

Jahreszeitliche Schwankungen der ^7Be -, ^{54}Mn - und Spaltprodukt-Konzentrationen der bodennahen Luft

Von W. KOLB, *Mitteilung aus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig*

(Eingegangen am 1. Dezember 1969; revidiert am 9. März 1970)

ABSTRACT

Manganese-54, Antimony-125 and Caesium-137 have been measured in ground level air in Brunswick ($52^\circ 18' \text{ N}$, $10^\circ 28' \text{ E}$) since the end of 1963. Until 1967 the activity concentrations decrease with a stratospheric half-life of 11 months superimposed by seasonal variations, the ratio between maximum in may and minimum in late fall being 10. Against this the corresponding ratio for ^7Be , produced by cosmic rays, is only 2.6. The reason for this difference is due to the fact, that the nuclear bomb debris during that time are of stratospheric origin exclusively whereas averaged over one year about 50 % of Beryllium-7 stem from tropospheric production. From 1964 through 1968 the mean activity concentration of ^7Be in ground level air was between 65 and 69 fCi/m³.

Einleitung

Nachdem Ende 1962 die großen oberirdischen Kernwaffen-Versuchsserien eingestellt worden waren, nahm die Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre nach einem absoluten Maximum im Frühjahr 1963 von Jahr zu Jahr ab. Seit 1965 liefert das durch kosmische Strahlung erzeugte Beryllium-7 wieder den größten Anteil der Aerosolaktivität, wenn man von den kurzlebigen Radon-Folgeprodukten absieht. Die Aktivitätskonzentrationen von ^7Be in der bodennahen Luft zwischen 39° N und 60° N wurden seit dem erstmaligen Nachweis durch Arnold & Ali Al-Salih (1955), von Cruikshank (1956), Anderson u. M. (1960), Gustafson u. M. (1961), Shvedov u. M. (1962), Parker (1962), Lindblom (1962, 1969), Schumann & Stöppler (1963), Peirson (1963), Gold u. M. (1964) und Perkins u. M. (1964) gemessen. Soweit sich diese Messungen auf einen genügend langen Zeitraum erstrecken, stellten diese Autoren einen mehr oder weniger stark ausgeprägten Jahresgang fest. Während die Mittelwerte¹ zwischen etwa 30 und 70 fCi/m³ liegen, streuen die aus Maximal- und Minimalwerten gebildeten Quotienten zwischen 1,8 und 6, und zwar auch dann, wenn

man nur Meßreihen ein- und desselben Jahres vergleicht. Auch die verschiedene geographische Lage der Meßstellen kann nicht allein für die unterschiedlichen Meßwerte verantwortlich sein, wie ein Vergleich zweier benachbarter Meßstellen zeigt: Die im Jahre 1960 in Südengland von Parker (1962) und Peirson (1963) gemessenen Minimalwerte unterscheiden sich z. B. um den Faktor 2. Örtliche, nicht kontrollierbare meteorologische Einflüsse (Gold u. M., 1964) und meßtechnische Probleme bei der Bestimmung der ^7Be -Aktivität in Gegenwart von Spaltprodukten (Anderson u. M., 1960) scheinen vielmehr die wesentlichen Ursachen für die erhebliche Streuung der bisher veröffentlichten Meßergebnisse zu sein, die eine theoretisch zu erwartende Abhängigkeit von der geomagnetischen Breite wahrscheinlich verdeckt, zumindest aber die Auswertung für die Untersuchung von Austauschvorgängen (Junge, 1963; Rama, 1963) an der Tropopause erschwert.

Experimentelles

In der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig ($52^\circ 18' \text{ N}$, $10^\circ 28' \text{ E}$) wird die Aerosolaktivität der bodennahen Luft seit Ende 1963 monatlich analysiert. Die Probenahme- und -aufbereitungsstelle befindet sich in einer Höhe von

¹ Hierbei handelt es sich um das Mittel aus den beiden Extremwerten eines Jahres. Die Jahresmittelwerte liegen wegen des nicht-sinusförmigen Verlaufs etwas niedriger.

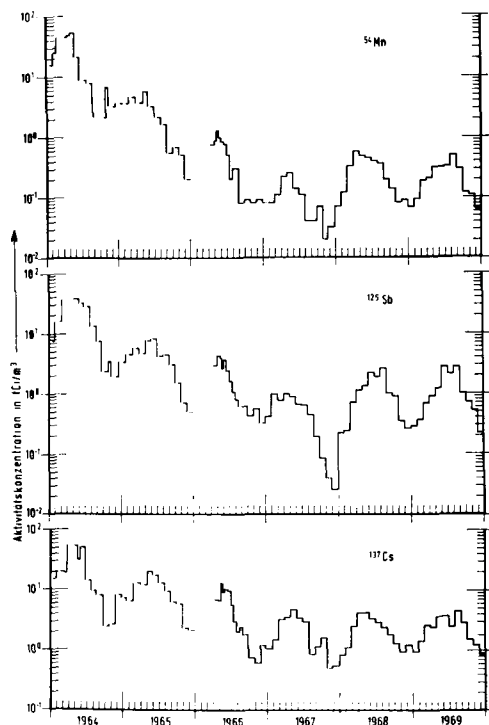


Fig. 1. Jahresgang der Aktivitätskonzentrationen von ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs in der bodennahen Luft.

1,50 m über dem Erdboden. In den ersten beiden Jahren wurde ein Turbogebälse (Typ Hurricane Sampler) benutzt. Die durchgesetzte Luftmenge, die über die angezeigte Durchflußrate bestimmt wurde, lag je Analysenprobe in der Größenordnung von 10^4 m^3 . Seit April 1967 ist ein leistungsfähiges Stephan-Hochdruckgebläse mit geeichtem Drehkolbengaszähler in Betrieb; die monatlich durchgesetzte Luftmenge wurde durch Übergang auf kontinuierlichen Betrieb von Dezember 1967 ab auf etwa 10^5 m^3 heraufgesetzt. Die von Anfang an verwendeten Mikrosorbanfilter (Delbag, Berlin) mit einer Fläche von 400 cm^2 werden je nach dem Staubgehalt der Luft monatlich zwei- bis achtmal gewechselt und anschließend im Muffelofen bei 450°C verascht. Nach Abklingen der Thoron-Folgeprodukte werden die Ascheproben in einem $4'' \times 4''$ -NaI(Tl)-Bohrloch-Szintillationszähler mit Vielkanalanalysator (ND 130 A) auf eventuell auftretende frische Spaltprodukte untersucht. Später werden alle Filteraschen eines Monats vereinigt und einem radiochemischen Trennungsgang unterworfen, der an

anderer Stelle beschrieben ist (Kolb, 1968). Aus den Gamma-Spektren der einzelnen Fraktionen wird mit Hilfe von Standardpräparaten nach dem Subtraktionsverfahren die Aktivität folgender Radionuklide bestimmt: ^{125}Sb , $^{106}\text{Ru/Rh}$, ^{144}Ce , ^7Be , ^{54}Mn und ^{137}Cs , gelegentlich auch ^{57}Co (Baumgärtel & Kolb, 1965), ^{65}Zn (Kolb, 1968), ^{95}Zr – ^{95}Nb , ^{103}Ru , ^{141}Ce , ^{131}I , ^{140}Ba und ^{140}La .

Bei einer Nulleffekt-Impulsrate von 151 min^{-1} im Energiebereich von 0,06 bis 2,7 MeV liegt die Nachweisgrenze des Szintillationsspektrometers in der Größenordnung pCi. Bei einem monatlichen Luftdurchsatz von 10^5 m^3 lassen sich also noch Nuklide nachweisen, deren Konzentration in der bodennahen Luft nur einige 10^{-17} Ci/m^3 beträgt.

Meßergebnisse

In Fig. 1 sind die über nahezu sechs Jahre gemessenen Aktivitätskonzentrationen von ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs graphisch dargestellt. Bei ^{54}Mn handelt es sich um ein induziertes Radionuklid, das überwiegend aus einem 60 Mt-Test im Jahre 1961 auf Nowaja-Semlja stammt (Gustafson u. M., 1964). Erst ab Ende 1967 wirkt sich in zunehmendem Maße ein frischer, von der ersten chinesischen Wasserstoffbombe stammender Anteil aus der Stratosphäre aus. Dies geht deutlich aus Fig. 2 hervor, in der das Konzentrationsverhältnis $^{54}\text{Mn}/^{137}\text{Cs}$ dargestellt ist. Ab April 1969 ist ein dritter Anteil zu erkennen, der von der zweiten chinesischen Wasserstoffbombe vom 27.12.1968 herzurühren scheint. (Eine eingehende Untersuchung der Einflüsse chinesischer Kernwaffenversuche auf die Radionuklidkonzentrationen der bodennahen Luft wird an anderer Stelle veröffentlicht.) Aus Fig. 2 ist auch zu erkennen, daß die Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs wegen seiner großen Halbwertszeit durch die ersten fünf chinesischen Kernwaffenversuche nicht wesentlich verändert wurde; die Punkte streuen bis Ende 1967 um eine Gerade, deren Neigung der Differenz der Zerfallskonstanten beider Nuklide entspricht. Das gleiche trifft für das — hier nicht dargestellte — Verhältnis $^{125}\text{Sb}/^{137}\text{Cs}$ zu. ^{125}Sb rührt im wesentlichen von thermonuklearen Waffen mit hoher Neutronenenergie her, da seine Ausbeute für Spaltneutronen sehr klein ist (Katoeff, 1960). Da diese drei künstlich erzeugten Radionuklide der

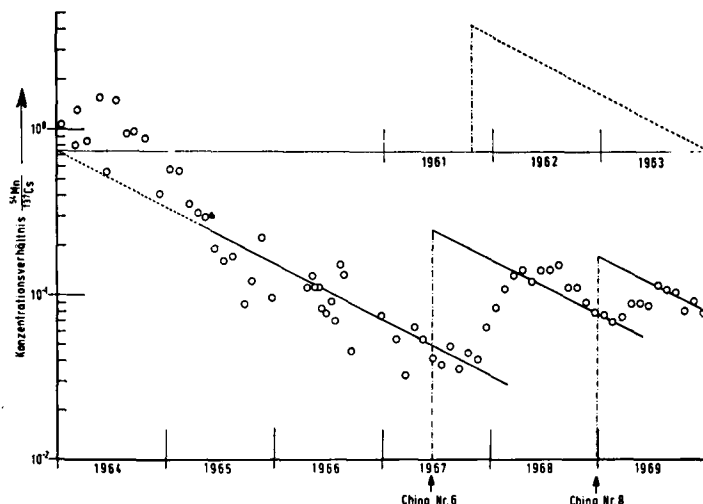


Fig. 2. Zeitliche Änderung des Aktivitätskonzentrationsverhältnisses $^{54}\text{Mn}/^{137}\text{Cs}$. Die Extrapolation auf den 15.10.1961 führt auf einen Anfangswert von 4,3. O, aus den in Fig. 1 dargestellten Meßergebnissen errechnet; Δ, nach Allkofer u. M. (1966).

gleichen Quelle entstammen, d. h. ihre Konzentration in den Jahren 1964 bis 1967 nahezu ausschließlich durch Zufuhr aus dem stratosphärischen Reservoir bedingt ist, wurden sie für eine vergleichende Untersuchung des Jahresgangs der ^7Be -Konzentration herangezogen. Hierzu müssen zunächst die Histogramme aus Fig. 1 in eine quasistationäre Form — bezogen auf den 15.1.1964 — gebracht werden. Dies geschieht durch Multiplikation der einzelnen Monatswerte mit den beiden Faktoren $e^{\lambda t_i}$ und $1/f_j$, wobei λ die Zerfallskonstante des betreffenden Nuklids, t_i die seit 15.1.1964 verstrichene

Zeit für jeden Monat i ($i = 1 \dots 48$, $t_1 = 0$) und f_j das von Jahr zu Jahr ($j = 1 \dots 4$, $f_1 = 1$ für 1964) abnehmende Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen in der unteren Stratosphäre zur Anfangskonzentration eines nicht gasförmigen, langlebigen radioaktiven Stoffes bedeuten. Die Faktoren f_j können aus Fig. 3 ermittelt werden, in der nach Normierung der einzelnen Monatswerte aus Fig. 1 mit dem Faktor $e^{\lambda t_i}$ auf den 15.1.1964 die mittleren Aktivitätskonzentrationen der Sommerhalbjahre (Monate März bis August) von 1964 bis 1967 aufgetragen sind.

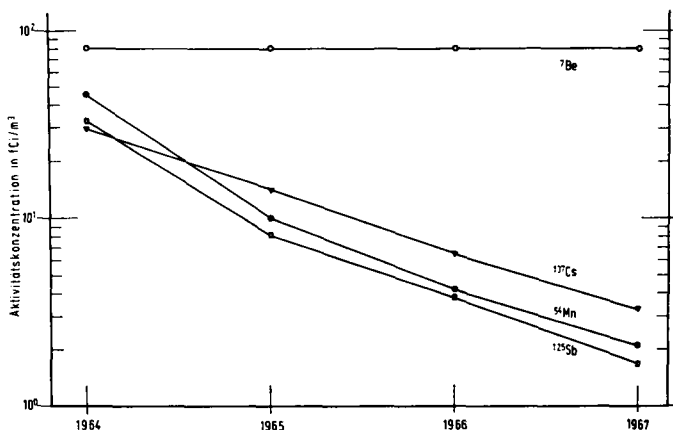


Fig. 3. Mittlere Aktivitätskonzentration von ^7Be , ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs in der bodennahen Luft während der Sommerhalbjahre (Monate März bis August). Die Werte für ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs sind ihren Zerfallskonstanten entsprechend auf den 15.1.1964 normiert.

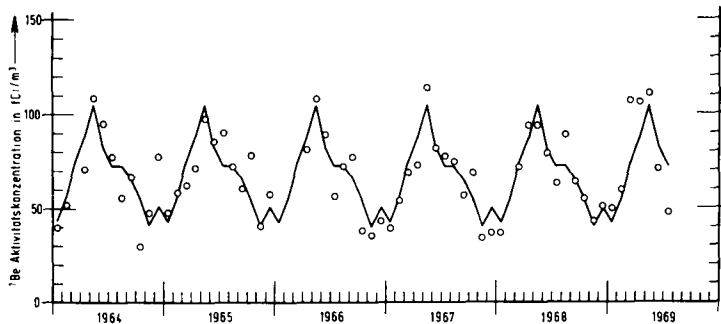


Fig. 4. Jahresgang der ^7Be -Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft. Die Kreise stellen die Meßwerte jedes Monats dar, die ausgezogene Kurve verbindet die aus nahezu sechs Jahren gemittelten Monatswerte und wiederholt sich deshalb periodisch.

Nach Parker (1962) ist der turbulente Luftmassenaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre auch für das Frühjahrsmaximum der ^7Be -Konzentration in der bodennahen Luft verantwortlich. Die bemerkenswerte Konstanz der für die Sommerhalbjahre gebildeten ^7Be -Mittelwerte, die unmittelbar aus den gemessenen Monatswerten (Fig. 4) errechnet wurden und in Fig. 3 ebenfalls dargestellt sind, bedeutet dann, daß der Austauschkoefizient in den betrachteten Jahren konstant ist. Dies wiederum hätte bei einmalig injizierten Radionukliden zur Folge, daß ihre Aktivitätskonzentrationen von Jahr zu Jahr im gleichen Verhältnis abnehmen müßten. Nach Fig. 3 trifft dies im Rahmen der Meßgenauigkeit für alle drei Nuklide zu, für ^{54}Mn und ^{125}Sb allerdings nur für den Zeitraum 1965 bis 1967.

Die mittlere Aufenthaltsdauer in der (unteren) Stratosphäre ergibt sich hieraus zu 1,3 a. Die diesem Wert entsprechende Halbwertszeit von 11 Monaten ist um 3 Monate länger als die von Lindblom (1969) an ^{137}Cs zur gleichen Zeit in Schweden (59°N) bestimmte. Thomas u. M. (1969) fanden in Richland, Wash. (47°N) im gleichen Zeitraum eine Halbwertszeit von 11,8 Monaten.

Für das im Vergleich zu ^{137}Cs etwa doppelt so rasche Abklingen von ^{54}Mn und ^{125}Sb von 1964 bis 1965 (stratosphärische Halbwertszeit etwa 6 Monate) konnte bisher keine befriedigende Erklärung gefunden werden.

Das Ergebnis der nach dem oben beschriebenen Verfahren vorgenommenen Umrechnung der monatlich gemessenen Aktivitätskonzentration ist in Fig. 5 dargestellt. Zum Ausgleich der durch meteorologische Einflüsse und Meß-

fehler bedingten Streuung der Meßwerte wurde der Jahresgang durch eine ausgezogene Kurve dargestellt, die die aus vier Jahren gemittelten Monatswerte verbindet. Der in Fig. 4 dargestellte Jahresgang von ^7Be ist über sechs Jahre gemittelt. Die Lage der Einzelwerte bezüglich der Mittelwertskurven läßt keine systematischen Abweichungen von Jahr zu Jahr erkennen. Bei allen vier Kurven tritt ein meist scharf ausgeprägtes Maximum im Mai und ein flaches Minimum im Spätherbst auf, das bei ^7Be trotz der Mittelwertbildung über sechs Jahre nicht eindeutig definiert ist. Als markantester Unterschied tritt beim Vergleich des ^7Be -Jahresgangs mit dem der anderen Radionuklide die wesentlich geringere relative Schwankung der Aktivitätskonzentration zwischen den Frühjahrs- und Herbstextremwerten in Erscheinung, die auf einen hohen troposphärischen Anteil hindeutet.

Auswertung

Für die eingangs zitierten Meßergebnisse anderer Autoren sind verschiedene Theorien für den Jahresgang von ^7Be aufgestellt worden, auf deren Wiedergabe hier verzichtet werden kann, da sie schon von Rama (1963) und zum Teil auch von Junge (1963) diskutiert wurden. Mit den vorliegenden Meßergebnissen steht am ehesten die von Parker (1962) gegebene Deutung in Einklang: Sowohl die zeitliche Lage des Maximums und die Amplitude der periodischen Schwankung sprechen für die Zufuhr stratosphärischer Luftmassen als Ursache für das Frühjahrsmaximum, das sich dem troposphärischen Anteil überlagert. Nimmt man diesen in erster Näherung als konstant an, so lassen

sich beide Anteile durch Vergleich mit dem Jahresgang der künstlich erzeugten Radionuklide bestimmen, deren Zufuhr aus der Stratosphäre nach dem gleichen Mechanismus vor sich gehen sollte.

Allgemein können wir uns die Konzentration eines Radionuklids in der bodennahen Luft aus drei Anteilen zusammengesetzt denken, nämlich einem Anteil a_T , der ausschließlich aus der Troposphäre stammt, einem Anteil a_D , der durch kontinuierliche Diffusion aus der Stratosphäre geliefert wird und schließlich einem periodisch schwankenden Anteil mit der Amplitude $a_S/2$, der infolge der turbulenten Luftmassenzufuhr aus der Stratosphäre im Frühjahr ein ausgeprägtes Maximum aufweist. Für die Radionuklide ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs ist zwischen 1964 und 1967 der troposphärische Anteil a_T praktisch gleich Null, da, wie bereits gezeigt, die kleineren Kernwaffenversuche dieser Zeit keinen nennenswerten Beitrag lieferten, so daß die gemessenen Konzentrationen ausschließlich durch Zufuhr aus dem stratosphärischen Reservoir bedingt sind. Der Anteil a_D entspricht bei diesen Nukliden somit der Höhe der Minima $a_{\min}$ (Gustafson u. M., 1961; Parker, 1962), während a_S durch die Differenz der beiden Extremwerte $a_{\max} - a_{\min}$ gegeben ist.

Aus den Extremwerten der Fig. 5 ergibt sich für die Kernwaffenprodukte ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs der Quotient $a_D/a_S = 0,1 \pm 0,03$. Erfolgt die Zufuhr von Beryllium-7 aus der Stratosphäre nach dem gleichen Mechanismus, so muß hierfür die gleiche Beziehung gelten: $a_D = 0,1 a_S$.

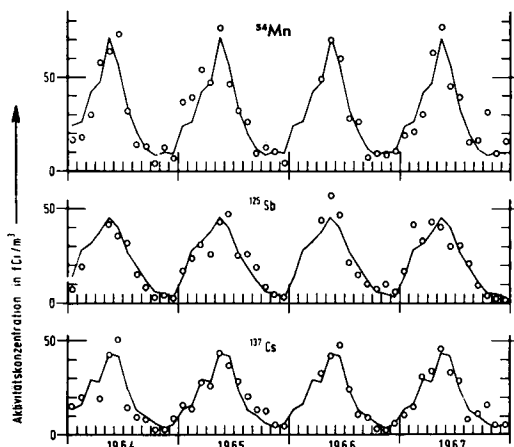


Fig. 5. Quasistationärer Jahresgang der Aktivitätskonzentrationen von ^{54}Mn , ^{125}Sb und ^{137}Cs (vergl. Text).

Tabelle 1

Anteil	Jahres- durchschnitt (%)	Mai (%)	November (%)
Troposphäre	(52 ± 5)	(33 ± 5)	(85 ± 10)
Stratosphäre	(48 ± 5)	(67 ± 5)	(15 ± 10)

Mit $a_S = a_{\max} - a_{\min}$ ergibt sich für ^7Be aus Fig. 4 $a_S = 64 \text{ fCi/m}^3$. Damit beträgt

$$a_D = (6,4 \pm 2) \text{ fCi/m}^3$$

und der troposphärische Anteil

$$a_T = a_{\min} - a_D = (35 \pm 2) \text{ fCi/m}^3.$$

Die mittlere Aktivitätskonzentration von ^7Be in der bodennahen Luft betrug in den Jahren 1964 bis 1968 67, 69, 65, 66 bzw. 67 fCi/m^3 , im Durchschnitt also 67 fCi/m^3 . Davon stammen im Jahresdurchschnitt aus der Troposphäre 35 fCi/m^3 und aus der Stratosphäre 32 fCi/m^3 .

Die prozentualen Anteile sind für den Jahresdurchschnitt, das Frühjahrsmaximum und das Herbstminimum in Tabelle 1 gegenübergestellt.

Diese Prozentangaben gelten jedoch nur dann, wenn der troposphärische Anteil während des Jahres keinen systematischen Schwankungen unterworfen ist.

Ob diese Voraussetzung zutrifft, soll im folgenden untersucht werden. Aus den in Fig. 5 dargestellten Kurven läßt sich entnehmen, daß von Juli an die Konzentrationen der drei Kernwaffenprodukte bis auf den konstanten Anteil a_D im Herbst exponentiell abklingen, und zwar mit der troposphärischen Halbwertszeit von 1 Monat. Zu diesem Zeitpunkt muß also die turbulente Zufuhr aus der Stratosphäre beendet sein. Das gleiche sollte für den stratosphärischen Anteil der ^7Be -Konzentration gelten. Aus Fig. 4 kann man jedoch entnehmen, daß das Abklingen nach dem Frühjahrsmaximum besonders während der Sommermonate viel langsamer vor sich geht. Die Abweichung von dem ab Juni zu erwartenden exponentiellen Verlauf, die im September am größten ist, ließe sich zwanglos erklären, wenn man sie dem troposphärischen Anteil des Beryllium-7 zurechnen würde. Normiert man z. B. den mittleren Jahresgang für ^{54}Mn auf den von ^7Be (nach Subtraktion des troposphärischen Anteils)

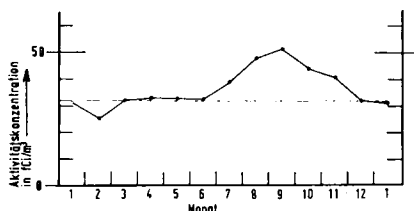


Fig. 6. Möglicher Jahresgang des troposphärischen Anteils der ^7Be -Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft.

und subtrahiert die beiden Kurven voneinander, so erhält man die Abweichungen für das ganze Jahr. Addiert man diese Kurve, die wegen der bei der Differenz zweier großer Zahlen auftretenden Fehler ausgeglichen wurde, zu dem vorher als konstant betrachteten troposphärischen Anteil, ergibt sich der in Fig. 6 wiedergegebene Verlauf. Ob es sich hierbei um einen echten troposphärischen Jahresgang handelt, läßt sich selbst nach der vorgenommenen Mittelwertbildung über vier bzw. nahezu sechs Jahre nicht mit Sicherheit entscheiden, da die Kurven noch nicht glatt genug verlaufen. Sollte das Maximum im Spätsommer reell sein, so würde der troposphärische Anteil der ^7Be -Konzentration in der bodennahen Luft im Jahresdurchschnitt nicht 32 fCi/m³, sondern 39 fCi/m³ betragen. Die in Tabelle 1 angegebenen prozentuellen Anteile würden sich für die Troposphäre von 52 % auf 58 % erhöhen und für die Stratosphäre von 48 % auf 42 % erniedrigen. Mit einer Unsicherheit von $\pm 10\%$ läßt sich abschließend feststellen, daß das in der bodennahen Luft Norddeutschlands enthaltene Beryllium-7 je zur Hälfte aus der Troposphäre und der Stratosphäre stammt.

Diskussion

Nach Lal u. M. (Junge, 1963) beträgt die ^7Be -Produktionsrate p in 53° geomagnetischer Breite $11,5 \cdot 10^{-2}/\text{s cm}^2$, davon entfallen $p_T = 2,5 \cdot 10^{-2}/\text{s cm}^2$ auf die Troposphäre. Die mittlere ^7Be -Aktivitätskonzentration in der Troposphäre läßt sich nach der Formel

$$a_T = \frac{p_T}{H} (1 - e^{-\lambda \tau_T})$$

berechnen, wobei für die Troposphärenhöhe $H = 12 \text{ km}$, die Zerfallskonstante $\lambda = 1,31 \cdot 10^{-2}/\text{d}$

und die mittlere troposphärische Aufenthaltszeit $\tau_T = 30 \text{ d}$ einzusetzen ist. Mit der oben angegebenen Produktionsrate p_T erhält man

$$a_T = 6,7 \cdot 10^{-9}/\text{s cm}^3 = 190 \text{ fCi/m}^3$$

Hiervon sind nur etwa 20 % in der bodennahen Luft nachweisbar, wie ein Vergleich mit den aus den Meßergebnissen abgeleiteten Werten von 32 bzw. 39 fCi/m³ zeigt. Dies könnte darauf zurückzuführen sein, daß der größte Teil des gebildeten Beryllium-7 aus der unteren Troposphäre ausregnet (rain-out). Damit im Einklang stehen Meßergebnisse von Schumann (1967), wonach in Heidelberg der Beitrag des Trocken-Fallout von Spaltprodukten aus Kernwaffenversuchen in drei aufeinanderfolgenden Jahren jeweils nur 21 % der Gesamtdosition betrug. Da die Niederschlagshäufigkeit, gemittelt über die Jahre 1964 bis 1969, im Herbst ein Minimum aufweist, könnte auf diese Weise wenigstens qualitativ das in Fig. 6 dargestellte Maximum erklärt werden. Bei solchen Korrelationen ist jedoch einige Vorsicht geboten, solange man die Herkunft der Luftmassen nicht mit in Betracht zieht.

Der erhebliche stratosphärische Anteil der ^7Be -Konzentration in der bodennahen Luft, der nach der Auswertung der Meßergebnisse im Mai 67 % erreicht, steht nicht im Einklang mit Folgerungen, die Aegerter u. M. (1966) aus Messungen des $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ -Verhältnisses ziehen. Nach ihrer Abschätzung sollte bei einer Erhöhung der ^7Be -Konzentration um den Faktor 3, bedingt durch die Zufuhr stratosphärischer Luftmassen im Frühjahr, auch das $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ -Verhältnis um 100 % zunehmen. Da ihre nur über einen Zeitraum von neun Monaten vorliegenden Meßwerte keine derart ausgeprägte Zunahme erkennen lassen, führen die Verf. das Frühjahrsmaximum der ^7Be -Konzentration in der bodennahen Luft auf verstärkten Vertikalaustausch innerhalb der Troposphäre während dieser Jahreszeit zurück.

Gedeonov & Rysev (1969) finden demgegenüber im Zeitraum 1963 bis 1966 einen ausgeprägten Jahresgang des $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ -Aktivitäts-Verhältnisses in der bodennahen Luft mit einem Maximum von 60 im Mai und einem Minimum von 30 im Oktober (Durchschnittswerte aus 4 Jahren), der sich nur durch Zufuhr stratosphärischer Luftmassen im Frühjahr erklären läßt und mit der für diesen Fall von

Aegerter u. M. (1966) vorgenommenen Abschätzung in Einklang steht.

Abschließend danke ich meinen Mitarbeitern Frau L. Ehm, Herrn G. Kromphorn und Fräulein I. Massong für die Ausführung der radiochemischen Analysen. Frau L. Ehm stellte außerdem die Meßergebnisse zusammen und war an deren Auswertung wesentlich beteiligt.

Zusammenfassung

Durch Vergleich des Jahresgangs des durch kosmische Strahlung in der Troposphäre und Stratosphäre gebildeten Beryllium-7 mit dem von solchen Kernwaffenprodukten, die ausschließlich aus dem stratosphärischen Reservoir

stammen, läßt sich der troposphärische Anteil des in der bodennahen Luft enthaltenen Beryllium-7 bestimmen. Die mittlere ⁷Be-Aktivitätskonzentration lag in den Jahren 1964 bis 1968 konstant bei (67 ± 2) fCi/m³. Während das Verhältnis zwischen Maximum im Mai und Minimum im Spätherbst bei den Kernwaffenprodukten aus dem stratosphärischen Reservoir bei 10 liegt, beträgt es für ⁷Be nur 2,6. Der Unterschied läßt sich mit einem in erster Näherung konstanten troposphärischen Anteil von etwa 50% des Jahresmittelwerts zwanglos erklären. Aus dem Abklingen der Kernwaffenprodukte ergab sich eine stratosphärische Halbwertszeit von 11 Monaten und eine troposphärische Halbwertszeit von 1 Monat.

LITERATUR

- Aegerter, S., Bhandari, N., Rama & Tamhane, A. S. 1966. ⁷Be and ³²P in ground level air. *Tellus* 18, 212–215.
- Allkofer, O. C., Fox, J. M. & Hauser, H. 1966. Nuklid-Zusammensetzung des stratosphärischen Fallout drei Jahre nach Beendigung der Kernwaffentestserien in der Atmosphäre. *Atomkernenergie* 11, 467–476.
- Anderson, W., Bentley, R. E., Parker, R. P., Crookall, J. O. & Burton, L. K. 1960. Comparison of fission product and beryllium 7 concentrations in the atmosphere. *Nature* 187, 550–553.
- Arnold, J. R. & Ali Al-Salih, H. 1955. Beryllium 7 produced by cosmic rays. *Science* 121, 451–453.
- Baumgärtel, K. & Kolb, W. 1965. Die γ -spektrometrische und radiochemische Analyse der bodennahen Luft. *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung*, BMwF, Bonn IV/65, 194–198.
- Cruikshank, A. J., Cowper, G. & Grummitt, W. E. 1956. Production of ⁷Be in the atmosphere. *Canad. J. Chem.* 34, 214–219.
- Gedeonov, L. I. & Rysev, O. A. 1969. Die Anwendung der Gesetzmäßigkeiten der Migration kosmogener Radioisotope bei der Untersuchung der Ausbreitung radioaktiver Verunreinigungen in der Atmosphäre (in Russ.). Moskau, Atomizdat, 24 S.
- Gold, S., Barkhau, H. W., Shleien, B. & Kahn, B. 1964. Measurements of naturally occurring radionuclides in air. In *The Natural Radiation Environment*, S. 369–382. University of Chicago Press, Chicago.
- Gustafson, P. F., Kerrigan, M. A. & Brar, S. S. 1961. Comparison of beryllium-7 and caesium-137 radioactivity in ground-level air. *Nature* 191, 454–456.
- Gustafson, P. F., Muniak, S. E. & Brar, S. S. 1964. Concentrations of caesium-137, rhodium-102 and manganese-54 in surface air. *Nature* 203, 470–472.
- Junge, C. E. 1963. Studies of global exchange processes in the atmosphere by natural and artificial tracers. *J. Geophys. Res.* 68, 3849–3856.
- Junge, C. E. 1963. *Air Chemistry and Radioactivity*, S. 235. Academic Press, New York.
- Kateoff, S. 1960. Fission-product yields from neutron-induced fission. *Nucleonics* 18, 202–208.
- Kolb, W. 1968. Zinc-65 in ground-level air after the 1967 chinese nuclear tests. *Nature* 220, S. 364.
- Lindblom, G. 1962. Determination of concentration of caesium-137 in precipitation and ground-level air in Sweden. *Nature* 193, 866–867.
- Lindblom, G. 1969. Fallout gamma-emitting radionuclides in air, precipitation, and the human body up to spring 1967. *Tellus* 21, 127–135.
- Parker, R. P. 1962. Beryllium-7 and fission products in surface air. *Nature* 193, 967–968.
- Peirson, D. H. 1963. Beryllium-7 in air and rain. *J. Geophys. Res.* 68, 3831–3832.
- Perkins, R. W., Nielsen, J. M. & Thomas, C. W. 1964. Air concentrations of twelve radionuclides from 1962 through Mid-1964. *Science* 146, 762–764.
- Rama 1963. Atmospheric circulation from observations of natural radioactivity. *J. Geophys. Res.* 68, 3861–3866.
- Schumann, G. & Stöppler, M. 1963. Beryllium 7 in the Atmosphere. *J. Geophys. Res.* 68, 3827–3830.
- Schumann, G. 1967. Ursprung und Verbreitung des radioaktiven Fallout. *Naturwiss.* 54, 6–15.
- Shvedov, V. P., Gritchenko, Z. G. & Gedeonov, L. I. 1962. ⁷Be concentration in sea-level air and in atmospheric fallout. *Atomnaya Energiya* 12, 64–66.
- Thomas, C. W., Young, J. A., Wegmann, N. A. & Perkins, R. W. 1969. The measurement and behaviour of airborne radionuclides since 1962. (Private Mitteilung.)

ВЫВОДЫ

Сравнивая годовой ход образующегося бериллия-7 космическими лучами в тропосфере и в стратосфере а также атомными бомбами, происходящего из стратосферного резервуара, можно определить тропосферный вклад бериллия-7 в приземной атмосфере. Средняя активационная концентрация бериллия-7 не изменяясь в течение 1964–1968 г. и составляет приблизительно $(67 \pm 2) \cdot 10^{-15}$ Кюри/ м^3 . В то же время когда соотношение между максимумом в мае и минимумом в

поздней осенью от атомных бомб из стратосферного резервуара оказалось около 10, оно для бериллия-7 составляет только 2,6. Эта разность легко разумно если предположить, что тропосферный вклад в первом приближении оказывается постоянным в течение года и составляет около 50 %. По затуханию продуктов взрывов атомных бомб получается период стратосферного полураспада около 11 месяцев и период тропосферного полураспада около 1 месяца.