



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz  
und Reaktorsicherheit

# SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

**ERFASSUNG ÖKOLOGISCHER HALBWERTSZEITEN  
VON <sup>90</sup>SR UND <sup>137</sup>CS IN TERRESTRISCHEN UND  
AQUATISCHEN ÖKOSYSTEMEN**

**BMU - 2004-640**



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

**BMU – 2004-640**

**Erfassung ökologischer Halbwertszeiten von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in terrestrischen und aquatischen Ökosystemen**

**G. Pröhl, I. Fiedler**

GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Institut für  
Strahlenschutz

**E.Klemt, G. Zibold**

Fachhochschule Ravensburg-Weingarten

**S.Ehlken**

Universität Bremen, Fachbereich für Physik

## **IMPRESSUM**

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht wurde durch das GSF Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Institut für Strahlenschutz, der Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, sowie der Universität Bremen, Fachbereich für Physik, erstellt.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

### **Herausgeber:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Arbeitsgruppe RS I 1  
Postfach 12 06 29  
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2004

## Kurzfassung

In diesem Forschungsvorhaben wurde das Langzeitverhalten von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Nahrungs- und Futtermitteln sowie in verschiedenen Umweltmedien mit Hilfe der ökologischen Halbwertszeit quantifiziert. Die ökologische Halbwertszeit fasst alle Prozesse zusammen, die zu einer Abnahme der Aktivität in einem Medium führen. Dies schließt Prozesse wie Auswaschung, Fixierung und Erosion, jedoch nicht den radioaktiven Zerfall mit ein. Dabei konnten folgende Ergebnisse erzielt werden:

- Für pflanzliche und tierische Produkte liegen die abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten Bereich von 4-6 a für  $^{137}\text{Cs}$  und von 10-20a für  $^{90}\text{Sr}$ , wobei die für die Zeit von 1965 bis 1985 abgeleiteten Werte etwas kürzer sind als die für die Zeit nach Tschernobyl-Unfall abgeleiteten Werte.

Nach AVV ergeben sich für pflanzliche Produkte ökologische Halbwertszeiten von 26 Jahren für Cäsium und 13 Jahren für Strontium. Nach dem radioökologischen Modell, das in die Entscheidungshilfesysteme PARK und RODOS integriert ist, ergeben sich für Cäsium und Strontium ökologische Halbwertszeiten von 8 bzw. 14 Jahren, was gut mit den hier gefundenen ökologischen Halbwertszeiten übereinstimmt.

- In Mitteleuropa werden für Reh-, Rot- und Schwarzwild sowie für Waldpflanzen und Pilze ökologische Halbwertszeiten für Cäsium von bis zu 12 Jahren beobachtet. Wesentlich längere Halbwertszeiten werden in der Ukraine ermittelt, z.T. gehen dort die ökologischen Halbwertszeiten gegen unendlich, d.h. Migrations- und Sorptionsprozesse haben keinen Einfluss auf die Abnahme der Aktivität.
- Die Variabilität für das Zeitverhalten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in Wasser und Fischen ist wesentlich ausgeprägter als für terrestrische Systeme und hängt entscheidend von ortsspezifischen Bedingungen ab. Die ökologischen Halbwertszeiten umfassen daher einen großen Wertebereich von einigen Tagen bis einige Jahre.
- Die Datenbasis für die Ableitung ökologischer Halbwertszeiten von Cäsium in Böden ist gering. Aus den verwertbaren Untersuchungen ergeben sich für die Bodenschicht 0-10 cm im Bereich von etwa 30-300 Jahren, d.h., die Aktivitätsabnahme in der obersten Bodenschicht wird hauptsächlich durch den radioaktiven Zerfall bestimmt. Für Strontium liegen keine verwertbaren Daten vor.
- Für Grünlandbewuchs liegen die beobachteten ökologischen Halbwertszeiten für Cäsium im Bereich von etwa 1,5 bis 10 Jahren. Für Strontium liegen nur wenige Daten vor, die nicht zu generalisieren sind.
- Im Gegensatz zu den übrigen betrachteten Ökosystemen sind die sich im Meerwasser einstellenden Zeittrends im Wesentlichen durch Mischungsprozesse innerhalb des betrachteten Mediums verursacht. Damit wird jeder beobachtete Zeittrend spezifisch für das zugrunde liegende Kontaminations-Ereignis und für den gewählten Beobachtungspunkt (oder das Beobachtungsareal), so dass daraus gegebenenfalls abgeleitete ökologische Halbwertszeiten nicht generalisierbar sind.

## Abstract

Within this project, the long-term behaviour of  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in foods, feeds and a variety of environmental was analysed. The long-term behaviour is quantified by means of the ecological half-life which includes all processes (with the exception of the radioactive decay) that cause a decrease of activity in a given medium as leaching, fixation and erosion. The following results were achieved:

- For plant and animal food products, the ecological half-lives are in the range of 4 to 6 and 10 to 20 years for cesium and strontium respectively. The ecological half-lives for the period 1965 to 1985 are slightly shorter than those derived from monitoring measurements performed after 1987, due to the ongoing deposition in the post weapons' fallout period.
- According to the German radioecological model that is applied during licensing of nuclear installations to assess radiation exposures to the general due to planned releases, the ecological half-lives for plant food products are 26 and 13 a for cesium and strontium respectively. In radioecological model that is used within the decision support system RODOS, the ecological half-lives are 8 years for Cesium and 14 years for strontium, which agrees well with the finding of this study.
- For roe deer, deer, wild boar and forest plants (including mushrooms), under Middle European conditions, the ecological half-lives are about 12 years for cesium. However, in Ukraine, the cesium levels in forest products are much more persistent; in some cases the decrease of activity is only caused by the radioactive decay.
- The variability of the long-term behaviour of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in freshwater ecosystems is much more pronounced than for terrestrial systems. It depends strongly on the site-specific characteristics. The observed ecological half-lives for  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  cover a wide range from several days to several years.
- The data to derive ecological half-lives of cesium in soil is relatively poor. For the upper soil layer of 0-10 cm, ecological half-lives were derived ranging from 30-300 a, which means that the decrease of activity in soil is mainly caused by the radioactive decay. For strontium, no adequate data for the analysis are available.
- For pasture grass, the ecological half-lives observed for cesium, range from 1.5 to 10 years. For strontium, only few data are available which can hardly be generalised.
- Compared to terrestrial or freshwater ecosystems, the time trends of the activity concentrations are mainly caused by mixing processes within the system. Therefore, any time trend observed is unique for the local dispersion conditions and the specific contamination event. Therefore, in marine waters, ecological half-lives cover a wide range and can hardly be generalised.

## Inhalt:

1	Einleitung	7
2	Methodik	8
3	Eintrag von $^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in die Umwelt	9
3.1	Deutschland	9
3.2	Dänemark	10
3.3	Ergebnisse	10
3.4	Potentieller Beitrag der direkten Deposition zur Pflanzenkontamination	12
3.4.1	Anteile von trockener und nasser Deposition	12
3.4.2	Jahreszeitliche Verteilung der Deposition während des Kernwaffenfallouts	12
3.4.3	Ableitung eines repräsentativen Interzeptionsfaktors	13
3.4.4	Abschätzung der Translokation	14
3.4.5	Kontamination durch Blattaufnahme während des Kernwaffenfallouts	16
4	Zeitverlauf der Aktivität in Nahrungsmitteln	17
4.1	Messreihen aus Deutschland	17
4.2	Messreihen aus Dänemark	19
4.3	Messreihen aus Österreich	19
4.4	$^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in Gesamtnahrung und Knochen	20
4.5	Ergebnisse	20
4.5.1	Ökologische Halbwertszeiten von $^{137}\text{Cs}$	20
4.5.2	Ökologische Halbwertszeiten von $^{90}\text{Sr}$	21
5	Boden und Dauergrünland	25
5.1	Statistische Verfahren	25
5.2	Datenbasis	26
5.3	Qualitätskriterien für die Literaturlauswertung	27
5.4	Ergebnisse	28
5.4.1	Ackerböden	28
5.4.2	Grünlandböden	29
5.4.3	Grünlandbewuchs	37
6	Marine Ökosysteme	48
6.1	Datenbasis	48
6.2	Ergebnisse	48
6.2.1	Nordsee und angrenzender Nordatlantik	50
6.2.2	Ostsee	51
7	$^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in Waldökosystemen und Süßwassern	52
7.1	Methodik	52
7.2	Untersuchte Datensätze	53

7.2.1	Waldökosysteme	53
7.2.1.1	Pfrunger Ried (zi01a)	53
7.2.1.2	Ochsenhausen (zi01a)	53
7.2.1.3	Bodenmais (Fiel02)	53
7.2.1.4	Weinsberger Wald (A) (tatar02)	54
7.2.1.5	Eisenstein (baff02)	54
7.2.1.6	Zwiesel (baff02)	54
7.2.1.7	Bayern (baff02)	54
7.2.1.8	Altdorfer Wald (kl03)	55
7.2.1.9	Oberschwaben (kl03)	56
7.2.1.10	Bad Waldsee I 27 (kl03)	56
7.2.1.11	Zhitomir (UKR) (IAEA 02)	56
7.2.1.12	<sup>90</sup> Sr in Hirschgeweihen in Österreich (tatar02)	57
7.2.2	Aquatische Systeme	57
7.2.2.1	Bodensee	57
7.2.2.2	Vorsee	58
7.2.2.3	Schreckensee:	58
7.2.2.4	Luganer See (CH)	58
7.2.2.5	See Uruskul (Russland)	59
7.2.2.6	See Berdenish (Russland)	59
7.2.2.7	Rhein bei Koblenz	59
7.2.2.8	Hesseloe	59
7.2.2.9	Kokemaejoke, SF	60
7.2.2.10	Oestby	60
7.2.2.11	Vila Velha de Rodao, P	60
7.2.2.12	Devoke Water, UK (IAEA 2000)	60
7.2.2.13	Heimdalsvatn, N (IAEA 2000)	60
7.2.2.14	Hillesjön, S (IAEA 2000)	61
7.2.2.15	Ijsselmeer, NL (IAEA 2000)	61
7.2.2.16	Valkjärvi, SF (IAEA 2000)	61
7.2.2.17	Weitere Gebiete	62
7.3	Methodisches Vorgehen bei der Analyse der Daten	62
7.3.1	Fitfunktion	62
7.3.2	Fit	63
7.4	Ergebnisse	66
7.4.1	Ökologische Halbwertszeiten in Moor und Wald	66

7.4.1.1	Rehe	66
7.4.1.2	Wild, Äsungspflanzen und Xerocomus badius aus Deutschland und Österreich	66
7.4.1.3	Rehe und Äsungspflanzen aus Zhitomir, Ukraine	67
7.4.1.4	Amplituden der Aktivitätskonzentration von $^{137}\text{Cs}$ in Moor und Wald	67
7.4.1.5	Aggregierte Transferfaktoren $T_{\text{ag}}$ von Waldpflanzen und Xerocomus Badius (Maronen)	68
7.4.1.6	Zeitabhängigkeit des $^{137}\text{Cs}$ -Bodeninventars im Altdorfer Wald	69
7.4.1.7	Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse für die Umweltmedien im Wald:	69
7.4.2	Oberflächengewässer und Fische	74
7.4.2.1	REM Database der EU	74
7.4.2.2	Seen, von denen Originaldaten vorliegen	74
7.4.2.3	Literaturwerte für Wasser aus Seen, Reservoirs und Flüssen	75
7.4.2.4	Fische aus der IMIS-Datenbank	76
7.4.2.5	Fische aus der Datenbank der FH Ravensburg-Weingarten	76
7.4.2.6	Fische aus der Datenbank der „VAMP Aquatic Working Group“	77
7.4.2.7	$^{90}\text{Sr}$ in Fischen nach dem Kyshtym-Unfall	77
7.4.2.8	Schlussfolgerung	77
8	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen	88
9	Literatur	93

## **Anhang: Eintrag von $^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in die Umwelt**



# 1 Einleitung

Das Ziel dieses Forschungsvorhabens besteht in der Abschätzung des Langzeitverhalten von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Nahrungs- und Futtermitteln sowie in verschiedenen Umweltmedien. Das Langzeitverhalten von Radionukliden wird dabei mit Hilfe der ökologischen Halbwertszeit quantifiziert. Dies ist eine integrale Größe, die die langfristige Abnahme in verschiedenen Medien charakterisiert. Die ökologische Halbwertszeit fasst alle Prozesse außer dem radioaktiven Zerfall zusammen, die zu einer Abnahme der Aktivität in einem Medium führen wie Auswaschung, Fixierung und Verfrachtung. Die in der ökologischen Halbwertszeit berücksichtigten Größen sind medien-spezifisch: Betrachtet man die Aktivitätsabnahme von Böden, so gehen dabei – außer dem Zerfall – insbesondere die Auswaschung in tiefere Bodenschichten sowie die Verfrachtung von Aktivität durch Wind- oder Wassererosion ein. Demgegenüber spiegelt die ökologische Halbwertszeit z.B. von Nahrungsmitteln die Abnahme der Aufnahme von Radionukliden aus dem Boden wider, die zusätzlich durch die Abnahme der Verfügbarkeit von Radionukliden im Boden durch Fixierung oder Sorption hervorgerufen wird.

In der Bundesrepublik Deutschland wird seit Mitte der 50er Jahre die Umweltradioaktivität in Deutschland routinemäßig überwacht. Daneben wurden in zahlreichen wissenschaftlichen Untersuchungen die Gehalte von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in Umweltmedien, Futter- und Nahrungsmitteln erfasst. Diese Messungen sind der Ausgangspunkt für die Ableitung von ökologischen Halbwertszeiten. Folgende Arbeitsschritte sind dabei vorgesehen:

- Zeitreihen von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  Aktivitäten in verschieden Umweltmedien werden zusammengestellt.
- Die Zeitreihen werden analysiert und geeignete Funktionen abgeleitet, die das Zeitverhalten der Aktivitätskonzentrationen in den Umweltmedien angemessen beschreiben.

Viele Zeitreihen von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  wurden während der Periode des Kernwaffen-Fallouts erhoben. Bei den oberirdischen Versuchen wurde die Aktivität in hohe Schichten der Atmosphäre eingebracht, der Austausch mit den bodennahen Schichten erfolgt nur sehr langsam, so dass auch noch Jahre nach dem Ende der oberirdischen Tests dem Erdboden kontinuierlich Aktivität zugeführt wird. Ferner wurden auch nach Vereinbarung des Teststopps für Versuche in der Atmosphäre durch die USA und die UdSSR noch vereinzelte oberirdische Versuche von China oder Frankreich durchgeführt, was zu einer zusätzlichen Kontamination der Umwelt führte.

Die abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten sollen jedoch die Abnahme der Aktivitätskonzentration in einem Umweltmedium durch verschiedene Prozesse nach einer einmaligen Kontamination eines Mediums beschreiben. Mediums. Durch den Eintrag in die Atmosphäre ergibt sich jedoch eine über viele Jahre andauernde quasikontinuierliche Deposition. Diese überlagert andere Prozesse, die eine Abnahme der Aktivität hervorrufen und täuscht längere Halbwertszeiten in den Umweltmedien vor.

Insbesondere für Cäsium ist die Kontamination von Pflanzen durch Ablagerung auf oberirdische Pflanzenteile sehr effektiv, während die Sorption von Cäsium an Bodenteilchen sehr fest ist und damit eine relativ schnelle Abnahme der Aufnahme aus dem Boden erfolgt. Bleibt dieser ständige Aktivitätseintrag unberücksichtigt, so ergeben sich aus der Analyse der Zeitreihen scheinbar längere Halbwertszeiten.

Daher wird für die Zeit von 1965 bis 1985 der Eintrag von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  durch trockene und nasse Deposition abgeschätzt. Die Beschränkung auf diesen Zeitraum ist durch den

weitgehenden Stopp der oberirdischen Kernwaffenversuche im Jahr 1963 und den erhöhten Aktivitätseintrag durch den Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahr 1986 begründet.

Der Beitrag der direkten Deposition an gemessenen Pflanzenkontaminationen wird mit Hilfe einer für kontinuierliche Depositionen angepassten Version des radioökologischen Modells ECOSYS abgeschätzt und in einem späteren Arbeitspaket bei der Abschätzung der ökologischen Halbwertszeiten zugrunde gelegt.

## **2 Methodik**

Seit Mitte der 50er Jahre wird die Umweltradioaktivität routinemäßig überwacht. Wichtige Messgrößen sind dabei die Aktivitäten in Luft und Regen. Nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl wurden die Messprogramme wieder intensiviert. Während des Kernwaffenfallouts und durch den Reaktorunfall wurden zahlreiche Radionuklide freigesetzt. Kurzlebige Nuklide sind langfristig ohne Bedeutung und einige langlebige wurden nur in Spuren freigesetzt, so dass sie nicht wesentlich zur Umweltkontamination beitragen.

Für Deutschland und Dänemark wurden Zeitreihen von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  Aktivitäten in verschiedenen Umweltmedien zusammengestellt. Für den Kernwaffenfallout wurden, sofern vorhanden, die Aktivitätskonzentrationen der beiden Nuklide in Luft und Regen von 1965 bis 1985 und für den Reaktorunfall in Tschernobyl von 1988 bis 1999 erfasst. Für Deutschland liegen Messwerte aus verschiedenen Institutionen mit insgesamt 11 Probennahme- und Messorten vor, die allerdings nicht immer vollständig die genannten Zeiträume abdecken. In diesem langen Beobachtungszeitraum wechselten mit den für die Überwachung zuständigen Institutionen auch die Messorte.

In Dänemark wurde an einem Ort (Risö) die Luftaktivität gemessen, während die Niederschlagsproben an insgesamt 10 verschiedenen Stellen gesammelt wurden. Zusätzlich liegen Gesamtfalloutraten für  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  für einen Zeitraum von 1950 bis 1993 vor, die ebenfalls für den oben genannten Zeitraum ausgewertet wurden.

Unter der ökologischen Halbwertszeit wird die Abnahme der Aktivitätskonzentration in einem Umweltmedium verstanden, die durch verschiedene Prozesse nach einer einmaligen Kontamination bedingt ist. Dies ist bei dem Kernwaffenfallout nicht der Fall, da hier eine über mehrere Jahre andauernde Deposition stattfand. Diese Tatsache ist bei der Ableitung der ökologischen Halbwertszeiten zu berücksichtigen.

### 3 Eintrag von $^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in die Umwelt

#### 3.1 Deutschland

Zur Erfassung des Eintrags von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in die Umwelt wurden der zusammenfassende Bericht vom Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ über die Umweltüberwachung 1956 bis 1968, die entsprechenden Jahresberichte vom Bundesministerium des Innern aus den Jahren 1975 bis 1983 und die Jahresberichte vom Ministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit aus den Jahren 1986 bis 1999 ausgewertet.

In Tabelle 3.1 sind die Messstationen mit den entsprechenden Probenahmeorten aufgeführt. Ferner ist angegeben, welche Messgrößen über welchen Zeitraum erfasst wurden. An den Messprogrammen zur Überwachung von Luft und Niederschlag sind mehrere Institutionen beteiligt. Bearbeitet werden die Messungen heute vom Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Atmosphärische Radioaktivität in Freiburg und von der Deutschen Wetterdienst-Zentrale in Offenbach am Main.

Messstation	Probenahmeort	Messgröße	Zeitraum
Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig	Braunschweig	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1965-1999
	Berlin	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1988-1992
Staatlich-Chemisches Untersuchungsamt, Braunschweig	Braunschweig	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1965-1981
	Königslutter	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1970-1979
Deutscher Wetterdienst, Offenbach	Offenbach	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1981-1999
	Offenbach	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1970-1999
	Offenbach	Nasse $^{90}\text{Sr}$ -Deposition	1970-1993
	Aachen	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1992-1999
	Aachen	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1996-1999
	Berlin	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1992-1999
	Berlin	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1992-1999
	Königstein/Ts.	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1960-1967
	Königstein/Ts.	Nasse $^{90}\text{Sr}$ -Deposition	1960-1967
	Schleswig	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1992-1999
Schleswig	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1996-1999	
Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Atmosphärische Radioaktivität - Freiburg	Schauinsland	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1989-1999
GSF, München	München	$^{137}\text{Cs}$ in Luft	1975-1999
	München	Nasse $^{137}\text{Cs}$ -Deposition	1982-1999
Institut für angewandte Physik der TH, Hannover	Hannover	Nasse $^{90}\text{Sr}$ -Deposition	1960-1967
2. Physikalisches Institut der Universität, Heidelberg	Heidelberg	Nasse $^{90}\text{Sr}$ -Deposition	1960-1967
Bundesgesundheitsamt, Berlin	Berlin	Nasse $^{90}\text{Sr}$ -Deposition	1958-1962

Tabelle 3.1: Messstationen und Probenahmeorte für die Aktivitätsmessungen in Luft und Niederschlag

Zur Ableitung der Abnahme der Aktivität in Luft und Niederschlag werden insbesondere die Daten herangezogen, die zwischen 1965 und 1985 und nach 1988 verfügbar sind. Vor 1965 sind die Luftaktivitäten zu stark von den in der Atmosphäre durchgeführten Kernwaffentests beeinflusst, um zur Ableitung längerfristiger Trends herangezogen werden zu können. Im Zeitraum von 1965-1985 wird der Zeitverlauf der Aktivität in Luft und Niederschlag

hauptsächlich durch die Austauschvorgänge zwischen Stratosphäre und Troposphäre bestimmt. Die Datensätze beziehen sich im Wesentlichen auf die Jahre 1965 bis 1985 (Kernwaffenfallout) und 1988 bis 1999 (Zeit nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl). Für beide Zeiträume oder Teile davon werden die entsprechenden Halbwertszeiten abgeleitet.

Während des Reaktorunfalls von Tschernobyl wurden die Aktivitäten jedoch nur in die Troposphäre eingetragen, was eine relativ rasche Deposition am Boden durch trockene und nasse Deposition bedingte. Die in den Folgejahren in den unteren Schichten der Atmosphäre ist hauptsächlich durch Resuspension von kontaminierten Bodenteilchen bedingt.

$^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in Luft, wurden in der Regel durch  $\gamma$ -spektrometrisch an wöchentlich beaufschlagten Staubfiltern durchgeführt. Die Nachweisgrenzen liegen hier zwischen 2 bis 5  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Zur  $\gamma$ -spektrometrischen Einzelnuklidmessung im Niederschlag werden in der Regel Monatssammelproben herangezogen, die aus bis zu 40 Messstationen stammen. Die Nachweisgrenzen für  $^{137}\text{Cs}$  liegen zwischen 0,5 und 5  $\text{mBq}/\text{l}$ .

In den Tabellen sind die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten in Luft und durch nasse Deposition zusammengefasst. Zusätzlich ist jeweils die Regenmenge pro Jahr angegeben. Die Messungen liegen jedoch nicht vollständig für alle Messorte bzw. Messinstitutionen vor.

$^{90}\text{Sr}$  wurde hauptsächlich mit dem Kernwaffenfallouts deponiert, während die Deposition während und nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl nur von untergeordneter Bedeutung war. Wie beim  $^{137}\text{Cs}$  gehen die Luftkonzentrationen von 1965 bis 1985 deutlich zurück. Die vereinzelt von Frankreich und China durchgeführten oberirdischen Kernwaffenversuche, führen zu kurzfristig erhöhten Luftkonzentrationen.

Im Anhang sind die  $^{90}\text{Sr}$ -Konzentrationen durch nasse Deposition während des Kernwaffenfallouts für verschiedene Messorte aufgeführt. Da jedoch jeweils nur für 4 Jahre in Folge Messdaten vorlagen, wurde auf die Abschätzung von zeitlichen Trends verzichtet. Messungen für die  $^{90}\text{Sr}$ -Konzentration in Luft standen in den ausgewerteten Messreihen nicht zur Verfügung.

### **3.2 Dänemark**

Messungen von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Luft und Niederschlag wurden auch in Dänemark durchgeführt. Die ausgewerteten Messungen sind in einem Bericht des Risø-Forschungszentrums zusammengefasst (Environmental Radioactivity in Denmark in 1992 and 1993, Risø-R-756(EN), Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark, Februar 1995).

Die Luftproben wurden in Risø seit 1957 gesammelt und mittels Gammaskpektrometrie gemessen. Die jährlichen Depositionen von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  wurden für Dänemark, Jütland und die dänischen Inseln aufgeführt.

In Anhang sind die  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationen in Luft für die Jahre 1965 bis 1985 (Kernwaffenfallout) und von 1988 bis 1993 zusammengefasst. Die Gesamtdepositionen von  $^{90}\text{Sr}$  sind ebenfalls in Anhang zusammengefasst. Nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl zeigen sich sehr deutlich die unterschiedlichen regionalen Depositionen. Insbesondere in München sind die Aktivitätskonzentrationen in Luft erheblich höher als in den übrigen in der Tabelle aufgeführten Orten. In München ist auch 1993 die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität noch deutlich gegenüber den Berlin und Braunschweig höher.

### **3.3 Ergebnisse**

In Tabelle 3.2 sind die ermittelten ökologischen Halbwertszeiten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in Luft und für die nasse Deposition aufgeführt. Die Messzeiträume umfassen die Zeit während des Kernwaffen-Fallouts und die Zeit nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl. Ausgewertet wurden nur Messreihen, die mehr als 5 Messdaten enthielten.

Die Halbwertszeiten von  $^{137}\text{Cs}$  in Luft und durch nasse Deposition sind in den ausgewerteten Zeiträumen während des Kernwaffenfallouts in der Regel geringer als nach dem Reaktorunfall. Während des Kernwaffenfallouts ist die Deposition hauptsächlich durch Austauschvorgänge zwischen Stratosphäre und Troposphäre bedingt. Im Zeitraum 1965-1985 nimmt die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität in Luft etwa mit einer Halbwertszeit von 2-3 Jahren ab. Diese in Deutschland gemachten Beobachtungen stimmen gut mit den dänischen Messungen überein. Für  $^{90}\text{Sr}$  liegen leider keine Zeitreihen in Deutschland vor, die eine entsprechende Abschätzung erlauben würden. In Dänemark lässt sich aus den Angaben in Risö (1995) eine Halbwertszeit für  $^{90}\text{Sr}$  in Luft von etwa 2-3 Jahren ablesen. Dies ist konsistent mit den Beobachtungen für  $^{137}\text{Cs}$ .

Ähnliche Halbwertszeiten ergeben sich für die Abnahme der mit Niederschlägen dem Boden zugeführten Aktivität im Zeitraum 1965-1985. Dabei ist jedoch zu beachten, dass die Aktivität in Luft und Niederschlag nicht stetig abnimmt. Auch Ende der 60er und in den 70er Jahren wurden immer wieder vereinzelt Kernwaffentest in der Atmosphäre durchgeführt, zu Anstiegen der Aktivitäten in Luft und Niederschlägen führten.

Messgröße	Nuklid	Messort	Messzeitraum	Halbwertszeit	
				Kernwaffenfallout	Tschernobyl
Luftaktivität	$^{137}\text{Cs}$	Braunschweig	65-85	2,5 a	
			88-99	3,8 a	
		München	75-85	1,9 a	
			88-99	3,1 a	
		Offenbach	88-99	5,4 a	
		Schleswig	92-99	3,7 a	
		Aachen	92-99	3,0 a	
		Schauinsland	89-99	5,8 a	
			Dänemark, Riso	65-85	3,0 a
88-93	4,1 a				
Aktivität durch nasse Deposition	$^{137}\text{Cs}$	Braunschweig	65-81	3,4 a	
		Königslutter	70-79	4,8 a	
		Offenbach	70-85	2,5 a	
			88-99	5,4 a	
	München	88-99	2,8 a		
$^{90}\text{Sr}$	Offenbach	70-84	3,4 a		
Gesamtdeposition	$^{137}\text{Cs}$	Dänemark	65-85	3,1 a	
			88-93	1,4 a	
	$^{90}\text{Sr}$		65-85	3,1 a	
			88-93	4,2 a	

Tabelle 3.2: Ökologische Halbwertszeiten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$

Die nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl beobachteten Halbwertszeiten sind etwas länger als die im Zeitraum vor 1986. Die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten in Luft sind hauptsächlich durch Resuspension bedingt und daher auf die bodennahen Luftschichten beschränkt. Die Abnahme der resuspendierten Aktivität in Luft ergibt sich neben dem in der ökologischen Halbwertszeit nicht einbezogenem radioaktiven Zerfall durch Migration der Radionuklide in tiefere Bodenschichten und durch Überdecken des Bodens mit unkontaminierten Materialien. Da dies relativ langsam ablaufende Prozesse sind, sind die entsprechenden Halbwertszeiten höher.

1988 waren die Cs-Aktivitäten schon sehr gesunken und haben in den Folgejahren nicht mehr wesentlich abgenommen, so dass sich die langen Halbwertszeiten von, z. B. 5,4 a, ergeben wie für Offenbach in Niederschlag. Die Luftaktivität in Offenbach ist in den Jahren 1988 und 1989 noch hoch, hat aber bereits im Folgejahr stark abgenommen und ist bis 1999 nicht weiter gesunken, was sich ebenfalls in der langen Halbwertszeit von 5,4 a ausdrückt.

### **3.4 Potentieller Beitrag der direkten Deposition zur Pflanzenkontamination**

Die Ableitung von ökologischen Halbwertszeiten während der Periode des Kernwaffen-Fallouts wird erschwert, da es sich um eine über lange Zeit andauernde quasikontinuierliche Deposition handelte. Um diesen Effekt abzuschätzen, wird im Folgenden die mögliche Deposition auf Pflanzen während des Kernwaffen-Fallouts abgeschätzt.

#### **3.4.1 Anteile von trockener und nasser Deposition**

Aus den Messungen der Luftaktivität und der trockenen und nassen Deposition der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig lassen sich die Anteile der trockenen und nassen Deposition grob abschätzen (Tabelle 3.3). Die trockene Deposition ergibt sich aus der mittleren Luftaktivität und der Depositionsgeschwindigkeit, wobei hier ein Wert von 0,001 m/s zugrundegelegt wurde. In allen Jahren überwiegt die nasse Deposition deutlich; in den meisten Jahren ist der Anteil der nassen Deposition deutlich größer als 90 %. Das heißt, der Anteil der trockenen Deposition zur Pflanzenkontamination ist von untergeordneter Bedeutung.

#### **3.4.2 Jahreszeitliche Verteilung der Deposition während des Kernwaffenfallouts**

Die Austauschvorgänge zwischen Stratosphäre und Troposphäre sind im Frühsommer und Sommer wegen der dann größten Gewitterhäufigkeit am intensivsten. Daher wurde die Aktivität während des Kernwaffenfallouts hauptsächlich in den Monaten Mai-August abgelagert. In den Abbildung 3.1 und Abbildung 3.2 sind die Anteile der  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$ -Deposition in Dänemark (Risö, 1995) für die Monate Mai-August, Mai-Juni und Juli-August angegeben.

Dabei zeigt sich, dass von Mai bis August etwa die Hälfte der Aktivität abgelagert wird, die näherungsweise gleichmäßig auf die Zeiträume Mai/Juni und Juli/August verteilt sind.

Jahr	Mittlere Luftaktivität ( $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ )	Nasse Deposition ( $\text{Bq}/\text{m}^2$ )	Trockene Deposition ( $\text{Bq}/\text{m}^2$ )	Anteil	
				Trockene Deposition	Nasse Deposition
1965	281	17	8,9	0,34	0,66
1966	152	137	4,8	0,03	0,97
1967	81	78	2,6	0,03	0,97
1970	118	81	3,7	0,04	0,96
1971	123	70	3,9	0,05	0,95
1972	42	38	1,3	0,03	0,97
1973	18	22	0,57	0,03	0,97
1974	65	47	2,0	0,04	0,96
1975	35	34	1,1	0,03	0,97
1976	10	24	0,32	0,01	0,99
1977	37	8	1,2	0,13	0,87
1978	43	12	1,4	0,10	0,90
1979	15	5	0,47	0,09	0,91
1980	7,8	1,9	0,25	0,11	0,89
1981	25	25	0,79	0,03	0,97
1982	5	*	0,16	-	-
1983	2,2	*	0,07	-	-
1984	0,82	*	0,026	-	-
1985	0,54	*	0,017	-	-

Tabelle 3.3: Abschätzung der trockenen und nassen Deposition während des Kernwaffenfallouts

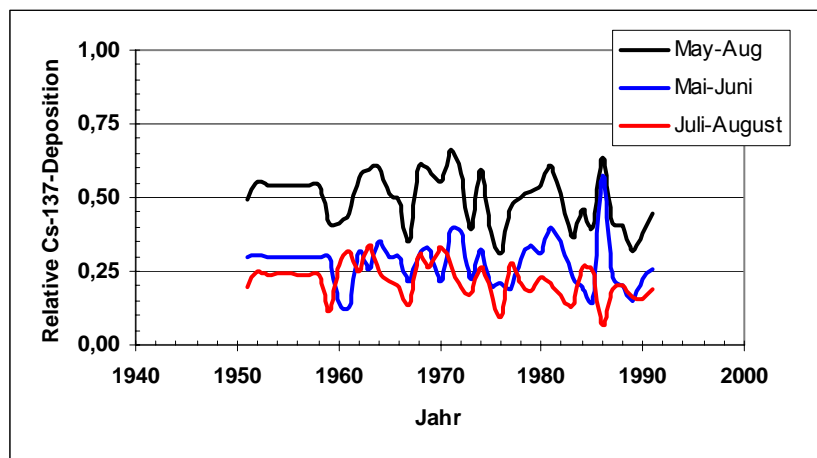


Abbildung 3.1: Saisonale Verteilung der  $^{137}\text{Cs}$ -Deposition in Dänemark

### 3.4.3 Ableitung eines repräsentativen Interzeptionsfaktors

Die Interzeption von nass deponierter Aktivität wird mit Hilfe des Interzeptionsfaktors berechnet. Dieser gibt an, welcher Anteil der mit dem Regen deponierten Aktivität unmittelbar von der Pflanze zurückgehalten wird. Dieser hängt ab vom Element, vom Entwicklungsstadium der Pflanze und der Regenmenge (Müller und Pröhl, 1993). In Abbildung 3.3 wird der Interzeptionsfaktor nach (Müller und Pröhl, 1993) für einen Grasbestand mit einem Ertrag von  $1,5 \text{ kg}/\text{m}^2$  angegeben. Für Regenmengen von beispielsweise  $5 \text{ mm}$  ergeben sich für voll entwickelte Pflanzenbestände Interzeptionsfaktoren von  $0,2$  für  $^{137}\text{Cs}$  und etwa  $0,3$  für  $^{90}\text{Sr}$ . Die Abhängigkeit der Interzeption von der Ladung des betrachteten Radionuklids ist auf die negative Ladung der Pflanzenoberflächen

zurückzuführen. Aufgrund dessen werden Kationen mit steigender spezifischer Ladung in höherem Maße von den Blättern festgehalten.

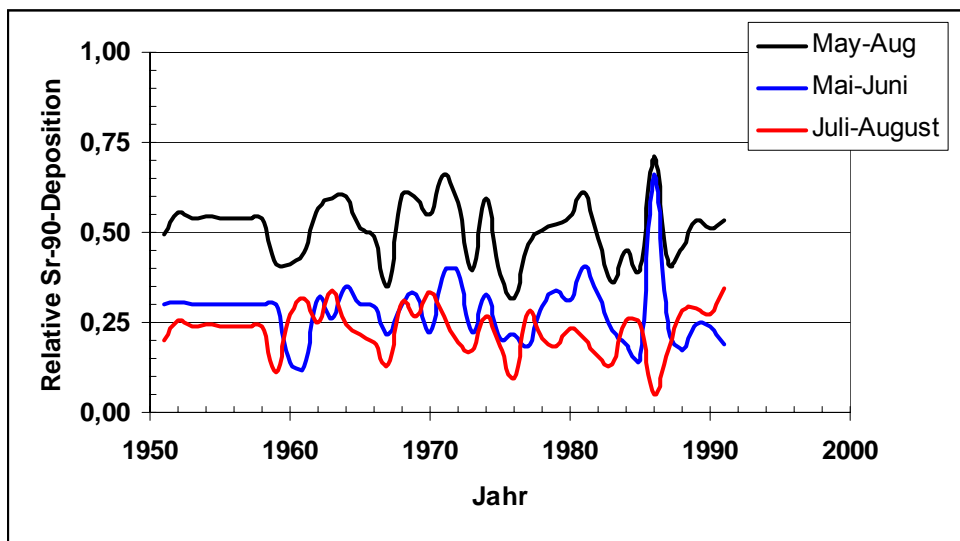


Abbildung 3.2: Saisonale Verteilung der <sup>90</sup>Sr-Deposition in Dänemark

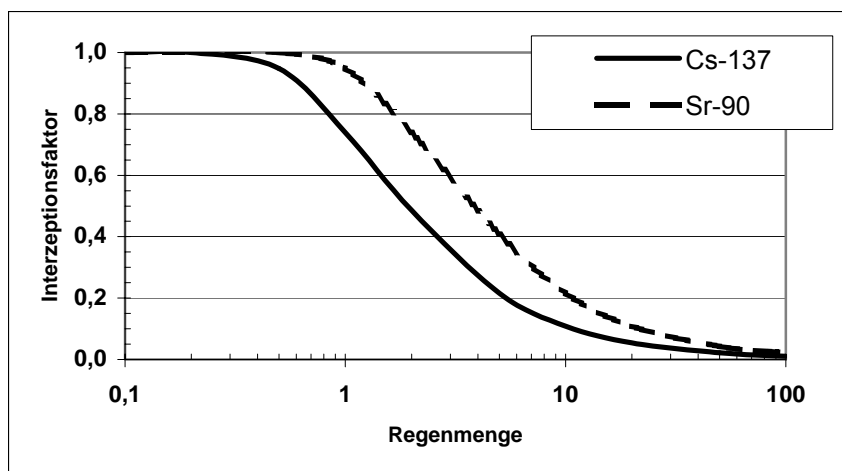


Abbildung 3.3: Interzeption für Weidegras für einen Ertrag von 1,5k g/m<sup>2</sup> Frischmasse in Abhängigkeit von Regenmenge und Element

Zur Abschätzung eines mittleren Interzeptionsfaktors für nasse Deposition wurden die Daten der am Institut für Strahlenschutz in den Jahren von 1989-1994 durchgeführten Niederschlagsmessungen ausgewertet. Die einem mittleren Interzeptionsfaktor entsprechende Regenmenge wurde dabei mit 6 mm bestimmt. Dieser Wert wird auch in den weiteren Betrachtungen zugrundegelegt.

### 3.4.4 Abschätzung der Translokation

Unter Translokation wird die Verteilung von Radionukliden vom Blatt in andere Pflanzenteile verstanden. Von Interesse ist hier vor allem die Translokation von den Blättern in die essbaren Pflanzenteile. Dieser Prozess ist relevant für Pflanzen, die nur teilweise genutzt werden.



Die Translokation von Radionukliden, d.h. die innerpflanzliche Verteilung der Radionuklide, hängt von der Mobilität des betreffenden Elements ab. In der Pflanze unterscheidet man 2 Stofftransportsysteme, das Xylem und das Phloëm. Im Xylem werden vor allem Wasser, Nährsalze, und in geringen Mengen organische Verbindungen transportiert. Die Flussrichtung wird durch die Transpiration der Blätter bedingt, der Transport erfolgt also von der Wurzel in oberirdische Pflanzenorgane. Der Transport im Xylem ist nicht elementspezifisch, d.h. es ist davon auszugehen, dass auch alle Radionuklide im Xylem transportiert werden.

Das Phloëm ist ein vom Xylem unabhängiges Transportsystem. Im Phloëm werden hauptsächlich die während der Photosynthese gebildeten organischen Verbindungen von den Blättern in die Speicherorgane (z.B. Getreidekorn, Kartoffelknolle) transportiert. Der Transport ist energieabhängig, der Transport erfolgt sowohl von unterirdischen zu oberirdischen Pflanzenteilen als auch in der Gegenrichtung. Der Transport im Phloëm ist elementspezifisch, d.h. nicht alle Elemente können im Phloëm transportiert werden. Die Phloëm-Mobilität eines Elements bestimmt, ob dieses Element nach Kontamination der Blätter entgegen dem Transpirationsstrom in Speicherorgane wie Getreidekörner oder Kartoffelknollen transportiert werden kann.

Phloëm-mobil sind beispielsweise Alkalimetalle (Cs, Rb), Phosphor, Selen, Technetium, Schwefel und Chlor. Phloëm-immobil sind dagegen Calcium, Strontium, Radium, Blei, Polonium, Uran, sowie die Aktiniden. Hinsichtlich des Transfers in Nahrungsketten hat die Phloëm-Mobilität weitreichende Folgen. Nach Kontamination der Blätter können beispielsweise Kartoffelknollen nur von phloëm-mobilen Elementen kontaminiert werden.

Die Pflanzenkontamination nach Deposition von Radionukliden auf die Blätter lässt sich abschätzen gemäß:

$$C_{\text{Pfl}} = \frac{D_{\text{pfl}} \cdot T_f}{E_{\text{pfl}}}$$

wobei:

$C_{\text{Pfl}}$  = Pflanzenkontamination ( $\text{Bq kg}^{-1}$ )

$D_{\text{pfl}}$  = Deposition auf die Pflanze ( $\text{Bq m}^{-2}$ )

$T_f$  = Anteil der Aktivität, der von den Blättern zum essbaren Teil transloziert wird

$E_{\text{pfl}}$  = Ertrag des essbaren Pflanzenteiles ( $\text{kg m}^{-2}$ )

Zur Abschätzung der Translokation von abgelagerter Aktivität werden die Parameter des zeitabhängigen Radioökologie-Modells ECOSYS (Müller und Pröhl, 1993) herangezogen. Da ECOSYS für eine einmalige Deposition ausgelegt ist, wurde die Translokation über den die Hauptwachstumsphase für Getreide, Kartoffeln/Wurzelgemüse und Fruchtgemüse gemittelt. Diese liegen in der Zeit des intensivsten Wachstums, dies ist bei Winterweizen die Zeit zwischen Mitte Mai und Mitte Juli und bei Kartoffeln und Gemüse zwischen Juni und August. Für diesen Zeitraum wird der in Müller und Pröhl (1993) angegebene Translokationsfaktor gemittelt und für jede berücksichtigte Pflanze mit Hilfe des realen Ertrages die Kontamination nach o.g. Gleichung berechnet.

	Parameter	Getreide	Kartoffeln/ Wurzelgemüse	Gemüse
1	Hauptwachstumsphase	Mai-Juli	Juni – Aug.	Juni – Aug
2	Interzeptionsfaktor <sup>137</sup> Cs <sup>90</sup> Sr	0,15 0,3	0,15 0,3	0,2 0,4
3	TL-Faktor: mobile Elemente immobile Elemente	0,09 0,005	0,12 0	0,1 0,003
4	Ertrag (kg/m <sup>2</sup> )	0,5	3	2
5	normierte Kontamination (Bq/kg pro Bq/m <sup>2</sup> Deposition auf Pflanze) mobile Elemente immobile Elemente	0,18 0,01	0,04 0	0,05 0,0015
6	Kontamination (Bq/kg pro Bq/m <sup>2</sup> Gesamtdosition) mobile Elemente immobile Elemente	0,03 0,003	0,006 0	0,01 0,0006

Tabelle 3.4: Faktoren zur Berücksichtigung des Beitrags der Blattaufnahme zur Pflanzenkontamination während des Kernwaffenfallouts

### 3.4.5 Kontamination durch Blattaufnahme während des Kernwaffenfallouts

Die in Tabelle 3.4 in Zeile 6 angegebenen Faktoren können zur Berücksichtigung des Beitrags der Blattaufnahme zur Pflanzenkontamination während des Kernwaffenfallouts angewendet werden. Dabei wird angenommen, dass 50% der pro Jahr deponierten Aktivität im Zeitraum Mai bis August abgelagert wird. Während dieses Zeitraums wird eine homogene Deposition unterstellt. Voraussetzung für die Korrektur von Pflanzenkontaminationen ist jedoch zumindest die räumliche Nähe der Probenahmeorte für die Messungen von Deposition und Pflanzenkontamination. Ansonsten sind die Korrekturen mit Unsicherheiten behaftet, die wegen der räumlichen Variabilität der Deposition nicht hinreichend zuverlässig zu quantifizieren sind.

## 4 Zeitverlauf der Aktivität in Nahrungsmitteln

### 4.1 Messreihen aus Deutschland

Die Messreihen für Deutschland sind aus den zusammenfassenden Berichten vom Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ über die Umweltüberwachung 1956 bis 1968, den entsprechenden Jahresberichten vom Bundesministerium des Inneren aus den Jahren 1975 bis 1983 und den Jahresberichten für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit aus den Jahren 1986 bis 1999 entnommen worden. Ausgewertet wurden die Messungen für die Bundesländer

- Bayern,
- Baden-Württemberg,
- Niedersachsen und
- Nordrhein-Westfalen.

In den kleineren Bundesländern wurden ebenfalls Monitoring-Messungen durchgeführt; die daraus zur Verfügung stehenden Datensätze sind jedoch wegen der zeitlichen Lücken nicht für den Zweck dieser Untersuchung geeignet.

Die ökologischen Halbwertszeiten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in Milch, Weizen und Kartoffeln wurden aus den Messreihen für die aufgeführten Bundesländer einzeln ermittelt. Für Kalbfleisch, Rindfleisch und Schweinefleisch lagen generell nur Messungen der  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationen vor.

Zusätzlich wurden die Jahresmittelwerte von Getreide, Kartoffeln, Kernobst und Fleisch für Deutschland ausgewertet. Die Aktivitätsmesswerte beziehen sich auf die Frischsubstanz bzw. Feuchtmasse der untersuchten Lebensmittel. Wegen der teilweise sehr niedrigen Aktivitätspegel ist oft die Grenze der quantitativen Bestimmungsmöglichkeit erreicht. Diese Messwerte werden in den aufgeführten Tabellen in der Form „kleiner als die Nachweisgrenze mit <“ gekennzeichnet.

In Tabelle 4.1 sind die Messstationen bzw. Auswertungsstellen angegeben. Die Institutionen haben im betrachteten Zeitraum mehrfach gewechselt. Zusätzlich sind die Messgröße und der Zeitraum aufgeführt, in welchem die Messungen stattfanden. Heute wird die Überwachung von Milch, Getreide und Einzellebensmitteln von der Bundesanstalt für Milchforschung, Institut für Chemie und Technologie der Milch, vorgenommen.

Zur Ermittlung der ökologischen Halbwertszeiten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in verschiedenen Lebensmitteln werden vor allem die Daten herangezogen, die zwischen 1965 und 1985 und nach 1988 verfügbar sind. Bis 1962 wurden von den USA und der UdSSR zahlreiche Kernwaffentests in der Atmosphäre durchgeführt (vgl. Anhang), die auch in den Folgejahren zu Depositionen insbesondere von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  führten. Daher wurden die beiden Jahre 1963 und 1964 nicht in die Auswertung einbezogen, da die Kontamination durch direkte Deposition auf Pflanzen die langfristige Abnahme der Aktivität in der Umwelt überdeckt.

Die gemessenen Milchproben stammen fast ausschließlich aus größeren Sammel tanks von Molkereien. Die aufgeführten Werte stellen Mittelwerte dar, die allerdings nicht gewichtet werden konnten, da ergänzende Angaben zu den Messwerten fehlten. Darüber hinaus überschätzen die Mittelwerte, die mit „<“ gekennzeichnet sind, die Realität, weil in die Berechnungen Werte von Nachweisgrenzen eingegangen sind, die über den realen Werten lagen.

Die Mittelwerte für  $^{90}\text{Sr}$  basieren auf Messergebnissen der Ländermessstellen und auf zusätzlichen Messungen der Leitstelle an Milchpulverproben aus dem gesamten Bundesgebiet, die monatlich das gesamte Jahr über durchgeführt wurden.

Messstation (Auswertungsstelle)	Bundesland (Messstelle)	Messgröße	Zeitraum
Bundesanstalt für Milchforschung, Kiel  -1977: Institut für Physik  -1998: Institut für Chemie und Physik  1999- : Institut für Chemie und Technologie der Milch	Bayern	$^{137}\text{Cs}$ in Milch $^{90}\text{Sr}$ in Milch	1969-1999
	Baden-Württemberg	$^{137}\text{Cs}$ in Milch $^{90}\text{Sr}$ in Milch	1969-1999
	Nordrhein-Westfalen	$^{137}\text{Cs}$ in Milch $^{90}\text{Sr}$ in Milch	1969-1999
	Niedersachsen	$^{137}\text{Cs}$ in Milch $^{90}\text{Sr}$ in Milch	1969-1999
Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Karlsruhe  -1998  Bundesanstalt für Milchforschung, Kiel  1999- : Institut für Chemie und Technologie der Milch	Bayern	$^{137}\text{Cs}$ in Getreide $^{90}\text{Sr}$ in Getreide	1991-1999
	Baden-Württemberg	$^{137}\text{Cs}$ in Getreide $^{90}\text{Sr}$ in Getreide	1976-1999
	Nordrhein-Westfalen	$^{137}\text{Cs}$ in Getreide $^{90}\text{Sr}$ in Getreide	1991-1993 1997-1999
	Niedersachsen	$^{137}\text{Cs}$ in Getreide $^{90}\text{Sr}$ in Getreide	1975-1999
Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Karlsruhe  -1998  Bundesanstalt für Milchforschung, Kiel  1999- : Institut für. Chemie und Technologie der Milch	Bayern	$^{137}\text{Cs}$ in Kartoffeln $^{90}\text{Sr}$ in Kartoffeln	1991-1999
	Baden-Württemberg	$^{137}\text{Cs}$ in Kartoffeln $^{90}\text{Sr}$ in Kartoffeln	1982-1999 1977-1999
	Nordrhein-Westfalen	$^{137}\text{Cs}$ in Kartoffeln $^{90}\text{Sr}$ in Kartoffeln	1991-1999 1997-1999
	Niedersachsen	$^{137}\text{Cs}$ in Kartoffeln $^{90}\text{Sr}$ in Kartoffeln	1976-1985
Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Karlsruhe  -1998  Bundesanstalt für Milchforschung, Kiel  1999- : Institut für Chemie und Technologie der Milch	Bayern	$^{137}\text{Cs}$ in Fleisch	1991-1999
	Baden-Württemberg	$^{137}\text{Cs}$ in Fleisch	1975-1999
	Nordrhein-Westfalen	$^{137}\text{Cs}$ in Fleisch	1975-1999
	Niedersachsen	$^{137}\text{Cs}$ in Fleisch	1975-1999

Tabelle 4.1: Messstationen und Messorte in den einzelnen Bundesländern für die Aktivitätsmessungen in verschiedenen Lebensmitteln

Die Auswertung der Mittelwerte über einzelne Bundesländer und teilweise über die Bundesrepublik führt einerseits zu gewissen Unsicherheiten, da die Probenahmeorte nicht bekannt sind und vermutlich von Jahr zu Jahr wechseln. Teilweise handelt es sich um Mischproben, deren Ursprung ebenfalls unklar ist. Andererseits ist die Kontamination durch

den Kernwaffenfallout in Deutschland relativ homogen, sodass zumindest die räumliche Variabilität der Deposition von geringerer Bedeutung ist.

Trotz dieser Einschränkung stellen die Ergebnisse der Umweltüberwachung eine wertvolle Datenquelle dar, da in den Mittelwert zumindest in den großen Bundesländern eine relativ große Zahl an Messungen über Zeiträume von bis zu 20 Jahren eingehen. Auch in der Zeit von 1965 bis 1985 wurden noch vereinzelt oberirdische Kernwaffentests durchgeführt, die z. T. zu kurzfristigen Anstiegen der Aktivitäten in Umweltmedien führten. Die Aktivitätseinträge waren jedoch gering und führten nicht zu einer grundsätzlichen Veränderung der längerfristigen Trends.

Die ökologischen Halbwertszeiten wurden mit Microsoft Excel abgeleitet. Die Eindeutigkeit der Anpassung wird durch das Bestimmtheitsmaß quantifiziert, das den Zusammenhang zwischen der Aktivität im betrachteten Medium und der Zeit in Prozent angibt.

#### **4.2 Messreihen aus Dänemark**

In Dänemark wurden ebenfalls verschiedene Messungen in Lebensmitteln durchgeführt. Außerdem standen Messungen in menschlichen Knochen zur Verfügung. Alle hier ausgewerteten Daten sind in einem Bericht des Risø-Forschungszentrums zusammengefasst: Environmental Radioactivity in Denmark in 1992 and 1993, Riso-R-756(EN), Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark, Februar 1995).

Dabei wurden insbesondere Milch, Getreide und Kartoffeln beprobt. Ferner wurden die  $^{137}\text{Cs}$ - und  $^{90}\text{Sr}$ -Gehalte in der Gesamtnahrung untersucht. Darüber hinaus liegt eine Messreihe von  $^{90}\text{Sr}$  in Knochen vor.

Die aus den dänischen Messreihen abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten sind aus Grafiken ermittelt worden, in denen der Aktivitätsverlauf von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in verschiedenen Lebensmitteln über die Jahre von maximal 1950 bis 1991 dargestellt ist. Ausgewertet wurde der Zeitraum nach Abschluss der oberirdischen Kernwaffenversuche durch die USA und die UdSSR bis zum Tschernobyl-Unfall. Die Daten liegen nur als Grafik vor, daher sind die abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten mit größeren Unsicherheiten behaftet. Trotz dieser Einschränkung wurde nicht auf diesen Datensatz verzichtet, da der betrachtete Zeitraum ungewöhnlich lang ist.

#### **4.3 Messreihen aus Österreich**

Für Österreich stehen Messreihen für diverse Lebensmittel zur Verfügung, die in dem Abschlussbericht aus dem Jahr 1995 Seibersdorf Report (Mück, 1995) zusammengefasst sind.

Untersucht wurden Milch, Getreide, Kartoffel, Gemüse und Kernobst. Auf die Untersuchung von Fleisch wurde in Mück (1995) verzichtet, da man davon ausgeht, dass die Aktivitätskonzentration in Fleisch mit der im Futtermittel korreliert. Bei gleichem Futter ist ein ähnliches langfristiges Zeitverhalten der Aktivitätskonzentration in Milch und Milchprodukten wie Butter, Rahm, Yoghurt und Käse und Rind- und Kalbfleisch zu erwarten. Schweine werden vorwiegend mit Getreide gefüttert, daher ist im Schweinefleisch eine Aktivitätsabnahme wie in Getreide zu erwarten.

Um unterschiedliche geographische Bodenbeschaffenheiten zu berücksichtigen, wurden die Probenahmen auf 4 Bundesländer erstreckt, nämlich Kärnten, Niederösterreich, Oberösterreich und Steiermark.

Wegen der bereits geringen Aktivitätskonzentrationen mussten z.T. relativ große Proben (1,5 – 3 kg) Proben gezogen werden, die dann eingeengt bzw. verascht wurden. Durch lange Messzeiten konnte bei den veraschten Proben die Nachweisgrenzen auf 0,06 bis 0,03 Bq/kg in der Frischsubstanz weiter erniedrigt werden.

Die Probenziehung bei Milch erfolgte aus Tanks von Milchsammeltouren mit einem Inhalt von 3000 bis 10000 l Tankinhalt. Dadurch ergab sich eine Mittelung über die Milch von ca. 150 bis 500 Einzeltieren. Die Milchproben wurden durch Kochen eingeengt. Mit entsprechend langen Messzeiten bis zu 10000 sec konnte eine Nachweisgrenze von 0,09 bis 0,03 Bq/kg in der Frischsubstanz erreicht werden.

Da sich Gemüse aus zahlreichen Sorten mit unterschiedlichen Blattflächenindizes zusammensetzt, wurden zwei charakteristische Gemüsearten, nämlich Salat und Kohl, gemessen.

#### **4.4 $^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in Gesamtnahrung und Knochen**

Aus Österreich liegen Messungen der Gehalte von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in der Gesamtnahrung vor. Der Zeitraum umfasst die Jahre 1967 bis 1985. Aus dieser liegen auch Messungen über den  $^{90}\text{Sr}$ -Gehalt von Knochen vor.

#### **4.5 Ergebnisse**

##### **4.5.1 Ökologische Halbwertszeiten von $^{137}\text{Cs}$**

Die aus den Messungen in Dänemark, Deutschland und Österreich abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten sind für  $^{137}\text{Cs}$  in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Aus den zusammengefassten Daten wurden nur die Datenreihen aufgenommen, bei denen für mindestens 50 % der Beobachtungsjahre Messungen vorliegen, die über der Nachweisgrenze liegen.

Aus den Analysen lassen sich folgende Schlussfolgerungen ziehen:

- *Milch*

Im Zeitraum von 1965-85 nimmt die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität mit einer Halbwertszeit von etwa 3 bis 7 Jahren ab. Die ökologische Halbwertszeit für Milch in den Jahren 1989-99 ist mit Werten zwischen 5 und 9 Jahren etwas länger. Im Zeitraum 1965-85 nahm die Luftaktivität und die nasse Deposition mit einer Halbwertszeit von 2,5 bzw. 3,4 Jahren ab. Dieser abnehmende Eintrag führt zu einer kontinuierlichen, jedoch ebenfalls abnehmenden Kontamination von Pflanzen durch direkte Deposition und täuscht damit etwas kürzere Halbwertszeiten vor. Zieht man diesen Effekt für die Messungen von 1965-1985 in Betracht, so ergibt sich eine ökologische Halbwertszeit für  $^{137}\text{Cs}$  in Milch von etwa 5 a, was sehr gut mit den Beobachtungen aus Dänemark überstimmt. Das hohe Bestimmtheitsmaß deutet auf eine starke Ausprägung des zeitlichen Trends hin.

Die Beobachtungen aus Österreich deuten auf eine schnellere Abnahme hin. Allerdings beziehen sich diese Beobachtungen auf den Zeitraum 1987-1993. Im Jahr 1987 war die Kontamination der Milch jedoch noch durch die direkte Kontamination der Pflanzen im Jahr 1986 hervorgerufen. Erst 1988 oder 1989 ist dieser Einfluss nicht mehr gegeben, da dann alle Futterkonserven aus dem Jahr 1986 verbraucht sind. Dadurch ist der Anfangswert der Milchkontamination in der österreichischen Untersuchung relativ hoch, sodass sich eine relativ rasche Abnahme bis zum Jahr 1993 ergibt.

- *Getreide*

Je nach Bundesland und Beobachtungszeitraum und schwankt die ökologische Halbwertszeit zwischen 2,5 und 6 Jahren. Wie bei der Milch, sind die Werte aus dem Zeitraum von 1965 bis 1985 etwas geringer als nach dem Tschernobyl-Unfall. Die

Beobachtungen stimmen gut mit denen aus Österreich und Dänemark überein, wo ökologische Halbwertszeiten von 3,2 bzw. 3,9-4,7 a ermittelt wurden.

- *Obst und Gemüse*  
Für Kernobst ergeben sich sowohl für die Zeiträume vor und nach dem Tschernobyl-Unfall ökologische Halbwertszeiten von 5-6 Jahren. In Österreich ergeben sich wegen der im Jahr 1987 beginnenden Beobachtungszeiträume ein spezieller Basiseffekt, der kürzere Halbwertszeiten von 1,5-2 Jahren zur Folge hat.
- *Kartoffeln*  
Für Kartoffeln werden in den zur Verfügung stehenden Beobachtungen ökologische Halbwertszeiten von 5-8 Jahren ermittelt. Wegen des Basiseffektes ist der in Österreich ermittelte Wert geringer.
- *Fleisch*  
Die Unsicherheit der für Fleisch bestimmten Halbwertszeiten ist prinzipiell höher, was sich in den geringeren Bestimmtheitsmaßen niederschlägt. Dies ist auf die größere Variabilität durch Herkunft der Tiere, Alter der Tiere, Schlachtzeitpunkt und insbesondere die Fütterung zurückzuführen. Gemittelt über die Bundesrepublik ergeben sich für Rind-, Kalb- und Schweinefleisch Halbwertszeiten im Bereich von 5 (2-9) Jahren. Messreihen aus den Bundesländern weichen z.T. erheblich davon ab. Allerdings ist dabei die Zahl der Proben wesentlich geringer.
- *Gesamtnahrung*  
Die Zeitabhängigkeit der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität in Einzelnahrungsmitteln ist konsistent mit der Abnahme der durchschnittlichen  $^{137}\text{Cs}$ -Aufnahme.

Aus den Beobachtungen in Deutschland ergibt sich, dass die Halbwertszeiten für alle Produkte ähnlich sind. Typischerweise wurde etwa 6 Jahre sowohl für pflanzliche als auch für tierische Produkte ermittelt.

Ähnliche ökologische Halbwertszeiten für pflanzliche und tierische Produkte sind allerdings zu erwarten, da pflanzliche Produkte als Futtergrundlage dienen und somit sich der langfristige Trend der Aktivität in Pflanzen auch in Tierprodukten widerspiegeln sollte.

#### 4.5.2 Ökologische Halbwertszeiten von $^{90}\text{Sr}$

In Tabelle 4.3 sind die für  $^{90}\text{Sr}$  abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten zusammengefasst, die aus Messungen in Dänemark, Deutschland und Österreich ermittelt wurden. Wie im Fall von  $^{137}\text{Cs}$  wurden nur die Datenreihen aufgenommen, bei denen für mindestens 50 % der Beobachtungsjahre Messungen vorliegen, die über der Nachweisgrenze liegen. Folgende Gesetzmäßigkeiten sind erkennbar:

In der Zeit nach Beendigung der Kernwaffenversuche (Ende der 60er bis 1985) werden in der Regel kürzere Halbwertszeiten beobachtet als im Zeitraum nach dem Tschernobyl-Unfall (1988/89 bis 1999). Im Zeitraum von 1965-85 nahm die jährliche  $^{90}\text{Sr}$ -Deposition mit einer Halbwertszeit von etwa 3 a ab. Dieser kontinuierliche Eintrag führt zu einer direkten Kontamination von Pflanzen, der die Abnahme der Pflanzenkontamination durch Auswaschungs- und Sorptionsprozesse im Boden überlagert und eine raschere Abnahme bedingt.

- *Allgemeine Trends:*  
Im Zeitraum 1989-1999 war die  $^{90}\text{Sr}$ -Deposition jedoch sehr gering und trug kaum noch zur Pflanzenkontamination bei. Die Zeitabhängigkeit der Pflanzenkontamination

wird dann hauptsächlich durch den radioaktiven Zerfall, sowie Auswaschung in tiefere Bodenschichten und Sorption an Bodenteilchen, bedingt.

- *Milch*  
Für Milch ergeben sich von 1967/69 bis 1985 ökologische Halbwertszeiten von 6-10 a. Dies stimmt gut mit der Beobachtung in Dänemark überein. Demgegenüber ist die Abnahme zwischen 1989 und 1999 sehr gering und entspricht einer Halbwertszeit um 20 Jahre. In Baden-Württemberg ist die Abnahme der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität durch den radioaktiven Zerfall bestimmt.
- *Getreide:*  
Ein ähnliches Bild gibt es beim Getreide: Die Abnahme der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität folgt in Deutschland im Zeitraum bis 1985 Halbwertszeiten von 4 bis 9 a, in Dänemark ergeben sich 11 a. Für den Zeitraum von 1989 bis 1999 steht nur ein Datensatz für Deutschland zur Verfügung, dieser ergibt eine Abnahme gemäß einer Halbwertszeit von etwa 19 a.
- *Kernobst:*  
Für Kernobst ergibt sich kein Unterschied zwischen den beiden Beobachtungszeiträumen. Die Beobachtungsreihen vor und nach dem Tschernobyl-Unfall ergeben eine Abnahme gemäß einer Halbwertszeit von etwa 20 Jahren.
- *Kartoffeln*  
Für Kartoffeln ergeben sich für die 90er Jahre geringere Abnahmeraten als für den Zeitraum vor dem Tschernobyl-Unfall. Allerdings sind die ermittelten Bestimmtheitsmaße klein, sodass die Unterschiede nicht überbewertet werden sollten. Im Gegensatz zu oberirdisch wachsenden Pflanzenteilen werden Kartoffelknollen wegen der innerpflanzlichen Immobilität von Strontium nach direkter Kontamination der Blätter nicht kontaminiert. Damit bleibt die direkte Kontamination der Blätter ohne Einfluss auf die Aktivität der Knollen. Aus dänischen Beobachtungen ergeben sich Halbwertszeiten von etwa 20 Jahren für Kartoffeln.
- *Fleisch:*  
Es ist festzuhalten, dass die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität in pflanzlichen Produkte nach abgeschlossener Deposition gemäß einer Halbwertszeit von 10-20 Jahren abnimmt. Für Fleisch liegen keine verwertbaren Untersuchungen vor. Der Strontium-Transfer Futter-Fleisch ist gering, daher stand die Überwachung der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitäten in Fleisch nicht im Mittelpunkt der Überwachung. Langfristig ist zu erwarten, dass die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität in Fleisch dem Trend in den Futtermitteln folgt. In Milch wurden im Zeitraum 1989-99 Halbwertszeiten von mehr als 15 Jahren für  $^{90}\text{Sr}$  bestimmt. Wegen der prinzipiell ähnlichen Futtergrundlage bei der Fleisch- und Milchproduktion ist zu erwarten, dass die  $^{90}\text{Sr}$ -Kontaminationen in Fleisch dem gleichen langfristigen Trend wie in Milch folgen.
- *Gesamtnahrung:*  
Die Abnahme der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität in pflanzlichen Nahrungsmittel spiegelt sich im Zeitverhalten der  $^{90}\text{Sr}$ -Gehalte in der Gesamtnahrung sowie in Knochen wider.



Messgröße	Herkunft der Proben	Zeitraum	ökol. Halbwertszeit (a)	Bestimmtheitsmaß (%)
Milch	Bayern	69-85	4,5	90,5
		89-99	5,9	95,3
	Baden-Württemberg	69-85	3,2	86,1
		89-99	9,1	90,6
	Nordrhein-Westfalen	69-85	7,2	91,7
		89-99	9,5	85,5
Niedersachsen	69-85	6,1	91,5	
	89-99	5,2	83,4	
	Dänemark	67-85	6,9	
	Österreich	87-93	1,94 ± 0,32	
Weizen	Bayern	91-99	3,0	63,3
	Baden-Württemberg	76-85	4,4	40,4
	Nordrhein-Westfalen	91-99	47,6	5,5
	Niedersachsen	75-85	3,3	59,8
	Deutschland	65-85	4,0	82,9
		88-99	6,1	66,2
	Dänemark	67-85	5,4	
Gerste	Deutschland	71-85	2,5	53,0
	Dänemark	67-85	4,5	
Roggen	Deutschland	71-85	2,8	80,2
	Dänemark	67-85	4,5	
Hafer	Dänemark	67-85	5,6	
Getreide	Österreich	87-93	3,2 ± 0,7	
Kartoffeln	Deutschland	65-85	7,8	48,2
		88-99	6,6	62,2
	Dänische Inseln Jütland	67-85	5,3	
			6,3	
Österreich	87-93	2,4 ± 1,37		
Gemüse	Österreich	87-93	2,1 ± 1,4	
Kernobst	Deutschland	65-85	5,4	90,3
		88-99	6,3	68,0
Obst	Österreich	87-93	1,4 ± 0,4	
Kalbfleisch	Baden-Württemberg	75-85	2,1	41,4
	Nordrhein-Westfalen	75-85	9,0	14,8
	Deutschland	65-85	4,7	91,5
	Deutschland	88-99	5,6	58,7
Rindfleisch	Baden-Württemberg	75-85	4,1	36,7
	Nordrhein-Westfalen	75-85	45,0	11,3
	Deutschland	65-85	5,4	84,7
	Deutschland	88-99	6,1	65,5
Schweinefleisch	Baden-Württemberg	75-85	1,8	88,0
	Nordrhein-Westfalen	75-85	15,9	11,6
	Deutschland	65-85	5,2	85,2
	Deutschland	88-99	3,7	79,3
Gesamtnahrung	Deutschland	67-85	8,1	-

Tabelle 4.2: Ökologische Halbwertszeiten von <sup>137</sup>Cs in Lebensmitteln aus Deutschland, Dänemark und Österreich

Messgröße	Messort	Zeitraum	ökol. Halbwertszeit (a)	Bestimmtheitsmaß (%)
Milch	Bayern	69-85	6,3	97,5
		89-99	21,1	72,0
	Baden-Württemberg	69-85	7,8	94,4
		89-99	77,1	67,9
	Nordrhein-Westfalen	69-85	10,7	88,0
		89-99	23,3	70,2
	Niedersachsen	69-85	9,6	96,2
		89-99	20,0	68,3
Dänemark	67-85	10,5		
Weizen	Baden-Württemberg	76-85	9,3	69,3
		75-85	8,6	41,2
	Deutschland	65-85	9,1	79,8
		88-99	17,4	50,6
	Dänemark	67-85	10,0	
Gerste	Deutschland	71-85	5,2	56,8
	Dänemark	67-85	18,6	
Roggen	Deutschland	71-85	4,0	83,2
	Dänemark	67-85	11,9	
Hafer	Deutschland	74-85	4,4	17
	Dänemark	67-85	14,1	
Kartoffeln	Deutschland	65-85	28,4	35,2
		88-99	10,9	50,7
	Dänische Inseln Jütland	67-85	21,4	
			17,4	
Kernobst	Deutschland	65-85	21,4	41,4
		88-99	23,3	26,5
Gesamtnahrung	Deutschland	67-85	14,1	
Knochen	Deutschland	67-85	18 (Alter: < 1 Monat)	
			19 (1 Monat - 4Jahre)	
			10 (4-19 Jahre)	
			16 (19-29 Jahre)	
			28 (> 29 Jahre)	

Tabelle 4.3: Ökologische Halbwertszeiten von  $^{90}\text{Sr}$  in Lebensmitteln aus Deutschland, Dänemark und Österreich

## 5 Boden und Dauergrünland

### 5.1 Statistische Verfahren

Bei der Analyse von Zeitreihen der Konzentrationen eines Radionuklids in einem Umweltmedium auf die Existenz ökologischer Halbwertzeiten wird implizit von zwei statistischen Hypothesen ausgegangen. Zum einen wird angenommen, dass die analysierten Zeitreihen einen (statistisch signifikanten) Trend zur Abnahme der Konzentrationen aufweisen, zum anderen dass dieser Zeittrend durch eine oder die Summe mehrerer Exponentialfunktionen (statistisch zufriedenstellend) beschrieben werden kann, deren Parameter – gegebenenfalls nach einer Korrektur zur Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls – die gesuchten ökologischen Halbwertzeiten beinhalten.

Bei den im Rahmen des Forschungsprojekts analysierten Zeitreihen wurden dabei durchweg mit der Hypothese, dass ein Zeittrend existiert, der durch mindestens eine ökologische Halbwertzeit charakterisiert werden kann, die Daten an ein entsprechendes Modell gefittet. Die Existenz eines Zeittrends wurde dann damit überprüft, ob der gefittete Parameter der Exponentialfunktion – im Wesentlichen das Inverse der angenommenen ökologischen Halbwertzeit – unter Berücksichtigung seiner aus der Fitprozedur erhaltenen statistischen Unsicherheit signifikant von Null verschieden war. Falls dieses der Fall war, wurde mit Hilfe statistischer Standardverfahren – im wesentlichen des Vorzeichen-Tests (Hays & Winkler 1970) – überprüft, ob das angenommene Modell einer exponentiell mit der Zeit abfallenden Nuklidkonzentration im analysierten Umweltmedium die experimentellen Daten ohne statistisch signifikante Abweichungen wiedergeben konnte.

Sämtliche Regressionsanalysen wurden mit Hilfe des kommerziell erhältlichen Statistik-Programmpakets BMDP (Biomedical Data Programs, Dixon et al. 1990) durchgeführt.

Bei den Regressionsanalysen war zu beachten, dass das klassische Schätzverfahren der Methode der kleinsten quadratischen Abweichungen (zwischen experimentellen Daten und Modellvorhersage) nur dann zu Schätzern der gesuchten Parameter mit den gewünschten statistischen Eigenschaften – nämlich Erwartungstreue, Effizienz und minimaler Varianz – führt, wenn zwei Bedingungen erfüllt sind: zum einen müssen die Unsicherheiten der experimentellen Daten normal verteilt sein, zum anderen muss diese Normalverteilung der Unsicherheiten bei allen einzelnen Datenpunkten eine identische Varianz aufweisen.

Die erste dieser beiden notwendigen Bedingungen muss – sofern man nicht grundsätzlich ausschließlich Schätzverfahren nach der Maximum-Likelihood-Methode verwendet – überprüft werden, da Konzentrationen radioaktiver Spurenstoffe in Umweltmedien häufig logarithmisch normal verteilt sind (Pinder & Smith 1975, Hoffman & Baes, 1979; Kirchner, 1994). Für die im Rahmen des Forschungsprojekts analysierten Zeitreihen von Nuklidkonzentrationen in Böden und Grünlandbewuchs erwies sich diese Tatsache nicht als Einschränkung hinsichtlich der Wahl des statistischen Analyseverfahrens, da in den ausgewerteten Untersuchungen in der Regel die Mittelwerte mehrerer Einzelproben publiziert wurden. Nach dem Mittelwertsatz der Statistik sollten diese Mittelwerte, auch wenn sie einer Stichprobe einer nicht normal verteilten Grundgesamtheit entstammen, normal verteilt sein.

Die Gültigkeit der zweiten oben formulierten Bedingung war anhand der einzelnen publizierten Datensätze oftmals schwieriger zu überprüfen, da Angaben über die Unsicherheit der Messdaten fehlten. In diesen Fällen wurde jede der Regressionen doppelt mit zwei unterschiedlichen Modellen der experimentellen Unsicherheiten, die die möglichen Extremfälle abdecken, durchgeführt: Zunächst wurde angenommen, dass die Varianz der Unsicherheiten aller Messdaten identisch ist – dies führt statistisch auf das klassische Regressionsverfahren der Methode der kleinsten Quadrate. Im zweiten Schritt wurde angenommen, dass die Varianz der Unsicherheiten proportional zur gefundenen

Aktivitätskonzentration ist – eine Hypothese, die zum Regressionsverfahren der gewichteten Methode der kleinsten Quadrate führt, wobei für die Wichtungsfaktoren das Inverse der quadrierten Aktivitätskonzentrationen gewählt wird. Die Güte beider Fits wurde dann mit den auch sonst generell angewandten statistischen Verfahren – hier wieder insbesondere mit dem Vorzeichen-Test (Hays & Winkler, 1970) – verglichen. In vielen Fällen führten beide Fehlermodelle zu Parameterschätzungen, die im Rahmen ihrer statistischen Unsicherheiten übereinstimmten.

## 5.2 Datenbasis

Für die Identifizierung geeigneter Datensätze zur Ermittlung ökologischer Halbwertzeiten für die durch Wurzelaufnahme bedingten Konzentrationen von Radiocäsium und Radiostrontium in Boden sowie Weide- und Wiesenbewuchs wurden schwerpunktmäßig folgende Literaturquellen ausgewertet:

- (a) die umfangreiche Literaturbasis, die der Forschungsnehmer im Laufe seiner mehr als zwanzigjährigen eigenen Forschungsarbeiten zu Fragestellungen des Transports von Radionukliden in Böden und des Boden-Pflanze-Transfers radioaktiver Spurenstoffe aufgebaut hat; dabei handelt es sich insbesondere um eine Vielzahl detaillierter Forschungsberichte, die von den Herausgeber-Instituten meist nur in limitierter Auflage gedruckt worden waren. Diese institutsinterne Datenbasis umfasst den Zeitraum bis zurück in die Fünfziger Jahre ;
- (b) die internationalen radioökologischen, bodenkundlichen sowie botanisch-pflanzenphysiologisch orientierten Fachzeitschriften, in denen nach Kenntnis des Forschungsnehmers Arbeiten mit Bezug zum Thema des Forschungsprojekts publiziert worden waren oder potentiell in das Themenspektrum der Zeitschrift fallen; eine Liste der ausgewerteten Zeitschriften mit dem jeweiligen Zeitpunkt, bis zu dem diese durchgeführt wurde, ist in Tabelle 5.1 angefügt ;

<b>Ausgewertete Zeitschriften</b>	<b>Heft/ Jahrgang</b>
Health Physics	März 2002
Journal of Environmental Radioactivity	60, 2002
The Science of the Total Environment	287 (1-2), 2002
Environmental Pollution	118 (2), 2002
Journal of Radiation Research	36 (1), 2002
Environmental Science Technology	36 (2), 2002
Journal of Plant Nutrition and Soil Science	nur bis Dezember 2001 verfügbar
Plant and Soil	238 (1), 2002
Radiation and Environmental Biophysics	41 (1), 2002
Journal of Radiological Protection	20, 2000

Tabelle 5.1: Liste der für Böden und Dauergrünland ausgewerteten Zeitschriften

- (c) die zunächst vom Bundesminister des Inneren, nach der Gründung des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit von diesem herausgegebenen jährlichen Berichtsbände "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung".

### 5.3 *Qualitätskriterien für die Literaturlauswertung*

Da das Konzept ökologischer Halbwertzeiten relativ neu ist und bis heute nur selten bei der Analyse experimenteller Daten in der Radioökologie Berücksichtigung gefunden hat, erwies es sich schon schnell nach Projektbeginn als unumgänglich, sämtliche Publikationen im Rahmen des Projektes detailliert auf die mögliche Existenz und das Potential zur Bestimmung numerischer Werte ökologischer Halbwertzeiten zu untersuchen. Um dabei zufällige Schwankungen oder gar Datenartefakte weit möglichst ausschließen zu können, wurde im Rahmen des Forschungsprojekts für die Literaturlauswertungen ein Satz an Qualitätsmaßstäben entwickelt. Dieser umfasst die folgenden Anforderungen:

1. Während des Beobachtungszeitraums muss sichergestellt sein, dass die gemessenen Radionuklidkonzentrationen neben der Wurzelaufnahme aus dem Boden nicht wesentlich durch Ablagerung aus der Atmosphäre auf oberirdische Pflanzenkomponenten bedingt sind.

Speziell für viele Untersuchungen, die während und kurz nach der Periode der intensiven oberirdischen Atomwaffentests publiziert worden sind, sind Angaben hierzu lückenhaft oder fehlen ganz.

2. Der Beobachtungszeitraum sollte mindestens drei Vegetationsperioden umfassen, um mögliche Einflüsse spezifischer klimatischer Bedingungen (beispielsweise ungewöhnlich hohe/niedrige Temperaturen oder Niederschläge) ausschließen zu können.

Dieser Mindestzeitraum wurde spezifisch für die Wurzelaufnahme der analysierten Radionuklide durch Pflanzen festgelegt, für Zeitreihen der Nuklidkonzentrationen in Böden können – abhängig von der Zahl der jährlich durchgeführten Messungen – erheblich höhere Beobachtungszeiten erforderlich sein.

3. Die Zahl der für jedes Jahr des Beobachtungszeitraums in den Publikationen dokumentierten Messergebnisse für Vegetationsuntersuchungen muss hoch genug sein, um saisonale Einflüsse mathematisch-statistisch von längerfristigen Trends separieren zu können, denn nur letztere manifestieren sich in den gesuchten ökologischen Halbwertzeiten.

Diese Erfordernis bedingt unmittelbar, dass die jeweiligen Daten der Probenahme (zumindest auf der Ebene des Monats) bekannt sein müssen – erstaunlicherweise erwies sich diese Anforderung bei einer erheblichen Zahl der ausgewerteten Publikationen als Problem.

Bei sehr langen Zeitreihen treten saisonale Variationen gegenüber Langzeittrends naturgemäß in den Hintergrund, so dass Unsicherheiten des exakten Datums der Probenahme die Auswertbarkeit nicht mehr in Frage stellen, sondern sich als ein zusätzlicher Beitrag zur statistischen Unsicherheit der gefitteten numerischen Werte eventuell präsenler ökologischer Halbwertzeiten widerspiegeln. Allerdings sind die Standard-Regressionsmodelle auf diesen Fall nicht mehr anwendbar, da nun im mathematischen Modell  $y = f(x)$  sowohl die abhängige (Konzentrationswerte  $y_i$ ) als auch die unabhängige Größe (Zeiten  $x_i$ ) statistische Fehler aufweisen. Aufgrund der dadurch

verursachten erheblichen mathematisch-statistischen Komplikation wurde auf eine weitere Auswertung der (wenigen) entsprechenden Datensätze verzichtet.

4. Es muss sichergestellt sein, dass der Ort der Probenahme für die gesamte jeweils dokumentierte Zeitreihe der Pflanzenkonzentrationen konstant blieb, da der bekannte überwältigende Einfluss des Bodentyps auf die Wurzel Aufnahme bei örtlich variierender Probenahme die Existenz ökologischer Halbwertzeiten maskieren oder vortäuschen kann.

Dieses war beispielsweise bei den Zeitreihen, die in den vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit publizierten jährlichen Berichten "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" nicht gewährleistet, so dass diese Daten von der weiteren Auswertung ausgeschlossen werden mussten.

5. Bei den experimentellen Daten sollte es sich nicht um Mischproben, die von unterschiedlichen Einzelstandorten gezogen worden sind, handeln.

Zum einen ist wiederum nicht auszuschließen, dass infolge unterschiedlicher Bodentypen die Wurzel Aufnahme raten der einzelnen Teilproben erheblich differieren, so dass zeitlich variierende Anteile der Einzelproben die Radionuklidkonzentrationen der Mischproben wesentlich bestimmen können. Zum anderen ist der Mittelwert der Funktionswerte einer bezüglich eines Parameters nichtlinearen Funktion (wie der Exponentialfunktion) im allgemeinen ungleich des Funktionswerts, der sich mit dem entsprechenden Mittelwert des Parameters ergibt, so dass aus den Konzentrationswerten von Mischproben generell numerische Werte der ökologischen Halbwertzeiten nicht (oder höchstens angenähert) bestimmbar sind.

Mit diesen Kriterien wurde die oben aufgeführte Literatur analysiert. In der Regel wurde von einer weiteren Auswertung Abstand genommen, falls eine oder mehrere der oben aufgeführten essentiellen Anforderungen nicht erfüllt sind, da sich in diesen Fällen eine Bestimmung ökologischer Halbwertzeiten als nicht möglich erwies oder das Risiko von Artefakten zu groß erschien (auch wenn in einzelnen der nicht aufgenommenen Publikationen entsprechende Bestimmungen zu finden sind). Eine Auswertung wurde jedoch dann durchgeführt, auch wenn einzelne der oben aufgeführten Kriterien nicht erfüllt waren, falls durch zusätzliche Angaben ersichtlich wurde, dass hierdurch keine wesentlichen Fehler verursacht werden konnten. Darauf wird bei der Diskussion der einzelnen Datensätze im Folgenden jeweils explizit verwiesen.

## **5.4 Ergebnisse**

### **5.4.1 Ackerböden**

Bei der im Rahmen des Forschungsprojekts durchgeführten Literatursauswertung wurden keine Zeitreihen langjähriger Messdaten der Nuklidkonzentrationen von  $^{90}\text{Sr}$  oder  $^{137}\text{Cs}$  identifiziert, die für Ackerböden – hier verstanden als regelmäßig gepflügte, landwirtschaftlich genutzte Böden – eine Identifizierung möglicher ökologischer Halbwertzeiten ermöglicht hätte.

Da wiederholtes Pflügen zu einer annähernd homogenen Verteilung atmosphärisch eingetragener Radionuklide bis zur Pflugschartiefe führt, ist theoretisch nur ein langsamer Wegtransport der Aktivität durch Oberflächen-Erosion von Bodenpartikeln einerseits und Transport in größere Tiefen an der unteren Grenzschicht der gepflügten Bodensäule andererseits zu erwarten. Die in Zeitreihen zu messende effektive Halbwertzeit sollte daher etwas oberhalb der physikalischen Halbwertzeit des jeweiligen Radionuklids liegen, um die

beiden genannten Verlustprozesse widerzuspiegeln. Leider war es aufgrund des erwähnten Mangels experimenteller Daten nicht möglich, diese Hypothese zu verifizieren.

#### 5.4.2 Grünlandböden

Deutlich besser als für Ackerböden stellt sich die Datenlage für ungestörte Böden dar. Die ausgewerteten Zeitreihen umfassen im Wesentlichen Böden, die als Dauergrünland oder Weiden genutzt wurden. In diese Kategorie wurden auch Lysimeterdaten aufgenommen, wenn auf ihnen während der Versuche Weidevegetation kultiviert und die zeitabhängige Tiefenverteilung der applizierten Radionuklide bestimmt wurde.

Ausgewertete Untersuchungen und im Rahmen des Forschungsvorhabens bestimmte ökologische Halbwertzeiten sind in Tabelle 5.2 zusammengestellt. Die für die ökologischen Halbwertzeiten und die zugehörigen Amplituden jeweils angegebenen Unsicherheiten geben die aus den eigenen Regressionsanalysen resultierenden asymptotischen Standardabweichungen der Parameter an. Die in Tabelle 5.2 nicht spezifizierten Einheiten der Amplituden entsprechen der Einheit, in der in der jeweils ausgewerteten Veröffentlichung die Aktivitätskonzentration im Boden angegeben ist (meist  $\text{kBq/m}^2$  oder  $\text{Bq/kg}$ ). Alle in Tabelle 5.2 eingetragenen Werte der aus den Regressionsanalysen ermittelten Amplituden sind für die Freilandexperimente auf Mai 1986 bezogen, für Lysimeterdaten auf den Zeitpunkt der Bodenkontamination.

Im Folgenden finden sich zusätzliche Erläuterungen zu den in Tabelle 5.2 aufgeführten Datensätzen.

##### a) Andersson et al. (2001)

Das Studiengebiet liegt in Nordschweden ( $64,4^\circ$  nördlicher Breite) in einer gebirgigen Gegend auf rund 600 m Höhe. In dieser Gegend lag die Deposition von  $^{137}\text{Cs}$  durch den Reaktorunfall von Tschernobyl zwischen 10 und 30  $\text{kBq pro m}^2$  und betrug damit etwa das Zehnfache der 1986 im Boden noch gemessenen Flächenkonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  durch die oberirdischen Atomwaffenversuche. Der Bodentyp wird von den Autoren als podsolisierte sandige Moräne, durchsetzt mit Moorflächen, mit hohem Gehalt organischen Materials und geringem Anteil an Tonmineralen charakterisiert.

Proben wurden von 1990 bis 1997 jeweils einmal jährlich Ende August genommen. Dazu wurden 8 Flächen an 5 Standorten ausgewählt, die für das gesamte Gebiet als repräsentativ charakterisiert werden. Zur Probenahme wurde so vorgegangen, dass pro Jahr an jeder der 8 Flächen vier Areale von  $0,25 \text{ m}^2$  zufällig ausgewählt wurden. Von jeder dieser 4 Einzelflächen wurden Bodenproben der 0-10 cm Schicht genommen und vereinigt. Daten der Jahre 1990 bis 1993 wurden auch von Rosén et al. (1995) veröffentlicht.

Die Bodenproben der 8 Versuchsflächen wurden getrennt gammaspektrometrisch analysiert. In ihrer Veröffentlichung geben Andersson und Mitarbeiter (2001) allerdings nur für jedes Jahr Mittelwert und Standardabweichung der Flächenkonzentrationen von  $^{137}\text{Cs}$  aller 8 Versuchsflächen an. Diese wurden zur Bestimmung einer ökologischen Halbwertzeit herangezogen – zum einen, da die Angaben der Autoren, dass die gewählten Flächen für den Bodentyp repräsentativ seien, keine systematischen Beeinflussungen der Mittelwertbildung erwarten lassen, zum anderen, da die angegebene jährlichen Standardabweichungen es ermöglichten, bei der Ermittlung der ökologischen Halbwertzeit die Variabilität zwischen den Versuchsflächen explizit (mittels der gewichteten Methode der kleinsten Quadrate) zu berücksichtigen.

Das Ergebnis der Analyse zeigt, dass sich aus den Daten, wenn auch mit einer relativ hohen Unsicherheit, für die Abnahme der Cs-Flächenkonzentration in der 0-10 cm Schicht eine ökologische Halbwertszeit bestimmen lässt, deren Wert mit  $32,8 \pm 21,8$  Jahren vergleichbar dessen der physikalischen Halbwertszeit ist.



Medium	Teil des Mediums	Radionuklid	Amplitude (kBq/m <sup>2</sup> oder Bq/kg)	Ökologische Halbwertszeit (Jahre)	Probenzahl	Ort	Zeit	Zeitpunkt der Kontamination	Bemerkung	Referenz
Weideboden	0-10 cm	<sup>137</sup> Cs	20,3 ± 2,2	32,8 ± 21,8	Jährliche Probenahme Mischprobe von 5 Standorten mit 8 Flächen	Nord-Schweden (Jämtland)	1990 - 1997	Atombombenfallout, Chernobyl	Chernobyl-Fallout dominiert	Andersson et al. 2001
Boden Lehm  Moor  Sand I  Sand II	0-10 cm	<sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs	69,6 ± 14,8 35,4 ± 8,8 168 ± 59 66,9 ± 23,9 9,9 ± 3,1 4,5 ± 2,1 37,3 ± 10,6 18,9 ± 7,4	13,4 ± 15,1 3,7 ± 1,8 74,4 ± 723 7,6 ± 9,6 -3,2 ± 1,2 -4,9 ± 4,3 34,6 ± 12,9 6,4 ± 5,9	1-2 Proben pro Boden und Jahr 4 Bodentypen	Nordost- Polen	Juni 1988 – Nov. 1991	Atombombenfallout, Chernobyl		Pietrzak-Flis et al. 1994
ungestörter Boden	0 - 2 cm 0 - 4 cm 0 - 6 cm 0 - 9 cm 0 - 12 cm 0 - 15 cm	<sup>137</sup> Cs	2,78 ± 0,37 2,63 ± 0,26 2,62 ± 0,38 2,66 ± 0,45 2,65 ± 0,49 2,70 ± 0,52	7,1 ± 1,2 21,9 ± 7,4 34,1 ± 27,9 42,5 ± 33,1 50,4 ± 83,3 46,6 ± 45,9	5 Probenahmen	Süd-Schweden	1991 - 1998	Atombombenfallout, Chernobyl		Isaksson et al. 2001

Tabelle 5.2: Ökologische Halbwertszeiten für *ungestörte Böden* und Spezifikation der ausgewerteten Untersuchungen

Medium	Teil des Mediums	Radio-nuklid	Amplitude	Ökologische Halbwertszeit (Jahre)	Probenzahl	Ort	Zeit	Zeitpunkt der Kontamination	Bemerkung	Referenz
Boden		<sup>137</sup> Cs			5 Probenahmen während der Standzeit	UK	73 Monate	Trägerfreies <sup>137</sup> Cs; Zugabe zu Versuchsbeginn	Lysimeter-Experimente	Squire & Middleton 1966
Ton	0 - 2,5 cm			32,8 ± 5,2						
	0 - 5 cm			99,4 ± 11,0						
	0 - 7,5 cm			208 ± 84,9						
	0 - 10 cm			294 ± 153						
Sand	0 - 2,5 cm			8,1 ± 1,4						
	0 - 5 cm			30,3 ± 8,1						
	0 - 7,5 cm			85,3 ± 32,6						
	0 - 10 cm			241 ± 67,8						
Grünsand	0 - 2,5 cm			6,2 ± 1,0						
	0 - 5 cm			15,9 ± 3,3						
	0 - 7,5 cm			39,2 ± 8,8						
	0 - 10 cm			77,9 ± 19,7						
Lehm	0 - 2,5 cm			4,1 ± 0,9						
	0 - 5 cm			15,8 ± 4,4						
	0 - 7,5 cm			23,4 ± 7,4						
	0 - 10 cm			49,0 ± 10,3						

Tabelle 5.2 (Fortsetzung): Ökologische Halbwertszeiten für *ungestörte Böden* und Spezifikation der ausgewerteten Untersuchungen



Von den Versuchsflächen wurden parallel zu den Bodenproben ebenfalls Bewuchsproben genommen, so dass ein Vergleich ökologischer Halbwertzeiten in Boden und Bewuchs für diesen Standort möglich ist (siehe Kap. 5.4.3).

b) Pietrzak-Flis et al. (1994)

Die Versuchsflächen, bei denen es sich um 4 Standorte mit unkultivierten Böden handelt, liegen im Nordosten Polens. Jede der Flächen hatte eine Größe von etwa 100 m<sup>2</sup>, von denen zwischen Juni 1988 und November 1991 ein- bis zweimal jährlich Bodenproben genommen wurden. Die Böden werden von den Autoren auf der Basis der bodenkundlichen Analysen der 0-10 cm Schicht als Lehm (15,7 % Schluff, 12,3 % Ton), Moor (52,1 % organisches Material) und zwei Sandböden (94,6 % und 96 % Sandanteil) charakterisiert.

Die Probenahmen wurden jeweils in Schichten von 2 cm Dicke bis zu einer Tiefe von 30 cm durchgeführt, publiziert wurden jeweils die über 0-10 cm gemittelten Konzentrationen. Angegeben sind für jeden der 4 Böden die gemessenen Konzentrationen an Cs-134, das ausschließlich aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl stammt, sowie an <sup>137</sup>Cs, das durch die oberirdischen Atombombentests und den Reaktorunfall 1986 in die Böden eingetragen wurde. Aus den von Pietrzak-Flis et al. (1994) angegebenen Konzentrationen beider Caesiumisotope und deren Verhältnis im Tschernobyl-Fallout zum Zeitpunkt des Unglücks (Kirchner & Noack 1988) errechnet sich ein aus Tschernobyl stammender Anteil von etwa 60 % des zu Versuchsbeginn (Juni 1988) in der 0-10 cm Schicht vorhandenen <sup>137</sup>Cs für drei der Böden (Lehm, Moor und Sand I), während für Sand II dieser Anteil bei 85 % liegt. Da die absoluten Nuklidkonzentrationen der drei mineralischen Böden vergleichbar sind, deutet dieser höhere Anteil des Tschernobyl-Caesiums in der 0-10 cm Schicht der Versuchsfläche Sand II nicht auf einen vergleichsweise geringeren Eintrag, sondern auf eine erhöhte Mobilität des Atomwaffen-Caesiums hin.

Die Ergebnisse der Auswertungen der insgesamt 8 Datensätze sind in Tabelle 5.2 zusammengestellt. In der überwiegenden Zahl der Fälle ergab die statistische Analyse keinen signifikanten zeitlich abfallenden Trend. Neben der mit 3,5 Jahren angesichts der im allgemeinen langsamen Verlagerung radioaktiven Caesiums im Boden relativ kurzen Beobachtungszeit dürfte für dieses Ergebnis ursächlich sein, dass wenige Jahre nach dem Tschernobyl-Unfall die Tiefenverlagerung des eingetragenen Radiocaesiums im wesentlichen noch innerhalb der obersten 10 cm vonstatten geht und nur ein geringer Anteil schon in größere Tiefen transportiert wird. Hier könnten die – leider nicht veröffentlichten – Daten der einzelnen 2 cm Schichten Klarheit verschaffen.

Die einzigen Zeitreihen, aus denen eine statistisch signifikante, durch eine ökologische Halbwertzeit charakterisierbare Abnahme der zerfallskorrigierten Nuklidkonzentrationen während der Beobachtungsperiode resultiert, bilden die Konzentrationen von <sup>137</sup>Cs in der Versuchsfläche Sand II und von Cs-134 im Lehm Boden.

Für den Sandboden bestätigt dies Ergebnis – mit einer ökologischen Halbwertzeit von 34,6 ± 12,9 Jahren – die oben aus dem geringen Anteil alten Atomwaffencaesiums gezogene Schlussfolgerung einer im Vergleich zu den drei anderen Böden hohen Mobilität dieses Radionuklids in der Versuchsfläche Sand I. Da es sich bei dem gemessenen <sup>137</sup>Cs im Wesentlichen um Tschernobyl-Caesium handelt, wäre allerdings zu erwarten gewesen, dass die Zeitreihe der Cs-134 Konzentrationen in diesem Boden eine vergleichbare ökologische Halbwertzeit aufweist. Dies ist lediglich innerhalb der 95 % - Vertrauensbereiche beider Parameter der Fall, die dann allerdings für Cs-134 negative

ökologische Halbwertzeiten umfassen. Eine Erklärung könnte eine auffällige Streuung der gemessenen Konzentrationen des Cs-134 geben, die in den ersten beiden Versuchsjahren zwischen 6,3 und 7,6 Bq/kg, danach hingegen zwischen 1,9 und 2,9 Bq/kg lagen, jeweils ohne einen zeitlichen Trend aufzuweisen. Wiederum wäre eine Kenntnis der Tiefenverteilungen beider Isotope und ihrer zeitlichen Entwicklungen während der Beobachtungsperiode für eine weitere Interpretation hilfreich.

Etwas unerwartet hingegen erscheint die Verlagerung des Cs-134 aus der 0-10 cm Schicht des Lehmbodens. Für Böden mit einem relevanten Tonanteil wird ausgegangen, dass das Verhalten von Caesium in ionischer Form durch spezifische Ionenaustauschprozesse an Tonmineralen dominiert wird, die zu einer weitgehenden Festlegung dieses Elements führen. (Cremers et al. 1988). Der Datensatz weist keinerlei Auffälligkeiten auf, allerdings wäre eine Kenntnis der Dynamik der detaillierten Tiefenverteilung des Radionuklids für eine Bestätigung der aus der hier durchgeführten Analyse resultierenden Schlussfolgerungen interessant.

Abschließend sei darauf hingewiesen, dass von allen Versuchsflächen parallel zu den Bodenproben ebenfalls Bewuchsproben genommen wurden, so dass ein Vergleich ökologischer Halbwertzeiten in Boden und Bewuchs für diesen Standort möglich ist (siehe Kap.5.4.3).

c) Isaksson et al. (2001)

Die Versuchsfläche liegt in Südschweden ( $65,063^\circ$  nördlicher Breite) in der Nähe eines Waldes. In diesem Gebiet lag die Deposition von  $^{137}\text{Cs}$  durch den Reaktorunfall von Tschernobyl bei etwa  $0,8 \text{ kBq pro m}^2$  und betrug damit etwa die Hälfte der Ende der Achtziger Jahre in den Böden noch präsenten Flächenkonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  durch die oberirdischen Atomwaffenversuche. Der Bodentyp wird von den Autoren als sandiger Schluff mit hohem Anteil organischen Materials in den obersten 2 cm charakterisiert.

Zwischen 1988 und 1998 wurden insgesamt 6 Probenahmen durchgeführt. Während zunächst Schichten von 0-0,5 cm, 0,5-2,8 cm, 2,8-5,0 cm, 5,0-7,2 cm, 7,2-10 cm und 10-12,7 cm genommen wurden, wurden bei den danach durchgeführten 5 Probenahmen einheitlich Schichten von je 2 cm Dicke bis zu einer Tiefe von 6 cm und von 3 cm Dicke bis zu einer Tiefe von 15 cm genommen. Alle Proben wurde innerhalb einer Fläche von weniger als  $10 \text{ m}^2$  gezogen.

Alle Proben wurden getrennt gammaspektrometrisch analysiert. Aufgrund der relativ kurzen Halbwertzeit des Tschernobyl-spezifischen Cs-134 konnte dieses Radionuklid in den später genommenen Bodenproben nur gelegentlich gefunden werden, so dass auswertbare Zeitreihen nur für  $^{137}\text{Cs}$  vorhanden sind. Zudem sind die für Januar 1988 angegebenen Aktivitätskonzentrationen aufgrund der abweichenden Schichtdicken nicht mit denen der nachfolgenden Probenahmen vergleichbar, so dass die Auswertung auf den Zeitraum Juni 1991 bis November 1998 beschränkt werden musste.

Zur Auswertung wurde so vorgegangen, dass zunächst die Zeitreihe der Caesiumkonzentrationen in der obersten Bodenschicht (0-2 cm) auf die Existenz einer ökologischen Halbwertzeit analysiert wurde. Dazu wurden die in der Veröffentlichung angegebenen Daten der schichtenspezifischen Flächenbelegung mit  $^{137}\text{Cs}$  herangezogen, da diese von Änderungen der Trockenraumdichte innerhalb der Bodensäule unabhängig sind. Danach wurden die Zeitreihen der kumulativen Flächenbelegungen bei einer sukzessiven Vergrößerung der Schichtdicken (0-4 cm, 0-6 cm, bis zu 0-15 cm) getrennt analysiert, um mögliche Einflüsse der Wahl der Schichtdicken bei der Probenahme auf die Beobachtbarkeit ökologischer Halbwertzeiten systematisch zu untersuchen.

Die Ergebnisse der durchgeführten Analysen sind in Tabelle 5.2 zusammengestellt. Während die zeitliche Entwicklung der Radiocaesium-Konzentrationen in der 0-2 cm Schicht einen markanten abnehmenden Trend mit einer ökologischen Halbwertszeit von  $7,1 \pm 1,2$  Jahren aufweist, der auch bei Erweiterung der Schichtdicke auf 0-4 cm noch ersichtlich ist – wenn auch schon mit einer ökologischen Halbwertszeit von  $21,9 \pm 7,6$  Jahren deutlich abgeschwächt –, ist für die größeren Schichtdicken ab 0-6 cm kein Zeittrend mehr in den Datensätzen nachweisbar. Dieses Ergebnis reflektiert die Tatsache, dass bei der Wahl zu großer Schichtdicken die in den meisten Böden mit einigen Millimetern pro Jahr langsame Verlagerung des Caesiums im wesentlichen innerhalb der analysierten Bodenschicht stattfindet und daher kein Zeittrend, der durch eine ökologische Halbwertszeit beschreibbar wäre, feststellbar ist.

Als Ergebnis dieser Analysen sind zwei wesentliche Schlussfolgerungen festzuhalten. Erstens ist nur dann mit dem Auftreten von Zeittrends und damit möglicherweise ökologischer Halbwertszeiten für die Konzentrationsentwicklung radioaktiver Spurenstoffe in Böden zu rechnen, wenn die bei der Probenahme gewählten Schichtdicken deutlich unterhalb des Produkts aus mittlerer Wanderungsgeschwindigkeit des analysierten Radionuklids und der gewählten Beobachtungsperiode liegen. Zweitens kann ohne genaue Kenntnis der standortspezifischen Migrationsgeschwindigkeit, die in der Regel nicht vorhanden ist, grundsätzlich nicht ausgeschlossen werden, dass die gegebenenfalls ermittelten ökologischen Halbwertszeiten – wie für die Daten von Isaksson et al. (2001) in Tabelle 2 demonstriert – von den bei der Probenahme meist aus rein praktischen Gesichtspunkten gewählten Schichtdicken abhängt.

Insbesondere die zweite Schlussfolgerung lässt allerdings das Konzept ökologischer Halbwertszeiten für die Erfassung der Zeittrends von Radionuklidkonzentrationen in Böden als problematisch erscheinen.

d) Squire (1966) sowie Squire & Middleton (1966)

Bei den von diesen Autoren durchgeführten Studien handelt es sich um Lysimeterexperimente, in denen die Verlagerung von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  und seine Aufnahme in Weidegras über mehr als 6 Jahre beobachtet wurden.

Die Versuche wurden in Betonzylindern von 0,9 m Durchmesser und 0,9 m Tiefe durchgeführt, in denen der jeweils eingebrachte Boden nach 9 Monaten Ruhephase auf der Oberfläche mit einer Lösung trägerfreien  $^{90}\text{Sr}$  beziehungsweise  $^{137}\text{Cs}$  kontaminiert wurde. Die derart aufgebrauchte Aktivität betrug für  $^{137}\text{Cs}$  etwa  $^{137}\text{MBq/m}^2$ . Während der Standzeit der Versuche wurden alle Böden normalen Witterungsbedingungen ausgesetzt. Ein Teil der Replikate jedes Bodentyps wurde gedüngt, ein anderer durch Einsatz geeigneter Herbizide bewuchsfrei gehalten.

Die Experimente wurden mit beiden Radionukliden mit vier verschiedenen Bodentypen durchgeführt, die von den Autoren als (saurer) Ton, Sand, Grünsand und (kalziumreicher) Lehm bezeichnet werden. Diese Benennungen werden im folgenden übernommen. Der Tonmineralgehalt dieser Böden variierte zwischen 3,2 % (Sand) und 19,2 % (Ton), die Konzentration austauschbarer Kationen zwischen 125 meq/kg (Sand) und 555 meq/kg (Lehm). Für die Experimente mit  $^{90}\text{Sr}$  wurden zusätzliche Böden eingesetzt.

Für die Experimente mit  $^{137}\text{Cs}$  wurden während der Beobachtungsperiode je Lysimeter insgesamt 5 Proben genommen, zuletzt 73 Monate nach Versuchsbeginn. Dabei wurden bei jeder Probenahme zwei Proben von je 2 cm Durchmesser entnommen, die dadurch geschaffenen Leerräume wurden anschließend mit Holzstopfen verschlossen. Die Proben wurden in Schichten von je 2,5 cm Dicke unterteilt und gamma-spektrometrisch mit einem Bohrlochdetektor auf  $^{137}\text{Cs}$  analysiert.

Die Resultate dieser Radiocaesium-Analysen wurden von Squire & Middleton (1966) als prozentualer Anteil der anfangs aufgebrauchten Aktivität angegeben, der zum jeweiligen Probenahme-Zeitpunkt in die analysierte Bodenschicht gewandert war. Angaben zur Variabilität dieser Daten zwischen den Replikaten mit identischen Bodentypen sind in der Publikation nicht zu finden, allerdings wird darauf hingewiesen, dass die unterschiedlichen Behandlungen (Düngung, vegetationsfrei gehaltene Oberfläche) keinen Einfluss auf die beobachteten Verlagerungen des Radiocaesiums hatten.

Zur Auswertung wurden analog zur oben beschriebenen Vorgehensweise bei den Daten von Isaksson et al. (2001) zunächst die Zeitreihen der Caesiumanteile in der obersten Bodenschicht (0-2,5 cm) auf die Existenz einer ökologischen Halbwertszeit analysiert, danach die Zeitreihen der kumulativen Anteile bei einer sukzessiven Vergrößerung der Schichtdicken (0-5 cm, 0-7,5 cm und 0-10 cm), um auch anhand dieser Datensätze mögliche Einflüsse der Wahl der Schichtdicken bei der Probenahme auf die Beobachtbarkeit ökologischer Halbwertszeiten systematisch zu untersuchen.

Die Ergebnisse dieser Analysen sind aus Tabelle 5.2 ersichtlich. Dabei wurde auf die Angabe der aus den Regressionen erhaltenen Amplituden verzichtet; da die in der Publikation angegebenen Daten prozentuale Anteile der Gesamtaktivität darstellen, müssen die Amplitudenwerte durchweg bei 100 liegen – sie bedeuten ja physikalisch den prozentualen Anteil, der sich zu Versuchsbeginn in der ausgewerteten Bodenschicht 0-x cm befindet. Dies war auch bei allen Auswertungen der Fall.

Für alle derart ausgewerteten Datensätze konnte eine ökologische Halbwertszeit bestimmt werden. Zwei Tendenzen fallen ins Auge. Zum einen manifestiert sich für alle jeweils analysierten Schichtdicken aus den Werten dieser ökologischen Halbwertszeiten eine Sequenz der Caesiummobilität in den untersuchten Böden als Ton < Sand < Grünsand < Lehm. Zum anderen – und dies stellt das aus unserer Sicht bedeutsamere Resultat dar – wird für jeden der 4 Böden deutlich, in welchem Maße der ermittelte Wert der ökologischen Halbwertszeit von der zur Datenanalyse gewählten Schichtdicke abhängt. Dies bekräftigt unsere aus der Analyse der Daten von Isaksson et al. (2001) gezogenen Schlussfolgerungen.

Für die Strontium-Experimente diskutiert Squire (1966), dass Düngung mit Ammoniumnitrat oder Kalk die Tiefenverlagerung des  $^{90}\text{Sr}$  in einigen der Böden signifikant beeinflusste. Für die in dieser Veröffentlichung analog zu Squire & Middleton (1966) angegebenen zeitabhängigen prozentualen Anteile des  $^{90}\text{Sr}$  in den analysierten Bodenschichten ist aber nicht ersichtlich, ob diese Mittelwerte aller Replikate – und damit sowohl gedüngter als auch nicht gedüngter Böden – darstellen. Eine Auswertung der Daten für  $^{90}\text{Sr}$  erschien daher nicht als sinnvoll.

#### 5.4.3 Grünlandbewuchs

Für Grünlandbewuchs wurde ebenfalls eine Reihe von Datensätzen identifiziert, deren Qualität eine Bestimmung ökologischer Halbwertszeiten ermöglicht. Darüber hinaus wurde für Grünlandbewuchs zudem die relativ größte Zahl an Veröffentlichungen gefunden, bei denen Verletzungen der oben aufgestellten Qualitätskriterien eine weitere Auswertung ausschlossen – ein Indiz dafür, dass die meisten dieser Arbeiten mit anderen Fragestellungen als der Ermittlung ökologischer Halbwertszeiten durchgeführt wurden.

Die ausgewerteten Zeitreihen umfassen sowohl Freilanddaten von Standorten, die als Dauergrünland oder Weiden genutzt wurden, als auch Ergebnisse von Lysimeter-Experimenten, bei denen auf während der Versuche ungestörten Böden Weidevegetation kultiviert wurde. Besonderes Augenmerk wurde dabei auf die Identifikation geeigneter

Datensätze gelegt, bei denen Zeitreihen der Nuklidkonzentrationen sowohl für Boden als auch Bewuchs dokumentiert sind, da diese die Perspektive eröffneten, mögliche Einflüsse der Tiefenverlagerung im Boden und daraus resultierender ökologischer Halbwertzeiten auf die zeitliche Entwicklung der Konzentrationen im Bewuchs (und ihrer ökologischer Halbwertzeiten) zu untersuchen.

Ausgewertete Zeitreihen für Grünlandbewuchs und im Rahmen des Forschungsvorhabens bestimmte ökologische Halbwertzeiten sind in Tabelle 5.3 zusammengestellt. Die für die ökologischen Halbwertzeiten und die zugehörigen Amplituden jeweils angegebenen Unsicherheiten geben die aus den eigenen Regressionsanalysen resultierenden asymptotischen Standardabweichungen der Parameter an. Die in Tabelle 5.3 nicht spezifizierten Einheiten der Amplituden entsprechen der Einheit, in der in der jeweils ausgewerteten Veröffentlichung die Aktivitätskonzentration im Bewuchs angegeben ist (meist Bq/kg Trockenmasse). Alle eingetragenen Werte der aus den Regressionsanalysen ermittelten Amplituden sind für die Freilandexperimente auf Mai 1986 bezogen, für Lysimeterdaten auf den Zeitpunkt des Radionuklideintrags in das Boden-Pflanze-System.

Zu den in Tabelle 5.3 aufgeführten Datensätzen ist erläuternd hinzuzufügen:

a) Andersson et al. (2001)

Die Bewuchsproben wurden von den Versuchsflächen in Nordschweden (64,4° nördlicher Breite, ca. 600 m über NN, gebirgige Gegend) gezogen, von denen auch die ausgewerteten Bodenproben (siehe Abschnitte 5.4.2) stammten. In dieser Gegend lag die Deposition von  $^{137}\text{Cs}$  durch den Reaktorunfall von Tschernobyl zwischen 10 und 30 kBq pro  $\text{m}^2$ , so dass die im Bewuchs gefundenen Konzentrationen an Radiocaesium im Wesentlichen aus diesem Kontaminations-Ereignis stammen. Der Bodentyp wird von den Autoren als podsolisierte sandige Moräne, durchsetzt mit Moorflächen, mit hohem Gehalt organischen Materials und geringem Anteil an Tonmineralen charakterisiert.

Bewuchsproben wurden von 1990 bis 1997 jeweils einmal jährlich Ende August genommen. Dazu wurden 8 Flächen an 5 Standorten ausgewählt, die für das gesamte Gebiet als repräsentativ charakterisiert werden. Pro Jahr wurden an jeder der 8 Flächen vier Areale von 0,25  $\text{m}^2$  zufällig ausgewählt, auf denen der Bewuchs bis auf 2 cm Höhe abgeerntet und zu einer Probe vereinigt wurde. Zusätzlich wurden bei den jährlichen Probenahmen an den einzelnen Standorten die dort häufig vorkommenden und von Schafen bevorzugten Pflanzenspezies einzeln gesammelt. Daten der Jahre 1990 bis 1993 wurden auch von Rosén et al. (1995) veröffentlicht.

Wie für die Bodenproben geben Andersson et al. (2001) in ihrer Veröffentlichung für jede Probenahme lediglich Mittelwert und Standardabweichungen der Gehalte an  $^{137}\text{Cs}$  der Bewuchsproben aller 8 Standorte an. Für die einzelnen Pflanzenspezies sind die Mittelwerte der Cs-Konzentrationen für die einzelnen Standorte publiziert. Dabei ist zu bemerken, dass nicht alle analysierten Spezies an allen 5 Standorten vorkamen sowie für einzelne Spezies nur Messdaten für einen Teil des Versuchszeitraums 1990 bis 1997 angegeben werden. Alle Daten sind in Bq/kg (Trockensubstanz) angegeben.

Obwohl die lediglich einmalige jährliche Probenahme es nicht ermöglicht, potentielle saisonale Änderungen der Radiocaesium-Konzentrationen zu erfassen, wurden die Daten zur Bestimmung ökologischer Halbwertzeiten herangezogen, da die jährlich konstante Probenahme Ende August einen systematischen Einfluss saisonaler Effekte auf den gesuchten langzeitigen Trend als unwahrscheinlich erscheinen lässt. Die Analyse einzelner Pflanzenspezies eröffnet zudem die Möglichkeit zu analysieren, ob – und gegebenenfalls wie – sich ökologische Halbwertzeiten des  $^{137}\text{Cs}$  dieser Spezies in den Mischproben widerspiegeln.



Die Ergebnisse der Auswertungen sind in Tabelle 5.3 zusammengestellt. Dabei wurden alle diejenigen Zeitreihen der Einzelspezies berücksichtigt, bei denen es sich um typische Grünlandgräser und -kräuter handelt, sofern für den Versuchszeitraum der Jahre 1990 bis 1997 eine vollständige Zeitreihe existiert.

Es zeigt sich, dass für fast alle analysierten Pflanzenspezies (die einzige Ausnahme stellt *Nardus stricta*, eine Grasspezies, dar) die Zeitreihen der Konzentrationen an  $^{137}\text{Cs}$  durch eine ökologische Halbwertszeit charakterisierbar sind, deren Werte zwischen  $3,9 \pm 0,6$  und  $22,0 \pm 21,7$  Jahren liegen. Weder für die Höhe der Amplitude, die ein Maß für die Höhe der Wurzelaufnahme darstellt, noch für die ökologischen Halbwertszeiten zeigen sich systematische Unterschiede zwischen Gräsern und Kräutern. Für die aus den einzelnen analysierten (und weiteren, von Andersson et al. (2001) nicht spezifizierten) Spezies zusammengesetzten Mischproben resultiert mit  $10,1 \pm 0,6$  Jahren eine ökologische Halbwertszeit, die im Bereich der Werte der analysierten Einzelspezies liegt, aber eine deutlich geringere statistische Unsicherheit aufweist.

Die Versuchsdurchführung war von den Autoren so gestaltet worden, dass von denselben Flächen, von denen die Bewuchs-Mischproben resultieren, auch die jährlichen Bodenproben genommen und in gleicher Weise vereinigt wurden. Aus diesen Proben lassen sich daher mittlere Boden-Pflanze-Transferfaktoren berechnen, deren resultierende ökologische Halbwertszeit sich mit Hilfe der Differenz der inversen ökologischen Halbwertszeiten in beiden Compartimenten bestimmen lässt. Mit den Werten von  $32,8 \pm 21,8$  Jahren für die 0-10 cm Bodenschicht und von  $10,1 \pm 0,6$  Jahren für den Bewuchs errechnet sich eine ökologische Halbwertszeit des Boden-Pflanze-Transferfaktors von  $14,5 \pm 4,5$  Jahren. Dieses Ergebnis stimmt innerhalb der Fehlergrenzen überein mit dem Wert von  $11,9 \pm 2,8$  Jahren, der sich direkt aus der Auswertung der von Andersson et al. (2001) angegebenen mittleren jährlichen Boden-Pflanze-Transferfaktoren ergibt.

b) Pietrzak-Flis et al. (1994)

Die Versuchsflächen, bei denen es sich um 4 Standorte mit unkultivierten Böden handelt, liegen im Nordosten Polens. Von jeder der Flächen mit einer Größe von etwa  $100 \text{ m}^2$ , wurden zugleich mit den oben ausgewerteten Bodenproben zwischen Juni 1988 und November 1991 ein- bis zweimal jährlich Bewuchsproben genommen. Dabei wurde so vorgegangen, dass bei jeder Probenahme pro Standort auf ein bis drei Teilflächen von jeweils  $1 \text{ m} \times 1 \text{ m}$  der Bewuchs bis zur Pflanzenbasis abgeschnitten und getrennt weiterverarbeitet wurde. Eine genauere botanische Spezifikation des Bewuchses ist nicht angegeben, er wird in der Veröffentlichung lediglich als "Gras" bezeichnet. Die von den Autoren auf der Basis ihrer bodenkundlichen Analysen der 0-10 cm Schicht gewählte Charakterisierung der Böden der 4 Standorte als Lehm (15,7 % Schluff, 12,3 % Ton), Moor (52,1 % organisches Material) und zwei Sandböden (94,6 % und 96 % Sandanteil) wird für die folgende Diskussion übernommen.

Medium	Teil des Mediums	Radio-nuklid	Amplitude (Bq/kg TM)	Ökologische Halbwertszeit (Jahre)	N	Ort	Zeit	Zeitpunkt der Kontamination	Art der Kontamination	Bemerkung	Referenz
Weidevegetation  einzelne Spezies: <i>Molinia caerulea</i> <i>Descampsia caespitosa</i> <i>Descampsia flexuosa</i> <i>Nardus stricta</i> <i>Rumex acetosa</i> <i>Cornus suecica</i> <i>Solidago virgaurea</i> <i>Filipendula ulmaria</i>  Mischprobe	Halme, Blätter	<sup>137</sup> Cs			1 jährliche Probenahme; Mischproben von bis zu 5 Standorten mit 8 Flächen	Nord-Schweden (Jämtland)	1990 - 1997	Atom-bomben-fallout, Chernobyl	Aufnahme aus dem Boden	Konzentrationen in Bq/kg TM. bei nur einer Probenahme jährlich keine jahreszeitlichen Einflüsse isolierbar Chernobyl-Fallout dominiert	Andersson et al. 2001
Weidegras auf Lehm  Moor  Sand I  Sand II	Halme	<sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs <sup>137</sup> Cs <sup>134</sup> Cs	8,5 ± 4,4 3,0 ± 1,5 820 ± 376 431 ± 152 42,7 ± 22,4 28,4 ± 9,6 78,4 ± 49,4 20,5 ± 9,1	17,8 ± 60,6 7,6 ± 10,7 1,6 ± 0,5 1,3 ± 0,4 7,2 ± 10,1 4,3 ± 3,0 2,3 ± 1,5 3,6 ± 1,9	1-2 Proben pro Boden und Jahr 4 Bodentypen	Nordost-Polen	Juni 1988 – Nov. 1991	Atom-bomben-fallout, Chernobyl	Aufnahme aus dem Boden		Pietrzak-Flis et al. 1994

Tabelle 5.3: Ökologische Halbwertszeiten für *Grünlandbewuchs* und Spezifikationen der ausgewerteten Untersuchungen

Medium	Teil des Mediums	Radio-nuklid	Amplitude (Bq/kg TM)	Ökologische Halbwertszeit (Jahre)	N	Ort	Zeit	Zeitpunkt der Kontamination	Art der Kontamination	Bemerkung	Referenz
Weidevegetation auf Niedermoor	Halme	<sup>137</sup> Cs	161 ± 58,1	3,0 ± 1,0	3-5 Proben je Bodentyp, 5-8 Probenahmen pro Jahr	Nord-deutschland	1990-1992	Atom-bomben-fallout, Chernobyl	Aufnahme aus dem Boden	Zusätzlich Bodenproben	Ehlken & Kirchner 1996
		<sup>134</sup> Cs	79,1 ± 34,6	2,6 ± 0,9							
Anmoorgley		<sup>90</sup> Sr	1,5 ± 0,5	12,8 ± 17,0							
		<sup>137</sup> Cs	13,4 ± 10,8	-11,3 ± 25,1							
		<sup>134</sup> Cs	14,5 ± 11,6	5,9 ± 6,8							
		<sup>90</sup> Sr	1,3 ± 0,4	-12,8 ± 14,5							
Marsch		<sup>137</sup> Cs	0,5 ± 0,6	6,8 ± 15,3							
		<sup>90</sup> Sr	1,4 ± 0,8	5,7 ± 5,2							
Weidegras Bad Leonfelden Freistadt Linz Sandl Schärding Schöneben Vöcklabruck	Halme	<sup>137</sup> Cs	6,4 ± 8,0 247 ± 104 19,5 ± 12,7 1299 ± 631 7,2 ± 3,3 258 ± 70,1 79,2 ± 28,0	-15,3 ± 36,9 10,5 ± 6,5 -185 ± 2800 3,0 ± 0,8 -17,7 ± 65,6 14,2 ± 7,5 7,6 ± 2,9	1 Probe jährlich pro Standort	Österreich	1994-2001 1992-2001 1994-2001 1992-2001 1992-2001 1992-2001 1992-2001	Atom-bomben-fallout, Chernobyl	Aufnahme aus dem Boden	Probenahme jeweils zu Beginn der Vegetationsperiode Chernobyl-Fallout dominiert	Ringer, W. 2003
Weidelgras auf Ton Sand Grünsand Lehm	Halme	<sup>137</sup> Cs	- 4,8 ± 1,2 1,4 ± 0,4 1,0 ± 0,2	- 1,4 ± 0,3 1,3 ± 0,3 1,0 ± 0,1	3 bis 4 Probenahmen pro Jahr, nur 5 Jahres-Mittelwerte publiziert	Gross-britannien	Mehr als 4 Jahre nach Nuklidzugabe	Künstlich zu Versuchsbeginn	Aufnahme aus dem Boden	Freiland-Lysimeter; Kontamination mit trägerfreiem <sup>137</sup> Cs Werte weisen nicht quantifizierbare Ungenauigkeit auf	Squire & Middleton 1966
Weidegras auf Lehm Sand	Halme	<sup>137</sup> Cs, <sup>90</sup> Sr	- -	siehe Text Siehe Text	Wiederholte Probenahme während der Standzeit	Niederlande	7 Jahre nach Nuklidzugabe	Künstlich zu Versuchsbeginn	Aufnahme aus dem Boden	Freiland-Lysimeter, Kontamination mit u.a. <sup>137</sup> Cs und <sup>90</sup> Sr	Lembrechts et al. 1990

Tabelle 5.3 (Fortsetzung): Ökologische Halbwertszeiten für *Grünlandbewuchs* und Spezifikationen der ausgewerteten Untersuchungen

In der ausgewerteten Publikation angegeben sind für jeden der 4 Standorte die im Bewuchs gemessenen Konzentrationen an  $^{134}\text{Cs}$ , das ausschließlich aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl stammt, sowie an  $^{137}\text{Cs}$ , das durch die oberirdischen Atombombentests und den Reaktorunfall 1986 in die Böden eingetragen wurde. Alle Daten sind in Bq/kg (Trockensubstanz) angegeben.

Wie bei der Diskussion der Bodenanalysen (siehe Kap. 5.4.2) ausführlich dargestellt, konnte aus den publizierten Daten berechnet werden, dass für drei der Standorte (Lehm, Moor und Sand I) etwa 60 % des jeweils im Juni 1988, dem Zeitpunkt der ersten Probenahme, in den obersten 10 cm gefundenen  $^{137}\text{Cs}$  durch den Reaktorunfall von Tschernobyl in die Umwelt gelangt worden waren und für den Standort Sand II dieser Anteil sogar etwa 85 % betrug. Da aufgrund der inhomogenen Wurzeldichte von Gräsern die Aufnahme von Nähr- und Spurenstoffen vorwiegend aus den obersten Zentimetern eines Bodens resultiert (Ehlken & Kirchner 2002), ist zu erwarten, dass der Anteil des aus Tschernobyl stammenden  $^{137}\text{Cs}$  in den Pflanzen noch höher liegt als in der 0-10 cm Bodenschicht, da anzunehmen ist, dass das Maximum des erst 1986 in den Boden gelangte Caesium sich während der Versuchsperiode noch näher an der Oberfläche – und damit im Bereich der höchsten Wurzeldichte – befand als das über zwei Jahrzehnte früher deponierte  $^{137}\text{Cs}$  der oberirdischen Kernwaffenversuche.

Die Ergebnisse der Analysen der Zeitreihen sind in Tabelle 5.3 zusammengestellt. Für zwei der Standorte – Moor und Sand II – zeigen die Caesium-Konzentrationen der Weidegräser zwischen Juni 1988 und November 1991 einen statistisch signifikanten, durch eine ökologische Halbwertszeit charakterisierbaren, abnehmenden Zeittrend, während die statistischen Unsicherheiten der berechneten Parameter eine solche Aussage für die beiden anderen Standorte – Lehm und Sand I – nicht erlauben.

Für die ökologischen Halbwertszeiten der beiden Standorte Moor und Sand II fällt ins Auge, dass die aus den Zeitreihen ermittelten Werte beider Caesiumisotope innerhalb ihrer statistischen Genauigkeit jeweils identisch sind. Dies bestätigt die obige Überlegung, dass auch die Konzentrationen des  $^{137}\text{Cs}$  in den Pflanzen durch den aus Tschernobyl eingetragenen Anteil dominiert werden, könnte aber darüber hinaus auch ein identisches Verhalten beider Caesium-Fractionen in den untersuchten Boden-Pflanze-Systemen widerspiegeln.

Die Böden beider Standorte, in deren Bewuchs gemäß Tabelle 5.3 signifikante ökologische Halbwertszeiten ermittelt wurden, weisen praktisch keinen Tonanteil auf (Pietrzak-Fils et al. 1994), so dass eine langsame Festlegung des Caesiums durch selektiven Ionenaustausch an Tonmineralen als Ursache der zeitlichen Abnahme unwahrscheinlich erscheint. Da andererseits während des Versuchszeitraums für die 0-10 cm Schicht des Moorbodens keine und des Standorts Sand II nur für  $^{137}\text{Cs}$  eine signifikante ökologische Halbwertszeit ermittelt werden konnten (siehe Tabelle 5.2), die einen Wegtransport aus dieser Bodenschicht charakterisieren würden, bleibt als plausibler Mechanismus zur Erklärung der ökologischen Halbwertszeiten, dass die Caesiumisotope durch Verlagerung innerhalb der 0-10 cm Schicht zunehmend in Bereiche geringerer Wurzeldichten und damit auch geringerer Wurzelaufratmeraten gelangten (Ehlken & Kirchner 2002).

c) Ehlken & Kirchner (1996) und Ehlken (1997)

Die Wurzel Aufnahme von Caesium und Strontium wurde zwischen Mai 1990 und November 1992 in Freilandexperimenten untersucht. Eine detaillierte Beschreibung der Standorte und des experimentellen Vorgehens findet sich bei Ehlken (1997).

Als Versuchsflächen dienten vier Dauerweiden in der Umgebung von Bremen mit unterschiedlichen, in dieser Gegend häufig anzutreffenden Bodentypen. Auf der Grundlage der Analysen werden diese Standorte von der Autorin als Niedermoor (43 % organische Substanz; 0-10 cm Schicht), Anmoorgley (13 % organisches Material, mineralische Substanz überwiegend Sand (85 %), ansonsten Schluff; 0-10 cm Schicht), Podsol (94 % Sand, 1 % Tonanteil; 0-10 cm Schicht) und Marsch (23 % Sand, 30 % Tonanteil; 0-10 cm Schicht) charakterisiert. Die Gehalte austauschbarer Kationen in den obersten 10 cm der Böden variierten zwischen knapp 40 meq/kg (Anmoorgley, Podsol) und über 420 meq/kg (Marsch). Da nutzungsbedingt die ursprünglich gewählten Versuchsflächen auf dem Podsol gewechselt werden musste, konnte für diesen Bodentyp nur eine über zwei Vegetationsperioden reichende ungestörte Zeitreihe der Konzentrationen an Radiocaesium und -strontium in der Vegetation ermittelt werden. Da dieser Zeitraum für die Bestimmung ökologischer Halbwertzeiten zu gering erscheint, werden die Podsol-Flächen in die folgende Auswertung nicht einbezogen.

Die Depositionen von  $^{137}\text{Cs}$  durch die oberirdischen Kernwaffenversuche und durch den Reaktorunfall von Tschernobyl lagen in der Versuchsregion etwa in der gleichen Größe.

Für die Experimente wurden an jedem Standort 5 (Marsch: 3) benachbarte Flächen von 1 m x 1 m (Marsch aufgrund der geringeren Bewuchsdichte: 1,5 m x 1,5 m) abgezaunt, auf denen die Weidevegetation wiederholt jährlich nach Nachwachsen der Gräser abgeerntet wurde (der Autorin folgend im weiteren als "Schnittproben" bezeichnet). Diese Proben wurden jeweils auf ihre Gehalte an Cs-134,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  analysiert, um die Variabilität der Wurzelaufnahme dieser Radionuklide auf den Versuchsflächen zu erfassen. Von mehreren benachbarten Flächen gleicher Größe wurde zusätzlich der Bewuchs einmal jährlich in unterschiedlichen Entwicklungsstadien (erster Wuchs, Blüte, Reife, Seneszenz) gesammelt – im folgenden als "Dauerproben" (Ehlken 1997) bezeichnet –, um deren potentiellen Einfluss auf die Nuklidkonzentrationen zu untersuchen. Die botanische Zusammensetzung der Weidevegetation an den einzelnen Standorten ist den zitierten Veröffentlichungen zu entnehmen.

Bodenproben wurden von jeder dieser Einzelflächen einmal jährlich am Ende jeder Vegetationsperiode genommen. Dabei wurden je Fläche 10 Einzelproben, die mit einem Bodenbohrer (1 cm Durchmesser) aus der 0-10 cm Schicht genommen wurden, zu einer Mischprobe vereinigt. Für keine der Flächen zeigten die gemessenen Konzentrationen an  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in dieser Bodenschicht während der Versuchsdauer einen zeitlichen Trend, die gefundene Abnahme des Cs-134 war zerfallsbedingt erklärbar.

Zum Test, ob die beobachteten Zeitreihen der Nuklidkonzentrationen in den Pflanzen zeitliche Abnahmen aufweisen, die mit dem Konzept ökologischer Halbwertzeiten charakterisierbar sind, wurden die Daten der Schnittproben analysiert. Diese Daten stellen die einzigen in diesem Forschungsprojekt analysierten Datensätze dar, in denen jahreszeitliche und witterungsbedingte Einflüsse in den Zeitreihen aufgrund der zeitlichen Dichte der Probenahmen sich in der Variabilität der Messdaten – und damit auch in der statistischen Unsicherheit der aus ihnen extrahierten Parameter – vollständig widerspiegeln. Die von Ehlken (1997) ausführlich dokumentierte Variationsbreite der in den Dauerproben an den einzelnen Standorten beobachteten Nuklidkonzentrationen illustriert nur zu deutlich, welche Artefakte resultieren können, falls Zeitreihen aus einer einmaligen jährlichen Probenahme zu unterschiedlichen Entwicklungsstadien der Pflanzen resultieren.

Die ausgewerteten Messdaten, die in den zitierten Veröffentlichungen in graphischer Form dargestellt sind, geben für jede Probenahme die Mittelwerte der 5 (Marsch: 3) Einzelproben mit dessen Standardfehler als Maß für die örtliche Variabilität an. Die

Autoren weisen darauf hin, dass in keinem Falle die statistische Verteilung der Einzelwerte signifikante Abweichungen von einer Normalverteilung aufweist. Alle Daten sind in Bq/kg (Frischsubstanz) spezifiziert. Aufgrund der geringen Caesium-Aufnahme der Vegetation aus dem Marschboden konnte für diesen Standort keine Zeitreihe der Konzentrationen an Cs-134 in den Pflanzen bestimmt werden.

Die Ergebnisse der Analysen bezüglich der Existenz ökologischer Halbwertzeiten sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst. Lediglich für die Konzentrationen von Radiocaesium in Weidevegetation auf Niedermoor zeigt sich während der drei Vegetationsperioden eine statistisch signifikante Abnahme, die für beide Caesiumisotope mit statistisch identischen ökologischen Halbwertzeiten von  $3,0 \pm 1,0$  Jahren ( $^{137}\text{Cs}$ ) beziehungsweise  $2,6 \pm 0,9$  Jahren (Cs-134) quantifiziert werden kann.

Dieses Resultat stimmt mit dem von Ehlken und Kirchner (1996) diskutierten Ergebnis überein, dass lediglich die Boden-Pflanze-Transferfaktoren beider Caesiumisotope des Niedermoor-Standorts einen abnehmenden Zeittrend aufweisen, das aus Analysen der entsprechenden Zeitreihen der Transferfaktoren mittels des nicht-parametrischen Mann-Kendall-Tests für Zeittrends (Gilbert 1987) gewonnen wurde. Die Autoren erklären den beobachteten Zeittrend der Konzentrationen beider Caesiumisotope in Weidevegetation an diesem Standort mit einer Verlagerung der Radionuklide innerhalb der Wurzelzone und entwickeln ein auf dieser Hypothese basierendes einfaches Modell, das die experimentellen Zeittrends beider Isotope gut wiedergibt.

d) Ringer (2003) und Strebl et al. (2002)

Im Rahmen eines langfristigen Umwelt-Monitorings wurden die Radiocaesium-Konzentrationen in der Vegetation auf Dauerweiden an verschiedenen Orten Oberösterreichs beobachtet. Für sieben der regelmäßig beprobten Standorte standen für eine Auswertung im Rahmen des Forschungsprojekts Zeitreihen der Jahre 1992 oder 1994 (Bad Leonfelden, Linz) bis 2001 zur Verfügung (Ringer 2003). Aufgrund des Zeitraums ihrer Probenahme stellen diese Zeitreihen eine interessante Ergänzung zu den ansonsten im Rahmen dieses Projekts ausgewerteten Datensätze dar, da sie einen deutlich längeren Zeitraum nach der Deposition des aus Tschernobyl emittierten Radiocaesiums umfassen. Basierend auf den Daten bis 1999 sind die Versuche und ihre auf dieser Datenbasis resultierenden Ergebnisse ausführlich von Strebl et al. (2002) diskutiert worden.

Bis auf den Standort Schöneben, bei dem es sich mit einer Höhe um 1000 m über NN um eine alpine Weide mit geringer Produktivität handelt, wird von allen Probenorten mehrfach jährlich das Gras landwirtschaftlich genutzt. Die Ergebnisse der floristischen Charakterisierung der Vegetation und der physiko-chemischen bodenkundlichen Analysen wurden zusammen mit einigen zusätzlichen Standortdaten von Strebl et al. (2002) zusammengestellt. Danach sind die Böden als sandig bis schluffig mit geringen bis mittleren Tongehalten (< 20 %) einzuordnen.

Von jedem der Standorte erfolgte einmal jährlich eine Probenahme mit Ausnahme des Jahres 1993, für das keine Daten zur Verfügung stehen. Die Proben wurden in der Regel zu Beginn des Vegetationszyklus (Mai bis Mitte Juni) genommen, so dass die möglichen Beeinflussungen der Konzentrationswerte durch Einflüsse unterschiedlicher Vegetationsstadien begrenzt sein dürften. Dabei wurde bis 1995 so vorgegangen, dass die Vegetation auf einer Fläche von  $25 \text{ m}^2$  geerntet und eine repräsentative Teilprobe analysiert wurde, während in den darauf folgenden Jahren von einer Gesamtfläche von  $81 \text{ m}^2$  jeweils 5 zufällig gewählte Flächen von  $0,5 \text{ m} \times 0,5 \text{ m}$  abgeerntet und der Bewuchs für

die gammaspektrometrische Analyse kombiniert wurde. In jedem Jahr wurden von diesen Flächen zusätzlich 5 Bodenproben (9 cm Durchmesser) genommen und zu einer Mischprobe vereinigt. Alle Messwerte standen in Bq pro kg der Trockensubstanz zur Auswertung zur Verfügung.

Nach Strebl et al. (2002) variierten die in den oberen Bodenschichten gefundenen Flächenkonzentrationen zwischen 5 und 36 kBq/m<sup>2</sup>, so dass angesichts der Deposition von 1 bis 2 kBq/m<sup>2</sup> <sup>137</sup>Cs durch die oberirdischen Kernwaffenversuche in Oberösterreich die beobachteten Radiocaesium-Konzentrationen fast ausschließlich aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl resultieren – lediglich für zwei der beprobten Standorte (Schöneben und Schärding) sind mit 40 % beziehungsweise 15 % nennenswerte Anteile des Inventars im Boden als Folge der oberirdischen Kernwaffen-Explosionen eingetragen worden.

Die Ergebnisse der Tests, ob die Zeitreihen der Radiocaesium-Konzentrationen in der Vegetation durch ökologische Halbwertzeiten charakterisiert werden können, sind in Tabelle 5.3 zusammengestellt. Dabei wurde auf eine Auswertung der von Ringer (2003) und Strebl et al. (2002) angegebenen Daten des Standorts Rohrbach verzichtet, da die Datenbasis mit lediglich vier Messdaten zu klein erschien.

Zunächst ist als wesentliches Ergebnis festzuhalten, dass ausweislich der in Tabelle 5.3 aufgeführten Werte der gefundenen ökologischen Halbwertzeiten (und ihrer Unsicherheiten) für drei der Standorte (Bad Leonfelden, Linz und Schärding) die Konzentrationen des <sup>137</sup>Cs in der Vegetation keine signifikante zeitliche Abnahme aufweisen. Die von Strebl et al. (2002) für die bis 1999 reichenden Zeitreihen mit einer anderen statistischen Methodik, dem Mann-Kendall-Test, durchgeführten Trendanalysen ergaben sogar nur für einen einzigen Standort (Vöcklabruck) eine statistisch signifikante zeitliche Abnahme der gemessenen Konzentrationen an <sup>137</sup>Cs im Bewuchs. Dieses von den hier mit zusätzlichen Daten durchgeführten Analysen abweichende Resultat illustriert, dass bei Zeitreihen mit hohen Fluktuationen sehr lange Beobachtungszeiten – oder alternativ mehrere Probenahmen pro Jahr – erforderlich sein können, um aus den Daten ökologische Halbwertzeiten isolieren zu können.

Kein Zusammenhang ergibt sich aus dem Bodentyp und den Bodeneigenschaften – hier insbesondere der Textur – mit der Existenz (oder Nicht-Existenz) statistisch signifikanter ökologischer Halbwertzeiten des Radiocaesiums in der auf dem jeweiligen Boden wachsenden Vegetation. Die ermittelten ökologischen Halbwertzeiten weisen mit Werten zwischen 3,0 ± 0,8 Jahren und 14,2 ± 7,5 Jahren eine recht große Variationsbreite auf. Bei Berücksichtigung der relativ hohen statistischen Unsicherheiten der beiden höchsten Werte allerdings ergeben sich keine Abweichungen zu den ökologischen Halbwertzeiten, die gemäß Tabelle 5.3 aus den von Andersson et al. (2001) in Nordschweden beobachteten Nuklidkonzentrationen in Weidevegetation ermittelt wurden und die mit 1991 - 1997 einen ähnlichen Beobachtungszeitraum nach dem Eintrag des <sup>137</sup>Cs umfassen.

e) Squire (1966) und Squire & Middleton (1966)

In den von diesen Autoren durchgeführten Studien wurde die Aufnahme von <sup>90</sup>Sr und <sup>137</sup>Cs in Weidegras auf unterschiedlichen Böden in Lysimeterexperimenten über mehr als 6 Jahre beobachtet.

Die Versuche wurden in Betonzylindern von 0,9 m Durchmesser und 0,9 m Tiefe durchgeführt, in denen nach der Kontamination der Oberfläche mit einer Lösung trägerfreien <sup>90</sup>Sr beziehungsweise <sup>137</sup>Cs ein mehrjähriges Gras (Weidelgras, *Lolium perenne* L.) gesät wurde. Während der Standzeit der Versuche wurden alle Lysimeter

normalen Witterungsbedingungen ausgesetzt. Ein Teil der Replikate jedes Bodentyps wurde wiederholt gedüngt, bei Zugabe von Radiostrontium mit Ammoniumnitrat oder Kalk, bei den Experimenten mit  $^{137}\text{Cs}$  mit einem NPK-Dünger.

Die Experimente wurden mit beiden Radionukliden mit vier verschiedenen Bodentypen durchgeführt, die von den Autoren als (saurer) Ton, Sand, Grünsand und (kalziumreicher) Lehm bezeichnet werden. Diese Benennungen werden im folgenden übernommen. Der Tonmineralgehalt dieser Böden variierte zwischen 3,2 % (Sand) und 19,2 % (Ton), die Konzentration austauschbarer Kationen zwischen 125 meq/kg (Sand) und 555 meq/kg (Lehm). Für die Experimente mit  $^{90}\text{Sr}$  wurden zusätzliche Böden eingesetzt.

Für die Strontium-Experimente diskutiert Squire (1966), dass Düngung mit Ammoniumnitrat oder Kalk sowohl die Tiefenverlagerung des  $^{90}\text{Sr}$  in einigen der Böden als auch die Konzentration des  $^{90}\text{Sr}$  (exakt: das  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ -Verhältnis) im Weidelgras signifikant beeinflusste. Für die in dieser Veröffentlichung angegebenen zeitabhängigen  $^{90}\text{Sr}/\text{Ca}$ -Verhältnisse im Bewuchs ist aber nicht ersichtlich, ob diese Mittelwerte aller Replikate – und damit sowohl gedüngter als auch nicht gedüngter Experimente – darstellen. Eine Auswertung der Daten für  $^{90}\text{Sr}$  erschien daher nicht als sinnvoll.

Für die Experimente mit  $^{137}\text{Cs}$  hingegen wurde keinerlei Einfluss der Düngung auf die Verlagerung dieses Radionuklids im Boden und seine Aufnahme in die Vegetation festgestellt (Squire & Middleton 1966). Diese Experimente werden im folgenden bezüglich der Herleitbarkeit ökologischer Halbwertzeiten analysiert.

Für jeden der eingesetzten Böden werden von Squire & Middleton (1966) insgesamt 5 Werte der Nuklidkonzentrationen im Weidelgras angegeben, die einen Zeitraum von 5 Jahren nach der Kontamination der Böden mit  $^{137}\text{Cs}$  umfassten. Dabei handelt es sich um die Mittelwerte mehrerer (3 oder 4) Probenahmen während jedes Vegetationszyklus. Diese Mittelwertbildung hat nachteilige Auswirkungen auf die mathematische Exaktheit der im Rahmen dieses Projekts durchgeführten Auswertungen. Zum einen entspricht sie implizit der Annahme einer zeitlich linearen Abnahme der Nuklidkonzentrationen während jeder Vegetationsperiode – im Gegensatz zum exponentiellen Modell der ökologischen Halbwertzeiten. Zum anderen wird die zeitliche Zuordnung des Mittelwertes unsicher – statistisch gesehen enthält die unabhängige Variable des Regressionsmodell durch diese Mittelwertbildung nun ebenfalls eine Varianzstruktur. Nach den zu Beginn dieses Kapitels aufgestellten Kriterien sollten diese Zeitreihen von der Auswertung ausgeschlossen werden. Sie werden hier trotzdem weiter betrachtet, da es sich um die einzigen hinreichend genau dokumentierten Datensätze handelt, die den Zeitraum direkt nach einer Kontamination des Boden-Pflanze-Systems einbeziehen. Allerdings muss bei der Interpretation der Ergebnisse neben der statistischen Unsicherheit eine zusätzliche, nicht quantifizierbare Ungenauigkeit der Schätzwerte der ökologischen Halbwertzeiten berücksichtigt werden.

Die Resultate der Radiocaesium-Analysen in den Gräsern wurden von Squire & Middleton (1966) in nCi/g angegeben. Keine Angaben sind in der Veröffentlichung zu finden zur Variabilität dieser Daten zwischen den Replikaten mit identischen Bodentypen. Als Zeitpunkt der Messungen wurden die in der Abbildung 3 der angegebenen Publikation eingetragenen Werte übernommen.

Die Ergebnisse der Auswertungen sind in Tabelle 5.3 zusammengestellt. Für die auf dem Tonboden kultivierte Vegetation sind keine Werte eingetragen, da das Exponential-Modell hier auf systematische Diskrepanzen zu den experimentellen Daten führte. Die Natur dieser Abweichungen legt nahe, dass die Annahme zweier unterschiedlicher ökologischer Halbwertzeiten zu einer zufriedenstellenden Beschreibung des Zeitverlaufs



fürte – allerdings ließ sich diese Vermutung anhand der lediglich 5 Datenpunkte nicht überprüfen. Dies wäre anhand der Einzeldaten jeder Vegetationsperiode möglich gewesen.

Für die ökologischen Halbwertzeiten von  $^{137}\text{Cs}$  in Weidelgras (*Lolium perenne*) auf den übrigen drei Böden resultieren Werte um oder geringfügig oberhalb eines Jahres. Diese liegen deutlich unterhalb der Werte, die für die übrigen in Tabelle 5.3 ausgewerteten Zeitreihen ermittelt wurden – die einzige Ausnahme stellt der Niedermoorboden in der Untersuchung von Ehlken und Kirchner (1996) dar, für den in Tabelle 5.3 für beide langlebige Caesiumisotope ähnliche Werte zu finden sind. Auch unter Berücksichtigung der oben diskutierten, nicht quantifizierbaren Ungenauigkeit der aus den Daten von Squire & Middleton abgeleiteten Werte deutet dieses Ergebnis darauf hin, dass direkt nach einer Kontamination eines Bodens mit Radiocaesium die Aufnahme durch Grünlandbewuchs einer anfänglich schnelleren Abnahme unterworfen ist als in den darauf folgenden Zeitperioden. Allerdings scheint eine Generalisierung dieser Schlussfolgerung zusätzlich dadurch erschwert, dass eine solche schnelle Abnahme nicht durchgehend berichtet wird, wie die im folgenden detaillierter diskutierten Daten von Lembrechts et al. (1990) beispielhaft illustrieren. Auf der anderen Seite ist die praktische Relevanz der Ermittlung exakter Zeittrends für die Wurzel Aufnahme längerlebiger Radionuklide in der anfänglichen Phase nach einer atmosphärischen Deposition dadurch begrenzt, dass in der Vegetationsperiode, in der der Eintrag auftritt, die Kontamination der Pflanzen und deren Zeittrend durch die anfänglich auf den Pflanzenblättern oberflächlich abgelagerte Aktivität dominiert wird.

f) Lembrechts et al. (1990)

In dieser Untersuchung wurde die Wurzel Aufnahme von (unter anderem)  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in Weidelgras in einem Lysimeter über einen Zeitraum von etwa 7 Jahren beobachtet.

Die Versuche wurden unter Freilandbedingungen, um den Einfluss klimatischer Faktoren erfassen zu können, mit zwei Bodentypen, die als sandiger Lehm und als Sand charakterisiert werden, durchgeführt. Die Radionuklide wurden bei je zwei Replikaten jedes Bodens entweder in die obersten 5 cm oder in die obere 15 cm Schicht homogen eingebracht. Die Flächenkontaminationen lagen in der Höhe von 2 bis 4 MBq/m<sup>2</sup>. Drei Wochen nach der Nuklidzugabe wurde Gras gesät. Dominierende Spezies der sich entwickelnden Vegetation waren *Lolium perenne*, *Phleum pratense* und *Festuca pratensis*. Während der siebenjährigen Standzeit der Experimente wurden der Bewuchs häufig geerntet (insgesamt 28 Probenahmen) und die Radionuklidkonzentrationen gammaspektrometrisch bestimmt.

Die Autoren geben an, dass für die Konzentrationen sowohl von  $^{137}\text{Cs}$  als auch von  $^{90}\text{Sr}$  in den Gräsern kein zeitlicher Abfall zu beobachten war, sondern die Zeitreihen lediglich – wahrscheinlich durch klimatische Faktoren bedingte – Fluktuationen aufweisen. Für den in den obersten 5 cm kontaminierten Lehm sind die Daten graphisch dargestellt (Fig. 1 in Lembrechts et al. 1990). Da aus dieser Abbildung das von den Autoren angegebene zeitliche Verhalten deutlich wird, wurde auf ein Ablesen der Daten und eine eigene statistische Auswertung verzichtet.

Bedauerlicherweise machen die Autoren keine Angabe, ob sich während der Beobachtungszeit die anfänglich homogene Tiefenverteilung der Radionuklide infolge von Migrationsprozessen geändert hat.

Für die Auswertung im Rahmen dieses Forschungsvorhabens bleibt festzuhalten, dass sowohl für  $^{137}\text{Cs}$  als auch für  $^{90}\text{Sr}$  diese Daten für Weidevegetation auf Lehm und Sand im Zeitraum 0 bis 7 Jahre nach Nuklideintrag keinen zeitlich abnehmenden Trend – entsprechend einer unendlichen ökologischen Halbwert – ergeben.

## 6 Marine Ökosysteme

### 6.1 Datenbasis

Für die Identifizierung geeigneter Datensätze zur Ermittlung ökologischer Halbwertszeiten von Radiocaesium und Radiostrontium in marinen Ökosystemen wurden schwerpunktmäßig folgende Literaturquellen ausgewertet:

- (a) die eigene Literaturliste, die der Forschungsnehmer im Laufe seiner Forschungsarbeiten zu radioökologischen Fragestellungen mariner Systeme aufgebaut hat ;
- (b) die nationalen und internationalen radioökologischen und marinen Fachzeitschriften, in denen nach Kenntnis des Forschungsnehmers Arbeiten mit Bezug zum Thema des Forschungsprojekts publiziert worden waren oder potentiell in das Themenspektrum der Zeitschrift fallen; eine Liste der ausgewerteten Zeitschriften mit dem jeweiligen Zeitpunkt, bis zu dem diese durchgeführt wurde, ist in Tabelle 6.1 angefügt ;
- (c) die zunächst vom Bundesminister des Inneren, nach dessen Gründung vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit herausgegebenen jährlichen Berichtsbände "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" ;
- (d) Fachberichte multilateraler Kommissionen zum Schutze bestimmter anthropogen stark genutzter mariner Regionen, beispielsweise der Helsinki-Kommission.

<b>Ausgewertete Zeitschriften</b>	<b>Heft / Jahrgang</b>
Deutsche hydrographische Zeitschrift	11 (1958) – 51 (1999)
Environmental Pollution	87 (1995) – 122 (2003)
Health Physics	1959-1996
Isotopenpraxis (ab Band 31 Isotopes in Environmental and Health Studies)	3 (1967) – 37 (2001)
Journal of Environmental Radioactivity	26 (1995) – 66 (2003)
Journal of Marine Systems	6 (1995) – 39 (2003)
Journal of Marine Research	26 (1968) – 35 (1977), Jahrgang 1990
Journal of Radiological Protection	13 (1993) – 23 (2003)
Marine Pollution Bulletin	24 (1992) – 43 (2001)
Radiation Protection Dosimetry	1 (1981) – 50 (1993)
The Science of the Total Environment	Januar 1995 – Februar 2003
Water Environment Research	64 (1992) – 73 (2001)

Tabelle 6.1: Liste der für marine Ökosysteme ausgewerteten Zeitschriften und Periodika

### 6.2 Ergebnisse

Es zeigte sich allerdings im Laufe der Bearbeitung, dass das Konzept der ökologischen Halbwertszeiten für marine Ökosysteme konzeptionelle Probleme aufwirft und daher für diese zur Charakterisierung von längerfristigen Zeittrends im Vergleich zu den übrigen in diesem

Bericht diskutierten Ökosysteme wenig attraktiv erscheint. Für diese Schlussfolgerung sind die folgenden Gründe maßgeblich:

1. Quellen für die Einträge von Radionukliden in das *Meerwasser* sind im wesentlichen die Emissionen aus Nuklearanlagen – entweder durch direkte Einleitungen der Abwasser oder indirekt über Flüsse, nach Unfällen auch durch Deposition aus der Atmosphäre –, in geringerem Umfang die Freisetzungen aus Abfällen, die in den Ozeanen versenkt worden sind. Die Folge ist, dass selbst dann, wenn man die Betrachtung auf fest umrissene Meeresgebiete wie Nordsee, Irische See, oder Ostsee beschränkt, die anfängliche laterale Konzentrationsverteilung der Radionuklide im Wasser extrem inhomogen ist und deren zeitliche Änderungen durch strömungsbedingte Transport- und Mischungsprozesse bedingt wird.

Im Gegensatz zu den übrigen in diesem Forschungsprojekt betrachteten Ökosystemen sind daher die sich im Meerwasser einstellenden Zeittrends im wesentlichen durch *Mischungsprozesse innerhalb des betrachteten Mediums* verursacht. Konsequenz ist, dass beobachtete Zeittrends – und daraus abgeleitete ökologische Halbwertzeiten – abhängig sind vom Grad der räumlichen Inhomogenität des Eintrags, von der Größe des betrachteten Meeresbeckens und vom Ort des Eintrags, da die dort jeweils vorherrschenden Meeresströmungen die Geschwindigkeit der Verteilung im Meerwasser und die Höhe des Austrags aus der betrachteten Fläche bestimmen. Damit aber wird jeder beobachtete Zeittrend spezifisch für das zugrundeliegende Kontaminations-Ereignis und für den gewählten Beobachtungspunkt (oder das Beobachtungsareal), so dass daraus gegebenenfalls abgeleitete ökologische Halbwertzeiten nicht generalisierbar sind und daher aus Sicht der Autoren sinnlos werden.

Dieser Effekt wird noch dadurch verstärkt, dass Radionuklideinträge in das Meerwasser meist nicht nur lateral, sondern auch vertikal inhomogen sind, da sie entweder oberflächennah (Emissionen aus kerntechnischen Anlagen) oder in Tiefenwässern (Freisetzungen aus Abfällen) auftreten. Dies führt zu zusätzlichen vertikalen Mischungsvorgängen innerhalb der Wassersäule, die nach einem oberflächennahen Nuklideintrag durch eine relativ schnelle Durchmischung bis zur Thermokline sowie einem erheblich langsameren Transport über diese hinweg in tiefere Wasserschichten gekennzeichnet sind.

2. Die Nuklidkonzentrationen, die sich nach einem Radionuklideintrag in ein marines Ökosystem in dessen *Flora* einstellen, werden im wesentlichen den zeitabhängigen Änderungen der Nuklidkonzentrationen im Wasser folgen, da die marinen Pflanzen ihre Nährstoffe (und mit diesen auch radioaktive Spurenstoffe) aus dem umgebenden Wasser aufnehmen. Die oben diskutierten, für den jeweiligen Nuklideintrag aufgrund der lateralen und vertikalen Mischungsprozesse innerhalb des Meerwassers spezifischen Zeittrends werden sich daher – wenn auch gepuffert durch die Akkumulations- und Retentionskinetik der betrachteten Pflanzenspezies – in den Radionuklidkonzentrationen der Meeresflora widerspiegeln, so dass daraus gegebenenfalls ermittelte ökologische Halbwertzeiten den gleichen Einschränkungen wie für Meerwasser unterliegen.

Neben diesen grundsätzlichen Problemen ist aus praktischer Sicht darauf hinzuweisen, dass die überwiegende Zahl der in der ausgewerteten Literatur zu findenden Daten zu Nuklidkonzentrationen mariner Flora im Zuge von Monitoring-Programmen erhoben wurde. Dabei wird häufig, da es sich nicht um wissenschaftliche Fragestellungen handelt, wenig Wert auf eine exakte Dokumentation der Probenahme, eine Analyse immer der gleichen Spezies und eine Probenahme an immer identischer Stelle gelegt oder es werden

Mittelwerte der Nuklidkonzentrationen größerer Flächen oder mehrerer Probenahmen publiziert, so dass diese Zeitreihen wenig Aussagekraft besitzen.

3. Für die Radionuklidkonzentrationen in mariner *Fauna* ist bestimmend, dass das den Beginn der meisten marinen Nahrungsketten bildende Benthos seine Nährstoffe und eventuell präsenzte Radionuklide aus dem Meerwasser filtert. Als Folge reflektieren die Nuklidkonzentrationen der Fauna – wiederum modifiziert durch die Akkumulations- und Retentionskinetiken der Spezies innerhalb der betrachteten Nahrungskette und bei Fischen zusätzlich durch ihren Lebensradius – die örtlichen und zeitlichen Änderungen der Radionuklidkonzentration im umgebenden Wasser. Die für Meerwasser diskutierten Einschränkungen für Interpretierbarkeit und Generalisierbarkeit der Zeittrends und daraus abgeleiteter ökologischer Halbwertzeiten müssen daher auf die marine Fauna übertragen werden.

Die für die marine Flora erwähnte Tatsache, dass die in der ausgewerteten Literatur zu findenden Daten im wesentlichen im Rahmen von Monitoring-Programmen ermittelt wurden, und die damit verbundenen Einschränkungen gelten für Daten zur marinen Fauna gleichermaßen.

4. In marinen Sedimenten spiegeln sich ebenfalls die zeitlichen Änderungen der Radionuklidkonzentrationen im Meerwasser wider, da sowohl biotische als auch abiotische Schwebstoffe Radionuklide und andere Spurenstoffe proportional zu deren Konzentration im umgebenden Wasser anreichern. Daher können Sedimente häufig als Archive zur Rekonstruktion früherer Schadstoffkonzentrationen in marinen Systemen herangezogen werden. Für die Interpretierbarkeit und Generalisierbarkeit ökologischer Halbwertzeiten gelten allerdings auch hier die für Meerwasser ausführlich diskutierten Einschränkungen.

Im folgenden werden auf der Basis dieser allgemeinen Überlegungen die Möglichkeiten einer Ableitung ökologischer Halbwertzeiten für die beiden an die deutschen Küstengebiete angrenzenden Meere – Nord- und Ostsee – diskutiert.

### **6.2.1 Nordsee und angrenzender Nordatlantik**

Seit Ende der Sechziger Jahre des letzten Jahrhunderts werden die Konzentrationen radioaktiver Stoffe in diesem Meeresgebiet durch die Emissionen aus den britischen Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (früher Windscale) dominiert, die aus der Irischen See entlang der schottischen Küste in die Deutsche Bucht transportiert werden (Kautzky et al. 1980). Die zweite wesentliche Quelle bilden die Radionuklidableitungen aus den französischen Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague, deren bevorzugte Ausbreitungsrichtung von der Küste der Normandie durch den Ärmelkanal in die Nordsee führt (Herrmann et al. 1995). Für das Gesamtinventar radioaktiver Substanzen in Nordsee und Nordatlantik war der Eintrag nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl von vergleichsweise geringer Bedeutung (Baumann 1991). Auch die drastische Reduktion der Emissionen aus Sellafield seit Beginn der Neunziger Jahre des letzten Jahrhunderts hat nicht zu einer auch nur annähernd proportionalen Reduktion im Meereswasser der Irischen See geführt, da für viele Radionuklide – unter ihnen  $^{137}\text{Cs}$  und die Plutoniumisotope – seitdem Remobilisierungsprozesse aus oberflächennahen Sedimenten konzentrationsbestimmend geworden sind (Kershaw et al. 1999, Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit 2001). Die Zeitreihen der in den Wässern der Nordsee gemessenen Konzentrationen an  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  (Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit 2001) bilden damit die Summe der – durch die jeweiligen Transitzeiten und Verdünnungs- und Mischungsprozesse während des Transports modifizierten – Zeitreihen der Emissionen der beiden

Wiederaufarbeitungsanlagen ab, für  $^{137}\text{Cs}$  in den letzten Jahren zusätzlich die Remobilisierung aus Sedimenten der Irischen See. Es ist offensichtlich, dass sich für die von einem solchen zeitlich variierenden Nuklideintrag betroffenen Meeresgebiete der Nordsee und des Nordostatlantik keine ökologischen Halbwertzeiten ableiten lassen.

### 6.2.2 Ostsee

Im Gegensatz zur Nordsee wurden in der Ostsee die Konzentrationen radioaktiver Stoffe in diesem Meeresgebiet in der Folge des Reaktorunfalls von Tschernobyl durch Auswaschung von Radionukliden aus der Atmosphäre bestimmt, von denen nach dem Zerfall der kurzlebigen Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$  dominiert (Helsinki Commission 1995). Dabei erfolgte die Deposition des Radiocaesiums räumlich sehr inhomogen mit Konzentrationsmaxima im Bothnischen Meerbusen, im Golf von Finnland und vor der Küste Mecklenburgs. Diese Konzentrationsunterschiede hatten sich durch die vorherrschenden Meeresströmungen bis zum Jahre 1991 im Oberflächenwasser weitgehend ausgeglichen, innerhalb der Wassersäule jedoch wurden zu diesem Zeitpunkt noch erheblich höhere vertikale Gradienten der Konzentrationen von Cs gemessen (Helsinki Commission 1995), so dass die Durchmischung zu diesem Zeitpunkt in diesem weitgehend abgeschlossenen Randmeer noch nicht als abgeschlossen betrachtet werden kann. Die von der Helsinki-Kommission zusammengetragenen Daten der Monitoring-Programme der Anrainerstaaten, die im wesentlichen Fisch und Wirbellose umfassen, zeigen regionale Muster der gemessenen Aktivitätskonzentrationen, die mit denen der Verteilung des Radiocaesiums innerhalb der Ostsee übereinstimmen (Helsinki Commission 1995). Es erschien daher nicht sinnvoll, ökologische Halbwertzeiten für dieses marine Ökosystem zu ermitteln, da diese im wesentlichen die örtlichen oder regionalen Mischungsprozesse im Seewasser abgebildet hätten.

## 7 $^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in Waldökosystemen und Süßwassern

### 7.1 Methodik

Da die Messdaten in sehr unterschiedlicher Weise analysiert werden können (s. u.), erschien es nicht sinnvoll, Amplituden oder Steigungen mit Hilfe eines Lineals aus Diagrammen von wissenschaftlichen Journalen zu entnehmen. Selbst wenn Zahlenwerte genannt werden, werden oft die Art der Fits und die Messunsicherheiten der Parameter nicht erwähnt. Deshalb haben wir doch im Wesentlichen Originaldaten verwendet.

Folgende Messreihen liegen in elektronischer Form oder publiziert vor:

- Seen:
  - Eigene Daten ergänzt durch Literaturwerte für  $^{137}\text{Cs}$  in Wasser von Bodensee, Luganer See und Vorsee.
  - $^{137}\text{Cs}$  in 38 Seen in Westeuropa und in der Tschernobyl-Region;  $^{90}\text{Sr}$  in 5 Seen. Die Originaldaten wurden von J. Smith bzw. L. Monte zugesandt.
  - $^{90}\text{Sr}$  in den Seen Uruskul und Berdenish (I. Kryshev).
- Schwebstoffe :
  - Eigene Messungen (Sinkstofffallen: Laboratorio Studi Ambientali, Lugano) aus zwei verschiedenen Becken des Luganer Sees.
- Fische
  - Eigene  $^{137}\text{Cs}$  Messungen von Fischen aus Bodensee, Schreckensee und Vorsee.
  - VAMP-Projekt:  $^{137}\text{Cs}$  in 5 Seen, 11 Zeitreihen
  - IMIS: 19  $^{137}\text{Cs}$  Zeitreihen (> 30 Daten, > 4 Jahre)
- Flüsse:
  - EU-Database (Im Internet verfügbar):  $^{137}\text{Cs}$  für 15 Flüsse bis 1995 (2000), davon 5 mit brauchbaren Daten.
  - $^{137}\text{Cs}$ , bzw.  $^{90}\text{Sr}$  Messreihen von 10 Flüssen wurden von J. Smith zugesandt.
- Rehe:
  - Sehr umfangreiches eigenes  $^{137}\text{Cs}$  Datenmaterial (mehrere tausend Daten) für die Gebiete Ochsenhausen und Pfrunger Ried.
  - 3  $^{137}\text{Cs}$  Zeitreihen aus dem Bayerischen Wald (Fielitz)
  - Umfangreiches Datenmaterial bis 1999 von  $^{137}\text{Cs}$  in Rehen, Rotwild, Gensen und Schwarzwild aus Bayern (Schwind)
  - Zeitreihen aus Österreich (Tataruch):  $^{137}\text{Cs}$  (Rehe) und  $^{90}\text{Sr}$  (Geweih)
  - Eine  $^{137}\text{Cs}$  Zeitreihe von Rehen aus der Ukraine (Orlov, Venter)
- Waldpflanzen:
  - Eigene Daten für  $^{137}\text{Cs}$  in Heidelbeere, Himbeere, Brombeere, Waldklee und Farn in Fichtenwald und im Mischwald.
  - Weitere Zeitreihen von Fielitz und Orlov bzw. Venter
- Waldboden:
  - $^{137}\text{Cs}$  im Boden verschiedener Standorte des Altdorfer Waldes.

- Pilze:
  - $^{137}\text{Cs}$  in unterschiedlichen Pilzen aus dem Raum Oberschwaben
  - $^{137}\text{Cs}$  in Maronenröhrlingen einer genau definierten Position in Oberschwaben
  - $^{137}\text{Cs}$  in Pilzen der Ukraine von Orlov bzw. Venter

## **7.2 Untersuchte Datensätze**

### **7.2.1 Waldökosysteme**

#### **7.2.1.1 Pfrunger Ried (zi01a)**

##### ***Deposition***

Das mittlere  $^{137}\text{Cs}$  Inventar am 1.05.1986 betrug 21 kBq/m<sup>2</sup>. Es wurde an 4 Meßstellen eine Variation des Inventars von 20 bis 22 kBq/m<sup>2</sup> festgestellt, und etwa 60 % des Inventars waren 1994 in den obersten 10 cm des Sphagnum konzentriert.

##### ***Topographie und Klima***

Das Pfrunger Ried ist ein Moorgebiet, in der Nähe der Stadt Wilhelmsdorf gelegen, (Gauß-Krüger Koordinaten x: 3529, y: 5307), etwa 45 km östlich des Gebiets Ochsenhausen. Es gehört zum Staatlichen Forstamt Pfullendorf. Das Ried umfasst 5,2 km<sup>2</sup> Moor, das von Sumpfwald, Seen, landwirtschaftlichen Flächen umgeben ist in etwa 600 m Meereshöhe. Die mittlere Jahrestemperatur beträgt 8 °C. Jährliche Niederschläge variieren zwischen 700 und 1400 mm.

##### ***Boden und Bewuchs***

Hochmoor mit Kiefern (Pinus Mugo). An einer Stelle war das Moor 3 m dick, pH 2.8, Wassergehalt 91 % und Anteil organischen Materials 98 % der Trockenmasse.

#### **7.2.1.2 Ochsenhausen (zi01a)**

##### ***Deposition***

Das mittlere  $^{137}\text{Cs}$  Inventar am 1.05.1986 beträgt 39 kBq/m<sup>2</sup>. Es wurde an 17 Messstellen eine Variation des Inventars von 20 bis 70 kBq/m<sup>2</sup> festgestellt.

##### ***Topographie und Klima:***

Der Staatsforst Ochsenhausen, in der Nähe der Stadt Biberach, (Gauß-Krüger Koordinaten x: 3570, y: 5320) umfasst 16 km<sup>2</sup> Waldgebiet, eingerahmt von landwirtschaftlichen Flächen, Mooren, und kleinen Seen in etwa 600 m Meereshöhe. Die mittlere Jahrestemperatur beträgt 8 °C. Jährliche Niederschläge variieren zwischen 700 und 1400 mm.

##### ***Boden und Bewuchs:***

Die wichtigsten Bodenarten sind Stagnosol und Luvisol auf Moräne. Fichtenwald, Picea abies, überwiegt (80%) bei mittlerem Alter von 80 Jahren.

#### **7.2.1.3 Bodenmais (Fiel02)**

##### ***Deposition***

Die mittlere  $^{137}\text{Cs}$  Aktivität, die am 1. Mai 1986 infolge des globalen Fallouts noch im Boden vorhanden war, betrug  $8.530 \pm 4.660$  Bq/m<sup>2</sup>, der Median lag bei 8.080 Bq/m<sup>2</sup>. Die Spannweite der Messwerte war auch hier relativ groß, es wurden Aktivitäten zwischen 1.330 Bq/m<sup>2</sup> und 23.040 Bq/m<sup>2</sup> festgestellt.

Wegen des Reaktorunfalls in Tschernobyl wurden am 1.05.1986 durchschnittlich  $45.160 \pm 25.520 \text{ Bq/m}^2$   $^{137}\text{Cs}$  auf dem Boden deponiert. Als Minimum wurden  $6.740 \text{ Bq/m}^2$ , als Maximum  $145.130 \text{ Bq/m}^2$  festgestellt, der Median lag bei  $44.990 \text{ Bq/m}^2$ .

***Topographie und Klima:***

Das Untersuchungsgebiet Bodenmais liegt 30 km nordöstlich von Deggendorf, im Wuchsbezirk "östlicher vorderer Bayerischer Wald" zwischen 550-1.450 m ü. M.. Im Jahresmittel beträgt die Temperatur  $5^\circ \text{C}$  und es fallen je nach Höhenlage zwischen 1.140-1.550 mm Niederschlag. Im Winter liegt eine geschlossene Schneedecke von z.T. über 1 Meter Höhe, oft bis April. Das Gebiet ist von zusammenhängenden, submontanen bis montanen Bergmischwäldern, mit Fichte und Buche als Hauptbaumarten, bewachsen.

***Boden und Bewuchs:***

Der vorherrschende Bodentyp ist Braunerde.

Die Probefläche B1 liegt etwa 920 m ü. M., Hauptbaumart ist Fichte, mit einem Bestandsalter von 120 Jahren. Auf schwach podsoliger Braunerde ist ein 2-8 cm starker, schwach rohhumusartiger Moder ausgebildet. Der pH-Wert beträgt im Auflagehumus 3,2, im Mineralboden (0-5 cm) 3,4.

Die Probefläche B2 befindet sich in 980 m ü. M. und ist mit Fichte (120-jährig), Tanne (120-jährig), Buche (30-110-jährig) und Eberesche (30-jährig) bestockt. Über einer Parabraunerde ist ein 2-8 cm starker, rohhumusartiger Moder ausgebildet. Der pH-Wert beträgt sowohl im Humus als auch im Mineralboden (0-5 cm) 3,3. Die Entfernung zur Fläche B1 beträgt 4 km.

**7.2.1.4 Weinsberger Wald (A) (tatar02)**

***Deposition***

Das mittlere  $^{137}\text{Cs}$  Inventar am 1.05.1986 betrug  $53 \text{ kBq/m}^2 \pm 27\%$  für 185 Meßpunkte.

***Topographie und Klima:***

Im Granit Hochland des Waldviertels gelegen, 20 km nördlich von Ybbs, Donau (Niederösterreich,  $48^\circ 23' \text{ N}$ ,  $15^\circ 03' \text{ O}$ ), 950 m über Meeresniveau. Die mittlere Jahrestemperatur beträgt  $5,4^\circ \text{C}$ . Der jährliche mittlere Niederschlag beträgt 950 mm.

***Boden und Bewuchs:***

Dystric Cambisol, teilweise podsolisiert, mit Feuchtgebieten. Der Wald besteht hauptsächlich aus Fichte (*Picea abies*), gemischt mit Buche (*Fagus sylvatica*) etwa 5 % und Tanne (*Abies alba*).

**7.2.1.5 Eisenstein (baff02)**

***Keine Informationen***

**7.2.1.6 Zwiesel (baff02)**

***Keine Informationen***

**7.2.1.7 Bayern (baff02)**

***Deposition***

Im östlichen und südlichen Gebirge sowie nordöstlich von Augsburg wurde am 1. 5. 1986 bis  $120 \text{ kBq/m}^2$   $^{137}\text{Cs}$  deponiert, in den meisten übrigen Gebieten etwa 10 bis  $40 \text{ kBq/m}^2$   $^{137}\text{Cs}$ .

***Topographie und Klima:***



Der Bayerische Wald im Osten erreicht 1456 m Höhe, die Nördlichen Kalkalpen im Süden des Landes erreichen knapp 3000 m. Es gibt im Jahr etwa 100 bis 110 Frosttage, 1300 bis 1500 Sonnenstunden und 700 bis 1800 mm Niederschlag. Der größte Niederschlag erfolgt am Rande der Alpen.

**Wild:**

Rehe und Wildschweine sind im ganzen Land verbreitet; Hirsche gibt es im Bayerischen Wald und am Rand der Alpen; Gamsen gibt es nur in den Alpen.

**7.2.1.8 Altdorfer Wald (kl03)**

**Deposition**

An ausgesuchten Positionen im Nordteil (Nr 1 bis 5 in der Tabelle) und im Südteil (Nr 6 bis 12) wurden Boden- und Pflanzenproben genommen und gammaspektrometrisch untersucht. Im Jahr 2002 beträgt der Mittelwert des an den 5 Positionen im Nordteil des Altdorfer Waldes gemessenen und auf den 1.5.1986 korrigierten <sup>137</sup>Cs Inventars etwa 33 kBq/m<sup>2</sup>. An den 7 Positionen im Südteil wurde ein Mittelwert von etwa 16 kBq/m<sup>2</sup> bestimmt.

<sup>137</sup>Cs Aktivitätskonzentrationen der im Jahr 2002 im Altdorfer Wald untersuchten Bodenproben sind im Detail in Tabelle 7.1 aufgeführt.

Nr.	Position	Standort	X-Koor- dinate	Y-Koor- dinate	Probe 1		Probe 2		Probe 3		Mittelwert	
					Aktivität (Bq/m <sup>2</sup> )	Fehl. (%)	Aktivität (Bq/m <sup>2</sup> )	Fehl. (%)	Aktivität (Bq/m <sup>2</sup> )	Fehl. (%)	Cs-137 (Bq/m <sup>2</sup> )	St.-abw. (Bq/m <sup>2</sup> )
1	138	BW VIII / 5	3549.83	5306.36	37036	2.3	33840.2	2.3	33008.2	2.3	<b>34628</b>	<b>1228</b>
2	141	BW VII / 14	3547.52	5305.66	50258.4	2.2	50418.8	2.4	46520.7	2.2	<b>49066</b>	<b>1273</b>
3	142	BW VII / 7	3548.22	5305.66	34205.7	2.2	37024.1	2.3	38517.9	2.2	<b>36583</b>	<b>1264</b>
4	176	BW I / 4	3553.45	5301.23	19884.2	2.3	18403.1	2.4	20183.8	2.3	<b>19490</b>	<b>550</b>
5	180	BW II / 10	3551.91	5300.53	18365.8	2.6	27703.6	2.3	26981.5	2.4	<b>24350</b>	<b>3000</b>
6	197	RV IV / 16	3553.53	5297.96	20222.8	2.6	13391	2.8	12293.4	2.6	<b>15302</b>	<b>2481</b>
7	199	WN V / 1	3555.03	5298.31	11577.6	2.6	9349.4	2.7	10840.1	2.6	<b>10589</b>	<b>655</b>
8	214	WN VII / 15	3557.57	5295.75	21969	2.5	15007.6	2.7	18075.5	2.6	<b>18351</b>	<b>2014</b>
9	215	WN VIII / 4	3554.34	5294.93	19998.4	2.1	18469.3	2.5	18216.8	2.5	<b>18895</b>	<b>557</b>
10	219	WN VII / 17	3557.22	5295.40	9798.7	2.5	14323.7	2.5	11951.7	2.5	<b>12025</b>	<b>1307</b>
11	220	WN VIII / 10	3555.95	5294.11	18334.7	2.5	17519.4	2.6	15763.5	2.7	<b>17206</b>	<b>759</b>
12	221	WN VII / 27	3556.65	5294.11	20545.5	2.3	18850.7	2.4	15549.5	2.5	<b>18315</b>	<b>1467</b>

Die Bodenproben sind auf den 01.05.86 zerfallskorrigiert

Tabelle 7.1: Kontaminationen im Altdorfer Wald

Die Standardabweichung  $\sigma$  des Mittelwertes wurde aus der Variation der 3 Einzelwerte bestimmt. Gauß-Krüger-Koordinatensystem.

Der Nordteil des Altdorfer Waldes besteht aus Mischwald, während im Südteil des Waldes Fichten (Picea abies) überwiegen. Zwar ist das <sup>137</sup>Cs Inventar im Nordteil des Waldes höher als im Südteil, aber aufgrund der unterschiedlichen Dicke und Zusammensetzung der organischen Auflagen des Bodens im Misch-, bzw. Nadelwald ist die Pflanzenverfügbarkeit des <sup>137</sup>Cs im Südteil des Altdorfer Waldes höher (HTF Gebiet) als im Nordteil (NTF Gebiet). Dies führte in den vergangenen Jahren zu höheren Pflanzen-Kontaminationen im Südteil des Waldes.

An jeder der zwölf Positionen im Altdorfer Wald wurden mit einem rohrförmigen Stecher (Ø 55 mm) Bodenproben entnommen. Die Länge des Rohres betrug 200 mm, so dass sichergestellt war, dass bei jeder einzelnen Probennahme nahezu das gesamte Inventar erfasst wurde. Um den Einfluss lokaler Fluktuationen des Inventars zu verringern, wurden im Umkreis jeder Position drei Proben entnommen, wobei eine Probe jeweils aus dem Material von drei Einstichen mit dem Stecher besteht. Der Mittelwert berechnet sich somit aus dem Material von neun Einstichen.

An den 12 Positionen im Altdorfer Wald wurden jeweils alle verfügbaren Pflanzen (Dornfarn, Brombeere an allen Positionen; Waldklee, Himbeere und Heidelbeere an mehreren Positionen) gesammelt, 12 h bei 105 °C getrocknet, mit einem Mixer zerkleinert und anschließend gammaspektrometrisch untersucht.

#### **7.2.1.9 Oberschwaben (kl03)**

Ist eine Mischung der Gebiete Ochsenhausen und Pfrunger Ried und Bad Waldsee sowie Altdorfer Wald

#### **7.2.1.10 Bad Waldsee I 27 (kl03)**

##### ***Deposition:***

Das Bodeninventar wurde am 19.04.2000 gemessen, insgesamt 9 Einstiche über 100 m<sup>2</sup> verteilt, bis zu einer Tiefe von 20 cm. Zurückgerechnet auf den 1.5.1986 ergab sich ein <sup>137</sup>Cs-Inventar von (27,2 ± 0,5) kBq/m<sup>2</sup>, wobei in den oberen 10 cm der organischen Horizonte 95% des Inventars gefunden wurden.

Boden und Bewuchs:

100-jähriger Fichtenbestand (*Picea abies*) im Distrikt I, Abteilung 27 des Staatlichen Forstamtes Bad Waldsee. Maronenröhrlinge (*Xerocomus badius*) wurden seit 1987, jeweils zu Beginn der Pilzsaison geerntet.

#### **7.2.1.11 Zhitomir (UKR) (IAEA 02)**

##### ***Deposition***

Pulsartige Freisetzung und Deposition von <sup>137</sup>Cs als trockenes Aerosol. Erste Deposition am 1. Mai 1986 war 555 kBq m<sup>-2</sup>.

##### ***Topographie und Klima:***

Ukraine, Zhitomir Region, Luginsky Distrikt, nahe von Rudnya-Povcha, ungefähr 130 km südwestlich von Chernobyl (51°09'N und 28°35'0).

Die jährliche Durchschnittstemperatur ist +7.9 °C. Februar ist der kälteste Monat (-2.8 °C), und Juli der wärmste (+19.8 °C)

##### ***Boden:***

Der vorherrschende Bodentyp ist ein Soddy Podzol, der sich in sandigem Lehm Untergrund fluvio-glacialen Ursprungs entwickelt hat.

##### ***Baumbestand:***

Kiefer (*Pinus sylvestris*) und spärlich Birke (*Betula pubescens*). Das Durchschnittsalter der Kiefern ist 50 Jahre. Die Birken sind etwa 25-30 Jahre alt. Die Gesamtzahl der Kiefern beträgt 1180 Bäume, mittlere Höhe 22 m, Durchmesser 20 cm. Die mittlere Dichte der Biomasse des Baumbestandes beträgt 29,72 kg/m<sup>2</sup> (Frischgewicht).

##### ***Krautschicht:***

Die Vegetation besteht aus Molinio-Pinetum J.Mat. 1981, Union Dicrano-Pinion Libl. 1933, Ordo Vaccinio-Piceetalia Br.-Bl. 1939 em K.Lund 1967, Class Vaccinio-Piceetea Br.-Bl. 1939. Diese Kombination ist verbreitet in der Zentral Polessie der Ukraine (etwa 40% der gesamten Wälder).

Die Krautschicht ist dicht mit einer Bedeckung von 70-75%, bestehend aus *Vaccinium myrtillus* (60-65%), *Vaccinium vitis-idaea* (5-10%), *Vaccinium uliginosum* (1-3%), *Molinia caerulea* (1-3%), *Melampyrum pratense* (1%), *Dryopteris carthusiana* (1%).

Einzelne Pflanzen – *Ledum palustre*, *Equisetum sylvaticum*, *Luzula pilosa*, *Lysimachia vulgaris*, *Calluna vulgaris*, *Potentilla erecta* et al.

Die Moos Schicht ist dicht (Bedeckung 90-98%), bestehend aus *Pleurozium schreberi* (60-65%), *Dicranum polysetum* (30-33%), *Polytrichum commune* (1-5%).

Die gesamte Biomasse der Krautschicht ist ungefähr 1,3 kg /m<sup>2</sup> (TG), einschließlich kleiner nachwachsender Bäume, und Sträuchern von *Sorbus aucuparia* und *Frangula alnus* (etwa 0.1 kg/m<sup>2</sup> TG). Die Biomasse der Moose ist 1,0 kg/m<sup>2</sup>, Kleingesträuch (hauptsächlich *Vaccinium myrtillus* –0.12-0.14 kg/m<sup>2</sup>). Die wichtigsten Pilzarten sind *Xerocomus badius*, *Cantharellus cibarius*, *Russula paludosa*, *Suillus luteus*, *Boletus edulis*.

#### **Wild:**

Die wichtigste Wildart sind Rehe (*Capreolus capreolus*) mit 0,03 Tieren pro km<sup>2</sup>.

### **7.2.1.12 <sup>90</sup>Sr in Hirschgeweihen in Österreich (tatar02)**

#### **Deposition**

Um die Deposition von <sup>90</sup>Sr in den Gebieten zu charakterisieren, sind die mittleren Niederschläge in mm/a für die Zeit seit 1961 angegeben. Ein Zusammenhang mit der Konzentration von <sup>90</sup>Sr in Hirschgeweihen wurde nicht gefunden.

Ort Niederschlag in mm/a

Langnau (A) 1600

Trofaiach (A) 730

Eisenkappl (A) 1300

Bludenz (A) 1300

Gerlos (A) -

Dienten (A)

Grünau (A) 1510

## **7.2.2 Aquatische Systeme**

### **7.2.2.1 Bodensee**

#### **Deposition**

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 17; auf Einzugsgebiet: 7,6

#### **Charakteristika:**

Ort: 47° 39' N, 9° 18' E, 395 m über dem Meer

Oberfläche in km<sup>2</sup>: 572

Maximale Tiefe in m: 254

Mittlere Tiefe in m: 85

Limnologie: monomiktischer, mesotropher, voralpiner See; Kalium 1 mg/L.

Sediment: Tonminerale: Kaolit-Illit-Chlorit;

Karbonat: 20-30% im Mittel, Extremwerte 8 bis 89%;

Organische Materie: ca. 5%

Einzugsgebiet in km<sup>2</sup>: 11487

Untersuchte Fischarten: Felchen, Hechte, Aale, Barsche, Lachse, Renken, Äschen

#### **7.2.2.2 Vorse**

##### ***Deposition***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 28 ; auf Einzugsgebiet 28

##### ***Charakteristika:***

Gauß-Krüger-Koordinaten: x3543,y5305, 579 m über dem Meer

Oberfläche km<sup>2</sup>: 0,0898

Maximale Tiefe in m: 2,2

Mittlere Tiefe in m: 0,6

Limnologie: polymiktischer, eutropher See; Kalium 2mg/L

Sediment: wässrig, 96% in 60 cm Tiefe, dort 55% der Trockenmasse, organischer Natur

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 1,27

Untersuchte Fischarten: kleine Weißfische, Hechte

#### **7.2.2.3 Schreckensee:**

##### ***Deposition***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 28 ; auf Einzugsgebiet 28

##### ***Charakteristika:***

Gauß-Krüger-Koordinaten:x3542,y5305, 568 m über dem Meer

Oberfläche km<sup>2</sup>: 0,32

Maximale Tiefe in m: 11,3

Mittlere Tiefe in m: 6,1

Limnologie: dimiktischer, eutropher See;

Sediment: im Zentrum des Sees, dicke Schlammschicht von Abwasser

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 7,04

Untersuchte Fischarten: kleine Weißfische, Hechte

#### **7.2.2.4 Luganer See (CH)**

##### ***Deposition***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 24 ; auf Einzugsgebiet 24

##### ***Charakteristika:***

Ort: 46° 55' N, 5°56' E Südbecken, 271 m über dem Meer

Oberfläche km<sup>2</sup>: 19

Maximale Tiefe in m: 95

Mittlere Tiefe in m: 55

Limnologie: saisonal geschichteter See; Seegrund anoxisch während 8 Monaten; Kalium 0,5 mg/L

Sediment: Quartz und Glimmer (Biotit und Muskovit) dominieren; Östlich sind Karbonate (Calcit und Dolomit) häufig; 15 bis 20% der Trockenmasse des Sediments sind organischer Natur

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 615

Untersuchte Fischarten: -

#### **7.2.2.5 See Uruskul (Russland)**

##### ***Deposition***

<sup>90</sup>Sr Niederschlag am 29.09.57 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 16000 ; auf Einzugsgebiet 19600

##### ***Charakteristika:***

Ort: Südural, Russland, 9 km süd-östlich der Stadt Kasli 55°30' bis 55°40' N 61° O , 225 m über Meereshöhe, 430 mm/a Niederschlag

Oberfläche km<sup>2</sup>: 4,44

Maximale Tiefe in m: 3

Mittlere Tiefe in m: 2

Limnologie: pH 9; Ca: 8,5 bis 11 mg/L; Mg: 110 bis 390 mg/L; K und Na 340 bis 990 mg/L davon 5% K; Minerale 2500 bis 3700 g/L. Beginnt zu versalzen, eutroph. Gefroren von November bis Mai.

Sediment: Sapropel-Schlick und moorig mit hoher Sorptionskapazität. Organischer Anteil ca. 27 % TM enthält 90 % des <sup>90</sup>Sr

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 20,5

Untersuchte Fischarten: Karpfenknochen

#### **7.2.2.6 See Berdenish (Russland)**

##### ***Deposition***

<sup>90</sup>Sr Niederschlag am 29.09.57 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 17000 ; auf Einzugsgebiet 19600

##### ***Charakteristika:***

Ort: Südural, Russland, in Techa Flussebene 55°30' bis 55°40' N 61° O , 229 m über Meereshöhe, 430 mm/a Niederschlag

Oberfläche km<sup>2</sup>: 12,1

Maximale Tiefe in m: 3

Mittlere Tiefe in m: 2

Limnologie: pH 9; Ca: 12mg/L; eutroph

Sediment: dicke Schlickschichten

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 45,4

Untersuchte Fischarten: Goldfischknochen

#### **7.2.2.7 Rhein bei Koblenz**

keine Informationen

#### **7.2.2.8 Hesseloe**

keine Informationen

#### **7.2.2.9 Kokemaejoke, SF**

keine Informationen

#### **7.2.2.10 Oestby**

keine Informationen

#### **7.2.2.11 Vila Velha de Rodao, P**

keine Informationen

#### **7.2.2.12 Devoke Water, UK (IAEA 2000)**

##### ***Deposition:***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 15-20 ;

auf Einzugsgebiet 15-20

##### ***Charakteristika:***

Ort: Lake district in nord-west England. Höhe 230 m.

Oberfläche km<sup>2</sup>: 0,4

Maximale Tiefe in m: 12

Mittlere Tiefe in m:

Limnologie: Weiches Wasser, 9 mg/L Kationen gesamt, pH = 6,5.

Im Winter durchmischt, gelegentlich zugefroren, ab Mai geschichtet bis Oktober

Sediment:

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 2,4

Untersuchte Fischarten: Salmo trutta

#### **7.2.2.13 Heimdalsvatn, N (IAEA 2000)**

##### ***Deposition***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 130 ; auf Einzugsgebiet 130

##### ***Charakteristika:***

Ort: 61°25'N, 8°54'E in 1090 m Höhe

in den Jotunheimen Bergen in Süd Norwegens

Oberfläche km<sup>2</sup>: 0,78

Maximale Tiefe in m: -

Mittlere Tiefe in m: 4,7

Limnologie: Von Oktober bis Anfang Juni ist der See zugefroren. Der See ist im Sommer nur für kurze Perioden geschichtet.

Niederschlag am Abfluss ca. 800 mm pro Jahr. Oligotrophischer, weichwasser See. Kalium 0,4 mg/L; pH = 6,2-7,2.

Sediment:

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 23,6

Untersuchte Fischarten: Salmo trutta

#### **7.2.2.14 Hillesjön, S (IAEA 2000)**

##### ***Deposition***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 100 ; auf Einzugsgebiet 24

##### ***Charakteristika:***

Ort: Nördlich der Stadt Gävle, nahe der Ostküste von zentral Schweden gelegen, 60°45'02" N 17°14'07" E.

Oberfläche km<sup>2</sup>: 1,6

Maximale Tiefe in m: 3,1

Mittlere Tiefe in m: 1,7

Limnologie: Mesotroph, pH = 7 – 7,5, Kalium 3 mg/L. Zugefroren von Dezember bis April/Mai

Sediment: 35% organisch

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 19, davon > 80% Wald

Untersuchte Fischarten: Hechte, Barsche, Rotaugen,

#### **7.2.2.15 Ijsselmeer, NL (IAEA 2000)**

##### ***Deposition:***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 1,5-3 ; auf Einzugsgebiet ca. 7

##### ***Charakteristika:***

Ort: Nord Holland in Meereshöhe

Oberfläche km<sup>2</sup>: 1140

Maximale Tiefe in m:

Mittlere Tiefe in m: 4

Limnologie: Resuspension von Sediment, keine Schichtung. Niederschlag ca. 750 mm/a, entspricht 10% des gesamten Flusses in den See. Eutroph, oligohumisch. Kalium 7 mg/L; Kalzium 60 mg/l

Sediment: besteht hauptsächlich aus Tonmineralen (z.B. Illit) im Bereich von Kanälen (10-15 % des Seegrundes), der Rest ist mit Sand bedeckt.

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: gesamter Rhein

Untersuchte Fischarten: Barsche

#### **7.2.2.16 Valkjärvi, SF (IAEA 2000)**

##### ***Deposition***

<sup>137</sup>Cs Niederschlag am 1.05.86 auf Seeoberfläche in kBq/m<sup>2</sup>: 70 ; auf Einzugsgebiet 70

##### ***Charakteristika:***

Ort: 61°11' N, 25°07' E nahe Lammi, Provinz Häme

Oberfläche km<sup>2</sup>: 0,042

Maximale Tiefe in m: 8

Mittlere Tiefe in m: 3

Limnologie: Oligotroph, pH = 5,1; Kalium 0,4 mg/L, Kalzium 1 mg/L, Niederschlag 600 mm/a. Dimictic. Zugefren von November bis Ende April.

Sediment:

Einzugsgebiet km<sup>2</sup>: 0,17 davon 25 % Moor, 75% Wald

Untersuchte Fischarten: Weißfische, Hechte, Barsche,

### 7.2.2.17 Weitere Gebiete

Daneben wurden Daten vom Ammersee, Chiemsee, und Starnberger See, der Donau, Elbe, Ems, Havel, und Isar analysiert. Detaillierte Daten zur Charakterisierung dieser Gebiete standen nicht zur Verfügung.

## 7.3 Methodisches Vorgehen bei der Analyse der Daten

### 7.3.1 Fitfunktion

Der hier verwendete allgemeine Ansatz für die Bestimmung der Zeitabhängigkeit der Aktivitätskonzentration  $y(t)$  in Bq/kg lautet:

$$y = a \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{eff}}} = a \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{phys}}} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{öko}}}$$

wobei

$$\frac{1}{T_{eff}} = \frac{1}{T_{öko}} + \frac{1}{T_{phys}}$$

Die ökologische Halbwertszeit ergibt sich zu:

$$T_{öko} = T_{eff} \cdot T_{phys} / (T_{phys} - T_{eff})$$

mit der Unsicherheit:

$$\Delta T_{öko} = \frac{T_{öko}^2}{T_{eff}^2} \cdot \Delta T_{eff}$$

Falls eine Exponentialfunktion die Daten nicht zufrieden stellend beschreibt, wird zu einer Summe von 2 Exponentialfunktionen übergegangen:

$$y = (a_1 + a_2) \cdot \left[ \frac{a_1}{(a_1 + a_2)} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{eff1}}} + \frac{a_2}{(a_1 + a_2)} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{eff2}}} \right]$$

bzw.:

$$y = (a_1 + a_2) \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{phys}}} \cdot \left[ \frac{a_1}{(a_1 + a_2)} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{öko1}}} + \frac{a_2}{(a_1 + a_2)} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{öko2}}} \right]$$

oder zu einer Summe von 3 Exponentialfunktionen, wobei:

$$A = (a_1 + a_2 + a_3)$$



und

$$y = A \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{\text{phys}}}} \cdot \left[ \frac{a_1}{A} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{\text{öko1}}}} + \frac{a_2}{A} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{\text{öko2}}}} + \frac{a_3}{A} \cdot e^{-\ln 2 \cdot \frac{t}{T_{\text{öko3}}}} \right]$$

Dabei ist A eine globale Amplitude und  $a_1/A$ ,  $a_2/A$ ,  $a_3/A$  sind die relativen Amplituden-Anteile der einzelnen Exponentialfunktionen.

Für  $^{137}\text{Cs}$  ist  $T_{\text{phys}} = 30,1$  Jahre. Dann ist die Zerfallskonstante, falls  $T_{\text{phys}}$  in Tagen angegeben wird,

$$\lambda_{\text{phys}} (^{137}\text{Cs}) = \ln 2 / T_{\text{phys}} = 0,0000631 \text{ d}^{-1}$$

Für  $^{90}\text{Sr}$  ist  $T_{\text{phys}} = 28,79$  Jahre, dann ist die Zerfallskonstante, falls  $T_{\text{phys}}$  in Tagen angegeben wird,

$$\lambda_{\text{phys}} (^{90}\text{Sr}) = \ln 2 / T_{\text{phys}} = 0,0000659 \text{ d}^{-1}$$

Wenn eine Exponentialfunktion im Fit eine negative Amplitude oder einen positiven Exponenten zeigt, wird  $T_{\text{öko2}}$  bzw.  $T_{\text{öko3}} = \infty$  gesetzt, da dieser Fall in unserem Modell nicht vorgesehen ist. Der unkorrigierte Fit wird jedoch zur Abschätzung der Unsicherheit der Fitparameter weiterhin zusätzlich verwendet.

Die Unsicherheiten der ökologischen Halbwertszeit und der relativen Amplituden der Exponentialfunktionen werden per Fehlerfortpflanzung aus den Unsicherheiten der Fitparameter bestimmt.

Eine eventuelle Anreicherung eines Radionuklids am Anfang der Zeitreihe wird durch einen zusätzlichen Faktor

$$(1 - e^{-\lambda_0 \cdot t})$$

berücksichtigt. Diese Form der Anreicherung wurde gewählt, da damit das ursprüngliche Modell, bestehend aus einer Summe von 3 Exponentialfunktionen, mit denselben Koeffizienten beibehalten werden kann.

Ein eventuell vorhandener jahreszeitlicher Gang der Aktivitätskonzentration wurde durch eine Modulation mit einer Sinusfunktion berücksichtigt. Es ergibt sich folgender zusätzlicher Faktor:

$$(1 + b_1 \cdot \sin(2\pi/365.25 \cdot t + b_2))$$

### 7.3.2 Fit

Die Fit-Funktion wird in folgender Weise an die Aktivitätskonzentrationen angepasst:

Es wird das Programm-Paket Statistica ('99 Edition) von StatSoft verwendet.

Die Messdaten sind üblicherweise lognormal-verteilt. Die Wahrscheinlichkeitsdichte der Lognormal Verteilung ist folgendermaßen definiert:

$$f_{\log}(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \sigma \cdot x} e^{-(\ln x - \mu)^2 / 2\sigma^2}, x > 0$$

Dies ist die Normalverteilung für die Logarithmen der Zufallsgröße x, wobei  $\mu$  = Erwartungswert (=  $\ln(\text{Geomittel})$ ) und  $\sigma$  = Standardabweichung der  $\ln(x)$  Werte, dazu wird  $\sigma$  mit den  $\ln(x)$  Werten berechnet

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (\ln x_i - \mu)^2}{n-1}}$$

Wenn die Messdaten  $x$  lognormal verteilt sind und die Variabilität (= Standardabweichung  $\sigma$ ) der Lognormalverteilung der Meßdaten bekannt ist, wird die Anpassung einer Exponentialfunktion an die Messwerte nach der Methode der "Maximum-Likelihood" durchgeführt. Dabei wird für eine Zufalls-Stichprobe die Wahrscheinlichkeit, zuerst  $x_1$  und dann  $x_2$  u.s.w. zu erhalten, gleich

$$\prod_{i=1}^n p_{\pi}(x_i) = p_{\pi}(x_1) \cdot p_{\pi}(x_2) \cdot \dots$$

wegen der Unabhängigkeit der Messdaten. Dieser Ausdruck kann über den Parameter  $\pi$  maximiert werden. Für die Lognormalverteilung ist  $\pi = \mu$  bzw  $\sigma$ .

In Statistika wird statt der Maximalstelle dieser Funktion, die Maximalstelle ihres Logarithmus, der "Log-Likelihood" Funktion bestimmt

$$L(x_1, \dots, x_n, \pi) = \log\left(\prod_{i=1}^n p_{\pi}(x_i)\right)$$

aus dem Produkt der Wahrscheinlichkeiten ergibt sich eine Summe in der Log-Likelihood-Funktion,

$$L(x_1, \dots, x_n, \pi) = \sum_i \log(p_{\pi}(x_i))$$

Es wird nun  $\pi$  so bestimmt, dass  $L$  maximal wird, bzw ( $-L$ ) minimal wird.

Wenn die Variabilität der Messwerte unbekannt ist, weil z. B. nur ein Messwert pro Jahr vorhanden ist, die Methode der Maximum Likelihood also nicht durchgeführt werden kann, kann nur ein nicht gewichteter oder ein gewichteter "Least Squares Fit" einer oder mehrerer Exponentialfunktionen an die Meßwerte durchgeführt werden. Es sind dabei Abweichungen in den Fitparametern zu erwarten, da ein Least Squares Fit eigentlich nur bei normalverteilten Messdaten durchgeführt werden darf.

Als erstes wird jeweils ein nicht gewichteter Least Squares Fit durchgeführt. Hier werden die Amplituden eher überschätzt. Insbesondere, wenn die Aktivitätskonzentrationen über mehrere Größenordnungen abnehmen, werden niedrige Messwerte teilweise „ignoriert“. In so einem Fall muss mit einem gewichteten Least Squares Fit, der die Amplituden eher unterschätzt, weitergearbeitet werden. Als Messunsicherheit werden üblicherweise 20 % oder 30% angenommen. Bei mehreren Exponentialfunktionen sind die Korrelationen zwischen den einzelnen Amplituden und Zerfallskonstanten teilweise sehr hoch. Dies kann dazu führen, dass die Messunsicherheiten von Statistica nicht berechnet werden können, da die dazu notwendigen Matrizen sich nicht „gutmütig“ genug verhalten und in manchen Fällen kann es auch dazu führen, dass die Messunsicherheit etwas variiert werden muss, um einen Fit überhaupt durchführen zu können.

Aus den Ergebnissen der unterschiedlichen Fits werden Mittelwerte für die Parameter und zugehörige Vertrauensintervalle abgeschätzt.

Bei lognormalverteilten Messdaten sollte sich das Ergebnis des Fits nicht ändern, wenn man statistisch ausgewählte Untermengen der Messdaten verwendet.

Zum Test wurden die Messdaten zeitlich geordnet und 4 Untermengen der Daten von  $^{137}\text{Cs}$  in Rehfleisch aus Ochsenhausen jeweils für das erste Halbjahr gebildet, indem Messdatenreihen

$(n \cdot 4 + x)$  mit der Laufzahl  $n = 0, 1, 2, 3, \dots$  in die Untermengen  $x = 1$  bis 4 zusammengefasst wurden (Tabelle 7.2).

$$y = A \cdot \exp(-0,0000629 \cdot t) \cdot ((1-B) + B \cdot \exp(-C \cdot t)), \quad \text{mit } A = a_1 + a_2 ; B = a_1 / (a_1 + a_2) ; \\ C = \ln(2) / T_{\text{öko1}}$$

$$\text{Loss} = -\log(\text{lognorm}(\text{obs}; \log(\text{pred}); \sigma))$$

Rehdaten von Ochsenhausen für das 1. Halbjahr der Jahre 1988 bis 2002

Daten- auswahl	Fit parameter			Ökologische Halbwertszeit Jahre	
	A	B	C	$T_{\text{öko1}}$	$\Delta T_{\text{öko1}}$
alle	1399,73	0,94	0,00088	2,16	0,22
X = 1	1399,95	0,94	0,00086	2,21	0,42
X = 2	1399,96	0,93	0,00091	2,09	0,37
X = 3	1400,03	0,95	0,00082	2,30	0,49
X = 4	1398,88	0,93	0,00090	2,10	0,39

Tabelle 7.2: Ergebnisse für den Fit mit 2 Exponentialfunktionen und  $T_{\text{öko2}} = \infty$

Ergebnis: Die ökologische Halbwertszeit wird innerhalb des Messfehlers durch alle Fits reproduziert.

Bei der Fehlerberechnung mit Statistica wurde der MS Fehler, wie in der Literatur üblich auf 1 normiert, wenn die Maximum Likelihood Methode angewandt wurde (Jennrich & Moore 1975).

## 7.4 Ergebnisse

### 7.4.1 Ökologische Halbwertszeiten in Moor und Wald

#### 7.4.1.1 Rehe

Die Verteilung der ökologischen Halbwertszeiten ( $T_1$ ) von Rehen ist in Abbildung 7.1 gezeigt.  $T_1$  kann durch eine Log-normal Verteilung beschrieben werden im Wertebereich 1 bis 12,5 Jahre.

$\mu = \ln(\text{Geomittel})$  d.h.  $\text{Geomittel}(T_1) = 3,32$  Jahre und  $\sigma = \text{Standardabweichung der } \ln(T_1)$  Werte d.h. für den geometrischen Mittelwert ergibt sich  $T_1 = 3,32 \cdot \exp(\pm 0,97)$  Jahre.

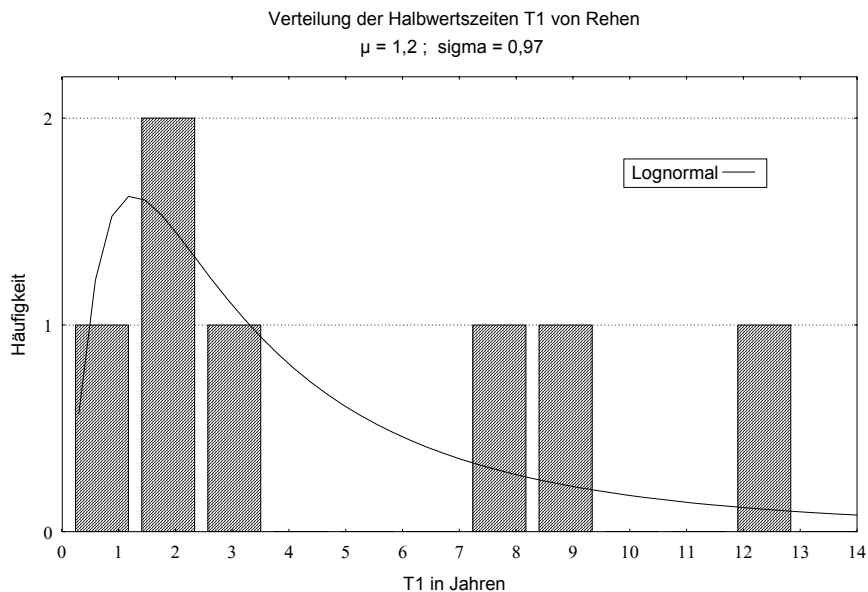


Abbildung 7.1: Verteilung der ökologischen Halbwertszeiten ( $T_1$ ) von Rehen

Unterschiede in  $T_1$  sind bedingt durch:

- den Fit: wenn nur eine Exponentialfunktion angesetzt wird, ergibt sich  $T_1 > 6$  Jahre; wenn  $T_2 = \infty$  angesetzt wird, so ist  $1 < T_1 < 4$  Jahre (z.B. Bodenmais);
- die Inhomogenität des Reviers bezüglich der  $^{137}\text{Cs}$  Kontamination, Bodenart, Klima, usw., z. B. "Bayern" umfasst sehr unterschiedliche Reviere, so dass  $T_1 = 11,9$  Jahre dort sehr viel größer ist als z.B. im Weinsberger Wald  $T_1 = 1,2$  Jahre;
- die Saison, da im Herbst die Aktivitätskonzentration des Rehfleisches größer ist als im Frühjahr wird " $T_1$  über das ganze Jahr berechnet" größer als " $T_1$  für jeweils das 1. Halbjahr" (z.B. Pfrunger Ried, Ochsenhausen).

#### 7.4.1.2 Wild, Äsungspflanzen und Xerocomus badius aus Deutschland und Österreich

Die Verteilung der  $T_1$  ist in Abbildung 7.2 gezeigt.  $T_1$  kann durch eine log-normal-Verteilung beschrieben werden und  $T_1$  von Wildschweinen, Rothirschen, Gämsen sowie Äsungspflanzen und Maronenröhrlingen fallen in das gleiche Zeitfenster wie die Rehe in Abbildung 7.1.

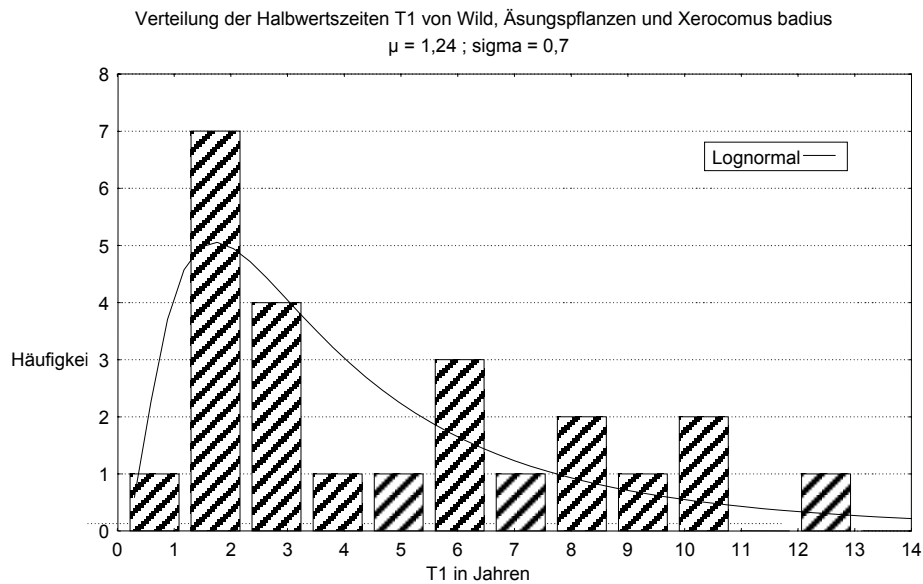


Abbildung 7.2: Verteilung der ökologischen Halbwertszeiten ( $T_1$ ) von Wildschweinen, Rothirschen, Gämsen sowie Äsungspflanzen und Maronenhöhrlingen

#### 7.4.1.3 Rehe und Äsungspflanzen aus Zhitomir, Ukraine

Bei der sehr viel höheren  $^{137}\text{Cs}$  Kontamination in Zhitomir – etwa Faktor 10 höher als in Süddeutschland - sind die  $T_1$  Werte im Allgemeinen größer. Für einige Komponenten des Ökosystems steigt die Kontamination mit der Zeit sogar noch an (Holz, Triebe, Nadeln).

$T_1$  Werte sind über einen sehr großen Bereich verteilt. Für Rehe ist  $T_1 = 128 \pm 123$  Jahre und für Pilze  $1,88 < T_1 < 512499$  Jahre.

#### 7.4.1.4 Amplituden der Aktivitätskonzentration von $^{137}\text{Cs}$ in Moor und Wald

Die Amplituden der Fitkurven des Zeitverlaufs der Aktivitätskonzentration können durch eine Lognormal-Verteilung beschrieben werden im Bereich  $388 < A < 160000$  Bq/kg wie Abbildung 7.3 für Deutschland und Österreich zeigt.

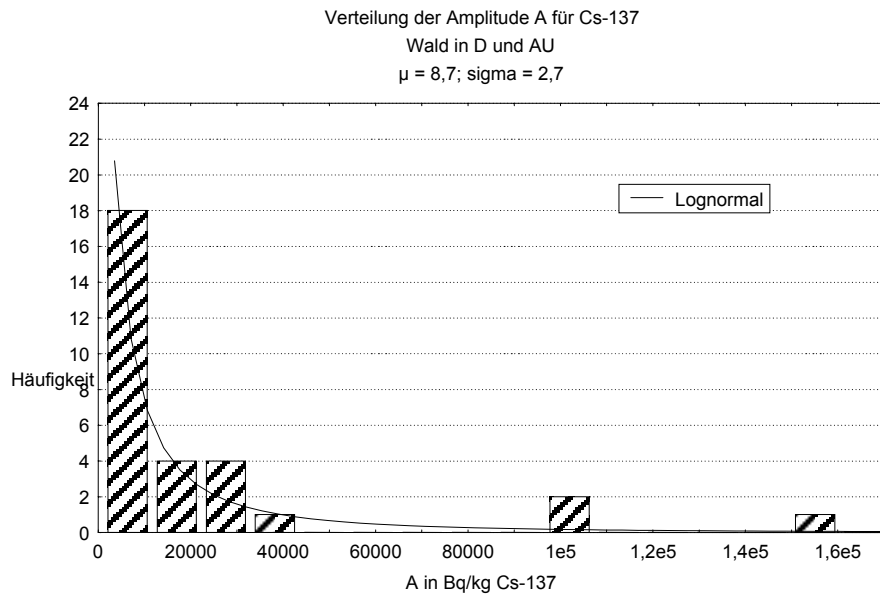


Abbildung 7.3: Verteilung der Amplitude A für Cs-137 in Deutschland und Österreich

In Abbildung 7.4 ist die Verteilung der Amplituden A für Zhitomir gezeigt. Entsprechend der höheren Bodenkontamination in Zhitomir ergeben sich Amplituden von  $4500 < A < 12000000$  Bq/kg.

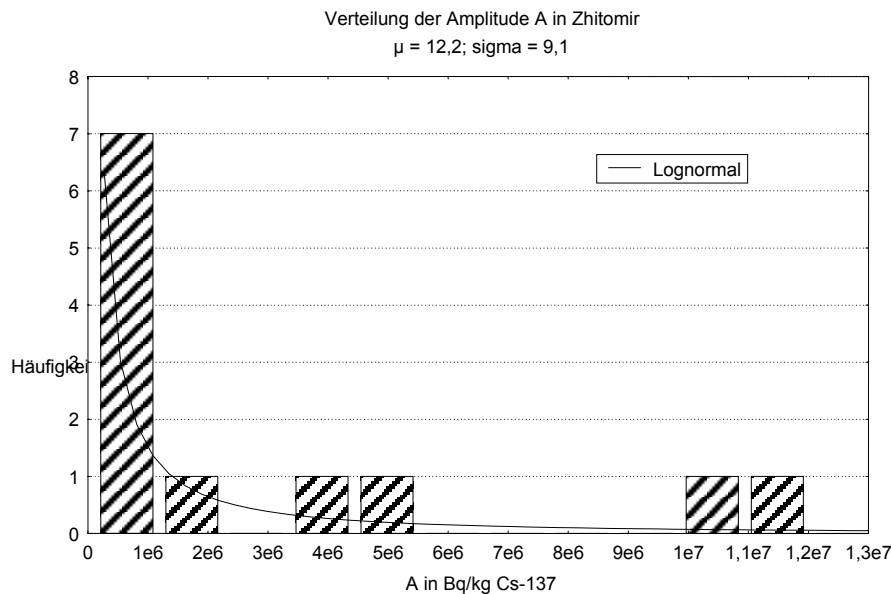


Abbildung 7.4: Verteilung der Amplitude A für Cs-137 in Zhitomir

#### 7.4.1.5 Aggregierte Transferfaktoren $T_{ag}$ von Waldpflanzen und Xerocomus Badius (Maronen)

Der aggregierte Transferfaktor  $T_{ag}$  ist definiert als das Verhältnis der Aktivitätskonzentration in der Pflanze (Bq/kg Trockenmasse) und dem Bodeninventar (Bq/m<sup>2</sup>) am Pflanzenort.

In Abbildung 7.5 ist die Verteilung der aus dem Fit entnommenen  $T_{ag}$  Werte für das Jahr 2002 dargestellt. Die  $T_{ag}$  Werte können durch eine Lognormal-Verteilung beschrieben werden.

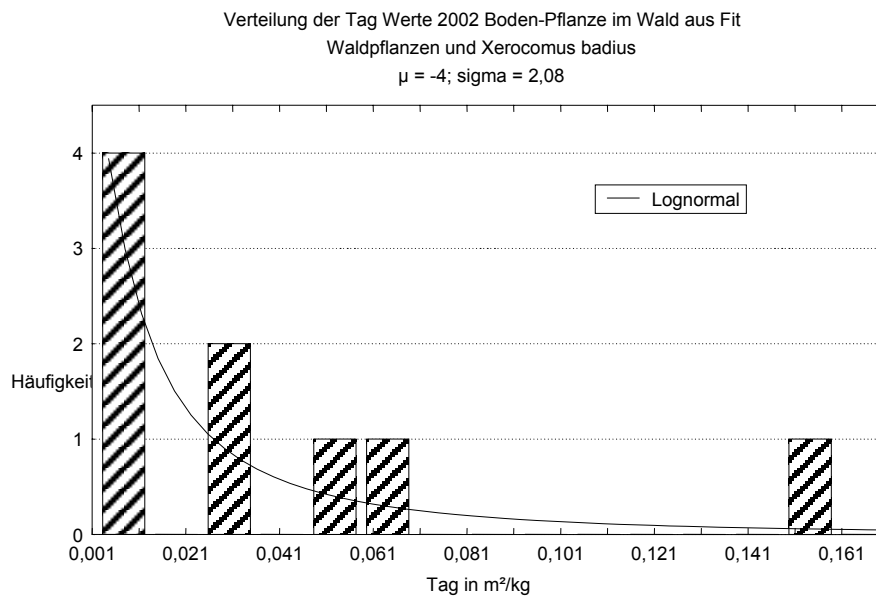


Abbildung 7.5: Verteilung von aggregierten Transferfaktoren für Waldpflanzen und Xerocomus badius für das Jahr 2002

#### 7.4.1.6 Zeitabhängigkeit des $^{137}\text{Cs}$ -Bodeninventars im Altdorfer Wald

Gemäß der Tabelle schwanken die  $T_1$  Werte im Boden:

$$(18,4 \pm 4) < T_1 < (312 \pm 1659) \text{ Jahre.}$$

Diese Unterschiede in  $T_1$  bedingen Unterschiede in  $T_{\text{eff}}$ :

$$(11,4 \pm 1,5) < T_{\text{eff}} < (27,4 \pm 0,005) \text{ Jahre.}$$

Damit wird im Boden die physikalische Halbwertszeit  $T_{\text{phys}} = 30,1$  Jahre von  $T_{\text{eff}}$  nicht erreicht. Es gibt also auch im Boden Prozesse, die einen Teil des  $^{137}\text{Cs}$  entziehen während der physikalische Zerfall stattfindet, was zu einer effektiven Halbwertszeit  $T_{\text{eff}} < T_{\text{phys}}$  führt.

#### 7.4.1.7 Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse für die Umweltmedien im Wald:

Die Umweltmedien im Wald zeigen für  $^{137}\text{Cs}$  ökologische Halbwertszeiten  $T_1$ , die durch eine Lognormal Verteilung beschrieben werden. Für Mitteleuropa ist  $T_1 < 12$  Jahre. Für Osteuropa ist der physikalische Zerfall ( $T_{\text{phys}} = 30,1$  Jahre) entscheidend für die Abnahme von  $^{137}\text{Cs}$ .

Beispiele:

Rehe in Mitteleuropa:	$1,2 < T_1 < 12$ Jahre
Rehe aus der Ukraine	$T_1 = 128 \pm 123$ Jahre
Rehe in Bayern	$T_1 = 12 \pm 0,9$ Jahre
Rotwild in Bayern	$T_1 = 6 \pm 0,4$ Jahre
Gämsen in Bayern	$T_1 = 7,7 \pm 1,4$ Jahre
Wildschweine in Bayern	$T_1 = 10,5 \pm 1,6$ Jahre
Waldpflanzen in Deutschland:	$0,9 < T_1 < 10$ Jahre
Xerocomus badius in Deutschland:	$4 < T_1 < 6$ Jahre
Pilze in der Ukraine	$2 < T_1 < 513000$ Jahre
Kiefernrinde aus der Ukraine	$9 < T_1 < 13,5$ Jahre.

In Kiefer (Holz, Triebe und Nadeln) aus der Ukraine steigt die Aktivitätskonzentration an.

Bei Schwarzwild tritt eine Besonderheit auf: die Aktivitätskonzentration der Wildschweine in Bayern nimmt ab mit der ökologischen Halbwertszeit  $T_1 = 10,5 \pm 1,6$  Jahre. Die Variabilität der Aktivitätskonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  in Schwarzwild steigt jedoch weiter an, so dass die maximalen gemessenen Aktivitätskonzentrationen im Lauf der Zeit ansteigen. Dieses gegenläufige Verhalten von Variabilität und Aktivitätskonzentration beim Schwarzwild wurde bisher nicht festgestellt.

Lückenhafte Datensätze für  $^{137}\text{Cs}$ :

Die wenigen gezeigten Daten für  $T_1$  aus den hochkontaminierten Gebieten der Ukraine deuten darauf hin, dass in einigen Umweltmedien des Waldes die Aktivitätskonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  weiter ansteigt oder nur dem physikalischen Zerfall unterliegt. Zum besseren Verständnis dieses Verhaltens werden Zeitreihen über wenigstens eine Dekade gebraucht, insbesondere für Umweltmedien aus der Ukraine, Belarus und Russland und aus den skandinavischen Ländern. Dabei wäre interessant, ob es in diesen Gebieten auch Umweltmedien gibt, bei denen die Aktivitätskonzentration bereits wieder abnimmt. Damit könnte die Frage beantwortet werden, unter welchen Bedingungen und in welchen Umweltmedien nimmt die Kontamination ab und was müssen wir tun, damit die Aktivitätskonzentration in allen Umweltmedien abnimmt?

Für Rehe (Abschuss in der 1. Jahreshälfte) im mitteleuropäischen Fichtenwald und für Waldpflanzen sowie *Xerocomus badius* hat die Aktivitätskonzentration jeweils unterschiedliche aber konstante Werte erreicht, so dass die ökologische Halbwertszeit  $T_2 = \infty$  wird.

Für  $^{90}\text{Sr}$  wurden Geweihe von Rothirschen aus Österreich untersucht mit dem Ergebnis  $T_1 = 22 \pm 3,6$  Jahre

Die Geweihe stammen aus 5 Revieren mit jeweils unterschiedlichem Niederschlag. Es kann bei den Geweihen keine Abhängigkeit der  $^{90}\text{Sr}$  Kontamination von der Niederschlagsmenge erkannt werden.

Fehlende Datensätze für  $^{90}\text{Sr}$ :

Für  $^{90}\text{Sr}$  fehlen Daten in Mitteleuropa, da die  $^{90}\text{Sr}$  Aktivitätskonzentration der Umweltmedien dort etwa um den Faktor 100 geringer ist als für  $^{137}\text{Cs}$  und deshalb nur wenige Untersuchungen vorliegen. Datensätze aus der Ukraine, Belarus und Russland müssen ausgewertet werden, um diese Lücke zu füllen. Wegen der erhöhten Mobilität des  $^{90}\text{Sr}$  im Boden im Vergleich zu der des  $^{137}\text{Cs}$ , ist von einem erhöhten Transfer von  $^{90}\text{Sr}$  in Nahrungsmittel auszugehen, dessen zeitliche Entwicklung von großem Interesse ist, um gegebenenfalls Empfehlungen zu geben, damit die Jahresdosis der Bevölkerung minimiert werden kann.



Ref.	Wald			Kontamination		Halbwertszeiten				Amplitude		Fit		Proben					
	Medium	Art	Ökosystem	Nuklid	Datum	Tphys	T1öko	ΔT1öko	T2öko	A	ΔA	r <sup>2</sup>	Methode	Zahl	Ort	Name	Datum	Saison	
						a	a	a	a	Bq/kg	Bq/kg	%							hj.
zi01a	Reh	Muskel	Moor	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	6,09	0,39	f	1588	96	f	Maxlike	308	D	Pfrunger	87-02	1.	
zi01a				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	7,24	0,45	f	1363	77	f	Maxlike	792	D	Ried	87-02	1.+2.	
zi01a			Fichtenwald	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,16	0,22	∞	1400	146	43,00	Maxlike	938	D	Ochsen-	87-02	1.	
zi01a				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,60	0,37	∞	1400	180	15,28	Maxlike	3309	D		hausen	87-02	1.+2.
fie02				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	3,59	2,76	∞	1950	946	9,95	Maxlike	393	D	Bodenmais	87-01	1.	
fie02				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,98	0,60	∞	4001	503	6,92	Maxlike	1429	D	Bodenmais	87-01	1.+2.	
fie02				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	7,29	0,90	f	1515	151	9,16	Maxlike	393	D	Bodenmais	87-01	1.	
fie02				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	6,28	0,35	f	2998	149	5,76	Maxlike	1429	D	Bodenmais	87-01	1.+2.	
fie02				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	8,54	0,62	f	2539	127	4,90	Maxlike	1505	D	Bodenmais	87-02	1.+2.	
tatar02				<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,24	0,59	∞	4500	1422	21,53	Maxlike	179	AU	W'sberger	86-01	1.	
tatar02			<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,16	0,20	∞	6550	1816	6,03	Maxlike	756	AU	Wald	86-01	1.+2.		
baff02			<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,43	0,31	∞	5500	1185	1,93	Maxlike	724	D	Eisenstein	87-99	1.+2.		
baff02			<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,35	0,41	∞	5500	901	f	Maxlike	872	D	Zwiesel	87-99	1.+2.		
baff02				Wald/Feld	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	11,92	0,86	f	420	16	f	Maxlike	11613	D	Bayern	87-99	1.+2.
IA 02				Wald	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	128	123	f	74174	3129	84,91	kl.Quadr.	5	Ukr	Zhitomir	91-97	1.+2.
baff02	W'schwein		Wald/Feld	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	10,46	1,61	f	1188	120	f	Maxlike	4077	D	Bayern	87-99	1.+2.	
baff02	Rotwild		Wald/Feld	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	6,05	0,44	f	456	28	f	Maxlike	2619	D	Bayern	87-99	1.+2.	
baff02	Gemse		Wald	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	7,74	1,40	f	388	49	f	Maxlike	1059	D	Bayern	87-99	1.+2.	
kl03	Boden	podzolic Luvisol	Fichtenwald	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	53,79	37,26	f	24747	2446	50,18	kl.Quadr.	9	D	Altdorfer Wald	91-02	2.	
kl03	Boden 214	Pod. Luv	Fichtenwald	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	32,29	12,20	f	22588	1958	63,69	kl.Quadr.	9	D	Altdorfer Wald	91-02	2.	

Tabelle 7.3: Ökologische Halbwertszeiten in Moor und Wald

Ref.	Wald			Kontamination		Halbwertszeit				Amplitude		Fit		Proben				
	Medium	Art	Öko-system	Nuklid	Datum	Tphys	T1öko	ΔT1öko	T2öko	A Bq/kg	ΔA Bq/kg	r <sup>2</sup>	Methode	Zahl	Ort	Name	Datum	Saison
kl03	Boden 199	podzolic Luvisol	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	18,36	3,91	f	21062	1923	86,39	kl.Quadr.	8	D	Altdorfer Wald	91-02	2.
kl03	Boden 180	podzolic Luvisol	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	312,36	1659	f	24092	3340	f	kl.Quadr.	9	D		91-02	2.
kl03	Boden 138	podzolic Luvisol	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	50,77	93,68	f	40598	11348	2,19	kl.Quadr.	8	D		91-02	2.
kl03	Boden	podz Luvisol	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	88,68	158,50	f	26808	4409	3,92	kl.Quadr.	103	D		91-02	2.
kl03	Dryopteris Carthusiana	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,80	1,74	∞	Tag = 2,29±4,87		76,33	kl.Quadr.	9	D		92-02	2.
kl03	Dryopteris Carthusiana	Blätter	Mischw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,13	0,199	∞	Tag = 2,01±0,69		40,66	kl.Quadr.	9	D		92-02	2.
kl03	R. fruticosus	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,25	0,07	∞	Tag = 0,97±0,14		98,26	kl.Quadr.	10	D		91-02	2.
kl03	R. fruticosus	Blätter	Mischw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	0,85	0,06	∞	Tag = 1,07±0,30		97,22	kl.Quadr.	10	D		92-02	2.
kl03	V.myrtillus	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,27	0,88	∞	Tag = 0,36±0,17		53,37	kl.Quadr.	8	D		92-02	2.
kl03	Rubus idaeus	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,17	0,57	∞	Tag = 0,50±0,32		87,57	kl.Quadr.	5	D		98-02	2.
kl03	Oxalis acetosella	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,04	1,17	∞	Tag = 0,25±0,24		71,17	kl.Quadr.	8	D		92-02	2.
kl03	Oxalis acetosella	Blätter	Mischw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	6,33	5,24	∞	Tag = 0,03±0,01		51,55	kl.Quadr.	8	D		92-02	2.
zi01a	Pilz	Xbadius	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	3,96	1,75	f	Tag = 0,27±0,09		44,85	kl.Quadr.	16	D	BW I/27	86-02	2.
fie02	Dryopteris Carthusiana	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,34	f	∞	150000	f	64,88	Maxlike	42	D	Bodenmais	89-00	1.+2.
fie02	Dryopteris Carthusiana	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	3,95	0,64	f	103529	19447	63,84	Maxlike	42	D		89-00	1.+2.
fie02	Dryopteris Carthusiana	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	4,61	0,81	f	96607	13468	65,77	kl.Quadr.	42	D		89-00	1.+2.
fie02	Athyrium filix-femina	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	9,86	3,72	f	14625	2811	37,72	kl.Quadr.	26	D		89-00	1.+2.
fie02	Rubus idaeus	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	3,12	0,97	f	10802	3618	46,26	kl.Quadr.	39	D		89-00	1.+2.

Tabelle 7.3: Ökologischen Halbwertszeiten in Moor und Wald (Fortsetzung)

Ref.	Wald			Kontamination		Halbwertszeiten				Amplitude		Fit		Proben				
	Medium	Art	Ökosystem	Nuklid	Datum	Tphys	T1öko	ΔT1öko	T2öko	A	ΔA	r <sup>2</sup>	Methode	Zahl	Ort	Name	Datum	Saison
						a	a	a	a	Bq/kg	Bq/kg	%						hj.
fie02	V.myrtillus	Blätter	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	9,24	3,00	f	17311	2691	34,19	kl.Quadr.	40	D	Bodenmais	89-00	1.+2.
IA 02	V. myrtillus	Beeren	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	14,71	f	f	11804	f	18,14	Maxlike	35	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
zi01a	Pilz	X. badius	Fichtenw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	5,54	2,12	f	4021	1582	7,99	Maxlike	337	D	O'chwaben	89-02	2.
IA 02	Pilz	X. badius	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	32,15	443	f	5E+06	1,E+07	f	Maxlike	35	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Pilz	Suillus luteus	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	52869	f	f	4E+06	f	f	Maxlike	15	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Pilz	Cantharellus cibarius	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	1,88	f	f	1E+07	f	f	Maxlike	20	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Pilz	B. edulis	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	2,65	0,48	f	1E+07	4,E+06	24,65	Maxlike	9	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Pilz	Russula paludosa	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	512499	f	f	2E+06	f	f	Maxlike	35	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Kiefer	Holz	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	Anstieg	f	f	4500	f	35,51	Maxlike	21	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Kiefer	Rinde (total)	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	13,5	3,71	f	8990	840	25,33	Maxlike	21	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Kiefer	Rinde (außen)	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	9,28	2,01	f	9807	1256	67,86	Maxlike	21	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Kiefer	Triebe	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	Anstieg	f	f	70000	f	15,34	Maxlike	21	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
IA 02	Kiefer	Nadeln	Kiefernw.	<sup>137</sup> Cs	60;86	30,1	Anstieg	f	f	61000	f	18,22	Maxlike	21	Ukr	Zhitomir	91-97	1.
tatar02	Rothirsch	Geweih	Fichtenw.	<sup>90</sup> Sr	45;86	28,79	15,19	10,27	f	2014	954	48,79	kl.Quadr.	37	A	Trofaiach	54-90	1.
tatar02	Rothirsch	Geweih	Fichtenw.	<sup>90</sup> Sr	45;86	28,79	22,07	3,63	f	3200	907	28,63	kl.Quadr.	187	A	<sup>1</sup>	46-90	1.

Tabelle 7.3: Ökologischen Halbwertszeiten in Moor und Wald (Fortsetzung)

Langnau, Trofaiach, Eisenkappel, Bludenz, Gerlos

- Spalte 6, Datum der Kontamination: „45, 60, 86“ = Beginn (1945) und Höhepunkt (1960) der atmosphärischen Kernwaffenexplosionen und Reaktorunfall von Tschernobyl (1986)
- f: = nicht vorhanden
- r<sup>2</sup> = Prozentsatz der durch den Fit erklärten Variabilität der abhängigen Variablen (Aktivitätskonzentration oder aggregierter Transferfaktor)
- Daten zum aggregierten Transferfaktor T<sub>ag</sub> in (Bq/m<sup>2</sup>) von Pflanzen und Pilzen sind in der Tabelle in der Spalte „Amplitude“ aufgeführt.

## 7.4.2 Oberflächengewässer und Fische

Monte (1995), und Smith et al. (1999), haben dargestellt, dass die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration in Oberflächengewässern durch eine Summe von drei Exponentialfunktionen dargestellt werden sollte. Die erste Exponentialfunktion mit einer sehr kurzen Halbwertszeit beschreibt das Abfließen der auf die Oberfläche des Einzugsgebietes nieder gegangenen Aktivität. Die zweite wird durch die zunehmende Fixierung des  $^{137}\text{Cs}$  bedingt und die dritte beschreibt den Gleichgewichtszustand zwischen Fixierung und Rücklösung, wobei die Abnahme der Aktivitätskonzentration im wesentlichen durch die Abnahme des „wash-off“ aus dem Einzugsgebiet bedingt ist (Smith, 2000). Prinzipiell würde man Halbwertszeiten in der Größenordnung von Tagen, Monaten, bzw. wenigen Jahren erwarten. Durch über die Zeit integrierende Wirkungen, z. B. durch die Wasserrückhaltezeit eines Sees, werden die Halbwertszeiten der drei Exponentialfunktionen u. U. deutlich verlängert und können für unterschiedliche Seen auch bei ähnlichen physikalisch-chemischen Prozessen sehr unterschiedlich sein.

Wenn die Aktivitätskonzentration, wie in den meisten vorliegenden Fällen, nicht unmittelbar nach dem Zeitpunkt der Kontamination und auch nicht über einen Zeitraum, der deutlich mehr als 10 Jahre beträgt, gemessen wird, ist es oft nicht möglich, die Anteile und Halbwertszeiten aller drei Exponentialfunktionen zu bestimmen. Die eine oder zwei Exponentialfunktionen, die dann den Daten angepasst werden können, sind daher durch eine zweite oder dritte Exponentialfunktion u. U. stark beeinflusst.

### 7.4.2.1 REM Database der EU

In der REM Database der EU (<http://rem.jrc.cec.eu.int>) sind u. a. die  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentrationen der Oberflächengewässer des „sparse network“ enthalten (Tabelle 7.4). Uns standen die Werte bis 1994 zur Verfügung, wobei in vielen Gewässern die meisten Konzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze liegen. Die Eingabe der Werte von 1995 - 2000 soll unmittelbar bevorstehen, was eine weitergehende Analyse ermöglichen wird.

Für den Rhein bei Koblenz und den Kokemaenjoke bei Pori (Finnland) sind trotz eventueller radioaktiver Ableitungen aus kerntechnischen Anlagen klare Signaturen des Unfalls von Tschernobyl zu sehen: Beim Rhein betragen die drei ökologischen Halbwertszeiten 18 Tage, 185 Tage bzw. unendlich, beim Kokemaenjoke 5 Tage, 422 Tage, bzw. ebenfalls unendlich. Es ist zu beachten, dass die erste Halbwertszeit hier jeweils nur durch einen abweichenden Messpunkt bestimmt wurde, also mit einer sehr großen Unsicherheit behaftet ist.

In anderen Gewässern konnten ein bis zwei Halbwertszeiten bestimmt werden, sie liegen zwischen 132 Tagen und 15177 Tagen (41,6 Jahre).

### 7.4.2.2 Seen, von denen Originaldaten vorliegen

Für den mesotrophen, kalkhaltigen Bodensee mit großer Selbstreinigungskraft, den Luganer See und den flachen eutrophen Vorsee (bei Ravensburg) liegen uns Originaldaten und eigene Messungen vor (Tabelle 7.5). Die Aktivitätskonzentration wurde jeweils über das Tiefenprofil gemittelt.

Beim Bodensee, dessen Wasser mittlerweile eine  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration von weniger als 0,1 mBq/l hat, konnten zwei Exponentialfunktionen angepasst werden. Die Halbwertszeiten betragen  $(170 \pm 26)$  Tage (0,47 Jahre) und  $(1477 \pm 131)$  Tage (4,0 Jahre).

Für das Südbecken des Luganer Sees wurden mit  $(242 \pm 88)$  Tagen (0,66 Jahre) und  $(1302 \pm 198)$  Tagen (3,6 Jahre) ähnliche Werte bestimmt. Durch eine Modellierung (Zi01) wurde nahe gelegt, dass hier die ersten beiden Exponentialfunktionen beobachtet wurden und dass wir uns im Moment im Übergang zur dritten Exponentialfunktion befinden.

Der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration von Sinkstoffen an zwei verschiedenen Positionen im Luganer See konnten ebenfalls zwei Exponentialfunktionen angepasst werden: Mit etwa 110 Tagen (0,30 Jahren), bzw. etwa 2400 Tagen (6,6 Jahren), liegen die ökologischen Halbwertszeiten in der gleichen Größenordnung wie beim Wasser und lassen tendenziell eine geringe Zunahme des Verteilungskoeffizienten  $k_D$  im Bereich der zweiten Exponentialfunktion erkennen. Wird der jahreszeitliche Gang der Aktivitätskonzentration durch eine Modulation der Exponentialfunktion mit einer Sinusfunktion modelliert, ergeben sich Amplituden für den Sinus von etwa 80 % der Exponentialfunktion.

Der Aktivitätskonzentration des Vorsee-Wassers konnten zwei Exponentialfunktionen angepasst werden. Die ökologischen Halbwertszeiten betragen  $(732 \pm 375)$  Tage (2,0 Jahre) und  $(13006 \pm 11840)$  Tage (35,6 Jahre). In Anbetracht der geringen Größe von See und Einzugsgebiet und auf Grund einer Modellierung (Zi01) schließen wir, dass hier vermutlich die zweite und dritte Exponentialfunktion beobachtet wird. Der starke Wuchs von Wasserpflanzen in der warmen Jahreszeit führt über jahreszeitliche Schwankungen der  $\text{O}_2$ - und der  $\text{NH}_4$ -Konzentration (Kaminski et al. 1994) auch zu einer jahreszeitlichen Modulation der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration. Eine Modulation der Exponentialfunktion mit einem Sinus führt beim Vorsee-Wasser zu einer Amplitude des Sinus von etwa 25 % der Exponentialfunktion.

Nach dem Kyshtym-Unfall vom 29. September 1957 in der Nähe von Cheliabinsk im Ural wurde u. a.  $^{90}\text{Sr}$  bis in etwa 1 km Höhe in die Atmosphäre eingebracht, wodurch die Seen Uruskul und Berdenish mit  $^{90}\text{Sr}$  kontaminiert wurden. Bei den Messdaten ist uns nur das Jahr der Probennahme bekannt, so dass mit zusätzlichen Unsicherheiten bei der Bestimmung der Halbwertszeiten zu rechnen ist. Für die beiden Seen (Tabelle 3) ergeben sich ökologische  $^{90}\text{Sr}$  Halbwertszeiten von 47 bzw. 39 Tagen (0,1 Jahre), 1554 bzw. 1192 Tagen (3,3 bzw. 4,3 Jahre) und unendlich bzw. 11304 Tagen (30,9 Jahre). Die ersten Halbwertszeiten sind hier wieder nur durch einen abweichenden Messpunkt bestimmt, weshalb die Zeiten mit einer großen Unsicherheit behaftet sind. Es fällt auf, dass die zweiten  $^{90}\text{Sr}$  Halbwertszeiten in diesen Uralseen mit den zweiten  $^{137}\text{Cs}$  Halbwertszeiten von Bodensee und Luganer See übereinstimmen.

#### **7.4.2.3 Literaturwerte für Wasser aus Seen, Reservoirs und Flüssen**

Die Seen in der Tabelle 7.6 mit Literaturwerten sind im Wesentlichen aus Italien, Großbritannien, Deutschland und der Schweiz. Für  $^{137}\text{Cs}$  liegen die ökologischen Halbwertszeiten der ersten Exponentialfunktion zwischen 0,1 Jahren (kleine flache Seen) und 1,3 Jahren (Nordbecken des Luganer Sees mit einer Wasserrückhaltezeit von über 30 Jahren). Die danach beobachteten Halbwertszeiten variieren sehr stark mit den Extremwerten von 0,85 Jahren und 38,4 Jahren.

Für  $^{90}\text{Sr}$  gibt es in Tabelle 7.6 Daten von einigen italienischen Seen. Ignoriert man eine Zeitreihe von nur 3 Jahren, liegen die beobachteten ökologischen Halbwertszeiten für  $^{90}\text{Sr}$  in einem Beobachtungszeitraum von 5 bis 8 Jahren zwischen 7,5 Jahren und 89,4 Jahren. Diese starke Schwankung ist u. a. auf geringe Zahlen von Messwerten zurückzuführen.

Die Aktivitätskonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  in verschiedenen Wasser-Reservoirs in der Ukraine, die mit Hunderten von Messungen über den Zeitraum von 1987 bis 2001, sehr gut bestimmt wurde, zeigt eine anfängliche ökologische Halbwertszeit zwischen 2,6 Jahren und 3,0 Jahren. Danach wird eine Halbwertszeit von 21,3 Jahren bis 27,9 Jahren beobachtet. Im gleichen Zeitraum, ebenfalls durch viele hundert Messungen belegt, wird für  $^{90}\text{Sr}$  in den Wasser-Reservoirs der Ukraine eine ökologische Halbwertszeit von 8,2 bis 18,9 Jahren beobachtet.

In den Flüssen der Ukraine liegt die anfängliche Halbwertszeit für  $^{137}\text{Cs}$  zwischen 2,0 Jahren (Dnieper) und 6,5 Jahren. Danach variieren die Halbwertszeiten stärker, nämlich zwischen 7,5 und 73 Jahren.

Wiederum mit Hunderten von Messdaten im Zeitraum von 1987 bis 2001 belegt sind die  $^{90}\text{Sr}$  Aktivitätskonzentrationen in den Flüssen der Ukraine. Die beobachteten ökologischen Halbwertszeiten liegen zwischen 5,6 Jahren (Dnieper) und 24,2 Jahren.

#### **7.4.2.4 Fische aus der IMIS-Datenbank**

In der IMIS-Datenbank fanden sich nach einer Bündelung diverser Fisch-Spezies zu Gruppen (*Lachse*: Lachse, Renken und Äschen; *Barsche*: Barsche und Zander; *Weißfische*: die Gruppe der Weiß- und Karpfenfische) insgesamt 19 Zeitreihen für  $^{137}\text{Cs}$  mit jeweils mehr als 30 Daten, die über 6 bis 15 Jahre liefen (Tabelle 7.7).

In 7 Zeitreihen konnte ein Anreicherungsterm modelliert werden. In weiteren Zeitreihen deutet sich die Anreicherung an, ist aber noch nicht ausgeprägt genug, um in einem Least Squares Fit zu bestehen. Die Zeitkonstante der exponentiellen Anreicherung  $\lambda_0$  liegt zwischen  $0,014 \text{ d}^{-1}$  und  $0,0022 \text{ d}^{-1}$ . Dies entspricht Anreicherungs-Halbwertszeiten von 50 Tagen bzw. 315 Tagen. Nur in zwei Fällen war der Fit gut genug, um Unsicherheiten der Parameter berechnen zu können. Dort lag  $\lambda_0$  bei  $0,022 \text{ d}^{-1}$  bzw.  $0,023 \text{ d}^{-1}$ , also am oberen Ende des Intervalls. Die Werte für  $\lambda_0$  sind mit großer Vorsicht zu gebrauchen, insbesondere da dieser Anreicherungs-Parameter im Fit meistens stark mit den Parametern der ersten Exponentialfunktion korreliert ist.

In 10 Fällen wird eine Abnahme der Aktivitätskonzentration über zwei Exponentialfunktionen gesehen. Die ökologischen Halbwertszeiten der ersten Funktion liegen zwischen 44 und 643 Tagen; die der zweiten Funktion liegen zwischen 577 Tagen und unendlich. In den Fällen, in denen die Abnahme der Aktivitätskonzentration durch eine einzige Exponentialfunktion beschrieben wird, liegen die ökologischen Halbwertszeiten zwischen 405 und 1829 Tagen. Das zeitliche Verhalten der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration bei den verschiedenen Fischgruppen ist insgesamt ähnlich.

#### **7.4.2.5 Fische aus der Datenbank der FH Ravensburg-Weingarten**

Für den Bodensee sowie für den Schreckensee und den Vorsee, zwei kleinen Seen der Blitzenreuther Seenplatte, etwa 30 km nördlich des Bodensees, konnten insgesamt 7 Zeitreihen für Hechte bzw. Hechte und Aale, Felchen, Barsche und die Gruppe der kleinen Weißfische analysiert werden (Tabelle 7.8).

Bei den Hechten/Aalen bzw. Hechten in Bodensee und Schreckensee wurden Anreicherungs-Zeitkonstanten  $\lambda_0$  von  $0,0018 \text{ d}^{-1}$  und  $0,0033 \text{ d}^{-1}$  bestimmt (Anreicherungs-Halbwertszeiten von 210 Tagen bzw. 385 Tagen). Diese relativ langsame Anreicherung wird verständlich, wenn man bedenkt, dass Hechte und Aale am Ende der Nahrungskette eines Sees stehen.

Bei den Fischen, deren Aktivitätskonzentration durch zwei Exponentialfunktionen beschrieben wurde, liegen diese beiden Halbwertszeiten zwischen den Werten für Felchen im Bodensee, nämlich 153 und 1546 Tage und denen für Hechte im Vorsee, nämlich 1082 Tage und unendlich.

Es zeigt sich in diesen Tabellen, dass die ökologischen Halbwertszeiten der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration im Wasser eines Sees und in den kleinen Weißfischen dieses Sees im Rahmen der Auswertegenauigkeit in Übereinstimmung sind. Hier ist es sinnvoll von Konzentrationsfaktoren zu sprechen.

#### 7.4.2.6 Fische aus der Datenbank der „VAMP Aquatic Working Group“

Insgesamt konnten 10  $^{137}\text{Cs}$ -Zeitreihen von 5 europäischen Seen ausgewertet werden (Tabelle 7.9). In 4 Fällen, für Fische im Heimdalsvatn und Hillesjön, konnten Anreicherungsterme gefittet werden. Die Anreicherungs-Zeitkonstanten  $\lambda_0$  liegen zwischen  $0,0031\text{ d}^{-1}$  und  $0,0138\text{ d}^{-1}$  (Anreicherungs-Halbwertszeiten zwischen 224 und 50 Tagen). Im Rahmen der Unsicherheiten der Fits ist dies für die Fischarten Bach-Forelle, Hecht, Barsch und Rotauge eine gute Übereinstimmung.

Da die Zeitreihen höchstens eine Periode von etwa 6 Jahren durchliefen, konnte in den meisten Fällen nur eine Exponentialfunktion an die Daten angepasst werden. Die ökologische Halbwertszeit liegt zwischen 453 Tagen (1,2 Jahre; Barsche, Ijsselmeer) und 3166 Tagen (8,7 Jahre; Hechte, Valkjärvi). In einem Fall (Barsche, Devoke Water), konnte über den physikalischen Zerfall hinaus keine weitere Abnahme der Aktivitätskonzentration festgestellt werden.

#### 7.4.2.7 $^{90}\text{Sr}$ in Fischen nach dem Kyshtym-Unfall

Aus den Uralseen Berdenish und Uruskul wurden über einen Zeitraum von 33 Jahren 5 bzw. 8 Goldfisch- bzw. Karpfen-Proben untersucht (Tabelle 7.10). Wie beim Wasser ist auch hier nur das Jahr als Probenahmedatum bekannt. Bei der Anpassung einer Exponentialfunktion an die beiden Datensätze ergeben sich ökologische Halbwertszeiten von 3299 und 2781 Tagen (9,0 und 7,6 Jahre). Das sind Werte, die zwischen denen der zweiten und dritten Halbwertszeit der Aktivitätskonzentration des Wassers des jeweiligen Sees liegen (s. o.).

#### 7.4.2.8 Schlussfolgerung

In diesen Beispielen wird deutlich, dass für den Zeitverlauf der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration in aquatischen Systemen eine Menge Daten zur Verfügung steht. Jedoch werden zur Bestimmung der Amplituden und Halbwertszeiten der Summe der drei Exponentialfunktionen in vielen Fällen mehr Daten benötigt, insbesondere im ersten Jahr nach der Kontamination (Es sollte so früh wie möglich mit Messungen begonnen werden), aber auch im Bereich 10 bis 50 Jahre nach der Kontamination. Wird die dritte Exponentialfunktion nicht mitgenommen, wird eine mögliche Dosis für die Bevölkerung im Modell unterschätzt.

Für  $^{90}\text{Sr}$  gibt es wegen den aufwendigeren Messungen wesentlich weniger Daten. In vielen Fällen gibt es Messwerte in zwei aufeinander folgenden Jahren (z.B für Flusswasser in der REM Database der EU), die dann aber nicht weiter fortgeführt wurden. Wir haben in diesem Projekt im Wesentlichen Information aus dem Gebiet der ehemaligen Sowjetunion bekommen können. Das Wissen um den Zeitverlauf der  $^{90}\text{Sr}$  Aktivitätskonzentration hat noch deutlich größere Lücken als das der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration.

Vorhandenes Datenmaterial ist häufig nicht mehr verfügbar, da alte Datenträger heute nur noch mit großem Aufwand lesbar gemacht werden könnten oder weil sie auf Grund der hohen Personalfuktuation in Behörden und Forschungsinstitutionen nicht mehr auffindbar sind. Von verschiedenen Institutionen wurde signalisiert, dass Originaldaten nur bei einer entsprechenden finanziellen Beteiligung geliefert werden könnten.

## Oberflächengewässer im "sparse network" aus der EU-Datenbank

REM Database: <http://rem.jrc.cec.eu.int>

Ökosystem Gewässer/Ort	Kontamination		Halbwertszeiten						Amplituden						Proben- zahl	Zeitraum in d		
	Nuklid	Datum	$T_{1,öko}$ in d	$\angle T_{1,öko}$ in d	$T_{2,öko}$ in d	$\angle T_{2,öko}$ in d	$T_{3,öko}$ in d	$\angle T_{3,öko}$ in d	$A_{ges}$ Bq/kg	$\angle A_{ges}$ Bq/kg	$A_1$	$\angle A_1$	$A_2$	$\angle A_2$			$A_3$	$\angle A_3$
Hesseloe Rhein:	Cs-137	1.5.1986	15177	5528					74,1	5	1						29	365-5693
Koblenz	Cs-137	1.5.1986	18		185			8	1159,4		0,898		0,099		0,003		96	15-3882
Kokemaenjoke:																		
Pori	Cs-137	1.5.1986	5		422			8	30780		0,9746		0,023		0,003		33	14-3089
Oestby	Cs-137	1.5.1986	132	53	2050	828			6631	2232	0,8838	0,050	0,116	0,031			44	60-6088
Tagus:																		
Vila Velha de Rodao	Cs-137	1.5.1986	169		8				155		0,9932		0,007				72	78-3515

Die Kontamination erfolgte im Wesentlichen durch den Tschernobyl-Fallout.

Keine Evaluierung der Daten aus Hastiere, Regensburg-Geisling, Schnackenburg, Tingstaede und Waltonlagen, da diese häufig unter der Nachweisgrenze liegen.

Die Daten von 1995 - 2000 sollten in Kürze in der Datenbank verfügbar sein.

Die meisten Probenahmestellen liegen an Flüssen oder in Meeren, in die radioaktive Ableitungen aus kerntechnischen Anlagen gelangen. Es ist daher zweifelhaft, ob insbesondere die langen ökologischen Halbwertszeiten etwas mit dem einmaligen Eintrag nach dem Unfall von Tschernobyl zu tun haben.

Tabelle 7.4: Ökologische Halbwertszeiten für Oberflächengewässer



Ökosystem See	Kontamination		Halbwertszeiten					Amplituden						Proben- Zeitraum zahl in d		
	Nuklid	Datum	$T_{1,öko}$ in d	$\Delta T_{1,öko}$ in d	$T_{2,öko}$ in d	$\Delta T_{2,öko}$ in d	$T_{3,öko}$ in d	$A_{ges}$	$\Delta A_{ges}$	$A_1$	$\Delta A_1$	$A_2$	$\Delta A_2$			$A_3$
<u>Wasser</u>								mBq/l	mBq/l							
Bodensee	Cs-137	1.5.1986	170	26	1477	131		91	24	0,97	0,01	0,03	0,01		15	146-5062
Vorsee	Cs-137	1.5.1986	732	375	13006	11840		1093	402	0,87	0,06	0,13	0,03		182	837-5996
Luganer See								mBq/l	mBq/l							
<u>Wasser</u> Südbecken	Cs-137	1.5.1986	242	88	1302	198		570	114	0,79	0,08	0,21	0,07		13	131-4948
<u>Sinkstoffe</u> Melide	Cs-137	1.5.1986	117	13	2393	1844		Bq/kg	Bq/kg						147	12-4261
<u>Sinkstoffe</u> Figino	Cs-137	1.5.1986	103	8	2476	1177		53088	2532	0,97	0,02	0,03	0,02		140	55-4261
<u>Wasser</u>								mBq/l	mBq/l							
Uruskul	Sr-90	1957	47		1554	$\infty$		1,4E+10		1,0E+00		2,4E-04		1,4E-05	20	365-12784
Berdenish	Sr-90	1957	39		1192	11304		7,2E+10		1,0E+00		3,5E-05		1,7E-06	10	365-12784

Die Kontamination erfolgte im Wesentlichen durch den Tschernobyl-Fallout, bzw. durch den Kyshtym-Unfall (Ural).

Im Bodensee und Luganersee wurde bei den einzelnen Daten über das Tiefenprofil gemittelt und jeweils mit der Wassermenge gewichtet.

Daten von Santschi, Lindner, Kaminski, Dominick und Klemt.

Die Sedimentfallen für die Sinkstoffe waren im Luganer See grundnah angebracht. Die Jahreszeitliche Modulation wurde hier wegen des großen Einflusses auf die erste Exponentialfunktion nicht berücksichtigt. Noch nicht veröffentlichte Daten aus einem Projekt des Laboratorio Studi Ambientale, Lugano, des Laboratoriums Spiez und der FH Ravensburg-Weingarten (BG01).

Im See Uruskul und im See Berdenish sind die einzelnen Daten nach dem Kyshtym-Unfall pauschal einem Jahr zugeordnet. Achtung: Die erste Exponentialfunktion

Tabelle 7.5: Ökologische Halbwertszeiten für Seen

Medium	Ref.	Radio-nuklid	A Beginn	A Ende	T <sub>1öko</sub>	T <sub>2öko</sub>	Zahl	Ort	Gewässer	Datum der Probennahme	Datum der Kontamination	Einzugsgebiet	Deposition 1.5.86 Einzugsgebiet	Seeoberfläche	Maximale Tiefe	Mittlere Tiefe	Verweilzeit des Wassers	Deposition 1.5.86 Wasser	K <sup>+</sup>
			mBq/l	mBq/l	a	a						km <sup>2</sup>	kBq*m <sup>-2</sup>	km <sup>2</sup>	m	m	a	kBq*m <sup>-2</sup>	10 <sup>-6</sup> eq/l
SEE	zi01	<sup>137</sup> Cs	60	< 0,1	0,43	2,8	16	D	Bodensee	87-01	60;86	11487	7,60	572	254	85	4,1	17	25
SEE	zi01	<sup>137</sup> Cs	500	70	–	5,9	181	D	Vorsee	88-02	60;86	1,27	28	0,09	2,2	0,6	0,24	28	50
SEE	zi01	<sup>137</sup> Cs	600	5	0,75	2,4	23	CH; I	Luganer See	87-00	60;86	615	24	48,9	288	55	2,5	24	10
SEE	mo97	<sup>137</sup> Cs	35	21,4	–	14,9	7	I	Albano	93-95	60;86			6		90	100		
SEE	mo97	<sup>137</sup> Cs	43	28	–	14,0	11	I	Bolsano	87-95	60;86			113,6		81	120,6		
SEE	mo97	<sup>137</sup> Cs	22	15	–	38,6	15	I	Bracciano	87-94	60;86			57		89	<sup>137</sup>		
SEE	mo97	<sup>137</sup> Cs	22	12,6	–	4,0	5	I	Nemi	90-95	60;86			1,8		20	25		
SEE	mo97	<sup>137</sup> Cs	180	65	–	7,4	12	I	Vico	87-94	60;86			12,1		21,6	17		
SEE	mo97	<sup>90</sup> Sr	19,5	16,4	–	811	5	I	Albano	93-95	60;86			6		90	100		
SEE	mo97	<sup>90</sup> Sr	27,6	20	–	26,2	7	I	Bolsano	87-95	60;86			113,6		81	120,6		
SEE	mo97	<sup>90</sup> Sr	21	19	–	92,6	6	I	Bracciano	87-94	60;86			57		89	<sup>137</sup>		
SEE	mo97	<sup>90</sup> Sr	25	13	–	7,5	3	I	Nemi	90-95	60;86			1,8		20	25		
SEE	mo106	<sup>90</sup> Sr	51	30	–	15,3	6	I	Vico	87-94	60;86			12,1		21,6	17		
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	55	7		1,96	11	UK	Cogra Moss	86-90	60;86	2,38		0,158		1,5	0,05	12	
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	122	11	0,26		11	UK	Crummock	86-87	60;86	43,60		2,52		26,7	0,77	11	

Tabelle 7.6: Ökologische Halbwertszeiten für Wasser aus Seen, Reservoiren und Flüssen

Medium	Ref.	Radio-nuklid	A Beginn	A Ende	T <sub>10ko</sub>	T <sub>20ko</sub>	Zahl	Ort	Gewässer	Datum der Probennahme	Datum der Kontamination	Einzugsgebiet	Deposition 1.5.86 Einzugsgebiet	Seeoberfläche	Maximale Tiefe	Mittlere Tiefe	Verweilzeit des Wassers	Deposition 1.5.86 Wasser	K <sup>+</sup>
			mBq/l	mBq/l	a	a						km <sup>2</sup>	kBq*m <sup>-2</sup>	km <sup>2</sup>	m	m	a	kBq*m <sup>-2</sup>	10 <sup>-6</sup> eq/l
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	330	16	0,21	2,93	ca.50	UK	Devoke	86-94	60;86	3,05		0,34		4	0,24	10	
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	148	3	0,21	4,34	ca.38	UK	Ennerdale	86-94	60;86	44,10		2,999		17,8	0,53	12	
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	200	0,4	0,13	1,73	ca.22	UK	Esthwaite	86-93	60;86	17,1		1,004		6,4	0,22	3	
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	330	5	0,12	1,83	ca.26	UK	Loweswater	86-88	60;86	8,9		0,643		8,37	0,31	10	
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	67	0,9	0,32	2,93	ca.24	UK	W'mere N	86-93	60;86	168,7		8,05	64	25,1	0,50	2	
SEE	Sm97	<sup>137</sup> Cs	90	7	0,78		11	UK	Wastwater	86-89	60;86	48,5		2,91	76	39,8	1	9	
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	11,9	6,8		2,68	2	UK	Braystones	88-90	60;86	0,3		0,0212	1,5	1,1			131
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	58,2	38,6		3,82	2	UK	Eel Tam	88-90	60;86	0,24		0,0199	4,8	1,3			84
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	24,2	17,4		4,9	2	UK	Eskdale Gr.	88-90	60;86	0,28		0,0236	3,8	2,5			35
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	18,7	3,6		0,85	2	UK	Grice Croft	88-90	60;86	2,43		0,04	6,5	3			10
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	22,7	15,1		3,82	2	UK	Mockerkin	88-90	60;86	0,3		0,0375	6,6	2,6			53
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	91,3	44		2,03	2	UK	Parkgate	88-90	60;86	0,2		0,0108	1	0,8			33
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	110,6	49,5		1,83	2	UK	Stony	88-90	60;86	0,39		0,014	8	2			9
SEE	Sp93	<sup>137</sup> Cs	10,9	3,1		1,15	2	UK	Urswick	88-90	60;86	1,2		0,0515	9,5	5,8			61
SEE	Sa90	<sup>137</sup> Cs	200	3	0,4		ca 40	CH	Zürich	86-88	60;86	1892,00		67,2	143	49	1	6	1 bis 2
SEE	Sa90	<sup>137</sup> Cs	30	3	0,9		ca 40	CH	Bodensee	86-88	60;86	11517,0		537,4	252	90	4,2	17	1 bis 2
SEE	Sa90	<sup>137</sup> Cs	800	40	0,8		ca 20	CH	Lugano S	86-88	60;86	615,00		19	95	55		26	1 bis 2
SEE	Sa90	<sup>137</sup> Cs	100	40	1,3		ca 20	CH	Lugano N	87-88	60;86	615,00		tot.48,9	258	134	7	26	1 bis 2
SEE	Sa90	<sup>137</sup> Cs	40	7	0,3		ca 30	CH	Sempach	86-88	60;86	76,70		14,37	87	46	17	1,4	1 bis 2
SEE	Sa90	<sup>137</sup> Cs	30	5	0,5		ca 30	CH	Soppen	86-88	60;86	0		0,29	27	11,5		1	1 bis 2

Tabelle 7.6: Ökologische Halbwertszeiten für Wasser aus Seen, Reservoiren und Flüssen (Fortsetzung)

Medium	Ref.	Radio-nuklid	A Beginn	A Ende	T <sub>10ko</sub>	T <sub>20ko</sub>	Zahl	Ort	Gewässer	Datum der Proben-nahme	Datum der Kontam-ination	Einzugs-gebiet	Depo-sition 1.5.86 Einzugs-gebiet	Seeober-fläche	Maxi-male Was-sertiefe max	Mitt-lere Was-ser-tiefe	Verweil-zeit des Was-sers	Depositi-on 1.5.86 Wasser	K <sup>+</sup>
			mBq/l	mBq/l	a	a						km <sup>2</sup>	kBq*m <sup>-2</sup>	km <sup>2</sup>	m	m	a	kBq*m <sup>-2</sup>	10 <sup>-6</sup> eq/l
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,29			D	Bodensee		60;86					90	4,2		38
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,26			UK	Crummock		60;86					26,7	0,98		9
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs	150	5	0,21		ca 40	UK	Ennerdale	86-94	60;86					17,8	0,66		10
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,13			UK	Estwaite		60;86					6,4	0,3		28
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,08			S	Hillesjon		60;86					1,7	0,36		77
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,38			SF	Iso Valkjaarvi		60;86					3,1	3		10
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,12			UK	Loweswater		60;86					8,4	0,41		21
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,89			CH	Sempach		60;86					46	16,99		38
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,48			UK	Wastwater		60;86					39,8	1,26		7
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,32			UK	Windermere		60;86					25,1	0,62		15
SEE	Sm99b	<sup>137</sup> Cs			0,41			CH	Zürich		60;86					49	1		38
Reservoir	Sm01	<sup>137</sup> Cs	800	50	3	27,5	700	UKR	Kiev	87-01	60, 86	239000							
Reservoir	Sm01	<sup>137</sup> Cs			3	21,3	300	UKR	Kanev	87-01	60, 86	336000							
Reservoir	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2,5	26,7	120	UKR	Kremenchug	87-01	60, 86	383000							
Reservoir	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2,6	23,7	100	UKR	Dneprodzer-zhinsk	87-01	60, 86	425000							

Tabelle 7.6: Ökologische Halbwertszeiten für Wasser aus Seen, Reservoiren und Flüssen (Fortsetzung)

Medium	Ref.	Radio-nuklid	A Beginn	A Ende	T <sub>20ko</sub>	T <sub>30ko</sub>	Zahl	Ort	Gewässer	Datum der Proben-nahme	Datum der Kontam-ination	Einzugs-gebiet	Depo-sition 1.5.86 Einzugs-gebiet	Seeober-fläche	Was-ser-tiefe max	Mittle-re Was-ser-tiefe	Verweil-zeit des Was-sers	Depositi-on 1.5.86 Wasser	K <sup>+</sup>
			mBq/l	mBq/l	a	a						km <sup>2</sup>	kBq*m <sup>-2</sup>	km <sup>2</sup>	m	m	a	kBq*m <sup>-2</sup>	10 <sup>-6</sup> eq/l
Reservoir	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2,8	27,9	250	UKR	Dnieper	87-01	60, 86	463000							
Reservoir	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2,9	27,9	190	UKR	Kakhovka	87-01	60, 86	482000							
Reservoir	Sm01	<sup>90</sup> Sr	500	200	16,4		1500	UKR	Kiev	87-01	60, 86	239000							
Reservoir	Sm01	<sup>90</sup> Sr			18,9		360	UKR	Kanev	87-01	60, 86	336000							
Reservoir	Sm01	<sup>90</sup> Sr			10,2		300	UKR	Kremenchug	87-01	60, 86	383000							
Reservoir	Sm01	<sup>90</sup> Sr			8,3		250	UKR	Dneprodzer-zhinsk	87-01	60, 86	425000							
Reservoir	Sm01	<sup>90</sup> Sr			11,3		280	UKR	Dnieper	87-01	60, 86	463000							
Reservoir	Sm01	<sup>90</sup> Sr			8,2		300	UKR	Kakhovka	87-01	60, 86	482000							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			3,3	25,7	290	UKR	Pripyat,Oberla-uf	87-01	60, 86	105000							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs	2*10 <sup>6</sup>	100	2,7	28,8	1220	UKR	Pripyat, Tschernobyl	87-01	60, 86	106000							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2	11,4	380	UKR	Dnieper	87-01	60, 86	103000							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2,8	7,8	600	UKR	Uzh	87-01	60, 86	7980							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			3,5	-	120	UKR	Teterev	87-01	60, 86	2890							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			3,1	-	110	UKR	Irpen	87-01	60, 86	2840							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			6,5	7,5	320	UKR	Braginka	87-01	60, 86	2280							

Tabelle 7.6: Ökologische Halbwertszeiten für Wasser aus Seen, Reservoiren und Flüssen (Fortsetzung)

Medium	Ref.	Radio-nuklid	A Beginn	A Ende	T <sub>26ko</sub>	T <sub>36ko</sub>	Zahl	Ort	Gewässer	Datum der Proben-nahme	Datum der Kontam-ination	Einzugs-gebiet	Depo-sition 1.5.86 Einzugs-gebiet	Seeober-fläche	Was-ser-tiefe max	Mittle-re Was-ser-tiefe	Verweil-zeit des Was-sers	Depositi-on 1.5.86 Wasser	K <sup>+</sup>
			mBq/l	mBq/l	a	a						km <sup>2</sup>	kBq*m <sup>-2</sup>	km <sup>2</sup>	m	m	a	kBq*m <sup>-2</sup>	10 <sup>-6</sup> eq/l
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			3,6	-	200	UKR	Ilya	87-01	60, 86	375							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			3	32,7	200	UKR	Sakhan	87-01	60, 86	199							
Fluss	Sm01	<sup>137</sup> Cs			2,1	73	190	UKR	Glinitsa	87-01	60, 86	43							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			6,1		310	UKR	Pripyat	87-01	60, 86	105000							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			7,1		1090	UKR	Pripyat	87-01	60, 86	106000							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			5,6		410	UKR	Dnieper	87-01	60, 86	103000							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			6,7		600	UKR	Uzh	87-01	60, 86	7980							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			11,7		110	UKR	Teterev	87-01	60, 86	2890							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			24,2		100	UKR	Irpen	87-01	60, 86	2840							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			-		360	UKR	Braginka	87-01	60, 86	2280							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			11,2		210	UKR	Ilya	87-01	60, 86	375							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			7,3		200	UKR	Sakhan	87-01	60, 86	199							
Fluss	Sm01	<sup>90</sup> Sr			18,8		150	UKR	Glinitsa	87-01	60, 86	43							

### Zeichenerklärung:

- Spalten 4 und 5, Aktivitätskonzentration A in mBq/l am Beginn und Ende der Probennahme im Oberflächenwasser.
- Spalte 12, Datum der Kontamination: „60, 86“ = Höhepunkt (1960) der atmosphärischen Kernwaffenexplosionen und Reaktorunfall von Tschernobyl (1986).
- Spalten 14 und 19, Deposition des Einzugsgebiets und Deposition des Wassers ist bei kleinen Seen und Reservoirs gleich.

Tabelle 7.6: Ökologische Halbwertszeiten für Wasser aus Seen, Reservoiren und Flüssen (Fortsetzung)

Ökosystem		Kontamination		Anreicherung		Halbwertszeiten				Amplituden						Proben- zahl	Zeitraum in d	
See/Fluß	Fischgruppe	Nuklid	Datum	$I_0$ in d <sup>-1</sup>	$DI_0$ in d <sup>-1</sup>	$T_{1,öko}$ in d	$DT_{1,öko}$ in d	$T_{2,öko}$ in d	$DT_{2,öko}$ in d	$A_{ges}$ Bq/kg	$DA_{ges}$ Bq/kg	$A_1$	$DA_1$	$A_2$	$DA_2$			
Ammersee	Lachse	Cs-137	01.05.86	0,0450	0,0167	447	200			200	40	1					52	22-2290
Bodensee	Lachse	Cs-137	01.05.86			44	8	1973	662	705	200	0,993	0,004	0,007	0,004		85	46-5440
Bodensee	Barsche	Cs-137	01.05.86			491	186			235	30	1					82	50-3424
Chiemsee	Aale	Cs-137	01.05.86	0,0061		405				312	0	1					36	91-2336
Chiemsee	Lachse	Cs-137	01.05.86			183		577		786	0	0,889		0,111			74	4-2701
Chiemsee	Weißfische	Cs-137	01.05.86			687	212			124	40	1					63	275-2701
Donau	Weißfische	Cs-137	01.05.86			218		748		162	0	0,772		0,228			96	18-2756
Elbe	Weißfische	Cs-137	01.05.86	0,0231	0,0047	448	105	∞		24	2	0,968	0,003	0,032	0,006		136	15-2692
Ems	Weißfische	Cs-137	01.05.86	0,0028		422		∞		96		0,987		0,013			46	19-2685
Havel	Barsche	Cs-137	01.05.86			1452	877			85	13	1					71	53-5248
Havel	Hechte	Cs-137	01.05.86			1829	478			55	6	1					35	105-5625
Havel	Weißfische	Cs-137	01.05.86			477	151	∞		38	6	0,926	0,116	0,074	0,115		197	25-5625
Isar	Weißfische	Cs-137	01.05.86	0,0219	0,0066	411	89			93	16	1					43	18-1582
Rhein	Weißfische	Cs-137	01.05.86			493	115			41	8	1					98	14-2758
Starnberger See	Aale	Cs-137	01.05.86			1518	435			505	68	1					67	36-5528
Starnberger See	Barsche	Cs-137	01.05.86			533	505	2565	6690	2014	1649	0,798	0,518	0,202	0,507		83	141-5688
Starnberger See	Lachse	Cs-137	01.05.86	0,0141		302		4569		1625		0,917		0,083			250	6-5691
Starnberger See	Hechte	Cs-137	01.05.86			643	150	∞		1525	224	0,965	0,049	0,035	0,049		34	118-5691
Starnberger See	Weißfische	Cs-137	01.05.86	0,0027		318		2968		1609		0,889		0,111			226	15-5690

**Fischgruppen:**

Lachse: Lachse, Renken, Äschen

Barsche: Barsche, Zander

Weißfische: Gruppe der Weißfische und Karpfenfische

Hechte: Hechte

Aale: Aale

Tabelle 7.7: Ökologische Halbwertszeiten für Fische (Zur Verfügung gestellt von Herrn Kanisch, Biundesanstalt für Fischerei)

Ökosystem	See/Fluß	Kontamination		Anreicherung		Halbwertszeiten				Amplituden						Proben- zahl	Zeitraum in d	
		Fischgruppe	Nuklid	Datum	$\lambda_0$ in d <sup>-1</sup>	$\Delta\lambda_0$ in d <sup>-1</sup>	$T_{1,\text{öko}}$ in d	$\Delta T_{1,\text{öko}}$ in d	$T_{2,\text{öko}}$ in d	$\Delta T_{2,\text{öko}}$ in d	$A_{\text{ges}}$ Bq/kg	$\Delta A_{\text{ges}}$ Bq/kg	$A_1$	$\Delta A_1$	$A_2$			$\Delta A_2$
DevokeWater	Barsche	Cs-137	1.5.86			$\infty$					1404	235	1				21	127-699
DevokeWater	Bach- Forelle	Cs-137	1.5.86			784	346				1182	241	1				27	127-699
Heimdalsvatn	Forelle	Cs-137	1.5.86	0,0090	0,0020	1445	201				6251	592	1				26 <sup>1)</sup>	41-2223
Hillesjön	Hechte	Cs-137	1.5.86	0,0031		1326					8603		1				14	4-2012
Hillesjön	Barsche	Cs-137	1.5.86	0,0080	0,0045	940	331				11459	3309	1				28	35-2319
Hillesjön	Rotaugen	Cs-137	1.5.86	0,0138	0,0060	725	158	84104			4196	800	0,925	0,014	0,075		11	68-2319 342-
Ijsselmeer	Barsche	Cs-137	1.5.86			453	80				385	88	1				51	1655 425-
Valkjärvi	Weißfische	Cs-137	1.5.86			903	98				15785	1699	1				20	2020 425-
Valkjärvi	Hechte	Cs-137	1.5.86			3166					25128		1				20	2012 425-
Valkjärvi	Barsche	Cs-137	1.5.86			1845	255				14398	1409	1				56	1978

<sup>1)</sup> Arithmetische Mittelwerte mit  $6 < N < 20$

Tabelle 7.8 Ökologische Halbwertszeiten für Fische (Datenbank der FH-Ravensburg-Weingarten)

Ökosystem	See	Kontamination		Anreicherung		Halbwertszeiten				Amplituden						Proben- zahl	Zeitraum in a	
		Fischgruppe	Nuklid	Datum	$\lambda_0$ in d <sup>-1</sup>	$\Delta\lambda_0$ in d <sup>-1</sup>	$T_{1,\text{öko}}$ in d	$\Delta T_{1,\text{öko}}$ in d	$T_{2,\text{öko}}$ in d	$\Delta T_{2,\text{öko}}$ in d	$A_{\text{ges}}$ Bq/kg	$\Delta A_{\text{ges}}$ Bq/kg	$A_1$	$\Delta A_1$	$A_2$			$\Delta A_2$
Berdenish	Goldfisch	Sr-90	1957			3299	792				7161	3968	1				5	3-35
Uruskul	Karpfen	Sr-90	1957			2781	115				22156	2087	1				8	3-35

Tabelle 7.9 Ökologische Halbwertszeiten für Sr-90 in Fischen (Zur Verfügung gestellt von I. Kryshev, TYPHOON, Russia)



Ökosystem		Kontamination		Anreicherung		Halbwertszeiten				Amplituden						Proben- zahl	Zeitraum in d
See/Fluß	Fischgruppe	Nuklid	Datum	$\lambda_0$ in d <sup>-1</sup>	$\Delta\lambda_0$ in d <sup>-1</sup>	$T_{1,\text{öko}}$ in d	$\Delta T_{1,\text{öko}}$ in d	$T_{2,\text{öko}}$ in d	$\Delta T_{2,\text{öko}}$ in d	$A_{\text{ges}}$ Bq/kg	$\Delta A_{\text{ges}}$ Bq/kg	$A_1$	$\Delta A_1$	$A_2$	$\Delta A_2$		
Bodensee	Hechte/Aale	Cs-137	1.5.86	0,0018		1181				60		1				45	48-5849
	Felchen	Cs-137	1.5.86			153	14	1546	96	310	30	0,976	0,004	0,024	0,004	162	41-5850
	Barsche	Cs-137	1.5.86			244	161	2711	4159	185	61	0,963	0,079	0,037	0,078	24	48-5851
Schreckensee	Hechte	Cs-137	1.5.86	0,0033		570	120	5131	19141	8703	1221	0,954	0,103	0,046	0,103	115	31-4917
Schreckensee	Weißfische <sup>2)</sup>	Cs-137	1.5.86			371	181	3206	25382	2718	975	0,939	0,277	0,061	0,277	99	137-4535
Vorsee	Hechte	Cs-137	1.5.86			1082	351	∞		4843	500	0,960		0,040		76	155-5861
Vorsee	Weißfische <sup>2)</sup>	Cs-137	1.5.86			337	52	3535		1909	133	0,805	0,035	0,195	0,034	141	121-5910

1) Die Daten aus den ersten Jahren nach dem Tschernobyl-Unfall stammen von der Universität Konstanz und sind teilweise auch in der IMIS-Datenbank

2) Zu den Weißfischen gehört hier die ganze Gruppe der kleinen Weißfische

Tabelle 7.10: Ökologische Halbwertszeiten für Fische (Datenbank der "VAMP Aquatic Working Group")

## 8 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

### *Landwirtschaftliche Produkte*

Die abgeleiteten Halbwertszeiten liegen für die analysierten pflanzlichen und tierischen Produkte im Bereich von 4-6 Jahren für  $^{137}\text{Cs}$  und von 10-20 für  $^{90}\text{Sr}$ . Betrachtet man Daten aus dem Zeitraum von dem Ende der oberirdischen Kernwaffenversuche bis zum Tschernobyl-Unfall, so können die Zeitabhängigkeiten durch etwas kürzere Halbwertszeiten beschrieben werden. Durch den kontinuierlichen, Aktivitätseintrag kommt es zu einer zusätzlichen Kontamination der Pflanzen durch direkte Ablagerung auf den Blättern, die jedoch mit einer Halbwertszeit von etwa 2-3 Jahren abnimmt. Diese Abnahme dieses Kontaminationspfades erfolgt schneller als die Abnahme der Aufnahme von Radionukliden aus dem Boden, sodass die resultierende Gesamtaktivität mit einer kürzeren Halbwertszeit abnimmt.

Schließlich sollte erwähnt werden, dass sie zugrunde liegenden Daten gewisse Unzulänglichkeiten aufweisen:

- Die Zeitreihen weisen z.T. Lücken auf.
- Die betrachteten Zeiträume sind teilweise relativ kurz.
- Die Probenahmeorte sind innerhalb der beprobten Region nicht zuordenbar.
- Die Regionen umfassen relativ große Gebiete.
- Die Anzahl der Proben ist von Jahr zu Jahr und von Region zu Region z.T. sehr unterschiedlich.

Dennoch weisen die abgeleiteten ökologischen Halbwertszeiten eine erstaunlich geringe Variabilität auf, was daraufhin deutet, dass die zeitlichen Trends richtig wiedergegeben werden.

In der AVV ergibt sich die langfristige Abnahme der Aktivität in Nahrungs- und Futtermittel nach einer Kontamination des Bodens durch den radioaktiven Zerfall und eine Migrationsrate. Diese entspricht einer Halbwertszeit für pflanzliche Produkte von 22 Jahren für Strontium und 220 Jahren für Cäsium. Unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls ergeben sich effektive Halbwertszeiten für die langfristige Abnahme der Pflanzenkontamination von 12,5 Jahren für  $^{90}\text{Sr}$  und von 26,4 Jahren für  $^{137}\text{Cs}$ .

Der Wert für Strontium stimmt sehr gut mit den hier abgeleiteten überein. Für Cäsium ergibt sich jedoch eine erhebliche Diskrepanz. In dieser Arbeit wurde eine langfristige Abnahme gemäß einer Halbwertszeit von 3-10 Jahren gefunden, während sich nach AVV mehr als 25 Jahre ergeben. Dies führt zu einer erheblichen Überschätzung der langfristigen Cäsiumkontamination, wenn man die Parameter der AVV zugrunde legt. Grund für diese Überschätzung ist die starke Sorption von Cäsium an Tonpartikel. Diese verhindert einerseits die Migration in tiefere Bodenschichten, andererseits führt sie auch zu einer deutlichen Verringerung der Pflanzenverfügbarkeit und Wurzelaufnahme. Dieser Prozess wird in der AVV nicht betrachtet.

Im radioökologischen Simulationsmodell ECOSYS (Müller und Pröhl, 1993), das in die Entscheidungshilfesysteme PARK und RODOS integriert ist, wird für Cäsium eine Fixationsrate unterstellt, die einer Halbwertszeit von 8,7 Jahren entspricht. Unter Einbeziehung des radioaktiven Zerfalls und der Migration im Boden ergibt sich daraus eine ökologische Halbwertszeit von 8 a, was im oberen Bereich der hier gefundenen ökologischen Halbwertszeiten liegt.

### *Forstprodukte*

Die Umweltmedien im Wald zeigen für  $^{137}\text{Cs}$  ökologische Halbwertszeiten  $T_1$ , die durch eine Log-normal Verteilung beschrieben werden können. Für mitteleuropäische Verhältnisse werden für Reh-, Rot- und Schwarzwild sowie für Waldpflanzen und Pilze ökologische Halbwertszeiten von bis zu 12 Jahren beobachtet. Wesentlich längere Halbwertszeiten werden in der Ukraine ermittelt, z.T. geht die ökologische Halbwertszeit gegen unendlich, d.h. Migrations- und Sorptionsprozesse haben keinen Einfluss auf die Abnahme der Aktivität.

Bei Schwarzwild tritt eine Besonderheit auf. Die Aktivitätskonzentration der Wildschweine in Bayern nimmt ab mit der ökologischen Halbwertszeit  $T_1 = 10,5 \pm 1,6$  Jahre. Die Variabilität der Aktivitätskonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  in Schwarzwild steigt jedoch weiter an, so dass die maximalen gemessenen Aktivitätskonzentrationen im Lauf der Zeit ansteigen. Dieses gegenläufige Verhalten von Variabilität und Aktivitätskonzentration beim Schwarzwild wurde bisher nicht festgestellt.

### *Wasser und Fische*

Die Variabilität für das Zeitverhalten von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  in Wasser und Fischen ist wesentlich ausgeprägter als für terrestrische Systeme und hängt entscheidend von ortsspezifischen Bedingungen ab. Monte (1995), und Smith et al. (1999), haben dargestellt, dass die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration in Oberflächengewässern durch eine Summe von drei Exponentialfunktionen dargestellt werden sollte. Die erste Exponentialfunktion mit einer sehr kurzen Halbwertszeit beschreibt das Abfließen der auf die Oberfläche des Einzugsgebietes nieder gegangenen Aktivität. Die zweite wird durch die zunehmende Fixierung des  $^{137}\text{Cs}$  bedingt und die dritte beschreibt den Gleichgewichtszustand zwischen Fixierung und Rücklösung, wobei die Abnahme der Aktivitätskonzentration im wesentlichen durch die Abnahme des „wash-off“ aus dem Einzugsgebiet bedingt ist. Prinzipiell würde man Halbwertszeiten in der Größenordnung von Tagen, Monaten, bzw. wenigen Jahren erwarten. Durch über die Zeit integrierende Wirkungen, z. B. durch die Wasserrückhaltezeit eines Sees, werden die Halbwertszeiten der drei Exponentialfunktionen u. U. deutlich verlängert und können für unterschiedliche Seen auch bei ähnlichen physikalisch-chemischen Prozessen sehr unterschiedlich sein.

Für den Rhein bei Koblenz und den Kokemaenjoke bei Pori (Finnland) sind trotz eventueller radioaktiver Ableitungen aus kerntechnischen Anlagen klare Signaturen des Unfalls von Tschernobyl zu sehen: Beim Rhein betragen die drei ökologischen Halbwertszeiten 18 Tage, 185 Tage bzw. unendlich, beim Kokemaenjoke 5 Tage, 422 Tage, bzw. ebenfalls unendlich. In anderen Gewässern konnten ein bis zwei Halbwertszeiten bestimmt werden, sie liegen zwischen 132 Tagen und 15177 Tagen (41,6 Jahre).

Beim Bodensee, dessen Wasser mittlerweile eine  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration von weniger als 0,1 mBq/l hat, konnten zwei Exponentialfunktionen angepasst werden. Die Halbwertszeiten betragen  $(170 \pm 26)$  Tage (0,47 Jahre) und  $(1477 \pm 131)$  Tage (4,0 Jahre).

Für das Südbecken des Luganer Sees wurden mit  $(242 \pm 88)$  Tagen (0,66 Jahre) und  $(1302 \pm 198)$  Tagen (3,6 Jahre) ähnliche Werte bestimmt. Durch eine Modellierung wurde nahe gelegt, dass hier die ersten beiden Exponentialfunktionen beobachtet wurden und dass wir uns im Moment im Übergang zur dritten Exponentialfunktion befinden.

Der  $^{137}\text{Cs}$  Aktivitätskonzentration von Sinkstoffen an zwei verschiedenen Positionen im Luganer See konnten ebenfalls zwei Exponentialfunktionen angepasst werden: Mit etwa 110 Tagen (0,30 Jahren), bzw. etwa 2400 Tagen (6,6 Jahren), liegen die ökologischen Halbwertszeiten in der gleichen Größenordnung wie beim Wasser und lassen tendenziell eine geringe Zunahme des Verteilungskoeffizienten  $k_D$  im Bereich der zweiten Exponentialfunktion erkennen.

Der Aktivitätskonzentration des Vorsee-Wassers konnten zwei Exponentialfunktionen angepasst werden. Die ökologischen Halbwertszeiten betragen  $(732 \pm 375)$  Tage (2,0 Jahre) und  $(13006 \pm 11840)$  Tage (35,6 Jahre). In Anbetracht der geringen Größe von See und Einzugsgebiet und auf Grund einer Modellierung schließen wir, dass hier vermutlich die zweite und dritte Exponentialfunktion beobachtet wird.

In den Seen Uruskul und Berdenish, die durch den Kyshtym-Unfall mit  $^{90}\text{Sr}$  kontaminiert wurden, ergeben sich ökologische  $^{90}\text{Sr}$  Halbwertszeiten von 47 bzw. 39 Tagen (0,1 Jahre), 1554 bzw. 1192 Tagen (3,3 bzw. 4,3 Jahre) und unendlich bzw. 11304 Tagen (30,9 Jahre).

Untersuchungen über das Zeitverhalten in aus Seen aus Italien, Großbritannien, Deutschland und der Schweiz liegen für  $^{137}\text{Cs}$  die ökologischen Halbwertszeiten der ersten Exponentialfunktion zwischen 0,1 Jahren (kleine flache Seen) und 1,3 Jahren (Nordbecken des Luganer Sees mit einer Wasserrückhaltezeit von über 30 Jahren). Die danach beobachteten Halbwertszeiten variieren sehr stark mit den Extremwerten von 0,85 Jahren und 38,4 Jahren. Für  $^{90}\text{Sr}$  liegen die beobachteten ökologischen Halbwertszeiten für  $^{90}\text{Sr}$  in einem Beobachtungszeitraum von 5 bis 8 Jahren zwischen 7,5 Jahren und 89,4 Jahren.

Die Aktivitätskonzentration von  $^{137}\text{Cs}$  in verschiedenen Wasser-Reservoiren in der Ukraine, zeigt eine anfängliche ökologische Halbwertszeit zwischen 2,6 Jahren und 3,0 Jahren. Danach wird eine Halbwertszeit von 21,3 Jahren bis 27,9 Jahren beobachtet. Im gleichen Zeitraum, ebenfalls durch viele hundert Messungen belegt, wird für  $^{90}\text{Sr}$  in den Wasser-Reservoirs der Ukraine eine ökologische Halbwertszeit von 8,2 bis 18,9 Jahren beobachtet.

In den Flüssen der Ukraine liegt die anfängliche Halbwertszeit für  $^{137}\text{Cs}$  zwischen 2,0 Jahren (Dnieper) und 6,5 Jahren. Danach variieren die Halbwertszeiten stärker, nämlich zwischen 7,5 und 73 Jahren.

Wiederum mit Hunderten von Messdaten im Zeitraum von 1987 bis 2001 belegt sind die  $^{90}\text{Sr}$  Aktivitätskonzentrationen in den Flüssen der Ukraine. Die beobachteten ökologischen Halbwertszeiten liegen zwischen 5,6 Jahren (Dnieper) und 24,2 Jahren.

In der IMIS-Datenbank fanden sich nach einer Bündelung diverser Fisch-Spezies zu Gruppen (*Lachse*: Lachse, Renken und Äschen; *Barsche*: Barsche und Zander; *Weißfische*: die Gruppe der Weiß- und Karpfenfische) insgesamt 19 Zeitreihen für  $^{137}\text{Cs}$  mit jeweils mehr als 30 Daten, die über 6 bis 15 Jahre liefen (Tabelle 5).

In 10 Fällen wird eine Abnahme der Aktivitätskonzentration über zwei Exponentialfunktionen gesehen. Die ökologischen Halbwertszeiten der ersten Funktion liegen zwischen 44 und 643 Tagen; die der zweiten Funktion liegen zwischen 577 Tagen und unendlich. In den Fällen, in denen die Abnahme der Aktivitätskonzentration durch eine einzige Exponentialfunktion beschrieben wird, liegen die ökologischen Halbwertszeiten zwischen 405 und 1829 Tagen. Das zeitliche Verhalten der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration bei den verschiedenen Fischgruppen ist insgesamt ähnlich.

Für den Bodensee sowie für den Schreckensee und den Vorsee, zwei kleinen Seen der Blitzenreuther Seenplatte, etwa 30 km nördlich des Bodensees, konnten insgesamt 7 Zeitreihen für Hechte bzw. Hechte und Aale, Felchen, Barsche und die Gruppe der kleinen Weißfische analysiert werden. Bei den Hechten/Aalen bzw. Hechten in Bodensee und Schreckensee wurden Anreicherungs-Halbwertszeiten von 210 Tagen bzw. 385 Tagen bestimmt

Bei den Fischen, deren Aktivitätskonzentration durch zwei Exponentialfunktionen beschrieben wurde, liegen diese beiden Halbwertszeiten zwischen den Werten für Felchen im Bodensee, nämlich 153 und 1546 Tage und denen für Hechte im Vorsee, nämlich 1082 Tage und unendlich.

Die Auswertung der Datenbank der "VAMP Aquatic Working Group konnten ökologische Halbwertszeiten zwischen 453 Tagen (1,2 Jahre; Barsche, Ijsselmeer) und 3166 Tagen (8,7 Jahre; Hechte, Valkjärvi) bestimmt werden. In einem Fall (Barsche, Devoke Water), konnte über den physikalischen Zerfall hinaus keine weitere Abnahme der Aktivitätskonzentration festgestellt werden.

Aus den Uralseen Berdenish und Uruskul ergaben sich für Goldfische und Karpfen ökologische Halbwertszeiten von 3299 und 2781 Tagen (9,0 und 7,6 Jahre). Das sind Werte, die zwischen denen der zweiten und dritten Halbwertszeit der Aktivitätskonzentration des Wassers des jeweiligen Sees liegen.

### *Boden und Dauergrünland*

Zur Abschätzung der ökologischen Halbwertszeiten von Cäsium in Böden liegen nur wenig Untersuchungen vor, die eine Beobachtungsdauer aufweisen, die im Bereich der ermittelten ökologischen Halbwertszeiten liegen. Infolgedessen sind die abgeleiteten Werte häufig mit erheblichen Unsicherheiten behaftet. Teilweise sind aus den vorliegenden Untersuchungen keine Trends abzuleiten. Ansonsten ergeben aus den hier ausgewerteten Untersuchungen für die Bodenschicht 0-10cm ökologische Halbwertszeiten für Cäsium (bis auf eine Ausnahme mit  $13,4 \pm 15,4$ ) im Bereich von etwa 30-300 Jahren, d.h., die Aktivitätsabnahme in der obersten Bodenschicht wird hauptsächlich durch den radioaktiven Zerfall bestimmt. Für Strontium liegen keine verwertbaren Daten vor.

Trotz der daraus resultierenden langen Verweilzeit im Boden nimmt die Cäsiumaktivität in Weidevegetation insbesondere durch Sorptions- und Fixationsprozesse schneller ab. Allerdings weisen auch hier die ökologischen Halbwertszeiten wegen der zum Teil relativ kurzen Beobachtungszeiten hohe Unsicherheiten auf. Darüber hinaus sind je nach betrachteter Pflanzengesellschaft und Bodenart ausgeprägte Variabilitäten zu beobachten. In Anbetracht des breiten Spektrums der Beobachtungen und ihrer zugrundeliegenden Randbedingungen ist die Ableitung eines repräsentativen Wertes problematisch.

Häufig liegen die beobachteten ökologischen Halbwertszeiten für Cäsium im Bereich von etwa 1,5 bis 10 Jahren. In einigen Fällen wurde jedoch eine Zunahme der Aktivität in Weidevegetation ermittelt. Inwieweit in diesen Fällen eine Änderung der Pflanzengesellschaft oder der Bodenbedingungen (pH-Wert, K-Gehalt) eine Rolle spielen könnte, ist unklar.

Für Strontium liegen nur wenige Daten vor, die sich zudem auf Moor- bzw. anmoorige Böden und Marschböden beziehen, die nur einen geringen Anteil an der Grünlandnutzung einnehmen. Aus diesen Untersuchungen ergeben sich keine klaren Trends.

### *Marine Ökosysteme*

Quellen für die Einträge von Radionukliden in das **Meerwasser** sind im wesentlichen die Emissionen aus Nuklearanlagen – entweder durch direkte Einleitungen der Abwasser oder indirekt über Flüsse, nach Unfällen auch durch Deposition aus der Atmosphäre –, in geringerem Umfang die Freisetzungen aus Abfällen, die in den Ozeanen versenkt worden sind. Die Folge ist, dass selbst dann, wenn man die Betrachtung auf fest umrissene Meeresgebiete wie Nordsee, Irische See, oder Ostsee beschränkt, die anfängliche laterale Konzentrationsverteilung der Radionuklide im Wasser extrem inhomogen ist und deren zeitliche Änderungen durch strömungsbedingte Transport- und Mischungsprozesse bedingt wird.

Im Gegensatz zu den übrigen in diesem Forschungsprojekt betrachteten Ökosystemen sind daher die sich im Meerwasser einstellenden Zeittrends im wesentlichen durch *Mischungsprozesse innerhalb des betrachteten Mediums* verursacht. Konsequenz ist, dass

beobachtete Zeittrends – und daraus abgeleitete ökologische Halbwertzeiten – abhängig sind vom Grad der räumlichen Inhomogenität des Eintrags, von der Größe des betrachteten Meeresbeckens und vom Ort des Eintrags, da die dort jeweils vorherrschenden Meeresströmungen die Geschwindigkeit der Verteilung im Meerwasser und die Höhe des Austrags aus der betrachteten Fläche bestimmen. Damit aber wird jeder beobachtete Zeittrend spezifisch für das zugrunde liegende Kontaminations-Ereignis und für den gewählten Beobachtungspunkt (oder das Beobachtungsareal), so dass daraus gegebenenfalls abgeleitete ökologische Halbwertzeiten nicht generalisierbar sind und daher aus Sicht der Autoren nicht zielführend.

## 9 Literatur

### *Kapitel 1-4*

- Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft: Zusammenfassender Bericht über die Umweltüberwachung 1956 bis 1968, Schriftenreihe Kernforschung 2, Juli 1970, Bonn
- Bundesministerium des Inneren: Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresberichte 1975-77, 1979-83, Bonn
- Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresberichte 1985-86, 1991-93, 1997-99, Bonn,
- Aarkrog, A., Botter-Jensen, L., Chen Qing Jiang, Clausen, J., Dahlgaard, H., Hansen, H., Holm, E., Lauridsen, B., Nielsen, S.P., Strandberg, M., Sogaard-Hansen, J., Environmental Radioactivity in Denmark in 1992 and 1993, Riso-R-756(EN) Riso National Laboratory, Roskilde, February 1995
- Mück, K., 1995, Langzeitfolgedosis nach großräumiger Kontamination, Abschlußbericht, OEFZS-A--3605, Seibersdorf Report, November 1995
- Mück, K., 1997: Long-Term effective Decrease of Cesium Concentration in Foodstuffs after Nuclear Fallout, Health Physics, May 1997, Volume 72, Number 5
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, Report to the General Assembly. 1977
- Ünlü, M.Y., Topcuoglu, S., Kçükcezzar, R., Varinlioglu, A., Güngör, N., Bulut, A.M., Güngör, E., Natural effective half-life of  $^{137}\text{Cs}$  in tea plants,, Health Physics, 68/1, (1995) 94-99

### *Kapitel: 5 und 6:*

- Andersson, I., Lönsjö, H., Rosén, K.: Long-term studies on the transfer of  $^{137}\text{Cs}$  from soil to vegetation and to grazing lambs in a mountain area in northern Sweden; Journal of Environmental Radioactivity 52, 45-66, 2001.
- Baumann, M.: Die Ablagerung von Tschernobyl Radiocaesium in der Norwegischen See und in der Nordsee. Universität Bremen, Berichte des Fachbereichs Geowissenschaften Nr. 14, 1991.
- Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung 1999, Jahresbericht Umweltpolitik, Bonn, 2001.
- Cremers, A., Elsen, A., De Preter, P., Maes, A.: Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils; Nature 335, 247-249, 1988.
- Dixon, W. J., Brown, M. B., Engelman, L., Jennrich, J. I.: BMDP Statistical Software, 1990 Revision. University of California Press, Berkeley, 1990.
- Ehlken, S. Freilandexperimente zur Wurzel Aufnahme von Strontium, Caesium und Kalium durch Weidevegetation: Einfluß des Bodentyps, Klimas und saisonale Variationen; Dissertation, Universität Bremen, 1997.
- Ehlken, S., Kirchner, G.: Environmental processes affecting plant root uptake of radioactive trace elements and variability of transfer factor data: a review; Journal of Environmental Radioactivity 58, 97-112, 2002.
- Ehlken, S., Kirchner, G.: Seasonal variations in soil-to-grass transfer of fallout strontium and caesium and of potassium in North German soils.; Journal of Environmental Radioactivity 33, 147-181, 1996.
- Gilbert, R. O.: Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring. Van Nostrand Reinhold, New York, 1987.

- Hays, W. L., Winkler, R. L.: Statistics: Probability, Influence and Decision (Vol. II); Holt, Rinehart and Winston, New York, 1970.
- Helsinki Commission: Radioactivity in the Baltic Sea, Baltic Sea Environment Proceedings 61, 1995.
- Herrmann, J., Kershaw, P. J., Bailly du Bois, P., Guegueniat, P.: The distribution of artificial radionuclides in the English Channel, southern North Sea, Skagerrak and Kattegat, 1990-1993; *Journal of Marine Systems* 6, 427-456, 1995.
- Hoffman, F. O., Baes, C. W.: A statistical analysis of selected parameters for predicting food chain transport and internal dose of radionuclides; United States Nuclear Regulatory Commission, Report NUREG/CR 1004, Washington, 1979.
- Isaksson, M., Erlandsson, B., Mattsson, S.: A 10-year study of the  $^{137}\text{Cs}$  distribution in the soil and a comparison of Cs soil inventory with precipitation-determined deposition; *Journal of Environmental Radioactivity* 55, 47-59, 2001.
- Kautsky, H., Jefferies, D. F., Steele, A. K.: Results of the radiological North Sea programme RANOSP 1974-1976; *Deutsche hydrographische Zeitschrift* 33, 153-157, 1980.
- Kershaw, P. J., McCubbin, D., Leonard, K. S.: Continuing contamination of north Atlantic and Arctic waters by Sellafield radionuclides; *The Science of the Total Environment* 237/238, 119-132, 1999.
- Kirchner, G., Noack, C. C.: Core history and nuclide inventory of the Chernobyl core at the time of the accident; *Nuclear Safety* 29, 1-5, 1988.
- Kirchner, G.: Transport of iodine and cesium via the grass-cow-milk pathway after the Chernobyl accident; *Health Physics* 66, 653-665, 1994.
- Lembrechts, J. F., Stoutjesdijk, J. F., van Ginkel, J. H., Noordijk, H.: Soil to grass transfer of radionuclides: Local variations and fluctuations as a function of time. In: Desmet, G., Nassimbeni, P., Belli, M. (Hrsg.): *Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments*, Elsevier Applied Ecology Group, London, New York, 524-531, 1990.
- Pietrzak-Flis, Z., Krajewski, P., Krajewska, G., Sunderland, N. R.: Transfer of radiocaesium from different uncultivated soils to grass after the Chernobyl accident; *The Science of the Total Environment* 141, 147-153, 1994.
- Pinder, J. E. III., Smith, M. H.: Frequency distributions of radiocesium concentrations in soils and biota. In: Howell, F. G., Gentry, J. B., Smith, M. H. (Hrsg.): *Mineral Cycling in Southeastern Ecosystems*. United States Energy Research and Development Administration, Washington, 107-125, 1975.
- Ringer, W.: persönliche Mitteilung; Österreichische Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit GmbH, Strahlenschutz, Linz, Österreich, 2003.
- Rosén, K., Andersson, I., Lönsjö, H.: Transfer of radiocaesium from soil to vegetation and to grazing lambs in a mountain area in Northern Sweden; *Journal of Environmental Radioactivity* 26, 237-257, 1995.
- Squire, H. M., Middleton, L. J.: Behaviour of caesium  $^{137}$  in soils and pastures. A long term experiment; *Radiation Botany* 6, 413-423, 1966.
- Squire, H. M.: Long term studies of strontium 90 in soils and pastures; *Radiation Botany* 6, 49-67, 1966.
- Strebl, F., Ringer, W., Gerzabek, M. H.: Radiocaesium contamination of meadow vegetation – time-dependent variability and influence of soil characteristics at grassland sites in Austria; *Journal of Environmental Radioactivity* 58, 143-161, 2002.

## ***Kapitel 7:***



- BG01: Klemt, E., Zibold, G., Burger, M., Schmid, E., Barbieri, A., Simona, M.: In Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz 2000, Bundesamt für Gesundheit, Schweiz, Bern, B.4.4.1-B.4.4.4, 2001.
- Drissner, J. Klemt, E., Klenk, Th., Miller, R., Zibold, G., Burger, M., Jakob, A.: Czechoslovak Journal of Physics, **49**, 133-139, 1999.
- EU REM Database: <http://rem.jrc.cec.eu.int>. s.a.: Environmental Radioactivity in the European Community, Radiation Protection No.126, 2001.
- Ha02: Håkanson, J., Sazykina, T.G., Kryshev, I.I.: A general approach to transform a lake model for one radionuclide to another and critical model tests using data for four Ural lakes contaminated by the fallout from the kyshtym accident in 1957. J. Env. Radioactivity **60**,3, 319-350, 2002
- Kaminski, S., Richter, T., Walser, M., Lindner, G.: Radiochimica Acta **66/67**, 433-436, 1994.
- Kaminski, S., Konoplev, A., Lindner, G., Schröder, H.G.: Arch. Hydrobiol. Spec. Issues Advanc. Limnol. **53** - Lake Constance, Characterization of an ecosystem in transition, 365-405, 1998.
- Klemt, E., Drissner, J., Kaminski, S., Miller, R., Zibold, G.. In: Linkov, I., Schell, W.R. (hrsg.) Contaminated Forests. Kluwer Academic Publishers, Netherlands, pp. 95-101 (1999).
- Ma90: Mangini, A., Christian, U., Barth, M., Schmitz, W., Stabel, H.H. In: Tilzer, M.M., Serruya, C. (Hrsg.) Large Lakes, Ecological Structure and Function. Springer Verlag, Berlin, S. 245-264 (1990).
- Mo97: Monte, L., Baldini, E., Battella, C., Fratarcangeli, S., Pompei, F.: Modelling the radionuclide balance in some water bodies of central Italy; J. Environ. Radioactivity **37**, 269-285, 1997.
- Monte, L., Fratarcangeli, S., Pompei, F., Quagia, F., Battella, C.: Bioaccumulation of  $^{137}\text{Cs}$  in the main species of fishes in lakes of central Italy; Radiochimica Acta **60**, 219-222, 1993.
- Monte, L.: A simple formula to predict approximate initial contamination of lake water following a pulse deposition of radionuclide; Health Physics, **68**, 397-400, 1995.
- Monte, L.: Analysis of models assessing the radionuclide migration from catchments to water bodies; Health Physics, **70**, 227-237; 1996.
- Monte, L.: Evaluation of radionuclide transfer functions from drainage basins of fresh water systems; J. Environ. Radioactivity **26**, 71-82; 1995.
- Monte, L., Kryshev, I., Sazykina, T.: Quantitative Assessment of the long term behaviour of  $^{90}\text{Sr}$  in lake Uruskul, Southern Urals, Russia. J. of Environ. Radioactivity **62,1**, 61-74, 2002
- Monte, L.: Predicting the long term behaviour of  $^{90}\text{Sr}$  in lacustrine systems by a collective model; Ecological Modelling **106**, 141-159, 1998.
- Monte, L.: A general methodology for structuring models to predict the long-term migration of radionuclides from catchments; J. Environ. Radioactivity **59**, 153-168, 2002.
- Robbins, J.A., Lindner, G., Pfeiffer, W., Kleiner, J., Stabel, H.H., Frenzel, P.: Geochim. Cosmochim. Acta **56**, 2339-2361, 1992.
- Sa90: Santschi, P.H., Bollhalder, S., Zingg, S., Lück, A., Farrenkothen, A.: Environ. Sci. Technol **24**, 4, 71-82, 1990.
- Sm97: Smith, J.T., Leonard, D.R.P., Hilton, J., Appleby, P.G.: Health Phys. **72**, 880-892, 1997.
- Sm99a: Smith, J.T., Fesenko, S.V., Howard, B.J., Horrill, A.D., Sanzharova, N.I., Alexakhin, R.M., Elder, D.G., Naylor, C.: Environ. Sci. Technol. **33**, 49-54, 1999.

- Sm99b: Smith, J.T., Comans, R.N.J., Elder, D.G.: *Water Research* **33**, 3762-3774, 1999.
- Smith, J.T., R.N.J. Comans, N.A. Beresford, S.M. Wright, B.J. Howard, W.C. Camplin. Chernobyl's legacy in food and water. *Nature*, 405, p141, 2000.
- Smith, J. T., Kudelsky, A.V., Ryabov, I.N., Daire, S.E., Boyer, L., Blust, R.J., Fernandez, J.A., Hadderingh, R.H., Voitsekhovitch, O.: *J. Environ. Radioactivity*, 62, 145-164, 2002.
- SM01: Smith, J. T., Konoplev, A. V., Bulgakov, A. A., Comans, R.N.J., Cross, M. A., Kaminski, S., Khristuk, B., Klemt, E., De Koning, A., Kudelsky, A.V., Laptev, G., Madruga, M.-J., Voitsekhovitch, O., Zibold, G.: In Final Report Aquifers and Surface waters in the Chernobyl area: Observations and Predictive Evaluation. Project IC15 CT98-0205, 2001.
- VAMP Aquatic Working Group: Modelling of the transfer of radiocaesium from deposition to lake ecosystems. IAEA-TECDOC-1143, 2000.
- Zi01: Zibold G., Kaminski S., Klemt E., Smith J. T.: Time-dependency of the <sup>137</sup>Cs activity concentration in freshwater lakes, measurement and prediction. Proceedings of the international congress on the radioecology of continental and estuarine environments, Aix-en-Provence France. 3-7. 9.2001, Radioprotection-Colloques, 37, C1-75-C1-80, 2002.
- Do92: Dominik, J., Span, D.: *Aquatic Sciences* 54, 3/4, 238-255, 1992.

## ***Kapitel 7***

### *Baff02:*

- Schwind, K.-H.: Persönliche Mitteilung, 2002.
- Kreuzer, W., & Hecht, H.: Radioactivity in Bavarian game from the reactor accident at Chernobyl. *Archiv für Lebensmittelhygiene*, 39, 57-84, 1988.
- Hecht, H.: Long time trends of the radiocaesium contamination of venison in Germany after the Chernobyl accident. *Umweltradioaktivität Radioökologie Strahlenwirkungen*, (eds.) M. Winter, A. Wicke, Verlag TÜV Rheinland, 738-743, 1993.

### *Fie02:*

- Fielitz, U.: Persönliche Mitteilung, 2002 .
- Fielitz, U.: Ausbreitung und Transfer von Radiocaesium entlang des Pfades Boden-Pflanze-Reh in zwei unterschiedlichen Ökosystemen. Dissertation Universität Göttingen, 1992.
- Fielitz, U.: Nahrungsspektrum von Reh und Wildschwein im Bayerischen Wald. Radiocäsium in Wald und Wild (eds.) Hecht, H., & Honikel, K.O. Bundesanstalt für Fleischforschung, Kulmbach, 65-75, 1997.
- Fielitz, U.: Überprüfung von Ökosystemen nach Tschernobyl hinsichtlich der Strahlenbelastung der Bevölkerung. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben StSch 4206 im Auftrag des BMU, 2001.
- Fielitz, U.: Untersuchungen zum Verhalten von Radiocäsium in Wildschweinen und anderen Biomedien des Waldes. Zwischenbericht zum Forschungsvorhaben StSch 4324 im Auftrag des BMU, 2002.

### *IA02:*

- IAEA-BIOMASS-1, Modelling the migration and accumulation of radionuclides in forest ecosystems, Report of the forestworking group of BIOMASS Theme 3, ISBN 92-0-114902-6, pp. 111-117, Vienna, 2002

### *KI03:*

Klemt, E., Zibold, G.: Datenerhebung zur Radiocäsium-Kontamination im Jahr 2002. Abschlußbericht zum Forschungsvorhaben Nr. 9008714/32 im Auftrag des MUF-BW, 2003.

#### Tatar02:

Schönhofer, F. & Tataruch, F.: Rotwildgeweihe – ein Indikator für die Umweltbelastung durch <sup>90</sup>Sr. Conference 23./24. 06. 1992 St. Oswald; in: Honikel, H. O., & Hecht, H. (eds.). Radiocäsium in Wild und Wald; Bundesanstalt für Fleischforschung, Kulmbach 138 – 152, 1993.

Schönhofer, F., & Tataruch, F.: Contamination of game in Austria after the Chernobyl accident. ESNA XIX Proc. 53-86, 1988.

Strebl, F., Gerzabek, M. H., Karg, V., & Tataruch, F.: <sup>137</sup>Cs migration in soils and its transfer to roe deer in an Austrian forest stand. Sci. Total. Environ., 181, 237-247, 1996.

Tataruch, F. & Schönhofer, F.: Der Verlauf der Cäsiumbelastung von Rehwild in Niederösterreich von 1986 bis 1992. Conference 23./24. 06. 1992 St. Oswald; in: Honikel, H. O., & Hecht, H. (eds.). Radiocäsium in Wild und Wald; Bundesanstalt für Fleischforschung, Kulmbach 153 – 159, 1993.

Tataruch, F. : Persönliche Mitteilung, 2002

Tataruch, F., Schönhofer, F. & Klansek E.: Studies in levels of radioactivity in wildlife in Austria, in Desmet, G., Nassimbeni, P., and Belli, M.(Eds.), Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments, Elsevier, Amsterdam, 210-216, 1990.

Tataruch, F., Schönhofer, F., & Ondersheka, K.: Untersuchungen zur radioaktiven Belastung der Wildtiere in Österreich. Z. Jagdwiss, 34, 22-35, 1988.

#### Zi01a:

Bürmann, W., Drissner, J., Miller, R., Heider, R., Lindner, G., Zibold, G., & Sykova, T.: Migration of <sup>134</sup>, <sup>137</sup>Cs Radionuclides in the Soil and Uptake by Plants in German Spruce Forests. Radiochimica Acta, 66/67, 373-380, 1994.

Drissner, J., Flügel, V., Klemt, E., Miller, R., Schick, G., & Zibold, G.: Transfer of Radiocesium in Prealpine Forest Ecosystems Proc. International Symposium on Ionizing Radiation "Protection of the Natural Environment", Stockholm, Schweden, p. 218-223, 1996.

Jennrich, R.I. & Moore, R.H. (1975) Maximum likelihood estimation by means of nonlinear least squares. Proceedings of the Statistical Computing Section, American Statistical Association, 57-65, 1975.

Kiefer, P., Pröhl, G., Müller, H., Lindner, G., Drissner, J., & Zibold, G.: Factors affecting the transfer of radiocaesium from soil to roe deer in forest ecosystems of Southern Germany. Sci. Total. Environ. 192, 49-61, 1996.

Klemt, E., Drissner, J., Flügel, V., Kaminski, S., Lindner, G., Walser, M., & Zibold, G.: Bioavailability of Cesium Radionuclides in Prealpine Forests and Lakes. Mitt. der Österr. Bodenkundl. Ges. 54, 267-274, 1996.

Klemt, E., Drissner, J., Kaminski, S., Miller, R., & Zibold, G.: Time-dependency of the bioavailability of radiocaesium in lakes and forests. Contaminated Forests, (eds.) I. Linkov & W.R. Schell, Kluwer Acad. Publ. Netherlands, 95-101, 1999.

Lindner, G., Drissner, J., Herrmann, T., Hund, M., Zech, W., Zibold, G., & Zimmerer, R.: Seasonal and regional variations in the transfer of cesium radionuclides from soil to roe deer and plants in a prealpine forest. Sci. Tot. Environ. 157, 189-196, 1994.

Zibold, G., Drissner, J., Kaminski, S., Klemt, E., Miller, R.: Time-dependency of the radiocaesium contamination of roe deer: measurement and modelling; Journal of Environmental Radioactivity 55, 5-27, 2001.

Zibold, G., Geissler, A., Kissling, S., Niebuhr, J., & Wilhelm, C.: Radiocesium in roe deer from the South of W-Germany. Proc. XVth Regional Congress of IRPA, Visby, Gotland, Sweden; The Radioecology of Natural and and Artificial Radionuclides; Fendt W.; Verlag TÜV Reinland GmbH, Köln. 268-273, 1989.

#### *Danksagung*

Wir danken C. Halsall, Prof. Dr. F. Tataruch, Dr. A. Venter, Prof. Dr. H. Bonka, Dr. U. Fielitz, Dr. G. Kanisch, Dr. L. Monte, Dr. K-H. Schwind, Dr, J. Smith, für dir freundliche Überlassung von Originaldaten und /oder Publikationen ohne die unsere Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Für zukünftige Untersuchungen schlagen wir vor, thematische Arbeitsgruppen zu bilden, z.B. zum Thema Binnengewässer oder zum Thema Wald, an denen alle wichtigen Datengeber auch finanziell beteiligt werden. Ohne finanzielle Beteiligung sind Originaldaten, z.B. aus den Nachfolgerstaaten der ehemaligen Sowjetunion, nur selten zu erhalten.

# Anhang: Eintrag von $^{137}\text{Cs}$ und $^{90}\text{Sr}$ in die Umwelt

## 1 Deutschland

### 1.1 $^{137}\text{Cs}$ in Luft und Niederschlag

In den nachfolgenden Tabellen sind, soweit vorhanden, die Messwerte für die Jahre 1965 bis 1985 (Kernwaffenfallout) und 1988 bis 1999 (Zeit nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl) aufgeführt. Für beide Zeiträume oder Teile davon werden die entsprechenden Halbwertszeiten abgeleitet.

$^{137}\text{Cs}$ -Konzentration in Luft, werden in der Regel durch  $\gamma$ -spektrometrisch an wöchentlich beaufschlagten Staubfiltern durchgeführt. Die Nachweisgrenzen liegen hier zwischen 2 bis 5  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ . Zur  $\gamma$ -spektrometrischen Einzelnuklidmessung im Niederschlag werden in der Regel Monatssammelproben herangezogen, die aus bis zu 40 Messstationen stammen. Die Nachweisgrenze für  $^{137}\text{Cs}$  liegt zwischen 0,5 und 5  $\text{mBq}/\text{l}$ .

In den Tabellen sind die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten in Luft und durch nasse Deposition zusammengefasst. Zusätzlich ist jeweils die Regenmenge pro Jahr angegeben. Die Messungen liegen jedoch nicht vollständig für alle Messorte bzw. Messinstitutionen vor.

Die Abhängigkeit  $^{137}\text{Cs}$ -Deposition von der Regenmenge ist in Tabelle 3 für die Jahre 1965 und 1966 zu erkennen. Der hohen Cs-Konzentration in Luft mit  $280,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  steht eine relativ geringe  $^{137}\text{Cs}$ -Deposition mit Niederschlägen von  $17 \text{Bq}/\text{m}^2$  gegenüber; 1965 betrug die Regenmenge  $155 \text{l}/\text{m}^2$ , 1966 dagegen  $663 \text{l}/\text{m}^2$ .

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1965	281	17	155
1966	152	137	663
1967	81	78	563
1970	118	81	*
1971	123	70	*
1972	42	38	*
1973	18	22	*
1974	65	47	*
1975	35	34	389
1976	10	24	375
1977	37	8	413
1978	43	12	*
1979	15	5	339
1980	7,8	1,9	380
1981	25	25	727
1982	5	*	*
1983	2,2	*	*
1984	0,82	*	*
1985	0,54	*	*

Tabelle 3: Deposition von  $^{137}\text{Cs}$  während des Kernwaffenfallouts, Luftmessung: Phys.-Techn. Bundesanstalt Braunschweig, Messung der nassen Deposition: Staatl.-Chem. Untersuchungsamt Braunschweig

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1988	3,8	*	*
1989	2,6	*	*
1990	2	*	*
1991	1,4	*	*
1992	1,3	*	*
1993	1,1	*	*
1994	0,86	*	*
1995	0,41	*	*
1996	0,4	*	*
1997	0,73	*	*
1998	0,63	*	*
1999	0,5	*	*

\* = nicht verfügbar

Tabelle 4: Deposition von  $^{137}\text{Cs}$  nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl,  
Luftmessung: Phys.-Techn. Bundesanstalt Braunschweig,  
Messung der nassen Deposition: Staatl.-Chem. Untersuchungsamt Braunschweig

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1970	*	107	*
1971	*	159	*
1972	*	110	*
1973	*	69	*
1974	*	153	*
1975	*	95	502
1976	*	77	497
1977	*	40	629
1978	*	44	*
1979	*	37	639

\* = nicht verfügbar

Tabelle 5: Deposition während des Kernwaffenfallouts,  
Messung der nassen Deposition: Staatl.-Chem. Untersuchungsamt Braunschweig,  
Probennahmestelle: Königslutter

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1988	7,1	*	*
1989	3,8	*	*
1990	2,4	*	*
1991	2,2	*	*
1992	2	*	*

Tabelle 6: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl,  
Luftmessung: Phys.-Techn. Bundesanstalt Braunschweig, Probennahmestelle: Berlin

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1975	48	*	*
1976	13	*	*
1977	52	*	*
1978	81	*	*
1979	31	*	*
1980	11	*	*
1981	45	*	*
1982	7,7	7,2	710
1983	3,7	5,6	709
1984	1,6	2	811
1985	1,1	2,6	1009

\* = nicht verfügbar

Tabelle 7: Deposition während des Kernwaffenfallouts, GSF, München-Neuherberg

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1988	20	48	997
1989	12	14	823
1990	9,1	19	946
1991	8,1	9	874
1992	7	11	821
1993	4,6	6,4	985
1994	2,3	3,8	859
1995	2,3	4,3	960
1996	2,4	3,5	868
1997	2,2	2,8	754
1998	2,1	2,9	847
1999	1,5	2	1010

Tabelle 8: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl  
GSF, München-Neuherberg

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1970	*	70	943
1971	*	50	679
1972	*	22	690
1973	*	5,4	447
1974	*	34	701
1975	*	20	588
1976	*	8,5	379
1977	*	38	750
1978	*	31	565
1979	*	12	701
1980	*	4,8	628
1981	40	17	876
1982	3,9	1,9	558
1983	1,6	1	643
1984	0,77	0,63	678
1985	0,46	0,39	501

\* = nicht verfügbar

Tabelle 9: Deposition während des Kernwaffenfallouts, Deutscher Wetterdienst Offenbach

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1988	22	2,5	604
1989	20	1,9	609
1990	3,6	1,2	558
1991	2,7	0,86	467
1992	2,7	0,95	526
1993	2,7	1,5	597
1994	2,7	0,6	533
1995	3,6	0,8	607
1996	3,6	0,4	551
1997	3,4	0,5	436
1998	3,1	0,6	637
1999	3	0,6	645

Tabelle 10: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, DWD Offenbach

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1992	1,5	0,82	592
1993	2,5	0,76	619
1994	1,8	0,47	704
1995	3,6	0,83	926
1996	2,1	0,67	463
1997	2,2	1,3	526
1998	2,2	1,5	624
1999	3,3	1,3	449

Tabelle 11: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, Deutscher Wetterdienst Offenbach, Probennahmestelle: Berlin

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1992	10	*	*
1993	10	*	*
1994	1,6	*	*
1995	2,3	*	*
1996	2,4	0,03	627
1997	2,1	0,88	658
1998	2	0,96	893
1999	1,8	1	833

\* = nicht verfügbar

Tabelle 12: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, Deutscher Wetterdienst Offenbach, Probennahmestelle: Aachen



Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1992	10	*	*
1993	10	*	*
1994	10	*	*
1995	3,9	*	*
1996	4,4	0,56	531
1997	3,1	0,79	638
1998	3,4	1,1	1049
1999	3,6	1,1	908

\* = nicht verfügbar

Tabelle 13: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, DWD Offenbach, Probennahmestelle: Schleswig (Die Daten für nasse Deposition sind nicht auswertbar.)

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1964	*	381	663
1965	*	347	1276
1966	*	124	1079
1967	*	52	935

\* = nicht verfügbar

Tabelle 14: Deposition während des Kernwaffenfallouts, Deutscher Wetterdienst Königstein/Ts.

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1989	2	*	*
1990	1,6	*	*
1991	1,1	*	*
1992	1,3	*	*
1993	0,81	*	*
1994	0,61	*	*
1995	0,63	*	*
1996	0,4	*	*
1997	0,6	*	*
1998	1	*	*
1999	0,63	*	*

\* = nicht verfügbar

Tabelle 15: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, Bundesamt für Strahlenschutz, Inst. f. Atmosphär. Radioaktivität – Freiburg, Probennahmestelle: Messstation Schauinsland

## 1.2 <sup>90</sup>Sr in Luft und Niederschlag

<sup>90</sup>Sr wurde hauptsächlich mit dem Kernwaffenfallouts deponiert, während die Deposition während und nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl nur von untergeordneter Bedeutung war. Wie beim <sup>137</sup>Cs gehen die Luftkonzentrationen von 1965 bis 1985 deutlich zurück. Die vereinzelt von Frankreich und China durchgeführten oberirdischen Kernwaffenversuche (siehe Anhang), führen zu kurzfristig erhöhten Luftkonzentrationen.

In den folgenden Tabellen sind die <sup>90</sup>Sr-Konzentrationen durch nasse Deposition während des Kernwaffenfallouts für verschiedene Messorte aufgeführt. Da jedoch jeweils nur für 4 Jahre in Folge Messdaten vorlagen, wurde auf die Abschätzung von zeitlichen Trends verzichtet. Messungen für die <sup>90</sup>Sr-Konzentration in Luft standen in den ausgewerteten Messreihen nicht zur Verfügung.

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1970	*	28	943
1971	*	20	679
1972	*	6,3	690,
1973	*	1,3	447
1974	*	13	701
1975	*	5,4	588
1976	*	1,9	379
1977	*	9,3	750
1978	*	12	565
1979	*	4,4	701
1980	*	4,3	628
1981	23	13	876
1982	6,9	1,4	558
1983	6,9	0,85	643
1984	0,51	0,59	678
1985	*	0,22	501

\* = nicht verfügbar

Tabelle 16: Deposition während des Kernwaffenfallouts, Deutscher Wetterdienst Offenbach

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1988	*	0,004	604
1989	*	*	609
1990	*	0,26	558
1991	*	0,25	467
1992	*	0,28	526
1993	*	0,26	597

\* = nicht verfügbar

Tabelle 17: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, Deutscher Wetterdienst Offenbach

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1964	*	248	663
1965	*	259	1276
1966	*	108	1079
1967	*	36	935

\*= nicht verfügbar

Tabelle 18: Deposition während des Kernwaffenfallouts,  
Deutscher Wetterdienst Königstein/Ts.

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1964	*	283	471
1965	*	225	809
1966	*	129	897
1967	*	214	832

\* = nicht verfügbar

Tabelle 19: Deposition während des Kernwaffenfallouts,  
Inst. f. Angewandte Physik der TH Hannover

Jahr	Luft [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Nasse Deposition [ $\text{Bq}/\text{m}^2$ ]	Regenmenge [ $\text{l}/\text{m}^2$ ]
1964	*	438	523
1965	*	260	948
1966	*	107	824
1967	*	34	536

\* = nicht verfügbar

Tabelle 20: Deposition während des Kernwaffenfallouts,  
Physik. Inst. der Universität Heidelberg

## 2 Dänemark

### 2.1 <sup>137</sup>Cs in Luft

In den folgenden Tabellen sind die der <sup>137</sup>Cs-Konzentration in Luft für die Jahre 1965 bis 1985 (Kernwaffenfallout) und 1988 bis 1993, um die Zeit nach dem Unfall in Tschernobyl zusammengefasst.

Jahr	Arith. Mittel [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Geom. Mittel [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]
1965	390	340
1966	210	162
1967	79	63
1968	88	72
1969	91	77
1970	127	100
1971	98	75
1972	51	43
1973	17	14
1974	72	52
1975	48	35
1976	16	15
1977	60	45
1978	116	88
1979	31	23
1980	9	7,7
1981	30	18
1982	5,7	4,7
1983	2,1	1,8
1984	1,4	1
1985	0,68	0,63

Tabelle 21: Deposition während des Kernwaffenfallouts, Messort: Riso, Dänemark

Jahr	Arith. Mittel [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Geom. Mittel [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]
1988	2,6	2,1
1989	1,6	1,4
1990	1	0,96
1991	1	0,91
1992	0,96	0,83
1993	1,1	0,88

Tabelle 22: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl: Messort: Riso, Dänemark

## 2.2 Gesamt-<sup>137</sup>Cs-Deposition

Die Gesamtfalloutraten sind Daten der Aktivitätskonzentration im Niederschlag, die in Dänemark, Jütland und auf den Dänischen Inseln über einen Zeitraum von 1950 bis 1993 bestimmt wurden.

Jahr	Dänemark [Bq/m <sup>2</sup> ]	Jütland [Bq/m <sup>2</sup> ]	Dänische Inseln [Bq/m <sup>2</sup> ]
1965	234	249	219
1966	127	128	126
1967	62	70	54
1968	83	93	73
1969	61	73	49
1970	98	118	77
1971	89	102	76
1972	26	27	25
1973	11	13	9,9
1974	42	46	38
1975	25	27	22
1976	6,1	6,9	5,3
1977	23	24	21
1978	27	32	23
1979	9,8	10	9,2
1980	5,6	6,8	4,6
1981	17	18	16
1982	2,7	2,9	2,6
1983	2,2	2,1	2,2
1984	1,8	1,9	1,6
1985	1,3	1,2	1,4

Tabelle 23: Deposition während des Kernwaffenfallouts

Jahr	Dänemark [Bq/m <sup>2</sup> ]	Jütland [Bq/m <sup>2</sup> ]	Dänische Inseln [Bq/m <sup>2</sup> ]
1988	12	13	10
1989	3,5	4,5	2,5
1990	2,6	3,9	1,4
1991	1,6	1,9	1,4
1992	0,98	1,2	0,79
1993	0,96	1,4	0,53

Tabelle 24: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl

### 2.3 Gesamt- <sup>90</sup>Sr-Deposition

Jahr	Dänemark [Bq/m <sup>2</sup> ]	Jütland [Bq/m <sup>2</sup> ]	Dänische Inseln [Bq/m <sup>2</sup> ]
1965	146	155	137
1966	80	80	79
1967	39	44	34
1968	52	58	46
1969	38	46	31
1970	61	74	48
1971	56	64	48
1972	16	17	15
1973	7,1	8	6,2
1974	26	29	24
1975	15	17	14
1976	3,8	4,3	3,3
1977	14	15	13
1978	17	20	14
1979	6,1	6,4	5,8
1980	3,5	4,2	2,9
1981	11	11	10
1982	1,7	1,8	1,6
1983	1,3	1,3	1,4
1984	1,1	1,2	0,98
1985	0,81	0,74	0,87

Tabelle 25: Deposition während des Kernwaffenfallouts

Jahr	Dänemark [Bq/m <sup>2</sup> ]	Jütland [Bq/m <sup>2</sup> ]	Dänische Inseln [Bq/m <sup>2</sup> ]
1988	1	0,87	1,1
1989	0,54	0,41	0,68
1990	0,51	0,42	0,59
1991	0,56	0,21	0,35
1992	0,35	0,27	0,43
1993	0,39	0,31	0,35

Tabelle 26: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl

### 3 Vergleich der Messungen von $^{137}\text{Cs}$ in Luft in Dänemark und Deutschland

In Tabelle 25 sind die Aktivitätskonzentrationen von  $^{137}\text{Cs}$  in Luft während des Kernwaffenfallouts von einem Ort in Dänemark und von 2 Orten in Deutschland gegenübergestellt.

Der zeitliche Verlauf der Aktivitäten ist sehr ähnlich und die Aktivitäten sind bis auf geringfügige Unterschiede größenordnungsmäßig gleich. Die oberirdischen Kernwaffenversuche sind schlagen sich deutlich in den Luftaktivitäten nieder. Beispielsweise führte Frankreich 1970 8 oberirdische Tests durch.

Jahr	Dänemark [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Deutschland [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	
	Riso	Braunschweig	München
1965	390	281	*
1966	210	152	*
1967	79	81	*
1968	88	*	*
1969	91	*	*
1970	127	118	*
1971	98	123	*
1972	51	42	*
1973	17	18	*
1974	72	65	*
1975	48	35	48
1976	16	10	13
1977	60	37	52
1978	116	43	81
1979	31	15	31
1980	9	7,8	11
1981	30	25	45
1982	5,7	5	7,7
1983	2,1	2,2	3,7
1984	1,4	0,82	1,6
1985	0,68	0,54	1,1

\* = nicht verfügbar

Tabelle 27: Deposition während des Kernwaffenfallouts

Jahr	Dänemark [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]	Deutschland [ $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ]		
	Riso	Braunschweig	Berlin	München
1988	2,6	3,8	7,1	20
1989	1,6	2,6	3,8	12
1990	1	2	2,4	9,1
1991	1	1,4	2,2	8,1
1992	0,96	1,3	2	7
1993	1,1	1,1	*	4,6

\* = nicht verfügbar

Tabelle 28: Deposition nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl

Nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl zeigen sich sehr deutlich die unterschiedlichen regionalen Depositionen. Insbesondere in München sind die Aktivitätskonzentrationen in Luft erheblich höher als in den übrigen in der Tabelle aufgeführten Orten. In München ist auch 1993 die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität noch deutlich gegenüber den Berlin und Braunschweig höher.

In den Jahren von 1945 bis 1980 wurden oberirdische Kernwaffenversuche durchgeführt. In Tabelle 29 sind alle bekannt gewordenen Tests in der Atmosphäre aufgeführt. Der allgemeine Pegel der Umweltradioaktivität durch die Kernwaffenversuche ist durch Inkrafttreten des internationalen „Vertrages über die Einstellung von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, im Weltraum und unter Wasser“ im Jahr 1963 stetig zurückgegangen. Die letzten oberirdischen Tests der USA und UdSSR fanden 1962 statt. In den Jahren danach führten nur noch Frankreich und China weitere Kernwaffenversuche durch, wobei der letzte Versuch in der Atmosphäre von den Chinesen im Jahr 1980 durchgeführt wurde.

Jahr	USA	UdSSR	Großbritannien	Frankreich	China
1945	3				
1946	2				
1947	-				
1948	3				
1949	-	1			
1950	-	-			
1951	16	2			
1952	10	-	1		
1953	11	5	2		
1954	6	10	-		
1955	14	6	-		
1956	17	9	6		
1957	23	16	7		
1958	52	34	5		
1959	-	-		3	
1960	-	-		1	
1961	-	58		-	
1962	40	78		-	
1963				-	
1964				-	1
1965				-	1
1966				5	3
1967				3	2
1968				5	1
1969				-	1
1970				8	1
1971				5	1
1972				3	2
1973				5	1
1974				7	1
1975					-
1976					3
1977					1
1978					2
1979					-
1980					1
Summe	197	219	21	45	22

Tabelle 29: Kernwaffenversuche, die in der Atmosphäre durchgeführt wurden