

14 BODEN, PFLANZEN, FUTTER- UND DÜNGEMITTEL

Bearbeitet vom Institut für Chemie und Technologie der Milch der Bundesforschungsanstalt für Ernährung und Lebensmittel, Kiel (G. Haase)

Cäsium und Strontium

Die Wanderung der Radionuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr in den Boden hinein erfolgt nur sehr langsam. Da beide Radionuklide eine lange Halbwertszeit aufweisen, verändert sich ihre spezifische Aktivität im Boden gegenwärtig von Jahr zu Jahr nur geringfügig. Gelegentliche stärkere Schwankungen der Messwerte an einem Ort, wie sie in den nachfolgenden Tabellen für Boden und Bewuchs ausgewiesen sind, gehen auf die Probenahme zurück.

Die Kontamination des Bodens mit ^{137}Cs war auch im Jahr 2003 durch die Deposition nach dem Tschernobylunfall geprägt, während das ^{90}Sr zum überwiegenden Teil noch aus der Zeit der oberirdischen Kernwaffenversuche stammt.

In den Abbildungen 14.1 und 14.2 sind die Landesmittelwerte für Ackerböden und die entsprechenden Werte für Böden, die als Weiden und Wiesen genutzt werden, dargestellt.

In der Vegetationsperiode 2003 wurden verschiedene Pflanzenproben γ -spektrometrisch gemessen. Im Vordergrund standen dabei Proben solcher Pflanzen, die als Futtermittel dienen. Der ^{137}Cs -Gehalt in Weide- und Wiesenbewuchs ist in Abbildung 14.3 dargestellt. In einigen Bundesländern wurden Futtermittelrohstoffe überwacht (Tabelle 14.1). Die Kontamination pflanzlichen Materials ist gegenüber dem Vorjahr wieder etwas zurückgegangen, was vor allem auf Verdünnungs- und Bindungseffekte im Boden zurückzuführen ist.

Tabelle 14.1:
Radioaktive Kontamination einiger Futtermittel (Produkte aus dem Inland), Mittelwerte für das Bundesgebiet

Futtermittel	Jahr	Aktivität in Bq/kg TM					
		^{137}Cs			^{90}Sr		
		N	Mittelwert ¹⁾	max. Wert	N	Mittelwert	max. Wert
Mais und Maissilagen	2002	241	< 0,5	6,3	1	0,2	-
	2003	246	< 0,7	7,4	1	0,9	-
Futterrüben	2002	39	< 0,5	1,2			
	2003	36	< 0,5	4,6	1	0,1	
Futtergetreide	2002	144	< 0,2	0,6			
	2003	136	< 0,2	0,8			
Futterkartoffeln	2002	76	< 0,4	2,6			
	2003	72	< 0,5	2,8			
Erbsen	2002	1	< 0,2	-			
	2003	6	< 0,2	< 0,4	1	3,9	-
Raps	2002	3	< 0,4	0,6			
	2003	6	< 0,2	0,5			
Ölkuchen	2003	3	< 0,2	< 0,2			

¹⁾ als Mindestnachweisgrenze dieser Nuklide in Futtermitteln werden im Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm) 0,5 Bq/kg TM gefordert

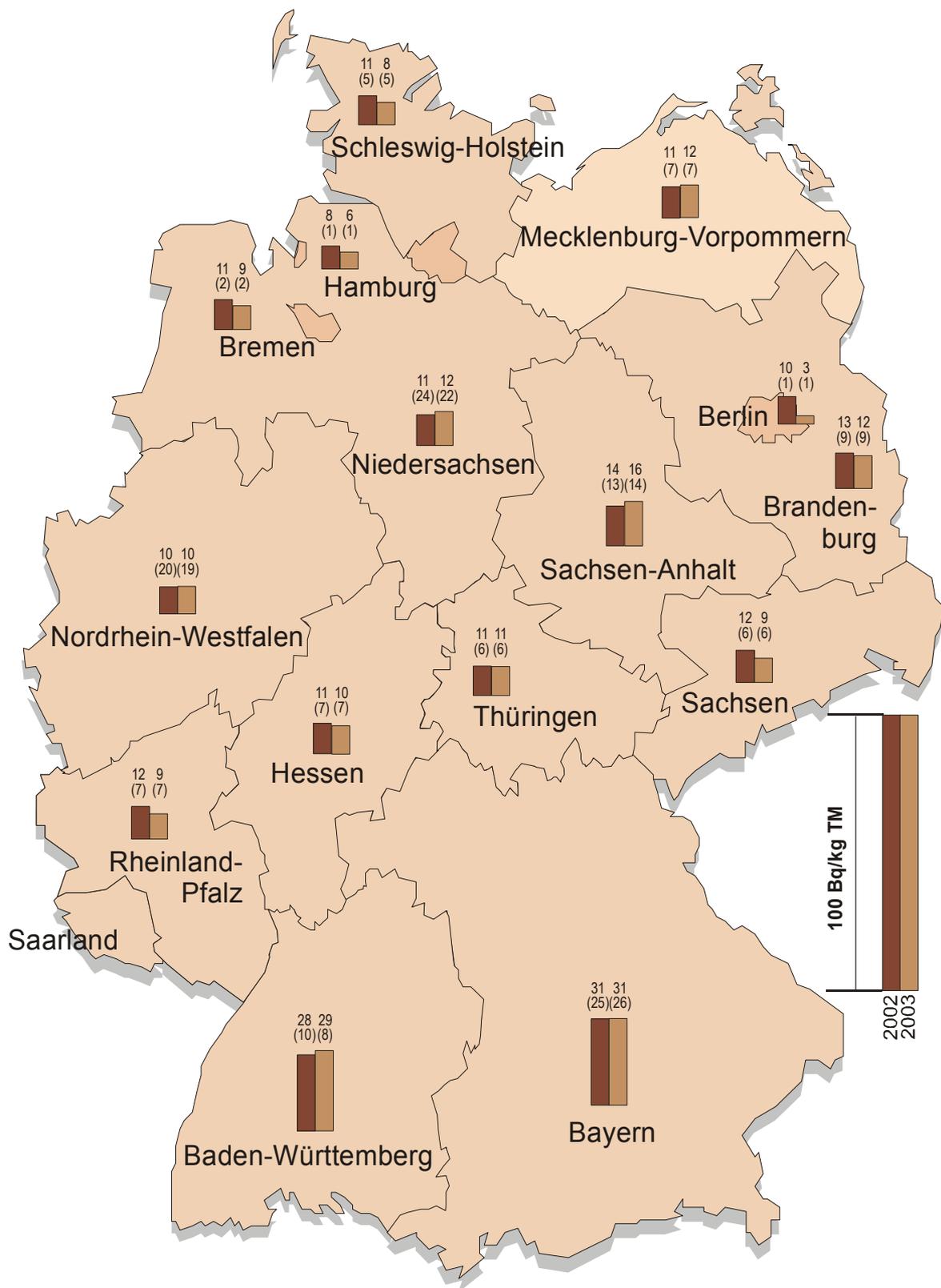


Abbildung 14.1:
Radioaktive Kontamination von Ackerböden mit ^{137}Cs in den Jahren 2002 und 2003 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)

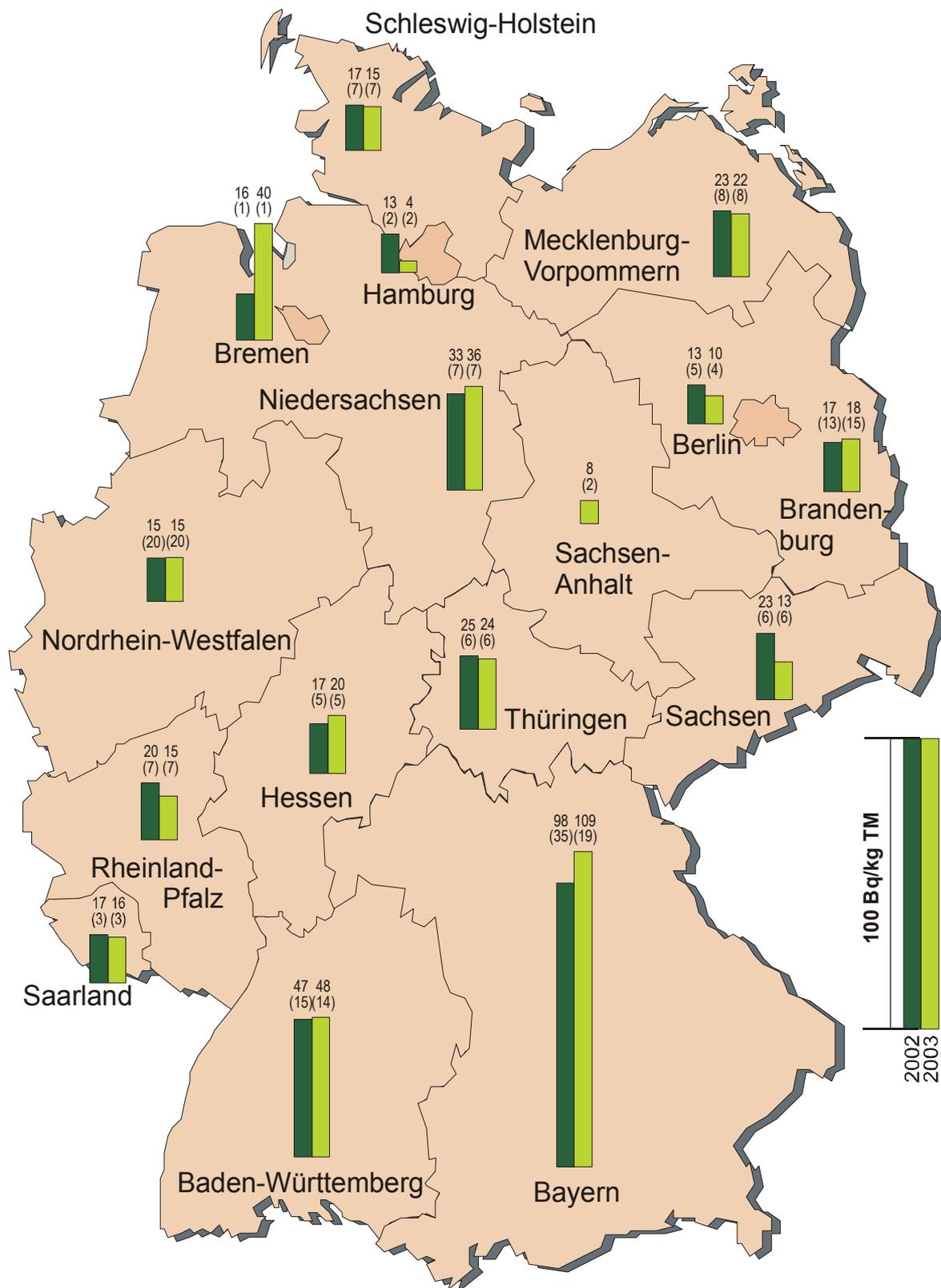


Abbildung 14.2:
 Radioaktive Kontamination von Weideböden mit ¹³⁷Cs in den Jahren 2002 und 2003 nach Messungen der Bundesländer
 (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)

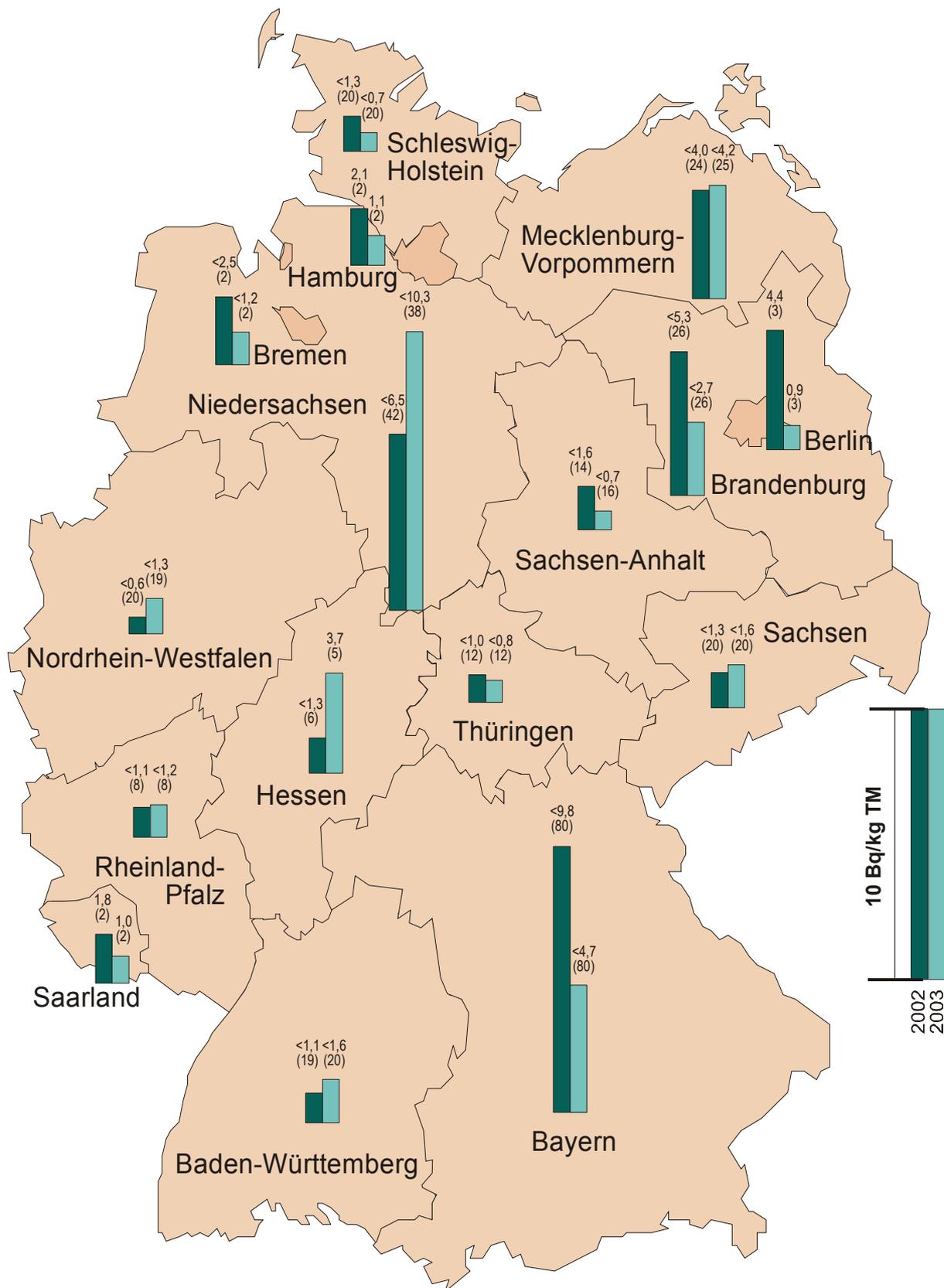


Abbildung 14.3:
 Radioaktive Kontamination von Weide- und Wiesenbewuchs mit ^{137}Cs in den Jahren 2002 und 2003 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)

Plutonium

Im Jahr 1998 wurde von der Leitstelle Kiel eine Untersuchung [1] durchgeführt, um die Radionuklidgehalte an ^{238}Pu und $^{239,240}\text{Pu}$ in Bodenproben zu ermitteln. Die Bodenproben wurden in den Jahren 1996 und 1997 gezogen und dem BFEL von den amtlichen Radioaktivitätsmessstellen zur Verfügung gestellt. Hintergrund dieser Untersuchung war die Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) [2] und dort insbesondere der Anhang B [3] für die Umgebung von Brennelementfabriken, da dort alphanuklidspezifische Messungen von Boden und Bewuchs vorgesehen wurden.

Die Analyse von Plutoniumradioisotopen in Umweltproben ist ein sehr komplexes Unterfangen, da die alphaspektrometrischen Analysen sehr zeitaufwendig sind und dem Personal sehr viel Erfahrung abverlangen. Die Leitstelle in Kiel hat viel Zeit in die Metho-

dik der Abtrennung und Messungen von Plutoniumisotopen aus Boden- und Bewuchsproben investiert. Zwei entsprechende Vorschriften in den Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt [4] für die Alphaspektrometrie im Boden und Futtermitteln wurden insbesondere in Hinsicht auf den Einsatz bei der routinemäßigen Überwachung optimiert und mit unterschiedlichen Boden- und Bewuchsproben getestet.

Die Kontamination der Umwelt durch Plutoniumradioisotope kann nicht nur durch kerntechnische Anlagen verursacht werden. In der Hauptsache sind die Kontaminationen auf Kernwaffentests aus den 50er und 60er Jahren in der damaligen UdSSR und den USA zurückzuführen. Die integrale Deposition an ^{238}Pu und $^{239,240}\text{Pu}$ bis zum Jahr 1979 wird in einem UN-Bericht aus dem Jahre 1982 [5] mit folgenden Werten angegeben (siehe Tabelle 14.2):

Tabelle 14.2:
Integrale Depositionsdichte von Plutoniumradioisotopen in Bq/m^2 als Folge der Kernwaffentests bis zum Jahre 1979 [5]

Gebiet	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$
Gesamte Welt	0,90	35,0
nördliche Hemisphäre	0,98	39,0
südliche Hemisphäre	0,25	9,7
nördliche gemäßigte Zone (40°-50° nördl. Breite)	1,50	58,0
südliche gemäßigte Zone (40°-50° südl. Breite)	0,41	16,0

Die Werte für die nördliche gemäßigte Zone aus Tabelle 14.2 kann als Umrechnung für eine Abschätzung der Bodenkontamination verwendet werden. Geht man von einer 10 cm starken Ackerbodenschicht aus, so erhält man ca. $140 \text{ kg}/\text{m}^2$ Material für mineralische Böden mit durchschnittlicher Zusammensetzung [6]. Werden Pflugtiefen von 15 - 40 cm angenommen, so liegt die spezifische Aktivität der Böden für das ^{238}Pu zwischen 2,7-7 mBq/kg TM und für $^{239,240}\text{Pu}$ zwischen 104-270 mBq/kg TM. Bei Böden mit einem sehr hohen Anteil organischen Materials können die Flächentrockenmassen bis zu einem Faktor 3 kleiner und somit die spezifischen Aktivitäten in mBq/kg TM um einen Faktor 3 höher liegen als bei mineralischen Böden.

Kernwaffenversuche führten beim Verhältnis der Aktivitäten von $^{239,240}\text{Pu}$ zu ^{238}Pu zu einem Wert von 39:1. Mit der relativ kurzen Halbwertszeit des ^{238}Pu von 87,7 Jahren würde sich das Verhältnis bis zum heutigen Tage auf 46:1 verändert haben. Es wurden aber in der Vergangenheit niedrigere Verhältnisse beobachtet. Dieser Sachverhalt ist möglicherweise darauf zurückzuführen, dass einige militärische Sa-

telliten mit ^{238}Pu -Batterien in der Erdatmosphäre verglüht sind. Der Reaktorunfall von Tschernobyl hat sicherlich nicht zur Veränderung des Verhältnisses beigetragen, da nur etwa 3% des Plutoniuminventars freigesetzt und in der näheren Umgebung des Reaktors deponiert wurden. Die Menge Plutonium [7], die von Tschernobyl in die Bundesrepublik Deutschland verfrachtet wurde, trägt also nicht zur Verschiebung des Plutoniumverhältnisses bei.

Um belastbare Plutoniummesswerte bei der Überwachung der Umgebung von kerntechnischen Anlagen zu erhalten ist es wichtig, Vergleichswerte an weiter entfernten Probenentnahmeorten zu ermitteln. Ohne solche Vergleichswerte ist es praktisch unmöglich, einen Beitrag einer Plutoniumkontamination des Bodens durch kerntechnische Anlagen zu erkennen.

Da in der Literatur nur sehr wenig über solche Untersuchungen zu finden ist, wurden daher Plutoniumbestimmungen an Bodenproben aus dem gesamten Bundesgebiet durchgeführt. Die Ergebnisse der Untersuchungen werden nachfolgend dargestellt.

Tabelle 14.3:

Ergebnisse der Plutoniumbestimmung in Böden in der Bundesrepublik Deutschland

Bundesland	Probenahmeort	spez. Aktivität in mBq/kg TM	
		^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$
Bayern	Abensberg	< 11	116
	Bodenkirchen	< 11	154
	Eisenfeld	< 11	126
	Haldenwang	< 11	175
	Karlshuld	16	501
	Pfofeld	< 11	131
	Plech	< 11	142
	Schwandorf	< 11	101
Brandenburg	Altlüdersdorf	< 11	57
	Bergholz-Meyenburg	< 11	92
	Karstädt	< 11	91
	Rehfeld-Berlitt	< 11	83
	Steckelsdorf	< 11	93
Hessen	Pfungstadt	< 11	73
	Weilburg	< 11	139
Mecklenburg-Vorpommern	Kühlungsborn	< 11	91
	Züssow	< 11	85
	Bockhorn	< 11	107
	Ganderkesee	< 11	98
	Homburg	< 11	118
	Neuhaus (Ote)	< 11	115
	Peine	< 11	115
	Salzgitter	< 11	76
	Schneeverdingen	< 11	145
	Lage	< 11	109
Nordrhein-Westfalen	Reha-Wiedenbrück	< 11	136
	Siddensen	< 11	136
	Sternwede	< 11	90
	Dellfeld	< 11	134
Rheinland-Pfalz	Holzhausen	< 11	131
	Mosel	< 11	126
Sachsen	Rackwitz	< 11	100
	Abbendorf	< 11	102
Sachsen-Anhalt	Kakerbeck	< 11	104
	Molkenberg	< 11	80
	Paplitz	< 11	113
	Kükels	< 11	108
Schleswig-Holstein	Oberberg	< 11	151
	Buttelstedt	< 11	102
Thüringen	Großebersdorf	< 11	75
	Haufeld	< 11	235
	Hildburghausen	< 11	143
	Hochheim	< 11	95

Material und Methode

Von den amtlichen Radioaktivitätsmessstellen der meisten Flächenländer wurden luftgetrocknete Ackerbodenproben für die Analysen zur Verfügung gestellt. Dabei handelte es sich um Proben die im Rahmen des Integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Umweltradioaktivität (IMIS) gezogen wurden und von den Länder routinemäßig gamma-spektrometrisch vermessen und zum Teil auf ^{90}Sr analysiert werden.

Die Analyse von Plutonium erfolgte nach dem Verfahren F- α -SPEKT-BODEN-01, das in den Messanleitungen zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt zu finden ist. Die Messung der Alphaspektren erfolgte in einer Vakuumkammer mit Hilfe eines Oberflächensperrschichtdetektors. Die Messzeiten betragen in der Regel 600.000 Sekunden (ca. eine Woche). Die Auswertung der Peaks für ^{238}Pu und $^{239,240}\text{Pu}$ wurde nach Ausgabe der Spektren von Hand durchgeführt, da zu der Zeit keine entsprechende Software vorhanden war. Die Handauswertung stellt allerdings auch eine sehr exakte Methode bei der Auswertung von Alphaspektren mit niedriger Zählrate dar. Blindpräparate wurden hergestellt, um den Untergrund und die Nachweisgrenzen für die Analysen des Plutonium zu bestimmen.

Ergebnisse und Diskussion

Die Ergebnisse der ^{238}Pu - und $^{239,240}\text{Pu}$ -Analysen sind in Tabelle 14.3 zusammengestellt. Die aufgeführten Werte sind Mittelwerte aus Doppelbestimmungen. Wie aus Tabelle 14.3 zu entnehmen ist, liegen die ^{238}Pu -Messwerte bis auf eine Ausnahme unterhalb der Nachweisgrenze von 11 mBq/kg Trockenmasse. Der Ausnahmewert von 16 mBq/kg TM liegt nur geringfügig oberhalb der Nachweisgrenze, daher erscheint es wenig sinnvoll aus diesen Messwerten ein Isotopenverhältnis zu bilden.

Die spezifischen Aktivitäten von $^{239,240}\text{Pu}$ waren dagegen gut zu bestimmen. Etwa 90% der gemessenen Werte liegen in einem Intervall von 50 – 150 mBq/kg TM. Der Gesamtmittelwert und die Standardabweichung betragen 123 ± 66 mBq/kg TM. Die ermittelten Messwerte entsprechen recht gut denjenigen Werten, die in der Einleitung im Rahmen der Depositionen durch Kernwaffenversuche diskutiert wurden. Dies gilt auch für den recht hohen Wert von 501 mBq/kg TM (Bayern). Bei dieser Bodenprobe handelte es sich um einen Moorboden mit einem sehr hohen Anteil (85%) organischen Materials. Die übrigen Bodenproben wiesen nur einen sehr gerin-

gen Anteil an organischem Material auf. Die recht gleichmäßige Verteilung des $^{239,240}\text{Pu}$ im Bundesgebiet stützt die eingangs gemachte Aussage, dass die deponierte Plutoniummenge hauptsächlich durch den Kernwaffenfallout bedingt ist (vgl. Tab.14.2). Das beim Tschernobyl-Unfall freigesetzte $^{239,240}\text{Pu}$ trug in Südbayern nur mit 0,04 Bq/m² zur deponierten Menge bei [8].

Literatur

- [1] Wiechen, A.: *Plutoniumbestimmung in Bodenproben aus der Bundesrepublik Deutschland Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte* 50 (2) 147-152, 1998
- [2] *Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI). Gemeinsames Ministerialblatt, Ausgabe A, 44. Jahrgang, Nr. 29, S.501-528 vom 19.08.1993*
- [3] *Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI). Gemeinsames Ministerialblatt, Ausgabe A, 47. Jahrgang, Nr. 9-10, S.193-248 vom 20.03.1996*
- [4] *Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen, Loseblattsammlung, Stand: 30.05.1997, Stuttgart, Lübeck, Ulm, Jena*
- [5] *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, 1982 Report to the General Assembly, with annexes, United Nations, New York, 1982*
- [6] *Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Modelle, Annahmen und Daten mit Erläuterungen zur Berechnung der Strahlenexposition bei der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Luft oder Wasser zum Nachweis der Einhaltung der Dosisgrenzwerte nach § 45 StrSchV, Veröffentlichung der Strahlenschutzkommission, Band 17, Stuttgart, Jena, Lübeck, New York, 1992*
- [7] *Schwibach, J.: Auswirkungen des Reaktorunfalls in Tschernobyl auf den Raum München, Bundesgesundheitsamt, ISH-Heft 103, November 1986*
- [8] *Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung: Umweltradioaktivität und Strahlenexposition in Südbayern durch den Tschernobyl-Unfall, Bericht des Instituts für Strahlenschutz, Neuherberg, 1986*