

Konzentrationsmessungen von Be-7, Cs-137 und jungen Spaltfragmenten an der Tropopause

Von P. WINIGER, O. HUBER, J. HALTER und B. MICHAUD, *Physikalisches Institut der Universität Fribourg, Schweiz*

(Manuskript erhalten am 14. April; revidierte Version am 16. Dezember 1975)

ZUSAMMENFASSUNG

In 24 Luftfilterproben, welche im Laufe des Jahres 1973 mit Flugzeugen im Bereich von $\pm 2\,000$ m relativ zur Höhe H der Tropopause genommen wurden, erfolgte die gammaspektrometrische Bestimmung der Konzentration von Be-7, Cs-137 und jungen Spaltfragmenten. Die Konzentrationsänderung ist im Bereich von $H \pm 500$ m am grössten und erreicht einen Faktor 10; aus dem bekannten Verlauf der Produktionsrate von Be-7 mit der Höhe kann auf die lokale meteorologische Halbwertszeit T_{met} seiner Trägereaerosole geschlossen werden. Sie beträgt 2 000 m oberhalb der Tropopause ca 90 Tage, 1 000 m unterhalb noch etwa 4 Tage.

ABSTRACT

The concentration of Be-7, Cs-137 and shortlived fission products of 24 airfilter samples collected in 1973 by aircraft in the range of $\pm 2\,000$ m relative to the height H of the tropopause has been measured by means of gammaspectrometry. The variation of the concentration was revealed to be maximal in the region of $H \pm 500$ m where it reaches a value of 10; from the well known pattern of production of Be-7 in function of the height it is possible to determine the local meteorological half-life T_{met} of its carrier aerosols. It amounts to about 90 days at 2 000 m above respectively 4 days at 1 000 m below the tropopause.

1. Einleitung

Seit längerer Zeit werden — insbesondere nach nuklearen Testexplosionen — über der Schweiz in Luftschichten zwischen 8 000 m und 14 000 m Höhe mit Flugzeugen Aerosolproben entnommen und gammaspektrometrisch untersucht. Aus den Analysen junger Spaltfragmentgemische können Rückschlüsse über den Zeitpunkt der Explosion, das Spaltmaterial, den Bombentyp und Fraktionierungseffekte gezogen werden.

Die Proben enthalten immer auch eine gewisse Menge des Isotops Be-7, welches aus der Reaktion von schnellen Protonen und Neutronen der kosmischen Strahlung mit Stickstoff- und Sauerstoffkernen der Atmosphäre entsteht. Die gemessenen Be-7 Konzentrationen erwiesen sich stets auch bei nahezu gleichen Flughöhen als sehr variabel (siehe Fig. 1). Wir

untersuchten daher im Jahr 1973 systematisch die Wirkung der Tropopause auf die Konzentration von Be-7; das Ergebnis erlaubte auch, den Einfluss der Tropopause auf die Konzentration von Cs-137 und von jungen Spaltfragmenten zu erkennen.

2. Probenahme

Die Probenahme der Aerosole erfolgte mit einem Filteraggregat, welches an der Flügelunterseite eines Militärflugzeugs befestigt wird. Der Luftdurchfluss kann während des Fluges eingeschaltet und unterbrochen werden, was eine Probenahme in bestimmter Höhe erlaubt. Als Filtermaterial wurde der Typ 2430 von Schleicher & Schuell mit den Abmessungen $59 \times 58 \text{ cm}^2$ verwendet. Der Luftdurchsatz wurde vom Eidg. Flugzeugwerk Emmen im Wind-

Tabelle 1. *Gamma-Analysen von Höhenflugfiltern*

Aus der Analyse berechnete Anzahl Spaltungen pro kg Luft (mit 10^5 zu multiplizieren) bezogen auf 18.3.72 (HF-7301 bis HF-7314), auf 27.6.73 (HF-7315 bis HF-7324) und ein normales Spaltproduktgemisch von U-238 (14 MeV Neutronen)

Filter Nr.	HF-7301	HF-7302	HF-7303	HF-7304	HF-7305	HF-7306
Sammeldatum	8.1.73	25.1.73	5.2.73	19.2.73	5.3.73	19.3.73
Flughöhe (m)	12 100	12 300	12 000	8 100	13 200	10 300
Höhe Tropo- pause (m)	11 200	12 700	11 400	9 500	12 700	10 400
Analysierte Luftmenge (kg)	1 800	1 770	1 780	3 300	1 370	2 320
Akt. Be-7 (pCi/kg Luft) ^a	$1,97 \pm 0,20$	$0,37 \pm 0,03$	$2,61 \pm 0,20$	$0,21 \pm 0,02$	$3,23 \pm 0,30$	$1,46 \pm 0,15$

Isotop

Np-239

U-237

Mo-99

Te-132

Xe-133

I-131

Nd-147

Ba-140

Ce-141

 Ru-103 $32,8 \pm 5,0$

 Zr-95 $28,9 \pm 4,5$

 Ce-144^c $37,8 \pm 3,5$

 Rh-106^c $91,1 \pm 10,$

 Eu-155^c $64,4 \pm 8,5$

 Sb-125^c $86,1 \pm 15,$

 Cs-137^{c,d} $115, \pm 20,$
 $4,86 \pm 0,90$
 $79,1 \pm 10,$
 $24,7 \pm 4,5$
 $101, \pm 10,$
 $101, \pm 15,$
 $163, \pm 35,$
 $169, \pm 20,$
 $547, \pm 35,$
 $6,36 \pm 0,90$
 $6,06 \pm 1,0$
 $27,3 \pm 6,0$
 $199, \pm 15,$
 $19,7 \pm 3,5$
 $142, \pm 15,$
 $109, \pm 15,$
 $197, \pm 45,$
 $193, \pm 30,$
 $610, \pm 50,$
 $61,6 \pm 6,5$
 $40,9 \pm 6,5$
 $70,7 \pm 10,$
 $283, \pm 20,$

Filter Nr.	HF-7307	HF-7308	HF-7309	HF-7310	HF-7311	HF-7312
Sammeldatum	5.4.73	25.4.73	7.5.73	28.5.73	4.6.73	18.6.73
Flughöhe (m)	12 600	9 200	10 700	11 300	10 600	11 900
Höhe Tropo- pause (m)	12 200	9 500	10 000	11 700	10 700	11 700
Analysierte Luftmenge (kg)	1 100	2 580	2 130	1 650	2 300	1 900
Akt. Be-7 (pCi/kg Luft) ^a	$2,25 \pm 0,25$	$0,36 \pm 0,03$	$3,75 \pm 0,35$	$0,30 \pm 0,03$	$0,58 \pm 0,05$	$1,51 \pm 0,15$

Isotop

Np-239

U-237

Mo-99

Te-132

Xe-133

I-131

Nd-147

Ba-140

Ce-141

Ru-103

Zr-95

 Ce-144^c $5,43 \pm 0,80$

 Rh-106^c $8,53 \pm 1,0$

 Eu-155^c $32,6 \pm 4,5$

 Sb-125^c $199, \pm 15,$

 Cs-137^{c,d} $436, \pm 35,$
 $110, \pm 10,$
 $831, \pm 70,$
 $378, \pm 30,$
 $187, \pm 15,$
 $16,3 \pm 1,5$
 $68,9 \pm 10,$
 $331, \pm 25,$

Tabelle 1 (Fortsetzung)

Filter Nr.	HF-7313	HF-7314	HF-7315	HF-7316	HF-7317	HF-7318
Sammeldatum	2.7.73	6.7.73	10.7.73	11.7.73	13.7.73	16.7.73
Flughöhe (m)	12 000	13 500	11 500	12 000	11 200	12 500
Höhe Tropo- pause (m)	11 500	11 500	11 200	11 800	10 900	12 500
Analysierte Luftmenge (kg)	1 770	1 350	1 250	1 780	1 490	1 750
Akt. Be-7 (pCi/kg Luft) ^a	1,92 ± 0,20	4,15 ± 0,35	2,32 ± 0,25	2,08 ± 0,20	0,56 ± 0,06	1,26 ± 0,10

Isotop

Np-239 ^b			2,32 ± 0,25	0,71 ± 0,07	1,79 ± 0,20	10,4 ± 1,0
U-237 ^b			1,40 ± 0,10	0,48 ± 0,04	0,83 ± 0,08	5,89 ± 0,55
Mo-99			6,72 ± 0,65	2,42 ± 0,20	4,11 ± 0,40	30,7 ± 3,0
Te-132			7,68 ± 0,95	2,57 ± 0,35	4,85 ± 0,60	33,6 ± 4,5
Xe-133			< 0,25	< 0,10	< 0,15	0,80 ± 0,10
I-131			9,12 ± 0,70	3,29 ± 0,30	3,03 ± 0,25	23,3 ± 1,5
Nd-147			8,56 ± 1,0	2,48 ± 0,35	4,63 ± 0,55	34,4 ± 4,0
Ba-140			8,08 ± 0,55	2,60 ± 0,15	4,73 ± 0,25	34,0 ± 1,5
Ce-141			7,36 ± 0,70	2,78 ± 0,30	5,23 ± 0,55	35,9 ± 3,5
Ru-103			8,32 ± 0,55	3,12 ± 0,20	5,54 ± 0,35	37,0 ± 2,5
Zr-95			7,20 ± 0,65	2,54 ± 0,15	4,47 ± 0,25	35,3 ± 1,5
Ce-144 ^c		108, ± 10,	15,0 ± 1,5	18,5 ± 1,5	16,6 ± 2,0	46,7 ± 4,5
Rh-106 ^c				24,7 ± 4,5		40, ± 10,
Eu-155 ^c						
Sb-125 ^c						
Cs-137 ^{c,d}	256, ± 25,	505, ± 35,	296, ± 30,	247, ± 20,	181, ± 25,	100, ± 9,

Filter Nr.	HF-7319	HF-7320	HF-7321	HF-7322	HF-7323	HF-7324
Sammeldatum	23.7.73	30.7.73	13.8.73	3.9.73	20.9.73	1.10.73
Flughöhe (m)	11 000	12 200	13 000	11 300	12 000	10 800
Höhe Tropo- pause (m)	10 600	11 200	12 700	12 000	11 300	9 800
Analysierte Luftmenge (kg)	1 600	1 870	1 860	2 300	1 820	1 950
Akt. Be-7 (pCi/kg Luft) ^a	3,06 ± 0,30	5,72 ± 0,50	3,71 ± 0,30	0,78 ± 0,09	0,74 ± 0,07	3,69 ± 0,30

Isotop

Np-239						
U-237 ^b	0,25 ± 0,02	0,75 ± 0,05	8,60 ± 0,55			
Mo-99						
Te-132						
Xe-133						
I-131	0,95 ± 0,09	5,6 ± 0,5	24,7 ± 2,0			
Nd-147		2,99 ± 0,45				
Ba-140	1,37 ± 0,10	3,74 ± 0,60	53,8 ± 8,0			
Ce-141	1,37 ± 0,10	3,96 ± 0,35	42,5 ± 4,5	6,09 ± 0,65		57,4 ± 5,5
Ru-103	1,62 ± 0,10	4,92 ± 0,45	54,8 ± 4,5	6,17 ± 0,45	5,77 ± 0,45	71,8 ± 5,0
Zr-95	0,87 ± 0,06	3,58 ± 0,30	42,5 ± 4,5	5,83 ± 0,45	3,35 ± 0,25	62,6 ± 4,0
Ce-144 ^c	17,2 ± 2,0	48,1 ± 5,0	80,6 ± 8,0			71,8 ± 7,5
Rh-106 ^c	22,3 ± 3,0	76,5 ± 8,0	80,6 ± 10,			
Eu-155 ^c						
Sb-125 ^c	66,2 ± 9,5	123, ± 15,				
Cs-137 ^{c,d}	372, ± 30,	528, ± 45,	441, ± 40,	80,0 ± 8,5	277, ± 20,	179, ± 15,

^a Zur Zeit der Sammlung.^b Anzahl Kerne pro kg Luft, bezogen auf 27.6.73.^c Anteile von früheren Explosionen inbegriffen.^d 10⁹ Spaltungen von U-238 erzeugen zur Zeit der Explosion 1,1 pCi Cs-137 (Halbwertszeit 30 Jahre).

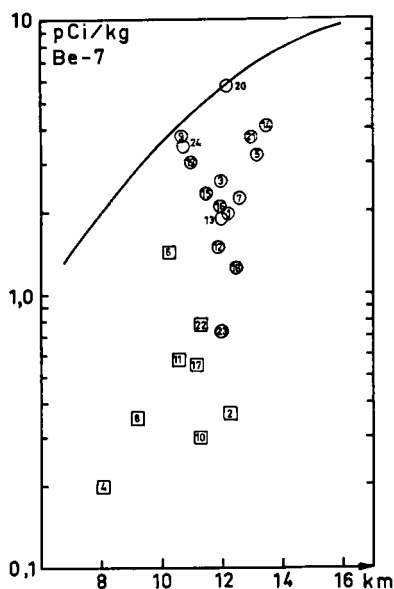


Fig. 1. Aktivitätskonzentration von Be-7 in Funktion der absoluten Flughöhe. ○, oberhalb der Tropopause; □, unterhalb der Tropopause; —, berechnete Konzentration auf Grund der Produktionsrate. Die Nummern beziehen sich auf die einzelnen Proben (z. B. HF.7315 → 15).

kanal geeicht; er liegt bei Flügen in der Nähe der Tropopause in der Grössenordnung 1 kg/s und ist hauptsächlich von der Luftdichte und der Fluggeschwindigkeit abhängig. Die totale Luftmenge kann auf $\pm 5\%$ angegeben werden.

Zur Probenahme wurde im Jahr 1973 in der ersten Woche jedes Monats eine Probe 500 m oberhalb der Tropopause, je in der dritten Woche eine Probe 500 m unterhalb der Tropopause angefordert. Die Höhe der Tropopause wird an der Aerologischen Station Payerne routinemässig um 00.00 h und um 12.00 MEZ gemessen. Der Pilot flog meistens in den späten Morgenstunden, richtete seine Flughöhe jedoch nach den Tropopausenwerten von 00.00 h, welche ihm von der Aerologischen Station mitgeteilt wurden. Die in Tabelle 1 angegebenen Werte der Tropopause wurden am Ende der Messerie von der Aerologischen Station auf Grund von je zwei Tropopausenwerten um 00.00 h und 12.00 h des entsprechenden Flugtages interpoliert. Die Unsicherheit dieser Werte liegt bei ca. ± 200 m, variiert jedoch je nach Ausprägung der Änderung des Temperaturgradienten. Die Genauigkeit der Messung

der absoluten Flughöhe wird ebenfalls auf ± 200 m geschätzt.

Im Juli wurden zur besseren Erfassung der jungen Spaltfragmente der chinesischen Testexplosion vom 27.6.73/04.00 MEZ in Sinkiang fünf zusätzliche Flüge eingeschoben. Die restlichen fünf projektierten Flüge am Ende des Jahres konnten nicht mehr durchgeführt werden. Wir verfügten daher im Zeitraum vom 8.1.73–1.10.73 über 24 Proben; ihre Sammeldaten sind zusammen mit den Analysenergebnissen in der Tabelle 1 zusammengestellt.

3. Gammaskpektrometrische Analyse

Zur Gammaanalyse wurden die Filterstücke nach ihrer Ankunft im Labor gefaltet (8 Filterschichten) und auf einem Hohlzylinder aus Aluminium satt aufgewickelt, welcher koaxial über den verwendeten Ge (Li) Detektor gestülpt wird. Die Eichung dieser geometrischen Anordnung wurde mit Eichlösungen von Na-22 und Bi-207 durchgeführt. Sie wurden auf einem entsprechenden Filterstück über einer Mylarfolie tropfenweise mit einer Spritze in einem Punktgitter von 2 cm Maschenweite aufgebracht und die Lösungsmenge ermittelt. Zur Prüfung dieser Eichmethode wurden aus denselben Lösungen durch Eindampfen einer bekannten Menge je zwei Quellen von 30 mm Durchmesser hergestellt (Standardgeometrie), welche in 10 cm Entfernung vom Detektor gemessen wurden. Die Standardanordnung wurde ihrerseits mit Gamma-Eich-Quellen der Genauigkeit besser als $\pm 2\%$ geeicht. Die Prüfung ergab für beide Isotope eine Übereinstimmung der Eichwerte in den Grenzen $\pm 5\%$. Das verwendete Gammaskpektrometer und die Programme zur Auswertung der Spektren wurden in den früheren Arbeiten (Winiger et al., 1970 und 1971) ausführlich beschrieben.

4. Resultate der Gamma-Analysen

In Tabelle 1 sind die Resultate der 24 Gammaanalysen und die Sammeldaten der entsprechenden Proben zusammengefasst: In allen Filtern konnte das Be-7 leicht nachgewiesen werden; die gemessene Aktivität dieses Nuklids wurde auf den Zeitpunkt der Sammlung korrigiert.

Die Aktivität der Spaltfragmente in den Filtern HF-7301 bis HF-7314 wurde auf das Datum der letzten chinesischen Testexplosion vom 18.3.72 bezogen. Eine ausführliche Diskussion der jungen Spaltfragmentgemische dieser Explosion ist im Bericht von Huber et al. (1973) enthalten; das Gemisch ist in zeitinvarianter Form dargestellt als die Anzahl gespaltener U-238 Kerne (mit 14 MeV Neutronen), die zur Erreichung der gemessenen Nuklidaktivitäten notwendig sind. Als Spaltausbeuten wurden diejenigen von Meek & Rider (1968) benützt.

Im Filter HF-7301 stammen z. B. die Spaltfragmente pro kg Luft von $(33 \pm 4) \times 10^5$ U-238-Spaltungen (siehe mittellebige Nuklide Ce-141, Ru-103 und Zr-95) von dieser Explosion; von den längerlebigen Nukliden Ce-144, Rh-106, Eu-155 und Sb-125 stammt mindestens ebensoviel von früheren Explosionen; bei Cs-137 beträgt der Anteil von noch weiter zurückliegenden Explosionen sogar fast das Zehnfache.

Im Filter HF-7315 findet man erstmals kurzlebige Spaltfragmente der chinesischen Testexplosion vom 27.6.73/04.00 MEZ. Diese und alle folgenden Analysen wurden auf dieses Datum bezogen. In den Filtern HF-7315 bis HF-7320 sind — ausser jenen von Cs-137 — auch Beiträge von Ce-144, Rh-106 und Sb-125 aus früheren Explosionen klar erkennbar.

Die gemessenen Aktivitäten von Np-239 und U-237 wurden auf die Anzahl Kerne dieser Nuklide im Filter umgerechnet und auf das Entstehungsdatum bezogen. Marginalien zur Analyse der jungen Spaltfragmentgemische nach der Testexplosion vom 27.6.73 sind im Anhang angefügt.

5. Die Konzentration von Be-7 an der Tropopause

In Figur 1 ist die Konzentration von Be-7 der 24 Proben in Funktion der absoluten Flughöhe aufgetragen. In der Darstellung wird zwischen Proben unterhalb und oberhalb der Tropopause unterschieden; die Nummern beziehen sich auf die entsprechenden Proben (z. B. HF-7315 → 15). Die eingezeichnete Kurve (pCi Be-7/kg Luft) basiert auf einer Berechnung der mittleren Be-7 Produktionsrate P während eines typischen Sonnenzyklus bei 47° N geographischer Breite in Funktion der Höhe über Meer (Lal & Suess, 1968). Sie gäbe auch die experimentelle Kon-

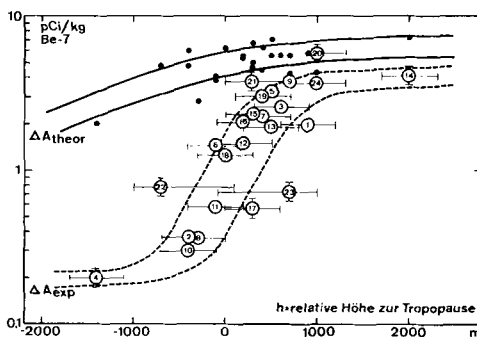


Fig. 2. Aktivitätskonzentration von Be-7 in Funktion der relativen Flughöhe h zur Tropopause: O, Messwerte (Band ΔA_{exp}); ●, pro Messwert berechnete Konzentration auf Grund der Produktionsrate (Band ΔA_{theor}). Die Nummern beziehen sich auf die einzelnen Proben (z. B. HF-7315 → 15).

zentration wieder, wenn die Träger der Be-7 Kerne an Ort und Stelle verharren würden. Die Figur 1 zeigt einerseits, dass in einer Höhe von ca. 12 km nur einzelne Messwerte diese Kurve erreichen; andererseits sind auf derselben Höhe Werte möglich, die um einen Faktor 20 tiefer liegen. Sie zeigt eindrücklich, dass die tiefen Werte von Proben unterhalb der Tropopause stammen.

Figur 2 zeigt dieselben Konzentrationen von Be-7 in Funktion ihrer relativen Höhe zur Tropopause. Die meisten Messwerte liegen innerhalb eines Fehlerbandes ΔA_{exp} , welches sich aus den Fehlern der Be-7 Konzentrationmessung, der Flughöhenablesung und der Tropopausenbestimmung ergibt. Diese Darstellung macht die Wirkung der Tropopause als Trennschicht zwischen der Stratosphäre und der Troposphäre quantitativ erfassbar. Im Bereich von -500 m bis 500 m relativ zur Tropopause ändert die Be-7 Konzentration um eine Grössenordnung.

Die Messwerte einiger Proben (z. B. HF-7322 und HF-7323) liegen ausserhalb des angegebenen Fehlerbandes ΔA_{exp} ; in diesen Fällen wurde eine genauere Prüfung des Temperaturverlaufs an der Tropopause vorgenommen:

Im Fall der Probe HF-7323 erkennt man um 00.00 h des entsprechenden Tages bei 12 100 m eine relativ schwache Ausprägung der Tropopause. Der entsprechende Temperaturgradient blieb gemäss der Messung um 12.00 h bis zur Probenahme erhalten, obwohl sich inzwischen ca. 800 m tiefer eine neue, bedeutend stärkere Änderung des Temperaturgradienten einge-

stellt hatte, welche gemäss Definition als Tropopause bezeichnet werden muss und deshalb in der offiziellen Angabe figuriert. Die Änderung des Temperaturgradienten bei 12 100 m kann in diesem Fall bezüglich der Probenahme als „Tropopause“ gewirkt haben. Im Fall der Probe HF-7322 besteht um 00.00 h des entsprechenden Tages bei 11 800 m eine gut definierte Tropopause; zwölf Stunden später ist sie bei wesentlich schwächerer Ausprägung 200 m höher, hingegen weist die Temperaturkurve bereits bei 11 200 m, wo auch die Probe genommen wurde, eine erste schwächere Abnahme des Temperaturgradienten auf; d. h., diese kann bezüglich der genommenen Proben die Rolle der Tropopause gespielt haben. Die massgeblichen Tropopausenwerte für diese beiden Fälle können also von den benützten Tropopausenwerten (gemäss Definition) infolge der Existenz und der Lage von „Nebentropopausen“ um -800 und $+800$ m abweichen; beide Punkte sind in den Figuren 2 bis 5 mit entsprechend grossen Fehlerangaben eingezeichnet.

Aus den Figuren 1 und 2 kann ferner auf die Verweildauer der Trägersaerosole von Be-7 an der Tropopause geschlossen werden: zu jedem Messpunkt aus Figur 1 wurde die entsprechende (d. h., auf gleiche Höhe bezogene), berechnete Konzentration auf Grund der Produktionsrate (kein Verlust von Be-7 durch andere Effekte als den radioaktiven Zerfall, insbesondere durch Diffusion, Konvektion und Sedimentation) in die Figur 2 übertragen (Band ΔA_{theor}). Für die Aktivitätskonzentrationen in den beiden Bändern gelten dann die folgenden Gleichgewichtsbedingungen:

$$\text{Band } \Delta A_{\text{theor}}: \quad P - \lambda_{\text{phys}} \cdot N_{\text{theor}} = 0$$

$$\text{Band } \Delta A_{\text{exp}}: \quad P - \lambda_{\text{eff}} \cdot N_{\text{exp}} = 0$$

Darin bedeutet P die Produktionsrate von Be-7 pro Masseneinheit, N_{theor} und N_{exp} die „theoretische“, bzw. experimentelle Konzentration von Be-7 Kernen auf der Höhe der Probenahme, λ_{phys} und λ_{eff} die physikalische, bzw. die effektive Zerfallskonstante von Be-7 in jener Luftschicht. Mit der Gleichung $\lambda_{\text{eff}} = \lambda_{\text{phys}} + \lambda_{\text{met}}$ ist die lokale meteorologische „Zerfallskonstante“ λ_{met} (infolge Diffusion, Konvektion und Sedimentation) definiert; $T_{\text{met}} = \ln 2 / \lambda_{\text{met}}$ ist die lokale meteorologische Halbwertszeit. Da der Quotient der theoretischen zur experimentellen Aktivitätskonzentration (A_{theor} , bzw. A_{exp})

gleich ist dem entsprechenden Quotienten der Anzahl Be-7 Kerne ($A_{\text{theor}}/A_{\text{exp}} = N_{\text{theor}}/N_{\text{exp}}$) gilt die Beziehung:

$$T_{\text{met}} = T_{\text{phys}} / (A_{\text{theor}}/A_{\text{exp}} - 1)$$

Das Verhältnis $A_{\text{theor}}/A_{\text{exp}}$ kann aus der Figur 2 entnommen werden; ein Wert von ca 1,6 führt auf eine lokale meteorologische Halbwertszeit der Trägersaerosole von Be-7, 2 000 m oberhalb der Tropopause von ca 90 Tagen. Unterhalb der Tropopause kann der entsprechende Wert mit ca 4 Tagen angegeben werden. Das Resultat für diesen Bereich soll mit weiterem experimentellen Material gestützt werden.

6. Die Konzentration von Cs-137 und ihr Verhältnis zu jener von Be-7

In Figur 3 wird die Konzentration von Cs-137 in Funktion ihrer relativen Höhe h zur Tropopause gezeigt. Der Konzentrationsverlauf gleicht in der Form etwa jenem von Be-7, der Konzentrationsgradient erscheint aber weniger ausgeprägt. Beim Cs-137 stellt man eine Anhäufung der Messwerte um einen konstanten Wert fest; über 80% der Werte von Cs-137 liegen zwischen 0,02 und 0,07 pCi/kg Luft.

Zur Erhellung des Sachverhalts wurde in Figur 4 der Quotient der Aktivitätskonzentrationen von Be-7 zu Cs-137 in Funktion der relativen Höhe zur Tropopause aufgetragen. Er zeigt eine auffallende „Stratifikation“ der Werte: acht Quotienten des ersten Halbjahres liegen bei 46 ± 6 und vier weitere (HF-7304/08/10/11) mit hohem Cs-137-Gehalt darunter; acht Quotienten des zweiten Halbjahres liegen bei 80 ± 20 und zwei weitere (HF-7318/24) mit geringerem Cs-137-Gehalt darüber.

Im ersten Halbjahr, während welchem kräftige stratosphärische Luftinjektionen in die Troposphäre stattfinden (Frühlingsaustausch), ist die relative Cs-137-Konzentration an der Tropopause etwa um 60% höher als im zweiten Halbjahr. Die Proben HF-7317 und HF-7323 zeigen Ausnahmecharakter mit einem für diese Jahreszeit zu kleinen Be-7/Cs-137 Verhältnis.

Wenn der Konzentrationsverlauf von Be-7 und Cs-137 an der Tropopause (Figuren 2 und 3) gleich wäre, so würde man als Quotienten (Be-7/Cs-137) einen *konstanten* Wert erwarten; dies trifft sowohl im Frühjahr als auch im

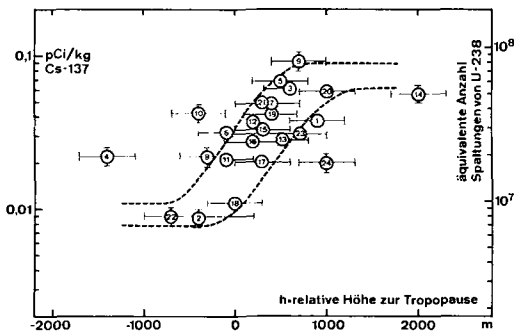


Fig. 3. Aktivitätskonzentration von Cs-137 in Funktion der relativen Flughöhe h zur Tropopause. Die Nummern beziehen sich auf die einzelnen Proben (z. B. HF-7315 $\rightarrow$ 15).

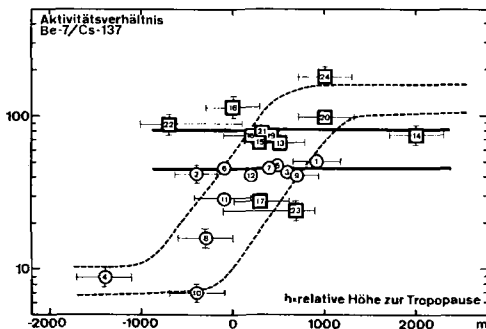


Fig. 4. Konzentrationsverhältnis der Aktivität von Be-7 zu Cs-137 in Funktion der relativen Flughöhe h zur Tropopause: $\circ$, Messwerte erste Jahreshälfte; $\square$, Messwerte zweite Jahreshälfte. Die Nummern beziehen sich auf die einzelnen Proben (z. B. HF-7315 $\rightarrow$ 15).

Herbst mehr oder weniger zu und wird als „Stratifikation“ dieses Quotienten festgestellt. Wäre hingegen der Konzentrationsverlauf von Cs-137 bedeutend flacher als jener von Be-7 (d. h., beinahe konstant), so müsste der Verlauf des Quotienten (Be-7/Cs-137) dem Konzentrationsverlauf von Be-7 weitgehend entsprechen; auch dies trifft, wie Figur 4 zeigt, in etwa zu. Dies bedeutet, dass die Konzentrationsverteilung von Cs-137 wesentlich gleichmässiger ist als jene von Be-7; man kann daraus schliessen, dass ihre Trägersaerosole verschieden sind.

7. Die Konzentration junger Spaltfragmente an der Tropopause

Die Konzentration junger Spaltfragmente der chinesischen Testexplosion vom 27.6.73 ist in

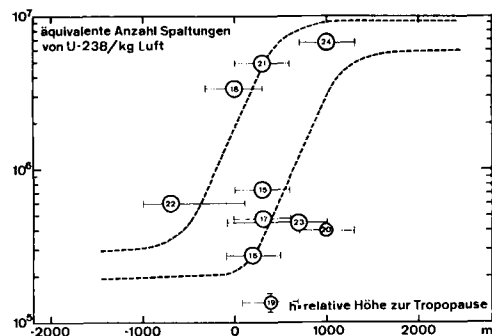


Fig. 5. Konzentration junger Spaltfragmente (äquivalente Anzahl Spaltungen von U-238 pro kg Luft) in Funktion der relativen Flughöhe h zur Tropopause. Die Nummern beziehen sich auf die einzelnen Proben (z. B. HF-7315 $\rightarrow$ 15).

Figur 5 in Funktion ihrer relativen Höhe h zur Tropopause zeitinvariant dargestellt als Anzahl Spaltungen von U-238, welche zu den Aktivitäten der einzelnen Spalt nuklide einer Probe führten. Die eingetragenen Messpunkte jeder Probe stellen Mittelwerte von Mo-99, Te-132, Nd-147, Ba-140, Ce-141, Ru-103 und Zr-95 gemäss Tabelle 1 dar. Der Konzentrationsverlauf der jungen Spaltfragmente an der Tropopause muss auf die 10 Proben HF-7315 bis HF-7324 abgestützt werden; die geringe Konzentration junger Spaltfragmente (bezogen auf die Flughöhe) in den Proben HF-7319 und HF-7320, welche ca. 1 Monat nach der Explosion gesammelt wurden, zeigt deutlich die noch ungleichförmige Verteilung des Spaltfragmentschwadens längs des 47. Breitengrades Nord.

In den zwei Proben HF-7322 und HF-7323 kann der Wert der relativen Höhe h zur Tropopause gemäss Diskussion in Kapitel 5 infolge von „Nebentropopausen“ in Richtung $h = 0$ verschoben sein. In beiden Proben sowie in HF-7317 stellt man fast die gleiche Konzentration sowohl bei Be-7 wie bei jungen Spaltfragmenten fest. Dies lässt vermuten, dass die drei Proben effektiv bei $h = 0$ gesammelt wurden und stützt gleichzeitig die Annahme von „Nebentropopausen“.

Soweit diese Messwerte junger Spaltfragmente unter Berücksichtigung der entsprechenden Resultate des Be-7 und Cs-137-Gehaltes eine Deutung zulassen, kann gesagt werden, dass der Konzentrationsverlauf der Aerosole des Spaltfragmentschwadens an der Tropopause einem ähnlichen Trend folgt wie beim Be-7.

Die Messwerte deuten darauf hin, dass der Konzentrationsgradient noch steiler sein könnte als beim Be-7; d. h., für die entsprechenden Aerosole des Spaltfragmentschwadens wäre die Tropopause ein wirksamerer Separator als für jene von Be-7.

Mittellebige Spaltnuklide (Ce-141, Ru-103, Zr-95 und Ce-144, etc.) der chinesischen Testexplosion vom 18.3.72 konnten nach fast einem Jahr oberhalb der Tropopause noch in den Proben HF-7301, HF-7303 und HF-7305 nachgewiesen werden, während dies in den Proben unterhalb der Tropopause (HF-7302, HF-7304, HF-7306 und HF-7308) nicht möglich war. Diese qualitative Aussage kann aber nicht weiter quantifiziert werden.

Den Herren P. Ackermann † und Dr J. Rieker von der Aerologischen Station Payerne danken wir für die kritische Beurteilung der meteorologischen Probleme im Zusammenhang mit der Tropopause und für wertvolle Diskussionen. Herrn Mathis, Payerne, danken wir für die regelmässige Durchführung der Flüge.

Anhang. Marginalien zur Analyse junger Spaltfragmentgemische nach der Testexplosion vom 27.6.1973

Proben junger Spaltfragmente konnten ab Juli 1973 mit einer Ge(Li)-Koaxialdiode ana-

lysiert werden (siehe Tabelle 1). Das Verhältnis der Anzahl Kerne von U-237 zur Anzahl U-238-Spaltungen aus der Explosion vom 27.6.73 beträgt in den Proben HF-7315 bis HF-7321 $0,18 \pm 0,02$; dieser Wert ist typisch für die Spaltung von U-238 mit schnellen Neutronen, welche in der Fusionsphase einer Dreiphasenbombe (Winiger et al., 1970) entstehen. Das gemessene Verhältnis der Anzahl Kerne von Np-239 zur entsprechenden Anzahl Spaltungen liegt mit 0,3 ebenfalls bei den Erfahrungswerten für diesen Bombentyp. Unter Bezug auf U-238 als Spaltmaterial wiesen unsere Gemische keine wesentlichen Fraktionierungen der Spaltfragmente auf; Ausnahmen bilden das Edelgas Xe-133, welches nur in der starken Probe HF-7318 quantitativ bestimmt werden konnte und I-131, welches in den ersten Proben (HF-7315 und HF-7316) bis zu 20 % angereichert ist, in den späteren Proben jedoch um mindestens 30 % diskriminiert erscheint. In den Filtern HF-7319, HF-7320 und HF-7321 kann ferner eine gewisse Diskriminierung (bis 40 %) von Zr-95 gegenüber Ru-103 festgestellt werden.

In sehr aktiven Flugfilterproben aus einem andern Sammelprogramm konnten im Dezember 1973 im Spaltfragmentgemisch dieser Explosion ferner 4 Kerne Mn-54 pro 1000 Spaltungen von U-238 nachgewiesen werden.

REFERENZEN

- Huber, O., Halter, J. & Winiger, P. 1973. 16. Bericht der Eidg. Kommission zur Überwachung der Radioaktivität für das Jahr 1972 zuhanden des Bundesrates. Sonderdruck aus der Beilage B, Nr. 3/1973 zum *Bulletin des Eidg. Gesundheitsamtes* vom 22.9.1973.
- Lal, D. & Suess, H. E. 1968. *Ann. Rev. Nucl. Science* 18, 415, 1968.
- Meek, M. E. & Rider, B. F. 1968. Summary of fission product yields for U-235, U-238, Pu-239 and Pu-241 at thermal, fission spectrum and 14 MeV neutron energies. General Electric, Pleasanton, California, APED-5398-A.
- Winiger, P., Huber, O. & Halter, J. 1970. *Helv. Phys. Acta* 43, 693-712.
- Winiger, P., Huber, O. & Halter, J. 1971. *Rapid methods for measuring radioactivity in the environment*, p. 319-337. IAEA, Wien.

ИЗМЕРЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ КОРОТКОПЕРИОДНЫХ ПРОДУКТОВ РАСПАДА ВБЛИЗИ ТРОПОПАУЗЫ

С помощью гамма-спектрометрии измерялись концентрации Be-7, Cs-137 и короткоживущих продуктов распада, собранных 24 воздушными фильтрами, установленными на самолете, в течение 1973 г. в интервале высот ± 2000 м от высоты тропопазы H . Найдено, что максимальные вариации концентрации, достигающие 10 раз, происходят в слое $H \pm 500$ м. Из хорошо известного способа

продукции Be-7 в зависимости от высоты можно определить локальную метеорологическую величину времени половины жизни $T_{\text{мет}}$ аэрозолей, несущих этот изотоп. Она достигает приблизительно 90 дней на уровне 2000 м выше тропопазы и 4 дней на уровне 1000 м ниже ее.