., PAPESCH, W., STAUDNER, F.: Zur Herkunft des Gases der Kochbrunnen im Neusiedlersee. — Bericht 58, 93-94, Illmitz (Biologisches Forschungsinstitut für Burgenland) 1986.
- RANK, D., RAJNER, V., LUST, G.: Der Tritiumgehalt der Niederschläge und der Oberflächenwässer in Österreich im Jahre 1989. — Bericht IG 90/01, 35 S., Wien (Bundesversuchs- und Forschungsanstalt Arsenal) 1990.
- RANK, D., SPENDLINGWIMMER, R., NUSSBAUMER, W., PAPESCH, W., RAJNER, V.: Isotopenhydrologische Untersuchungen am Beispiel der Erlaufquellen. — Beiträge zur Geologie der Schweiz — Hydrologie, 281, 225-236, Bern 1982.

Bei der Schriftleitung eingelangt am 7. September 1990