Kann metallisches Uran oder Uran-Munition Radongas exhalieren?

Bernd Laquai, 23.11.2024

Am 2.11.2024 wurde bekannt, dass in Ulm das Amt für Vermögen und Bau des Landes Baden-Württemberg am unteren Eselsberg in kürzester Zeit evakuiert worden war, da eine Radon-Gefahr für die Mitarbeiter bestand. Man hatte in den Arbeitsräumen eine bis zu 5-fach höhere Radon Aktivitätskonzentration gegenüber dem Richtwert von 300Bq/m³ gemessen. In einer Mitteilung in den Medien heißt es: "Eine Erklärung für die Schadstoffbelastungen im Amt für Vermögen und Bau ist mittlerweile gefunden. Das Gebäude steht auf einem Grundstück, auf dem es in der Nachkriegszeit eine Mülldeponie gab. Unter dem Haus könnte außerdem auch uranhaltige Munition der Amerikaner liegen". Die Bemerkung, dass unter dem Haus auch Uranmunition der Amerikaner liegen könnte, ist allerdings als Erklärung für hohe Radonwerte im Haus absolut ungeeignet. Warum, das wird hier im Folgenden erklärt.

Uranmunition wird seit etwa 1970 eingesetzt und von den Militärs verschiedenster Länder bevorratet. Die USA setzten in der Vergangenheit die Munition vor allem im Irakkrieg (ab 2003) und im Jugoslawienkrieg anfangs der Neunziger Jahre ein. Uranmunition besteht aus metallischem Uran, um eine höhere Durchschlagskraft zu erreichen, da metallisches Uran eine sehr hohe Dichte hat. Für die Herstellung wird abgereichertes Uran verwendet. Das abgereicherte Uran fällt bei der Herstellung von Atomwaffen oder auch für die Herstellung von Kernbrennstoffen in Kernkraftwerken, die auf der Spaltung des Uran-235 basieren, in großen Mengen als Abfallstoff an. Natürliches Uran enthält zu großen Anteilen das Uran Isotop Uran-238 und nur zu geringen Teilen (0.72%) das spaltbare Uran Isotop Uran-235. Deswegen versucht man mit Massen-Zentrifugen das natürliche Uran-Isotopengemisch wiederholt in einen Anteil Uran mit mehr und in einen Anteil mit weniger Uran 235 zu trennen. Auf diese Weise erhält man nach etlichen hintereinandergeschalteten Trennungen angereichertes Uran mit teilweise mehr als 20% Uran-235 für die Herstellung von Atomwaffen. Für den Kernbrennstoff für die Kernkraftwerke reicht ein Anreicherungsgrad von 3-5%, daher ist hier keine so aufwändige Trennung nötig. Aber selbst bei diesem niedrigeren Anreicherungsgrad entstehen immer noch je Tonne angereichertem Kernbrennstoff etwa 5,5 Tonnen abgereichertes Uran (depleted uranium, DU) mit einem Uran-235-Gehalt von ca. 0,2 % als Abfall. Es kann aber unter anderem noch für die Herstellung von Uranmunition verwendet werden. Die Radioaktivität und Spaltbarkeit spielen bei der Uranmunition keine Rolle, sondern nur die hohe physikalische Dichte. Vor der Massentrennung mit Zentrifugen extrahiert man das Uran aus dem Uranerz mit Laugen oder Säuren und überführt es in eine hochreine chemische Verbindung Uranhexafluorid, das wegen des niedrigen Siedepunkts von 56°C zur Isotopentrennung geeignet ist. Für die Herstellung von abgereichertem Uranmetall muss das reine, metallische Uran aus dem Uranhexafluorid wieder über chemische Schritte extrahiert werden. Wird es aus abgereichertem Uranhexafluorid hergestellt, dann besteht es weitestgehend aus Uran-238 (typ. Uran-235-Gehalt 0.2%)

Das im abgereicherten metallischen Uran vorwiegend enthaltene Uran-238 ist radioaktiv und zerfällt über eine lange und teilweise verzweigte Zerfallsreihe (Uran-Radium-Reihe), die verschiedene Radionuklide enthält. An letzter Stelle der Zerfallsreihe steht das stabile Blei-Isotop Blei-206. Dabei hat das Uran-238 selbst eine sehr hohe Halbwertszeit von 4.5 Mrd. Jahre. Das ist in der Größenordnung des Erdalters. Das ist auch der Grund, warum das natürliche Uran heute noch radioaktiv ist. Die anderen instabilen Elemente, die bei der Erdentstehung radioaktiv waren, hatten viel kürzere Halbwertszeiten und sind daher längst zerfallen. Durch den Zerfall des Urans

entlang der Zerfallsreihe entstehen nun aber wieder neue instabile Radionuklide, die für sich wieder radioaktiv sind und mit ihrer eigenen Halbwertszeit zerfallen.

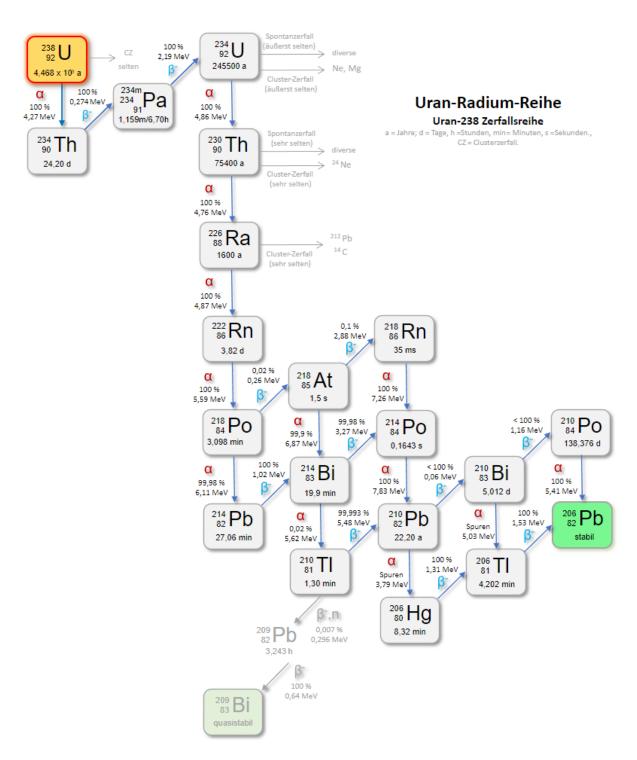


Abb. 1: Uran-Radiumreihe Quelle: Internetchemie (https://www.internetchemie.info/)

An fünfter Position der Zerfallsreihe steht das von Marie Curie entdeckte Radium-226. Die 4 Radionuklide zwischen Uran-238 und Radium-226 haben im Gegensatz zum Uran-238 mit einer Halbwertszeit von 4.5Mrd. Jahren eine deutlich kürzere Halbwertszeit. Uran-234 liegt bei 245500 Jahren, Thorium-230 bei 75400 Jahren, Radium liegt bei 1600 Jahren und Polonium-210 liegt bei

22 Jahren. Die übrigen Radionuklide in der Zerfallsreihe liegen mit ihrer Halbwertszeit unter einem Jahr.

Nun ist die Frage, wenn jetzt U-238 in metallischer und chemisch reiner Form vorliegt, so wie man das von den Uranmunition annehmen kann, wie lange dauert es dann bis durch den Zerfall des Uran-238 in entlang der Zerfallsreihe Radon in nennenswerter Aktivität entsteht? Um diese Frage zu beantworten, muss man sich mit den mathematischen Gesetzmäßigkeiten des radioaktiven Zerfalls befassen und berücksichtigen wie die Zerfallsgleichungen, die das Geschehen beschreiben, ineinander verkettet sind (siehe Bateman-Funktion z.B. Wikipedia). Gelöst werden solche Gleichungssysteme auf Grund ihrer Komplexität aber typischerweise mit Computersimulationen. Dies soll hier nur grob vorgestellt werden.

Wenn ein Radionuklid radioaktiv zerfällt, dann ist die Zerfallsaktivität durch die für dieses Nuklid charakteristische Halbwertszeit in charakteristischer Weise beschrieben. Sie gibt an, nach welcher Zeit eine Menge der radioaktiven Atome auf die Hälfte abgenommen hat und bestimmt damit auch die Zerfallsrate. Die Aktivität nimmt dabei proportional zur Menge der noch vorhandenen Atome des Radionuklids ab. Entsteht nun beim Zerfall eines Radionuklids in einer Zerfallskette durch einen Zerfall wieder ein neues Radionuklid (Tochternuklid), dann kann sich unter bestimmten Umständen dessen Menge und damit die Aktivität des Tochternuklids langsam aufbauen und der Aktivität des Mutternuklids überlagern. Dabei erfolgt jetzt der Aufbau der Zerfallsaktivität des Tochternuklids mit der Halbwertszeit des Tochternuklids. Dieser Aufbau dauert aber nur so lange, bis die Aktivität des Tochternuklids die Aktivität des Mutternuklids erreicht hat. Danach folgt die Aktivität des Tochternuklids der des Mutternuklids und man spricht von einem säkularen radioaktiven Gleichgewicht der beiden Radionuklide. Damit sich ein solches säkulares Gleichgewicht einstellt, muss aber die Bedingung erfüllt sein, dass die Halbwertszeit des Tochternuklids kürzer ist als die des Mutternuklids. Wenn die Halbwertszeit der Tochter größer ist als die des Mutternuklids, wird das Tochternuklid nicht ausreichend schnell nachproduziert, damit sich ein Gleichgewicht einstellen könnte, und zerfällt vor allem, nachdem die Aktivität der Mutter größtenteils abgeklungen ist. Hat ein Tochternuklid eine Halbwertszeit die länger ist als anderes ein Tochternuklid weiter hinten in der Zerfallsreihe, aber kürzer als das Mutternuklid, dann kann sich dennoch ein säkulares Gleichgewicht zwischen dem Uran-238 und den Tochternukliden mit einer Halbwertszeit, die kürzer ist als die des Mutternuklids einstellen. Das kann man im Falle des Uran-238 als Mutternuklid und seinen Tochternuklide in der Uran-Radium-Reihe an den Ergebnissen der Computer-Simulationen erkennen.

Betrachtet man die Aktivität der Tochternuklide relativ zur Aktivität des Urans-238, dann kann man zunächst erkennen, dass sich in der Zeit, bis sich die Aktivität aller der Tochternuklide stabil eingestellt hat, die Aktivität des Uran-238 praktisch nicht ändert, weil seine Halbwertszeit mit 4.5 Mio. Jahren so viel länger ist als alle Halbwertszeiten der Tochternuklide. An der zweiten Position der Zerfallsreihe nach dem Uran-238 kommt das Thorium-234 mit einer Halbwertszeit von 24 Tagen. Das heißt, man kann sagen, dass sich die Aktivität des Thorium-234 entsprechend dem Zerfallsgesetz exponentiell mit dieser Halbwertszeit aufbaut und nach einer Halbwertszeit auf das Doppelte zugenommen hat. Nach etwa sieben Halbwertszeiten, ungefähr einem ½ Jahr, hat sich typischerweise das säkulare Gleichgewicht eingestellt und das Thorium-234 hat dann dieselbe Aktivität wie das Uran-238 erreicht. Da das Protactinium-234 eine Halbwertszeit von 6,7 Tagen hat, also noch kürzer als die des Thorium-234, steht dies relativ schnell mit dem Thorium-234 im Gleichgewicht und folgt somit dem Aktivitätsaufbau des Thorium-234 unmittelbar, so dass dieses ebenfalls nach einem ½ Jahr im Gleichgewicht mit dem Uran-238 steht und dessen Aktivität erreicht hat. In Abb. 2 ist die Aktivität des Uran-238 in blau gezeigt und die relativen Aktivitäten des Thorium-234 in rot und die des Protactinium-234 in gestrichelt grün.

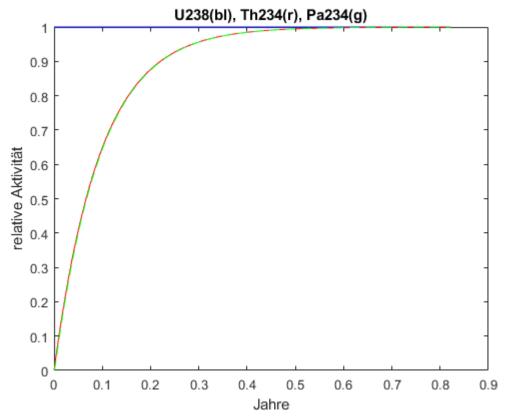


Abb. 2: Relativer Aktivitäts-Aufbau von Th234 und Pa234 aus metallischem U238 über Zeit

Nun folgt das Uran-234 in der Zerfallsreihe, das die längste Halbwertszeit aller Töchter von 245500 Jahren hat, die auch länger ist, als die des Vorgängers Protactinium-234. Daher herrscht zum vorangehenden Tochternuklid kein Gleichgewicht und die Uran-234 Aktivität baut sich mit der Halbwertszeit der Uran-234 auf. Sie erreicht dann aber nach etwa 7 Halbwertszeiten (ca. 1.8Mio. Jahren) die Aktivität des Uran-238 und steht danach im Gleichgewicht mit diesem. Das Thorium-230 mit seiner Halbwertszeit von 75400 Jahren steht nicht ganz im Gleichgewicht mit dem Uran-234, weil es eine nur etwa um den Faktor 3 kleinere Halbwertszeit hat, aber es folgt dann mit leichter Verzögerung doch ganz grob dem Aufbau der Aktivität des Uran-234 und erreicht auch grob nach 1.8 Mio. Jahren ein Gleichgewicht mit Uran-238 und weist dann dessen Aktivität auf. An der nächsten Stelle in der Reihe folgt das Radium-226 mit 1600 Jahren Halbwertszeit, die nun wieder so viel kürzer ist, dass sich sofort ein Gleichgewicht mit dem Thorium-230 einstellt, so dass es diesem im Aktivitätsaufbau unmittelbar folgt.

In Abb. 3 wird die Aktivität des Uran-238 wieder blau gezeigt und die relativen Aktivitäten des Uran-234 in türkis und die des Thorium-230 in magenta. Die Aktivität des Radiums ist schließlich gestrichelt und gelb dargestellt.

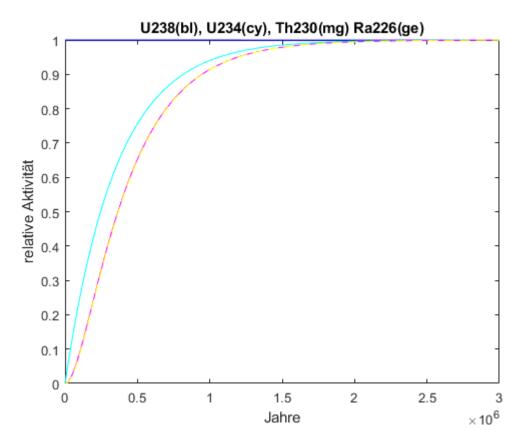


Abb. 3: Relativer Aktivitäts-Aufbau von U234, Th230 und Ra226 aus metallischem U238 über Zeit

Da nun das Radon, mit seinen 3.82 Tagen Halbwertszeit, noch viel schneller zerfällt, folgt es mit dem Aktivitätsaufbau auch dem Thorium-230 und dem Radium-226. Abb. 4 zeigt wieder das Uran-238 in blau, das Uran-234 in türkis und das Thorium-230 in magenta, nur ist jetzt statt des Ra226 das Radon-222 in gestrichelt schwarz gezeigt. Man kann daher erkennen, der Aufbau des Radon-222 folgt also mit leichter Verzögerung auch in etwa dem Aufbau des Uran-234 mit der Halbwertszeit des Uran-234 und erreicht ebenfalls nach etwa 1.8Mio. Jahren die Aktivität des Uran-238, sofern es auf Grund seines gasförmigen Zustands nicht entweichen kann. Im Gegensatz zu porösem, natürlichem Gestein ist aber das metallische Uran weitestgehend gasdicht für Radon, so dass dieses nicht entweichen kann.

Das Radon-222 zerfällt in vergleichbarer Weise weiter entlang der Zerfallsreihe, wobei die Halbwertszeiten der meisten Tochternuklide noch kürzer werden, bis auf die des Blei-210 mit 22 Jahren. Da diese Halbwertszeit aber wieder kürzer ist als die des Uran-234 mit 245500 Jahren, bleibt die Halbwertszeit des Uran-234 die zeitlich bestimmende Größe für alle in der Zerfallsreihe nach dem Uran-234 auftretenden Tochternuklide.

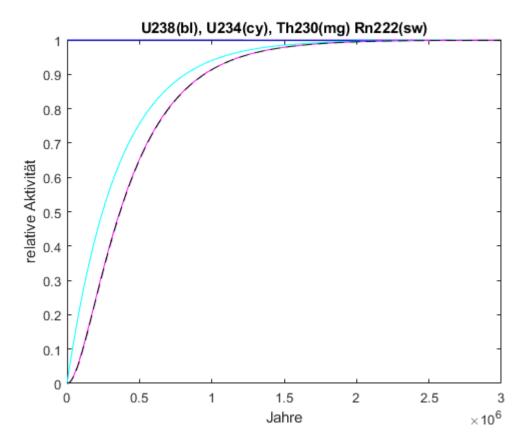


Abb. 4: Relativer Aktivitäts-Aufbau von U234, Th230 und Rn222 aus metallischem U238 über Zeit

Insgesamt kann man also sagen, dass die Tochternuklide Thorium234 und Protactinium-234 nach etwa ½ Jahr die Aktivität des Uran 238 erreicht haben und dann Gleichgewicht sind. Alle übrigen radioaktiven Tochternuklide der Uran-238 Zerfallsreihe, bis einschließlich des Radon-222, erreichen nach etwa 1.8 Mio. Jahren die Aktivität des Uran-238 und stehen erst danach im Gleichgewicht mit dem Uran-238. Unter der Annahme, dass das gasförmige Radon das metallische Uran auf Grund seiner Gasdichtigkeit nicht verlassen kann, gilt das auch für die Töchter des Radon-222. In der Summe ergibts sich durch die Überlagerung der Aktivitäten der einzelnen Töchter des Uran-238 die in Abb. 5 gezeigte Gesamtaktivität.

Wenn nun also Uranmunition nach dem Krieg hergestellt wurde, kann sich nach etwa 80 Jahren noch keine nennenswerte Radon-Aktivität aufgebaut haben, da sich erst das Uran-234 mit einer Halbwertszeit von 245500 Jahren aufbauen muss. Das wird aus der obigen Betrachtung sehr deutlich. Dazu kommt, dass wenn sich nach einigen 1000 Jahren eine Radon-Aktivität im Metall aufbaut, das Metall aber gasdicht ist, dass dann das Radon auch nur von der Oberfläche exhalieren könnte und nicht aus dem Volumen. Daher erscheint es als völlig ausgeschlossen, dass eine Uranmunition, auch wenn sie sich in größeren Mengen auf einer Deponie im Untergrund des Amts für Vermögen und Bau am Mähringer Weg befinden würde, Radon in nennenswerten Mengen freisetzt. Dies kann also nicht der Grund für die hohe Radonkonzentration in den Arbeitsräumen des Amts für Vermögen und Bau sein.

Aktivität von abgereichertem Uran

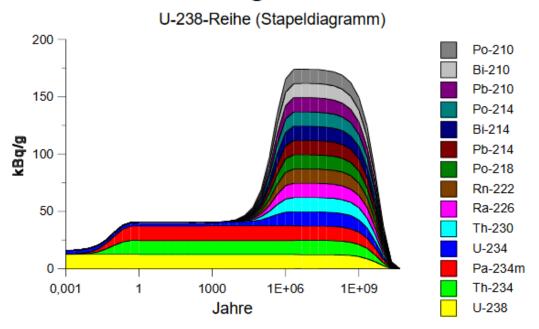


Abb. 5: Verlauf der Gesamtaktivität von abgereichertem, metallischem Uran über Zeit. Quelle Peter Diehl; Abgereichertes Uran - Abfall der Kerntechnik /1/

<u>Literatur</u>

/1/ Peter Diehl; Abgereichertes Uran - Abfall der Kerntechnik; https://www.wise-uranium.org/pdf/duabfall.pdf

/2/ Bernd Laquai; opengeiger.de; Alles im Gleichgewicht – oder etwa nicht? Berechnung und Simulation von Aktivitäten aus natürlichen Zerfallsketten; 2015 http://www.opengeiger.de/Gleichgewicht.pdf

/3/ Frank Wiesner SWR; Tests ergaben fünffach überhöhte Werte Belastung mit Radon: Behörde in Ulm seit Monaten gesperrt https://www.swr.de/swraktuell/baden-wuerttemberg/ulm/radon-problem-in-behoerde-in-ulm-106.html

/4/ Bernd Laquai; Nach der Evakuierung: Radiologische Untersuchung des Oberbodens in der Umgebung des Landesamts für Vermögen und Bau in Ulm;

http://opengeiger.de/radonEselsbergAmtVermBau.pdf