

## Thorium in Böden, Gemüse, Getreide und Obst

Otto Frindik

Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Zentrallaboratorium für Isotopentechnik, Engesserstrasse 20, D-7500 Karlsruhe 1, Bundesrepublik Deutschland

### Thorium contents in soils, vegetables, cereals, and fruits

**Summary.** Thorium contents ( $\alpha$ -activities of the naturally occurring isotopes Th-228, Th-230, and Th-232) were determined in soils, vegetables, cereals, and fruits. The thorium content of plants depends on the degree of contamination by soil resuspension and thus on the specific surface of the plants. The activity of the isotope Th-230 is almost the same as that of the main isotope Th-232. Th-228, with about the same activity as Th-232 in soil, increases to about 10-fold the activity in vegetables, 29-fold in sweet chestnuts and 740-fold in Brazil nuts. Thorium concentration factors from the soil to these vegetable products are calculated; they include the total concentration, not only the soluble portion of thorium.

**Zusammenfassung.** Es werden die Thorium-Gehalte ( $\alpha$ -Aktivitäten der natürlichen Isotope Th-228, Th-230 und Th-232) in Böden, Gemüse, Getreide und Obst mitgeteilt. Der Thorium-Gehalt von Pflanzen hängt vom Grad ihrer Kontamination mit Bodenresuspension und damit von deren spezifischer Oberfläche ab. Die Aktivität des Isotops Th-230 gleicht weitgehend der des Leitisotops Th-232. Th-228 hat im Boden etwa die gleiche Aktivität wie Th-232, erreicht bei Gemüse etwa die 10fache, bei Edelkastanien die 29fache und bei Paranüssen die 740fache Aktivität. Thorium-Konzentrationsfaktoren von Böden zu den zugehörigen pflanzlichen Produkten werden berechnet. Dabei wird die Gesamtkonzentration und nicht nur der lösliche Anteil des Thoriums berücksichtigt.

### Einleitung

Nachdem in den vorangegangenen Arbeiten [1, 2] die Verhältnisse des Urans in Einzellebensmitteln und Böden aus dem Karlsruher Raum stichprobenartig dargestellt worden sind, gilt diese Untersuchung dem Thorium, das im gleichen Raum und zum Teil in den gleichen Proben bestimmt wurde. Thorium trägt grö-

ßenordnungsmäßig den gleichen Anteil wie Uran zu der natürlichen Umweltradioaktivität bei. In der Literatur sind nur wenige Daten [3–5] über den Thoriumgehalt von Lebensmitteln pflanzlicher Herkunft und kaum nuklidspezifische Angaben über das Boden/Pflanze-Verhältnis von Thorium zu finden. Die diesbezüglichen Kenntnisse soll die vorliegende Arbeit vertiefen.

Thorium hat keine stabilen Isotope und bildet mit dem Isotop Th-232 (längste Halbwertszeit, größter Massenanteil) den Anfang einer von drei natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen. Neben Th-232 ist das mittelbare Tochterisotop Th-228 und das aus der Uran-238-Zerfallsreihe stammende Isotop Th-230 für die Umweltradioaktivität von Bedeutung. Das Isotop Th-227 ist wegen seiner schwachen Aktivität (da Tochterisotop von U-235 in 4. Generation) und Überlappung seiner Linien (um die 6 MeV) im  $\alpha$ -Spektrum mit einigen Linien der Folgenuklide der drei anderen Isotope nur mit relativ großem Fehler zu bestimmen. Da auch sein Anteil an der gesamten  $\alpha$ -Aktivität des Thoriums unbedeutend ist (etwa 1,5%), wird Th-227 in dieser Arbeit außer acht gelassen. Ebenso unberücksichtigt bleiben hier die zwei restlichen natürlichen Thorium-Isotope Th-231 und Th-234, die  $\beta$ -strahlende Glieder der zwei Uran-Zerfallsreihen sind, kurze Halbwertszeiten haben und deshalb nur dort vorkommen, wo auch Uran anwesend ist.

Mit Hilfe der  $\alpha$ -Spektrometrie sind die Verhältnisse der Isotope Th-228, Th-230 und Th-232 zueinander gut zu bestimmen. In einem geschlossenen System ist die Aktivität der Tochternuklide einer radioaktiven Zerfallsreihe nach Einstellung des Gleichgewichtes gleich der des Mutternuklides. Ein offenes System dagegen wird mehr oder weniger gestört: Je unterschiedlicher die physiko-chemischen Eigenschaften und je langlebiger die Tochterisotope sind, um so mehr kann das Aktivitätsverhältnis Tochter/Mutter von 1:1 abweichen. Bei Thorium kann das Verhältnis des genetisch verwandten Isotopenpaares Th-228/Th-232 um Größenordnungen von 1:1 mehr abweichen, als das beim analogen Isotopenpaar (U-234/U-238) des Urans der Fall ist [1]. Dieser Effekt ist vorwiegend auf die Eigenschaften des ersten Tochternuklids, des Ra-

228, zurückzuführen. Ra-228 ist etwa 87mal langlebiger als die analoge Uran-Tochter Th-234 und darüber hinaus als Isotop der Erdalkaligruppe für Pflanzen physiologisch zugänglicher als ein Thorium-Isotop.

Zur Ermittlung von radioökologischen Zusammenhängen zwischen Böden und Pflanzen legt man neuerdings großen Wert auf die gleichzeitige Bestimmung von Thorium in beiden Medien. Der aus dem Thorium-Gehalt der Pflanze und des Bodens gebildete Quotient wird als Konzentrations- oder als Transferfaktor bezeichnet. Sein Kehrwert wird als Diskriminierungsfaktor aufgeführt [6]. Mit Hilfe der Konzentrationsfaktoren werden z. B. Vorhersagen von Radionuklidkonzentrationen in Nutzpflanzen möglich und darüber hinaus wird die Strahlenexposition der Bevölkerung abschätzbar.

### Probenahme und Methode

Die Bodenproben bis zu einer Tiefe von 10 cm entnehmen, bei 105 °C trocknen und, ohne sie mechanisch zu zerkleinern, sieben (Maschenweite 1,4 mm). Die Proben bei 500 °C 4 bis 5 h trockenveraschen. Anschließend die Bodenproben durch ein zweites Sieb der Maschenweite 315 µm sieben, und nur die feine Siebfraction für die Thorium-Analysen verwenden. Wie Nebenversuche zeigten, laufen radiochemische Vorgänge der untersuchten Böden (überwiegend Auenböden: feinsandiger Lehm bis schluffiger Ton) vorwiegend in den Siebfractionen kleiner als etwa 300 µm ab. Die Boden- und die Pflanzenproben möglichst gleichzeitig und am gleichen Ort ziehen. Die eßbaren Pflanzenanteile hausaltüblich reinigen. Nur die Trauben ungewaschen von den Rappen befreien. Getreide wegen des anhaftenden Staubes ebenfalls waschen. Die pflanzlichen Proben in dünner, lockerer Schicht (30 bis 50 g pro dm<sup>2</sup>) in Edelstahlschalen bei 500 °C in 4 bis 5 h veraschen.

Vor der chemischen Aufbereitung 40 mBq Thorium-229 als innerer Standard zu bis 25 g Pflanzenasche bzw. zu 1,5–2,0 g veraschtem Bodenmaterial geben. Nach dem Lösen der Asche in Königswasser den Rückstand durch Behandlung mit Fluß- und Perchlorsäure aufschließen. Die vereinigten Lösungen einer ammoniakali-

schen Fällung unterziehen. Nach Lösen des Niederschlags in 8 mol/L HCl durch eine Tri-iso-octylamin (TIOA)-Extraktion das Uran aus dem Aufschluß entfernen und  $\alpha$ -spektrometrisch bestimmen [1].

Nach der TIOA-Extraktion die wässrige Lösung mit Perchlorsäure eindampfen, die Reste in Perchlorsäure lösen und über eine Dowex-50WX8-Kolonnen leiten. Das Thorium mit Oxalsäure von der Kolonne eluieren, das Eluat eindampfen und den trockenen Rest in Nitratform überführen, in 7 mol/L HNO<sub>3</sub> lösen und über eine Dowex-1X4-Kolonnen (Nitratform) leiten. Von der Kolonne Thorium mit 10 mol/L HCl eluieren und nach Vorbereitung auf Edelstahlplättchen abscheiden [7].

Die Meßpräparate wurden 2–3 Tage im Vakuum  $\alpha$ -spektrometriert. Nachweisgrenze 0,1–0,3 mBq Th-232, entsprechend 0,02–0,07 µg Thorium. Von fast allen Proben wurden Doppel- oder Mehrfachbestimmungen des Thoriums durchgeführt. Das Analyseverfahren wurde auch am Certified Reference Material SL-1 See-Sediment der International Atomic Energy Agency überprüft. Das in den Gesteinspartikeln des Bodens befindliche Thorium ist größtenteils unlöslich und wird daher als physiologisch nicht relevant betrachtet. Die Definition der Löslichkeit des Thoriums ist jedoch abhängig von der angewandten Anlösemethode. Durch das beschriebene Analyseverfahren wird das gesamte Thorium erfaßt. Da die Aktivität des Isotops Th-228 auch praktisch merklich veränderlich ist, werden alle  $\alpha$ -Präparate im Zeitraum von 2 bis 4 Wochen nach ihrer Fertigstellung  $\alpha$ -spektrometrisch gemessen. In diesem Zeitraum dürfte sich nach [8] die  $\alpha$ -Aktivität der Thorium-Präparate nicht nennenswert verändert haben. Die Bestimmung der Gesamt- $\alpha$ -Aktivität der Asche vgl. [1]. Die Aktivität von 1 µg Thorium-232 beträgt 0,244 Zerfälle/min, entsprechend 4,06 mBq bzw. 0,110 pCi. Alle Meßwerte der Tabellen 1–4 sind mit dem 1s-Gesamtfehler dargestellt.

### Ergebnisse und Diskussion

#### Böden

Der mittlere Thorium-232-Gehalt der untersuchten Bodenproben (Tabelle 1) beträgt etwa  $38 \pm 11$  Bq/kg bzw.  $9,4 \pm 2,7$  mg/kg und kommt den Ergebnissen von [9] sowie [10] in USA und nach [3] den Bodenwerten in Rußland und Polen sehr nahe. Dagegen liegen die Werte von [11] aus Taiwan höher und die von [12] aus USA niedriger als die der vorliegenden Arbeit. Nach

Tabelle 1. Gesamt- $\alpha$ - und Thorium- $\alpha$ -Aktivitäten in trockenveraschenen Böden

Nutzungsart	Probenahmeort (Postleitzahl)	Aktivitäten in Bq/kg Trockenmasse (TM)				Thorium- gehalt in mg/kg TM	<sup>228</sup> Th  <sup>232</sup> Th
		Gesamt- $\alpha$	<sup>228</sup> Th	<sup>230</sup> Th	<sup>232</sup> Th		
Gärtnerei	(7570) Baden-Baden (Oos)	680 ± 180	45,2 ± 2,7	37,3 ± 2,5	42,6 ± 2,7	10,5 ± 0,66	1,1
Weinberg	(5550) Bernkastel-Kues	1400 ± 78	54,2 ± 1,5	39,5 ± 1,1	47,9 ± 1,4	11,8 ± 0,34	1,1
Obstgarten	(7520) Bruchsal/Obergrombach	870 ± 50	35,7 ± 1,0	33,6 ± 0,9	35,2 ± 1,0	8,66 ± 0,25	1,0
Obstgarten	(7580) Bühl/Baden	1100 ± 64	48,6 ± 1,6	40,7 ± 1,4	43,9 ± 1,4	10,8 ± 0,34	1,1
Kleingarten	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 1.	860 ± 49	28,4 ± 2,1	24,4 ± 1,8	25,7 ± 1,9	6,32 ± 0,47	1,1
Acker	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	730 ± 42	20,3 ± 0,7	19,2 ± 0,6	20,4 ± 0,7	5,36 ± 0,22	1,0
Weinberg	(6222) Geisenheim	970 ± 55	43,6 ± 1,4	36,8 ± 1,2	43,3 ± 1,4	10,6 ± 0,34	1,0
Gärtnerei	(7500) Karlsruhe (Durlach, 1.)	810 ± 47	29,6 ± 1,0	24,7 ± 0,9	29,3 ± 1,0	7,21 ± 0,25	1,0
Gärtnerei	(7500) Karlsruhe (Durlach, 2.)	1000 ± 57	44,5 ± 2,0	34,8 ± 1,6	43,2 ± 1,9	10,6 ± 0,47	1,0
Gärtnerei	(7500) Karlsruhe (Grötzingen, 1.)	1100 ± 62	48,2 ± 3,1	35,3 ± 2,4	48,3 ± 3,1	11,9 ± 0,79	1,0
Gärtnerei	(7500) Karlsruhe (Grötzingen, 2.)	1100 ± 59	40,6 ± 1,5	35,2 ± 1,3	39,5 ± 1,4	9,71 ± 0,34	1,0
Gärtnerei	(7500) Karlsruhe (Neureut)	1100 ± 63	24,8 ± 1,1	30,5 ± 1,3	23,1 ± 1,0	5,69 ± 0,25	1,1
Laubwald	(6740) Landau/Pfalz	1200 ± 65	49,2 ± 2,2	40,1 ± 1,8	48,9 ± 2,2	12,0 ± 0,54	1,0
Acker	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	710 ± 42	19,4 ± 0,5	15,0 ± 0,5	19,3 ± 0,7	4,75 ± 0,17	1,0
Weinberg	(7129) Talheim/Neckar	1300 ± 69	58,4 ± 2,0	42,1 ± 1,5	54,7 ± 1,9	13,5 ± 0,47	1,1
Acker	(6721) Weingarten/Pfalz	1100 ± 63	42,9 ± 1,5	36,5 ± 1,3	41,7 ± 1,5	10,3 ± 0,37	1,0
Obstgarten	(6741) Winden/Pfalz	960 ± 55	32,0 ± 2,3	24,9 ± 1,9	30,2 ± 2,2	7,43 ± 0,54	1,1
Weide	(7822) Menezschwand	2500 ± 150	84,2 ± 3,7	179 ± 7,5	80,7 ± 3,6	19,8 ± 0,88	1,0

[13] beträgt die Thorium-232-Aktivität weltweit 24 Bq/kg Boden mit einer typischen Schwankungsbreite von 8 bis 48 Bq/kg. Die Thorium-Gehalte schwanken weniger als die in denselben Bodenproben [1–2] bestimmten Uran-Gehalte.

Die Aktivität des Th-228 ist bei fast allen Bodenproben etwas höher als die des Mutterisotops Th-232, und der daraus gebildete Quotient beträgt 1 bis 1,1 (Tabelle 1). Somit gerät das mittelbare Tochterisotop Th-228 nicht ins Defizit gegenüber Th-232, wie das bei

Tabelle 2. Gesamt- $\alpha$ - und Thorium- $\alpha$ -Aktivitäten in Getreide

Produkt Erntejahr	Probenahmeort (Postleitzahl)	Aktivitäten in mBq/kg Frischmasse (FM)				Thorium- gehalt in $\mu\text{g/kg FM}$	$^{228}\text{Th}$
		Gesamt- $\alpha$	$^{228}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$		$^{232}\text{Th}$
Gerste 1979	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	920 ± 260	60,0 ± 2,5	4,17 ± 0,46	4,56 ± 0,48	1,12 ± 0,12	13,2
Gerste 1980	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	1650 ± 160	59,0 ± 3,2	3,81 ± 0,47	2,14 ± 0,34	0,53 ± 0,08	27,6
Gerste 1983	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	1240 ± 160	65,6 ± 2,6	3,61 ± 0,37	2,83 ± 0,33	0,70 ± 0,08	23,2
Roggen 1976	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	440 ± 150	54,6 ± 1,8	2,91 ± 0,26	2,35 ± 0,23	0,58 ± 0,06	23,2
Roggen 1978	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	850 ± 240	101 ± 4,1	2,87 ± 0,41	3,06 ± 0,41	0,75 ± 0,10	33,0
Roggen 1982	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	810 ± 83	59,3 ± 2,3	0,85 ± 0,13	1,02 ± 0,18	0,25 ± 0,04	58,1
Roggen 1984	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	870 ± 72	37,1 ± 2,1	1,45 ± 0,28	1,36 ± 0,28	0,33 ± 0,07	27,3
Roggen 1986	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	1800 ± 180	30,1 ± 1,0	4,89 ± 0,28	4,74 ± 0,27	1,17 ± 0,07	6,4
Roggenkleie 1983	(4930) Detmold	2130 ± 170	147 ± 15,8	7,34 ± 1,01	5,91 ± 0,90	1,45 ± 0,22	24,9
Weizen 1978	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	950 ± 270	101 ± 5,7	6,34 ± 0,84	5,14 ± 0,75	1,26 ± 0,18	19,6
Weizen 1984	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	640 ± 100	32,1 ± 1,7	1,95 ± 0,30	1,05 ± 0,22	0,26 ± 0,05	30,6

Tabelle 3. Gesamt- $\alpha$ - und Thorium- $\alpha$ -Aktivitäten in Obst, Rhabarber und Paranüssen

Produkt	Probenahmeort (Postleitzahl)	Aktivitäten in mBq/kg Frischmasse (FM)				Thorium- gehalt in $\mu\text{g/kg FM}$	$^{228}\text{Th}$
		Gesamt- $\alpha$	$^{228}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$		$^{232}\text{Th}$
Äpfel	(7520) Bruchsal (Obergrombach)	180 ± 44	3,53 ± 0,28	1,01 ± 0,11	0,76 ± 0,08	0,18 ± 0,02	4,6
Birnen	(6471) Winden/Pfalz	140 ± 29	5,02 ± 0,41	1,14 ± 0,15	1,11 ± 0,15	0,27 ± 0,04	4,5
Edelkastanie	(6740) Landau/Pfalz	1250 ± 120	55,4 ± 2,20	2,11 ± 0,28	1,90 ± 0,26	0,47 ± 0,06	29,2
Erdbeeren	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	57 ± 22	10,4 ± 0,73	1,20 ± 0,20	1,01 ± 0,18	0,25 ± 0,04	10,3
Hagebutten	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	520 ± 98	10,4 ± 0,98	2,92 ± 0,41	2,98 ± 0,44	0,73 ± 0,11	3,5
Johannisbeeren	(7580) Bühl/Baden	690 ± 92	24,8 ± 1,25	3,48 ± 0,35	2,86 ± 0,32	0,70 ± 0,08	8,7
Paranüsse, ohne Schale	Herkunft Brasilien	280000 ± 14000	11700 ± 450	23,6 ± 4,3	15,8 ± 3,6	3,88 ± 0,89	740
Paranußschalen	Herkunft Brasilien	–	20400 ± 580	108 ± 11,3	40,7 ± 6,8	10,0 ± 1,67	500
Pflaumen	(7580) Bühl/Baden	180 ± 80	1,30 ± 0,72	1,56 ± 0,24	1,12 ± 0,20	0,28 ± 0,05	1,2
Rhabarber	(7500) Karlsruhe (Durlach, 2.)	320 ± 10	8,36 ± 0,33	1,21 ± 0,12	0,99 ± 0,11	0,24 ± 0,03	8,4
Sauerkirschen	(7520) Bruchsal (Obergrombach)	350 ± 72	2,59 ± 0,47	2,54 ± 0,16	1,55 ± 0,15	0,38 ± 0,04	1,7
Weintrauben	(5550) Bernkastel-Kues	160 ± 33	7,83 ± 0,36	2,30 ± 0,15	1,73 ± 0,12	0,43 ± 0,03	4,5
Weintrauben	(6222) Geisenheim, Rheingau	260 ± 87	5,43 ± 0,63	2,84 ± 0,32	2,96 ± 0,30	0,73 ± 0,07	1,8
Weintrauben	(7129) Talheim/Neckar	100 ± 120	2,75 ± 1,30	5,25 ± 0,66	2,91 ± 0,48	0,72 ± 0,12	0,9

Tabelle 4. Gesamt- $\alpha$ - und Thorium- $\alpha$ -Aktivitäten in Gemüse

Produkt	Probenahmeort (Postleitzahl)	Aktivitäten in mBq/kg Frischmasse (FM)				Thorium- gehalt in $\mu\text{g/kg FM}$	$^{228}\text{Th}$
		Gesamt- $\alpha$	$^{228}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}$	$^{232}\text{Th}$		$^{232}\text{Th}$
Blumenkohl	(7500) Karlsruhe (Durlach, 2.)	9 ± 21	3,00 ± 0,64	2,77 ± 0,38	2,11 ± 0,33	0,52 ± 0,08	1,4
Bohnen, grün	(6721) Weingarten/Pfalz	95 ± 30	1,31 ± 0,56	1,39 ± 0,31	1,61 ± 0,30	0,40 ± 0,07	0,8
Grünkohl	(7500) Karlsruhe (Neureut)	810 ± 95	78,7 ± 4,33	25,9 ± 1,46	15,2 ± 1,00	3,73 ± 0,31	5,2
Karotten	(7500) Karlsruhe (Grötzingen, 1.)	510 ± 75	15,1 ± 0,82	2,37 ± 0,23	2,15 ± 0,22	0,53 ± 0,05	7,0
Kartoffeln	(7500) Karlsruhe (Grötzingen, 2.)	72 ± 54	2,53 ± 0,48	1,66 ± 0,25	0,53 ± 0,13	0,13 ± 0,03	4,8
Kartoffeln	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	140 ± 44	3,81 ± 0,36	1,69 ± 0,16	1,35 ± 0,15	0,33 ± 0,05	2,8
Kohlrabi	(6721) Weingarten/Pfalz	21 ± 28	1,98 ± 0,24	1,42 ± 0,12	1,34 ± 0,11	0,33 ± 0,03	1,5
Kopfsalat	(7500) Karlsruhe (Durlach, 1.)	410 ± 55	12,0 ± 0,50	10,7 ± 0,47	10,6 ± 0,46	2,60 ± 0,12	1,1
Petersilie, 1985	(7500) Karlsruhe (Durlach, 2.)	1400 ± 160	196 ± 11,0	166 ± 9,42	163 ± 8,95	40,0 ± 2,29	1,2
Petersilie, 1987	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 1.	630 ± 78	62,7 ± 2,30	69,3 ± 2,48	65,3 ± 2,36	16,1 ± 0,58	1,0
Porree (Lauch)	(7513) Stutensee (Friedrichstal)	250 ± 24	22,6 ± 1,03	7,87 ± 0,46	6,98 ± 0,43	1,71 ± 0,14	3,2
Retich	(6721) Weingarten/Pfalz	220 ± 36	5,50 ± 0,45	3,64 ± 0,26	3,94 ± 0,26	0,97 ± 0,11	1,4
Schnittlauch	(7500) Karlsruhe (Durlach, 1.)	280 ± 46	10,6 ± 0,55	9,85 ± 0,56	6,80 ± 0,42	1,67 ± 0,15	1,6
Spargel	(7514) Eggenstein-Leopoldshafen, 2.	21 ± 22	4,44 ± 0,32	1,61 ± 0,15	1,27 ± 0,13	0,31 ± 0,03	3,5
Spargel	(7570) Baden-Baden (Oos)	24 ± 18	4,54 ± 0,43	1,31 ± 0,15	1,28 ± 0,14	0,31 ± 0,03	3,5
Spinat	(7500) Karlsruhe (Grötzingen, 1.)	550 ± 92	28,3 ± 1,09	21,8 ± 0,81	22,9 ± 0,81	5,63 ± 0,27	1,2
Tomaten	(7500) Karlsruhe (Durlach, 1.)	110 ± 32	1,04 ± 0,26	0,85 ± 0,13	0,55 ± 0,11	0,14 ± 0,03	1,9
Tomaten	(6721) Weingarten/Pfalz	170 ± 34	0,50 ± 0,27	0,92 ± 0,15	0,53 ± 0,12	0,13 ± 0,03	0,9
Weißkohl	(7500) Karlsruhe (Neureut)	110 ± 24	6,27 ± 0,39	1,14 ± 0,10	0,63 ± 0,09	0,16 ± 0,04	10,0
Weißkohl	(7500) Karlsruhe (Durlach, 2.)	100 ± 23	1,17 ± 0,18	1,10 ± 0,10	0,72 ± 0,08	0,18 ± 0,02	1,6
Wirsing	(7500) Karlsruhe (Durlach, 2.)	59 ± 24	4,07 ± 0,33	2,21 ± 0,17	1,93 ± 0,18	0,47 ± 0,04	2,1
Zwiebeln	(7500) Karlsruhe (Grötzingen, 2.)	64 ± 26	3,18 ± 0,33	1,82 ± 0,16	1,09 ± 0,14	0,27 ± 0,08	2,9

den Uranisotopen U-234 und U-238 der Fall ist. Die Bodenproben aus Menzenschwand (Südschwarzwald) wurden vergleichshalber untersucht. Der dortige Boden enthält bekannterweise einen erhöhten Uranpegel [1] und auch im Vergleich mit den sonstigen Böden der Tabelle 1 etwa die doppelte Menge an Thorium.

Das Aktivitätsverhältnis Th-230/Th-232 liegt bei den untersuchten Bodenproben allgemein etwas unter 1 (bei den pflanzlichen Proben etwas über 1), was vermutlich ein Zufall ist, da z. B. [14] Verhältnisse bis 100 und nach [15] bis  $10^4$  möglich sind. Auffallend ist das obige Isotopenverhältnis von 2,2 beim Boden aus Menzenschwand, was sich durch den erhöhten Uran-Gehalt erklären läßt.

### Getreide, Obst, Gemüse

Die untersuchten Getreideproben zeigen (Tabelle 2) bei drei verschiedenen Getreidearten einen Thorium-Gehalt, der in verhältnismäßig engen Grenzen von 1 bis 5 mBq/kg Frischmasse liegt. Das entspricht der Thorium-Menge, die sich in etwa 0,1 g Bodenmaterial befindet und könnte die relativ großen Schwankungen des Thorium-Gehaltes einer vom gleichen Acker stammenden Getreideart erklären (z. B. Roggen aus Stutensee von 1978 bis 1986): Bereits geringe am Getreide haftende Staubmengen können den Thorium-Gehalt der Probe wesentlich beeinflussen. Es fällt bei Getreide auf, daß die Aktivitäten der drei wichtigsten Thorium-Isotope Th-228, Th-230 und Th-232 nicht mehr wie im Boden etwa gleich sind, sondern daß Th-228 eindeutig höhere Aktivitäten aufweist als Th-232. Der Aktivitätsquotient von Th-228/Th-232 kann sehr variabel sein und bewegt sich z. B. bei Roggenproben gleicher Herkunft der Erntejahre 1982 bis 1986 zwischen 58 und 6,54 (Tabelle 2).

Obst enthält im allgemeinen gleichviel oder weniger Thorium pro Kilogramm als Getreide (Tabelle 3). Auch bei Obst ist die Aktivität des Th-228 deutlich höher als die des Th-232. Von den einheimischen Obstprodukten erreichen die Edelkastanien den Höchstwert des Th-228/Th-232-Quotienten von 29. Daß die Paranüsse einen hohen Radium-Gehalt haben, ist schon lange bekannt [3]. Es ist daher nicht verwunderlich, daß das Tochterisotop Th-228 von Ra-228 hier in ungewöhnlich hoher Aktivität vorzufinden ist. Das Aktivitätsverhältnis von Th-228/Th-232 ist mit 740 : 1 das höchste, das uns bei Lebensmitteln bekannt geworden ist. Auch die Isotope Th-230 und Th-232 erreichen bei Paranüssen Höchstwerte im Vergleich zu den in der Tabelle 3 dargestellten Obstproben.

Es ist einleuchtend, daß Blattgemüse mit der relativ großen Oberfläche wegen der Staubhaftung mehr Thorium aufweist als das restliche Gemüse (Tabelle 4). So ist bei Grünkohl, Kopfsalat und Spinat der

fast 10fach höhere Thorium-Gehalt wahrscheinlich der Kontamination mit feinsten Bodenpartikeln zuzuschreiben. Noch auffallender sind die Thorium-Werte beim Laub der Petersilie, die die Werte von Frucht-, Knollen- und Wurzelgemüse um zwei Größenordnungen übertreffen. Daß es sich hier mit großer Wahrscheinlichkeit um Thorium aus der Bodenresuspension handelt, beweist der Th-228/Th-232-Quotient von nahezu 1, also wie in den Bodenproben. Um für diese Herkunft des Thoriums Beweise zu liefern, wurde neben der Probe aus dem Jahr 1985 eine zweite Probe 1987 untersucht. Sie wurde nicht nur wie die 1. Probe in der üblichen Weise, sondern sehr sorgsam vom anhaftenden Bodenmaterial gereinigt. Das Resultat war zwar ein um 60% verminderter Thorium-Gehalt im Petersilien-Laub, das aber dennoch den Maximalwert unter den untersuchten Gemüseproben hatte. Eine weitere Bestätigung der Thorium-Herkunft aus dem resuspendierten Bodenmaterial liefert der ungewöhnlich hohe Uran-Gehalt der Petersilie [2].

### Konzentrationsfaktoren Boden-Pflanze

Der lösliche Teil der komplexen Systeme Boden und Pflanze wird sehr unterschiedlich definiert. In der vor-

**Tabelle 5.** Konzentrationsfaktoren Boden-Pflanze für Thorium (Th-232)

Produkt (nur eßbare Teile)	Konzentrationsfaktoren (um $10^6$ erhöht)		
	Mittelwert	Minwert	Maxwert
<i>Getreide</i>			
Gerste ( <i>Hordeum vulgare</i> L.)	160	110	240
Roggen ( <i>Secale cereale</i> L.)	120	53	250
Weizen ( <i>Triticum vulgare</i> Vill.)	150	49	300
<i>Gemüse</i>			
Blumenkohl ( <i>Brassica oleracea</i> var. <i>botrytis</i> L.)	49	40	59
Bohnen, grün ( <i>Phaseolus vulgaris</i> L.)	39	38	40
Grünkohl (auch Braunkohl) ( <i>Brassica oleracea</i> L. var. <i>acephala</i> D.C.)	660	640	690
Karotten ( <i>Daucus carota</i> L.)	45	38	52
Kartoffeln ( <i>Solanum tuberosum</i> L.)	40	10	70
Kohlrabi ( <i>Brassica oleracea</i> L., var. <i>gongyloides</i> L.)	32	31	33
Kopfsalat ( <i>Lactuca sativa</i> L.)	360	358	362
Petersilie ( <i>Petroselinum sativum</i> Hoffmann)	3200	2400	3900
Porree (Lauch) ( <i>Allium porrum</i> L.)	360	310	460
Rettich ( <i>Raphanus sativus</i> L. var. <i>niger</i> Kerner)	94	91	99
Schnittlauch ( <i>Allium schoenoprasum</i> L.)	230	220	250
Spargel ( <i>Asparagus officinalis</i> L.)	46	29	66
Spinat ( <i>Spinacia oleracea</i> L.)	470	450	510
Tomaten ( <i>Lycopersicon esculentum</i> Mill.)	16	12	25
Weißkohl ( <i>Brassica oleracea</i> L. var. <i>capitata</i> L. f. <i>alba</i> )	22	14	34
Wirsing ( <i>Brassica oleracea</i> L. var. <i>sabauda</i> L.)	45	39	50
Zwiebeln ( <i>Allium cepa</i> L.)	28	21	42
<i>Obst u. ä.</i>			
Äpfel ( <i>Pirus malus</i> L.)	22	21	22
Birnen ( <i>Pirus communis</i> L.)	37	32	42
Edelkastanien ( <i>Castanea vesca</i> Gaertn.)	39	34	44
Erdbeeren ( <i>Fragaria</i> )	50	47	53
Hagebutten ( <i>Rosa canina</i> L.)	150	140	160
Johannisbeeren, rot ( <i>Ribes rubrum</i> L.)	65	64	69
Pflaumen ( <i>Prunus domestica</i> L.)	26	25	27
Rhabarber ( <i>Rheum undulatum</i> L.)	23	21	26
Sauerkirschen ( <i>Prunus cerasus</i> L.)	44	29	67
Weintrauben ( <i>Vitis vinifera</i> L.)	52	35	78

liegenden Arbeit wurde die radiochemische Bestimmung der drei Thorium-Isotope Th-228, Th-230 und Th-232 so geführt, daß in allen Proben vom gesamten Thorium (und nicht nur vom „löslichen“ – wie auch immer definierten – Teil) die  $\alpha$ -Aktivität ermittelt wurde. Der Konzentrationsfaktor wird hier auf der Basis des Hauptisotops Th-232 wie folgt berechnet:

$$\frac{\text{Gesamt-Th-232 in Bq/kg Pflanzen-Frischmasse}}{\text{Gesamt-Th-232 in Bq/kg Trockenboden}}$$

Die in der Tabelle 5 dargestellten Faktoren stellen jeweils mittlere Quotienten aus mehreren Produkten bzw. Bodenanalysen dar und können daher nicht immer unmittelbar aus den Werten der Tabellen 1–4 gebildet werden. Fremde Meßwerte wurden nicht einbezogen. Die Min.- und Max.-Werte sind durch die Berücksichtigung der 1s-Gesamtfehler der Einzelanalysen durch Fehlerfortpflanzung entstanden. Einige Konzentrationsfaktoren werden von [6, 15, 16] mitgeteilt.

*Danksagung.* Der Autor bedankt sich bei Frau S. Vollmer für die sorgfältige Durchführung der langwierigen Radioanalysen einschließlich der Herstellung von sauberen Meßpräparaten für die Alpha-Spektrometrie.

## Literatur

1. Frindik O (1986) *Landwirtsch Forsch* 39:75–86
2. Frindik O (1988) *Landwirtsch Forsch* 41:188–193
3. Klement AW jr (1965) In: Fowler EB (ed) *Radioactive fallout soils, plants, food, man*. Elsevier, Amsterdam, pp 113–155
4. Oakes TW, Shank KE (1977) 11. annual conference on trace substances in environmental health. Columbia, Missouri, USA, 7.–9. Juni 1977, CONF-770676--1, pp 123–132
5. Fisenne IM, Perry PM, Decker KM, Keller HW (1987) *Health Phys* 53:357–363
6. Ashkinazi EhI (1980) *Gig Sanit* 80:38–40 Übersetzung: AAEC-LIB/Trans--756
7. Frindik O (1984) *Fresenius Z Anal Chem* 318:45
8. Fresco J, Jetter E, Harley J (1952) *Nucleonics* 10:60–64
9. Myrick TE, Berven BA, Haywood FF (1983) *Health Phys* 45:631–642
10. Ibrahim SA, Wrenn ME, Singh NP, Cohen N, Saccomano G (1983) *Health Phys* 44 (Suppl 1):213–220
11. Wu T, Tseng C, Weng P (1978) *Radioisotopes* 27:30–33
12. Golchert NW, Iwami FS, Sedlet J (1980) In: Lyon WS (ed) *Radioelement analysis*, Anal Chem Div, Oak Ridge Nat Lab, Tennessee, An Arbor Science INC, pp 215–222
13. NCRP76 (1976) NCRP Report 50
14. Sheppard MI (1980) AECL-6795, Pinawa, Manitoba
15. Titaeva NA, Taskaev AI, Orchenkov VYa, Aleksakhin RM, Shuktomova II (1978) *Sov J Ecol* 9:328–334
16. Linsalata P, Franca EP, Sachett I, Castro MB, Lobao N, Ballard R, Lei W, Ford H, Morse RS, Eisenbud M (1987) In: proc.: Pinder JE, Alberts JJ, McLead KW, Schreckhise RG (eds) *Environmental research on actinide elements*, Hilton Head, S. Carolina, USA Nov. 7–11, 1983, CONF-841142, pp 131–146

Eingegangen am 10. März 1989