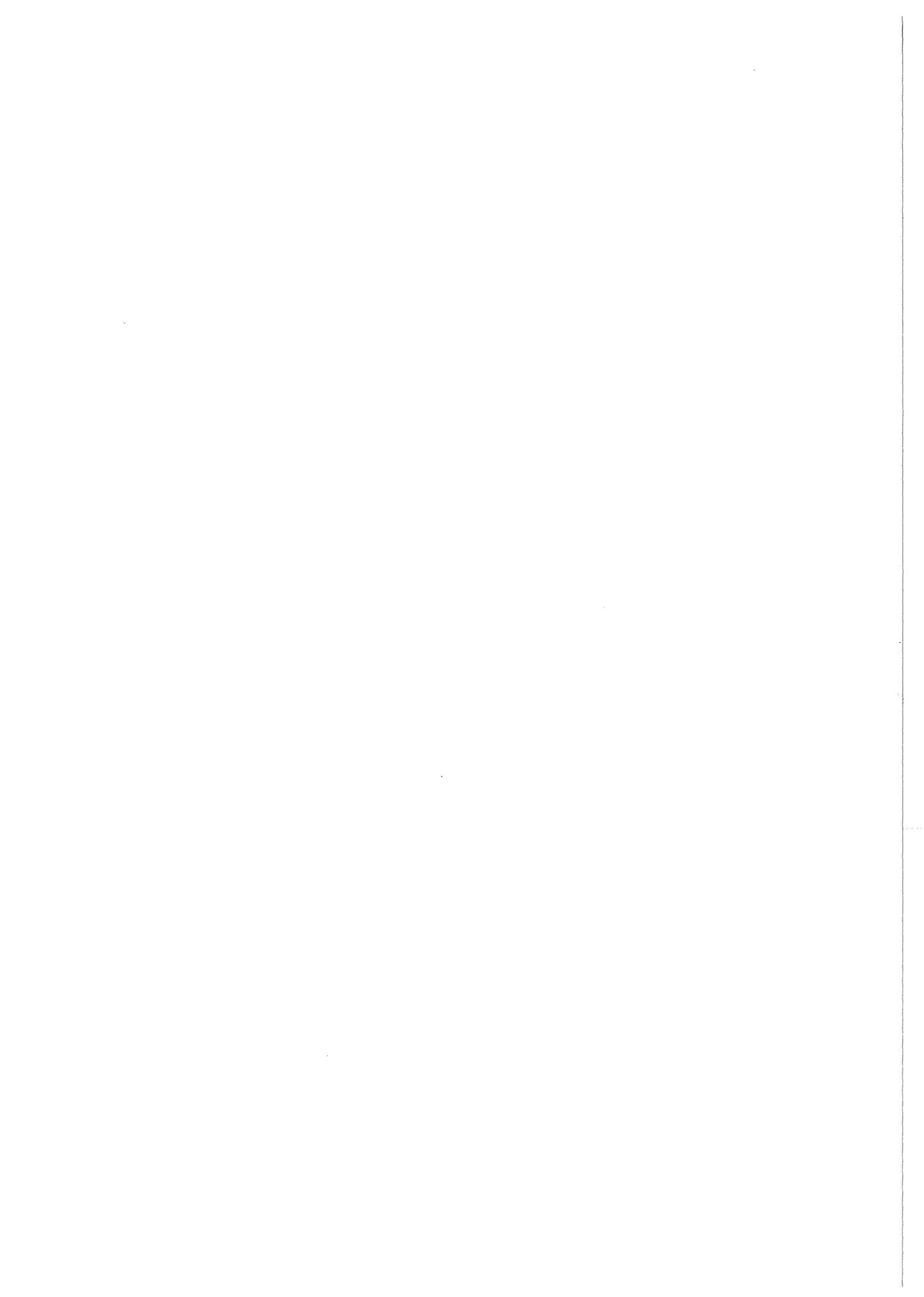


**KfK 4514**  
**Februar 1989**

# **Untersuchungen zur Aufnahme und zum Umsatz von tritiiertem Wasserdampf (HTO) in Gemüsepflanzen**

**M. Roller**  
**Hauptabteilung Sicherheit**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



**KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE**  
**Hauptabteilung Sicherheit**

**KfK 4514**

**Untersuchungen zur Aufnahme und zum Umsatz von  
tritiertem Wasserdampf (HTO) in Gemüsepflanzen**

**Markus Roller**

**Von der Fakultät Geo- und Biowissenschaften der Universität Stuttgart  
genehmigte Dissertation**

**Biologisches Institut der Universität Stuttgart**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe**

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

### Kurzfassung

Die oberirdischen Teile von Gemüsepflanzen der Species *Raphanus sativus*, *Phaseolus vulgaris* und *Daucus carota* (Radies, Buschbohne und Möhre) wurden in einem Klimaschrank bei 18-20 °C und einer relativen Luftfeuchte von 60-70 % bis zu drei Tage lang gegenüber tritiiertem Wasserdampf exponiert.

Der in den exponierten Pflanzenteilen beobachtete Anstieg der Tritiumaktivität des durch Gefriertrocknung verfügbaren Gewebewassers wird auf eine Aufnahme von tritiiertem Wasserdampf jeweils unmittelbar aus der Luft zurückgeführt. Er zeigt für die einzelnen Organe unterschiedliche Charakteristiken. Die Aufnahme in Blattfraktionen und Stengel ist vom Öffnungszustand der Stomata und der relativen Luftfeuchte abhängig und erreicht innerhalb weniger Stunden einen Gleichgewichtszustand; bei der wasserreichen Bohnenfrucht ist dies hingegen nicht der Fall. Eine Translokation von Wasser aus der Spreite in andere Pflanzenteile ließ sich nicht feststellen. Nach Beendigung einer Exposition wurde das Tritium aus dem Gewebewasser von Radiesblattfraktionen vollständig mit einer der Aufnahme ähnlichen Geschwindigkeit ausgeschieden.

Nach Verbrennung der Trockensubstanz war in allen Pflanzenteilen spezifische Tritiumaktivität des Oxidationswassers nachweisbar. Ihr zeitlicher Verlauf in Blättern läßt sich beschreiben als Kombination eines mit der Aufnahme-rate des tritiierten Wassers anwachsenden Anteils durch Isotopenaustausch reversibel gebundenen Tritiums und eines mit der Wachstumsrate der Blätter zunehmenden Anteils überwiegend durch lichtabhängige Reduktionsreaktionen der Photosynthese eingebauten Tritiums. Die langsame Abnahme dieser Aktivität nach Beendigung einer Exposition läßt einen Einbau auch in Strukturmaterial erkennen. Der Transport von tritiiertem organischer Substanz in nicht selbst assimilierende Gewebe führte zu Aktivitätsverteilungen in Radiesknollen und Bohnenfrüchten, die offensichtlich vom Alter der Pflanzen abhängig sind.

## Studies in Uptake and Turnover of Tritiated Water Vapour (HTO) by Vegetables

### Abstract

The aerial parts of vegetables were exposed to tritiated water vapour for up to three days in a plant growth chamber. The species used were *Raphanus sativus* L., *Phaseolus vulgaris* K. and *Daucus carota* L. (red radish, bean and carrot). Air temperature and relative humidity during exposure were controlled at 18-20 °C and 60-70 % rh, respectively.

The increase of specific activity of tissue free water as collected by freeze drying which was observed in the aerial parts of plants is explained by direct uptake of tritiated water vapour by the exposed part of the plant. It shows different characteristics for the several organs. The uptake by leaves and stems depends upon stomatal conductance and relative air humidity and approaches equilibrium within few hours; this is not true, however, for the pulposus bean fruits. No translocation of water from the laminae into other parts of the plant was observed. After termination of exposure HTO was eliminated completely from the leaves of radish plants with a half-time similar to tritium uptake.

After combustion of dry matter tritium activity was detectable in the oxidation water for all parts of the plants. Kinetics of the specific activity of organically bound tritium in leaves can be described by a single curve. The lower - steep - part of the curve is increasing approximately with the uptake rate of HTO; this is explained by reversible binding of tritium by isotopic exchange reactions. The upper - flat - part of the curve represents tritium bound by light dependent reducing reactions of photosynthesis; it is increasing with a rate similar to the growth rate of leaves. After termination of exposure, a slow decrease of the latter specific activity was observed indicating incorporation of tritium into structural matter. Transport of tritiated organic matter into non-assimilating organs was leading to distributions of activity in radishes and beans obviously depending on the age of the plants.

Inhaltsverzeichnis	Seite
1. Einleitung	13
2. Problemstellung	15
3. Material und Methoden	21
3.1 Pflanzenmaterial	21
3.1.1 Versuchspflanzen	21
3.1.2 Aufzucht der Versuchspflanzen	21
3.1.3 Bestimmung von Wachstumsraten	22
3.2 Tritiummarkierung	23
3.2.1 HTO-Begasung	23
3.2.2 Vakuumfiltration	26
3.3 Gefriertrocknung	26
3.4 Probenvorbereitung für Bestimmungen des organisch gebundenen Tritiums	27
3.4.1 Tritiumaustausch	27
3.4.2 Oxidation der Trockensubstanz	28
3.5 Aktivitätsmessung	29
3.6 Statistische Auswertung	30
3.6.1 Fehlerbetrachtung	30
3.6.1.1 Aktivitätsmessungen	30
3.6.1.2 Abgeleitete Größen	33
3.6.1.3 Andere Messungen	33
3.6.2 Regressionsanalyse	34
4. Ergebnisse	36
4.1 Charakterisierung des Pflanzenmaterials	36
4.1.1 Zusammensetzung des Pflanzenmaterials	36
4.1.2 Blattdiffusionswiderstände	39
4.1.3 Wachstumsraten	41

4.2	Versuche zur Aufnahme und zum Umsatz von HTO	43
4.2.1	Erläuterung der benutzten Abkürzungen und Begriffe	43
4.2.2	Versuch I: HTO-Vakuuminfiltration	44
4.2.3	Versuch II: HTO-Begasung von Radiespflanzen	46
4.2.3.1	HTO-Aufnahme in die Blätter	46
4.2.3.2	HTO-Aktivität der Knollen	51
4.2.3.3	Organisch gebundenes Tritium	51
4.2.3.4	Tritiumbilanz	55
4.2.4	Versuch III: HTO-Begasung von Radiespflanzen	57
4.2.4.1	HTO-Aufnahme in Blattspreiten und Blattstiele	57
4.2.4.2	Organisch gebundenes Tritium	62
4.2.5	Versuch IV: HTO-Begasung von Radies- und Möhrenpflanzen bei Tag/Nachtwechsel	63
4.2.6	Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnen- pflanzen	67
4.2.6.1	HTO-Aufnahme und HTO-Umsatz in Blattspreiten	67
4.2.6.2	HTO-Aufnahme und Umsatz in Blattstielen, Stengeln und Früchten	72
4.2.6.3	Tritiumbilanz	75
4.2.7	Versuch VI: Ausscheidung von aus der Atmo- sphäre aufgenommenem Tritium	78
4.2.7.1	Gewebewasser	78
4.2.7.2	Organisch gebundenes Tritium	79
5.	Diskussion	83
5.1	Tritium im freien Gewebewasser (HTO)	83
5.1.1	Aufnahme von tritiiertem Wasserdampf durch Blätter	83
5.1.2	Ausscheidung von aufgenommenem HTO	87
5.1.3	Überlegungen zur Aufnahme von HTO aus Atmosphäre und Boden	89
5.1.4	Aufnahme von tritiiertem Wasserdampf durch Blattstiele, Stengel und Früchte	90

5.2	Höhe der absoluten Tritiumaktivität und ihre Verteilung in der Pflanze	94
5.3	Organisch gebundenes Tritium (OBT)	96
5.3.1	Isotopenaustausch	96
5.3.2	Tritium im Stoffwechsel	98
5.3.3	Modell zur Beschreibung des Einbaus von Tritium in die organische Substanz von Blättern	107
6.	Zusammenfassung	110
7.	Literaturverzeichnis	113
8.	Anhang	
8.1	Tabellen	121
8.2	Rechenprogramm	137
	- Nicht-lineare Regression -	



Abkürzungsverzeichnis

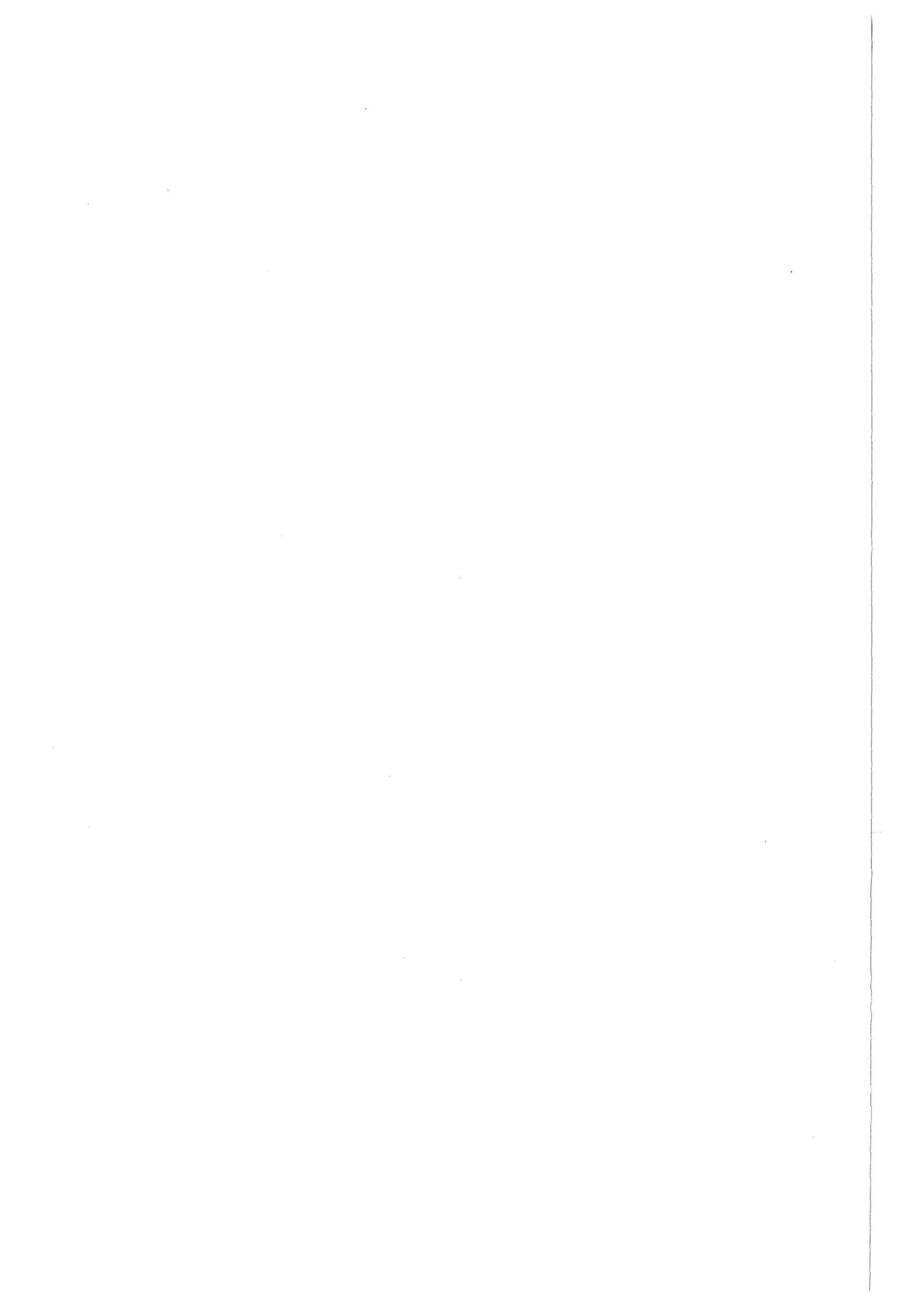
$A_{Ges}$	Tritiumaktivität der ganzen Pflanze [Bq]
$A_{ij}$	Tritiumaktivität einer bestimmten Pflanzenfraktion [Bq] (s. Erläuterung S. 43)
$A_3$	Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums [Bq]
$\alpha$	Dampfdruckverhältnis $H_2O/HTO$
$\alpha_W$	Verhältnis der Wachstumsraten von ganzer Pflanze und Blättern ( $R_W/R_{Bl} = k_W/k_{Bl}$ )
$\alpha_T$	Verhältnis der Zunahmeraten der mittleren spezifischen Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums der ganzen Pflanze und der spezifischen Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums der Blätter ( $k_3/k_{31}$ )
B	allgemeines Bestimmtheitsmaß
$C_B$	theoretischer Wert für die spezifische Tritiumaktivität des Gewebewassers des Blattes nach einem Modell von Belot [Bq/g $H_2O$ ]
$C_{Ges}^H$	auf Wasserstoffgehalt bezogene mittlere spezifische Tritiumaktivität der ganzen Pflanze [Bq/g H]
$C_{ij}$	spezifische Tritiumaktivität einer bestimmten Pflanzenfraktion [Bq/g $H_2O$ ] (s. Erläuterung S. 43)
$C_O$	spezifische Tritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit [Bq/g $H_2O$ ]
$\Delta\rho$	Differenz zwischen Sättigungsfeuchte und aktueller Luftfeuchte ( $\rho_s - \rho$ ) [g/cm <sup>3</sup> ]

$\eta$	Zählwirkungsgrad
F	Blattfläche [cm <sup>2</sup> ]
f	Verhältnis der spezifischen Gleichgewichts-Tritiumaktivität des Gewebewassers des Blattes zur spezifischen (Gleichgewichts-)Tritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit ( $C_{11}^{00}/C_0^{00}$ )
$f_B$	theoretischer Wert für f nach einem Modell von Belot (1,1 $\rho/\rho_s$ )
G	den Umfang des Photosyntheseapparates repräsentierende Größe; hier: Blatt-Trockenmasse [g]
$\gamma$	Massenverhältnis Verbrennungswasser/Trockensubstanz
H <sub>2</sub> O	tritiiertes Wasser
h	relative Luftfeuchte ( $p/p_s \cong \rho/\rho_s$ )
I	Impulsrate [ipm]
$I_B$	Bruttoimpulsrate [ipm]
$I_N$	Nettoimpulsrate ( $I_B - I_0$ ) [ipm]
$I_0$	Nulleffekt [ipm]
$k_B$	theoretische Aufnahmerate von H <sub>2</sub> O aus der Luftfeuchtigkeit in das Gewebewasser von Blättern nach einem Modell von Belot (0,9 $\rho_s/\mu r$ ) [s <sup>-1</sup> ]
$k_{Bl}$	Wachstumsrate der Blätter [h <sup>-1</sup> ]
$k_{ij}$	Änderungsrate der spezifischen Tritiumaktivität einer bestimmten Pflanzenfraktion [h <sup>-1</sup> ] (s. Erläuterung S. 43)

$k_T$	Transpirationsrate [ $h^{-1}$ ]
$k_W$	Wachstumsrate der ganzen Pflanze [ $h^{-1}$ ]
$k_1$	Aufnahmerate von HTO aus der Luftfeuchtigkeit in das Gewebewasser von Blättern; Ausscheidungsrate von HTO aus dem Gewebewasser von Blättern [ $h^{-1}$ ]
$k_1^B$	theoretische Aufnahmerate von HTO aus der Luftfeuchtigkeit in das Gewebewasser von Blättern nach einem Modell von Belot (zum Vergleich mit experimentellen Werten: [ $h^{-1}$ ])
$k_1^{eff}$	Zunahmerate der spezifischen Aktivität des Gewebewassers der Blätter [ $h^{-1}$ ]
$k_3$	Zunahmerate der mittleren spezifischen Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums der ganzen Pflanze [ $h^{-1}$ ]
$m$	Masse [g]
$m_{ij}$	Masse einer bestimmten Pflanzenfraktion (s. Erläuterung S. 43)
$\mu$	Wassergehalt des Blattes pro Blattfläche [ $g/cm^2$ ]
NADPT	mit Tritium reduziertes Nicotinamid-adenin-dinucleotid-phosphat
OBT	organisch gebundenes Tritium
OBT <sub>ex</sub>	austauschbar organisch gebundenes Tritium
OBT <sub>nx</sub>	nicht austauschbar organisch gebundenes Tritium

P	(mittlere) Assimilationsleistung (in einem Zeitraum) [ $d^{-1}$ ]
p	Wasserdampfdruck [Pa]
$p_s$	Sättigungswasserdampfdruck [Pa]
PAR	photosynthetisch aktive Strahlung [ $\mu E/m^2 s$ ] (1 E = 1 Einstein = 1 Mol Lichtquanten = $6,023 \times 10^{23}$ Lichtquanten Der Energieinhalt eines $\mu E$ beträgt in Abhängigkeit von der Wellenlänge des Lichtes 0,17 bis 0,30 J für den vom benutz- ten Quantensensor erfaßten Wellenlängenbereich von 400 bis 700 nm)
Q	Umrechnungsfaktor (3600 s/h)
R	Verhältnis der spezifischen Aktivitäten des organisch gebundenen Tritiums und des Gewebewassers ( $C_{OBT}/C_{HTO}$ )
$R_{ex}$	s. o. ( $C_{OBT_{ex}}/C_{HTO}$ )
$R_{nx}$	s. o. ( $C_{OBT_{nx}}/C_{HTO}$ )
$R_{Bl}$	(mittlere) Wachstumsrate der Blätter (in einem Zeitraum) [ $d^{-1}$ ]
$R_W$	(mittlere) Wachstumsrate der ganzen Pflanze (in einem Zeitraum) [ $d^{-1}$ ]
r	Blattdiffusionswiderstand [s/cm]
$r^2$	Bestimmtheitsmaß für eine lineare Regressionsfunktion (Quadrat des einfachen linearen Korrelationskoeffizienten)
$\rho$	Konzentration des Wasserdampfes in der Luft, Wasserdampfdichte, absolute Luftfeuchte [ $g/cm^3$ ]

$\rho_s$	Sättigungskonzentration des Wasserdampfes in der Luft, Sättigungsfeuchte [g/cm <sup>3</sup> ]
s	Standardabweichung
T	Tritium
Tr	Transpirationsrate bezogen auf Blattfläche [g/cm <sup>2</sup> s]
t	Zeit [h]
$t_B$	Zeit [s]
$t^W$	Zeit [d]
$t_Z$	Zählzeit [min.]
$t_{1/2}$	Halbwertszeit (s. Erläuterung S. 43)
V	Probenvolumen bzw. -masse [g H <sub>2</sub> O]
Z	Anzahl Impulse in der Zählzeit ("gross counts")



## 1. Einleitung

Das radioaktive Wasserstoffisotop Tritium ( $^3\text{H}$ , T) zerfällt unter Aussendung von reiner  $\beta$ -Strahlung mit einer physikalischen Halbwertszeit von 12,36 Jahren zu  $^3\text{He}$ . Die maximale Energie der  $\beta$ -Teilchen beträgt dabei 18,6 keV, ihre Reichweite in Luft 4,5 - 6 mm, in Wasser 6  $\mu\text{m}$  und in biologischem Gewebe max. 6  $\mu\text{m}$ , wobei 90 % das Gewebe weniger als 1  $\mu\text{m}$  weit durchdringen (König, 1972). Diese Eigenschaften verleihen dem Nuklid eine verhältnismäßig geringe Radiotoxizität. Sein ubiquitäres Vorkommen als tritiiertes Wasser (HTO) läßt es im Hinblick auf eine Strahlenbelastung von Organismen jedoch erforderlich erscheinen, der Verbreitung des Tritiums besondere Aufmerksamkeit zu widmen.

Das Weltinventar an Tritium wird auf z.Zt. ca.  $10^{19}$ - $10^{20}$  Bq geschätzt, wovon etwa 1 - 10 % als durch natürliche Produktion entstanden betrachtet werden (König, 1972; McFarlane et al., 1979; Rohwer und Etnier, 1980; Luyhx und Fraser, 1984). Der Rest stammt zum weitaus überwiegenden Teil aus Kernwaffenexplosionen. Für den Beitrag durch die Produktion von Kernenergie und durch tritiumhaltige Konsumgüter (Uhren mit Leuchtziffern etc.) wurde ein Anteil von jeweils weniger als 1 % (ca.  $10^{17}$  Bq) errechnet (Luyhx und Fraser, 1984). In Bezug auf die Freisetzung durch den Routinebetrieb von kerntechnischen Anlagen wurde für das Jahr 1990 eine der natürlichen gleichkommende und für das Jahr 2010 eine um eine Zehnerpotenz höhere Tritiumproduktion prognostiziert (Rohwer und Etnier, 1980). Das Tritium gelangt dabei sowohl flüssig ins Abwasser als auch gasförmig in die Atmosphäre (bei den beiden Schwerwasser-Forschungsreaktoren des Kernforschungszentrums Karlsruhe im Jahre 1971 z.B. zu 80 - 85 %; nach König, 1972). Im Gegensatz zu elementarem Wasserstoff ( $\text{H}^+$ ,  $\text{T}_2$ ) wird eingeatmeter HTO-Dampf vom menschlichen Körper fastvollständig aufgenommen und zum größten Teil entsprechend dem Wasserumsatz des Körpers mit einer Halbwertszeit von 8 - 12 Tagen wieder ausgeschieden (Moghissi et al., 1971; Balonov et al., 1984). Es können dabei auch T-Atome im Stoffwechsel fest ins Gewebe eingebaut werden. Von grünen Pflanzen als HTO aufgenommenes Tritium unterliegt aufgrund von Assimilationsvorgängen jedoch in wesentlich stärkerem Maße dem Einbau in organische Verbindungen und kann in dieser Form mit der Nahrung in den Menschen gelangen. Der Aufnahme und dem Umsatz von Tritium in Nutzpflanzen wird daher in Untersuchungen, die sich mit der Strahlenexposition des Menschen durch dieses Radionuklid befassen, starkes Interesse entgegenge-

bracht (Elwood, 1971; Anspaugh et al., 1973; Bogen et al., 1979).

Die Verfolgung des Schicksals des Nuklids in Nahrungsketten und einzelnen Organismen kann dabei auch Beiträge zum Verständnis von physiologischen Vorgängen liefern. Für pflanzenphysiologische Untersuchungen bietet sich der Einsatz von Tritium als Tracer besonders zum Studium des Wasserhaushalts (s. z.B. Raney und Vaadia, 1965; Kline et al., 1970; Couchat und Lasceve, 1980), des Assimilattransportes (Biddulph und Cory, 1957; Choi und Aronoff, 1966; Trip und Gorham, 1968) und von Assimilationsvorgängen selbst (Moses und Calvin, 1959; Aronoff und Choi, 1963) an.

## 2. Problemstellung

Soll die Aufnahme von tritiiertem Wasser durch Landpflanzen unter natürlichen Bedingungen betrachtet werden, so scheint aufgrund einer ersten Überlegung fast ausschließlich der bekannte Weg der Wasseraufnahme (Kramer, 1956; Slatyer, 1967; Ziegler, 1983) von Bedeutung zu sein. Tatsächlich wurde die Aufnahme von flüssigem HTO über die Wurzeln in zahlreichen Arbeiten untersucht (Cline, 1953; Ordin und Gairon, 1961; Raney und Vaadia, 1965; Gogate et al., 1975; Mantell et al., 1979), wobei insofern überraschende Befunde erhalten wurden, als nur in Ausnahmefällen die Tritiumkonzentration im Blattwasser derjenigen der Nährlösung gleichkam. Bei der Untersuchung der Wasseraufnahme durch oberirdische Organe stand zunächst eine mögliche Nettowasseraufnahme im Vordergrund. Dabei kann zwischen einer Aufnahme von Wasser in flüssiger Form (Wetzel, 1924; Ordin und Bonner, 1956; Vaadia und Waisel, 1963) und dem seltenen Fall einer Wasserdampfaufnahme entlang eines Sättigungsgefälles (Breazeale et al., 1950; Haines, 1952, 1953; Slatyer, 1956) unterschieden werden. Unter natürlichen Bedingungen ist die Nettowasseraufnahme über oberirdische Organe für den Wasserhaushalt der höheren Pflanze bedeutungslos (Wetzel, 1924; Gessner, 1956). Bei entsprechenden Versuchen zeigte sich jedoch, daß das Begasen von Blättern mit HTO-Dampf eine geeignete Methode war, um das Gewebe mit Tritium zu markieren (Gage und Aronoff, 1960; Aronoff und Choi, 1963; Ferron et al., 1967). Die HTO-Aufnahme kann dabei auch entgegen einem Wasserdampfdruck- bzw. -konzentrationsgefälle erfolgen. Dies läßt sich als dynamisches Diffusionsgleichgewicht der HTO-Moleküle verstehen. Damit ist selbstverständlich keine Nettowasseraufnahme verbunden. Wird eine nicht markierte Pflanze in eine HTO-haltige Atmosphäre gebracht, besteht aber - bei aus dem Blatt hinausgerichtetem Wasserdampfgradienten - für HTO-Moleküle ein in das Blatt hineingerichtetes Konzentrationsgefälle, das sich durch Diffusion durch die Stomata ausgleichen kann. Die Kinetik des Vorgangs wurde von Kline und Stewart (1974) und von Dinner et al. (1980) empirisch beschrieben. Auch über längere Zeiträume (1 Vegetationsperiode) an Bäumen unter Freilandbedingungen gewonnene Meßdaten lassen sich auf diese Weise einleuchtend erklären (Strack et al., 1982).

Von Belot et al. (1979) wurde versucht, die Aufnahme von tritiiertem Wasser aus der Luftfeuchtigkeit durch die Blätter von Landpflanzen mit Hilfe des Fick'schen Gesetzes quantitativ zu beschreiben. Da es sich um radioaktive

Teilchen handelt und die Aktivität proportional zur Anzahl der Teilchen ist, lassen sich zur Beschreibung des Diffusionsvorganges Teilchenkonzentration und Teilchenfluß durch Aktivitätskonzentration (bzw. spezifische Aktivität) und Aktivitätsfluß darstellen. Für den Tritiumfluß in das Blatt hinein (Fl) formuliert Belot folgendermaßen:

$$Fl = \frac{X_A - X_B}{r} \quad \text{Gl. (2.1)}$$

Dabei bedeutet  $X_A$  die Konzentration an gasförmigem Tritium in der Atmosphäre und  $X_B$  die Konzentration an gasförmigem Tritium im Gasraum des Blattes. Belot geht davon aus, daß nur ein vernachlässigbar geringer Anteil an Wasserdampf in den Interzellularräumen des Blattes nicht in unmittelbarem Gleichgewicht mit dem gesamten flüssigen Gewebewasser steht. Mit dieser Randbedingung (und einigen anderen) überführt er Gl. (2.1) unmittelbar in folgende Beziehung:

$$\mu \frac{dC_B}{dt_B} = \frac{1}{r} \left( X_A - \frac{\rho_s}{\alpha} C_B \right) \quad \text{Gl. (2.2)}$$

Für diesen Schritt hat Belot offensichtlich die auf Volumen Gasraum bezogene Tritiumkonzentration  $X_B$  mit Hilfe der Wasserdampfdichte im Gasraum des Blattes, der Sättigungsfeuchte  $\rho_s$ , in die auf Masse flüssiges  $H_2O$  bezogene spezifische Aktivität  $C_B$  umgerechnet. Er berücksichtigt dazu noch ein unterschiedliches T/H-Verhältnis in Flüssigkeit und Gasphase, da angenommen wird, daß die im Vergleich zu Protium größere Masse des Tritiums einen gegenüber  $H_2O$  geringeren Dampfdruck von  $HTO$  bewirkt. Das Verhältnis des T-Anteils in der flüssigen Phase zum T-Anteil in der Gasphase bezeichnet Belot mit  $\alpha$  und setzt entsprechend den Messungen von Sepall und Mason (1960) einen Wert von 1,1 ein.

Belot mißt bei seinen Untersuchungen die Tritiumkonzentration der Luft und rechnet daher auch mit dieser Größe. Anstelle der Tritiumkonzentration der Luft  $X_A$  kann jedoch auch die spezifische Tritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit  $C_0$  betrachtet werden (worauf Belot auch hinweist). Wenn man mit Hilfe der Wasserdampfdichte, der absoluten Luftfeuchte  $\rho$ , umrechnet, kann

Gl. (2.2) nach Ausklammern von  $\rho_s/\alpha$  folgendermaßen geschrieben werden (s. auch Couchat et al., 1983):

$$\frac{dC_B}{dt_B} = \frac{\rho_s}{\alpha \mu r} \left( \alpha \frac{\rho}{\rho_s} C_O - C_B \right) \quad \text{Gl. (2.3)}$$

Wird diese Gleichung nach Zusammenfassen zu den Parametern  $f_B$  und  $k_B$  (s. u.) integriert (Integration durch Substitution, s. z. B. Lambacher-Schweizer, 1970), erhält man folgende von Belot angegebene Beziehung:

$$C_B = f_B C_O (1 - e^{-k_B t_B}) \quad \text{Gl. (2.4)}$$

Diese Gleichung entspricht den von Kline und Stewart (1974) und von Dinner et al. (1980) empirisch gefundenen Formeln, wobei  $f_B$  und  $k_B$  aber aus physikalischen bzw. biologischen Parametern - relative Luftfeuchte ( $\cong \rho/\rho_s$ ), Sättigungsfeuchte, Wassergehalt des Blattes, Blattfläche und -diffusionswiderstand - berechnet werden können:

$$f_B = 1,1 \frac{\rho}{\rho_s} \quad \text{Gl. (2.5)} \quad k_B = 0,9 \frac{\rho_s}{\mu r} \quad \text{Gl. (2.6)}$$

Die Anwendbarkeit dieses Modells, die eine Exposition gegenüber gasförmigem - aerosolfreiem - HTO-Dampf voraussetzt, wurde von Garland und Cox (1982) und von Couchat et al. (1983) in Begasungsexperimenten untersucht. Sie bestätigen die Anwendbarkeit mit geringen Einschränkungen (s. S. 84). Da der Aufnahmevorgang die Grundlage für den weiteren Umsatz des Wasserstoffs in der Pflanze ist, soll die Berechenbarkeit der Tritiumaufnahme mit Hilfe dieses Modells anhand eigener experimenteller Daten geprüft werden. Die hierzu nötigen Messungen sind unter kontrollierten Klimabedingungen durchzuführen und sollen die benötigten Parameter möglichst genau erfassen.

Wenig ist darüber bekannt, wie sich solchermaßen aufgenommenes Wasser in der übrigen Pflanze verteilt bzw. inwieweit das Gewebewasser anderer oberirdischer Organe mit der Luftfeuchtigkeit im Austausch steht. Grundsätzlich scheint ein solcher Austausch auch für Blattstiele (von Sojabohnen: Choi und Aronoff, 1966) und Früchte (Tomaten, Gurken: Dinner et al., 1980) möglich zu sein, wobei mit geringeren Aufnahmegeschwindigkeiten zu rechnen ist.

Ein Wasserabtransport aus dem Blatt (negativer Wassertransport) ist nur bei einem Wasserdefizit in der Pflanze und gleichzeitiger reichlicher Wasserversorgung eines Blattes - also unter realen Bedingungen fast nie - zu erwarten (Haines, 1952, 1953; Gessner, 1956). Obwohl sich auch eine Wasserzirkulation in ähnlicher Weise bemerkbar machen könnte (Neeracher, 1966), dürfte doch eine Translokation von HTO in unterhalb der exponierten Blätter liegende Pflanzenteile als gering einzuschätzen sein (s. auch Gage und Aronoff, 1960; Choi und Aronoff, 1966). Entsprechende Messungen sollen jedoch auch hierüber näher Aufschluß geben, wobei wegen der Bedeutung als Nahrungsmittel insbesondere Speicherorgane Beachtung zu finden haben.

Wird HTO zu einem Bestandteil des Gewebewassers von Organismen, so läßt sich auch in organische Moleküle eingebautes Tritium (OBT = organically bound tritium) finden. Dieser "Einbau" läuft in Form eines Isotopenaustausches bereits mit totem organischem Material ab. 1935 konnten Hamill und Freudenberg an verschiedenen Hexosen zeigen, daß die Anzahl der austauschbaren H-Atome mit der Anzahl der Hydroxylgruppen der Moleküle übereinstimmt. Allgemein ist davon auszugehen, daß an O, N oder S gebundene H-Atome organischer Moleküle mit dem Wasserstoff von umgebendem Wasser im Austausch stehen, während C-H-Bindungen wesentlich weniger leicht gelöst werden. In inaktivem Wasser ist mit einem Rücktausch von derart organisch gebundenen Tritiumatomen zu rechnen. Stabile C-T-Bindungen können durch biochemische, besonders durch Assimilationsprozesse gebildet werden. Das Verhältnis der spezifischen Aktivität des organisch gebundenen Tritiums ( $C_{OBT}$ ) zur spezifischen Aktivität des Gewebewassers ( $C_{HTO}$ ) eines bestimmten Gewebes oder Organismus wird in der Literatur häufig als R-Wert aufgeführt:  $R = C_{OBT}/C_{HTO}$ . In Untersuchungen, die unter Strahlenschutzaspekten durchgeführt worden waren, wurden für die verschiedensten biologischen Umweltproben teilweise R-Werte gefunden, die deutlich größer waren als 1: z.B. in Wasserpflanzen bis  $R = 3$ , in Fischen bis  $R = 4$  (Cohen und Kneip, 1973), in Landpflanzen, Milch und Fleisch bis  $R = 4$  (Bogen et al., 1979), in Gemüse ein R-Mittelwert von  $3,2 \pm 1,1$  (Dinner et al., 1980), in Gemüse und Blättern von Bäumen bis  $R = 3$  (Strack und König, 1981). Bei gleichbleibender Konzentration und homogener Verteilung des Tritiums in Luft und Wasser würde dies einer Konzentrierung in der organischen Substanz entsprechen.

Da in den geschilderten Fällen die Tritiumkonzentration der Umwelt in den der Probenahme vorausgegangenen Zeiträumen jedoch offenbar nicht genau be-

kannt waren, bietet sich als einfache Erklärung für die Werte die Annahme an, daß es sich um Nachwirkungen vorausgegangener höherer HTO-Konzentrationen handelt. Untersuchungen an Laubbäumen, bei denen über eine Vegetationsperiode hinweg kontinuierlich die Tritiumkonzentrationswerte für Blätter und Umgebung gemessen wurden, lassen sich auf diese Weise deuten (Strack, 1982).

Art und Umfang des enzymatischen Einbaus von Tritium in organische Moleküle und sein Schicksal im Stoffwechsel theoretisch abzuschätzen, bereitet jedoch Schwierigkeiten. Obwohl Tritium grundsätzlich dieselben chemischen Reaktionen wie Protium eingeht, ist aufgrund seiner größeren Masse mit einer geringeren Reaktionsgeschwindigkeit zu rechnen (McFarlane et al., 1979). Ein Isotopeneffekt sollte sich daher beim Wasserstoffeinbau in ein Molekül in einer Diskriminierung gegenüber Tritium äußern, demgegenüber sollte eine C-T-Bindung schwerer gelöst werden als eine C-H-Bindung. Wie sich diese gegenläufigen Effekte im einzelnen auswirken, kann nur das Experiment zeigen (s. auch Simon et al., 1964). Photosyntheseversuche mit Tritium als Tracer unter kontrollierten Bedingungen wurden besonders mit Grünalgen durchgeführt. Für praktisch unendlich lange Zeiträume wurden dabei für den Gesamtorganismus R-Werte  $< 1$  ermittelt (Weinberger und Porter, 1953; Strack, 1978). R-Werte für einzelne Verbindungen, die in Grünalgen gemessen wurden, waren sehr unterschiedlich. Sie lagen meist in dem Bereich von 0,5 bis 1, überstiegen in einzelnen Fällen jedoch auch 1 (Rambeck und Bassham, 1973).

Weitere Kenntnisse über das Verhalten von Tritium bei Photosynthesevorgängen wurden durch Versuche mit Grünalgen erhalten, bei denen nach T/C-14-Doppelmarkierung und vergleichsweise kurzen Belichtungszeiten (wenige sec bis ca. 1 h) die Aktivitäten von Verbindungen besonders des Pentosephosphatzyklus gemessen wurden. T und C-14-Markierung fand sich zwar grundsätzlich in denselben Verbindungen (Moses und Calvin, 1959), die T/C-14-Verhältnisse waren jedoch teilweise höher als erwartet (Simon und Trebst, 1961; Simon et al., 1964, s.S. 100). Dies wurde darauf zurückgeführt, daß in Reaktionen des Pentosephosphatzyklus Wasserstoff in stabile C-H-Bindungen eingebaut werden kann, ohne daß anorganischer Kohlenstoff in die organischen Moleküle aufgenommen wird. Diese Versuche zeigten vor allem auch, daß erstens Tritiummarkierung in Photosyntheseversuchen durchaus andere Untersuchungsmöglichkeiten und -schwierigkeiten bietet als C-14-Markierung und daß zweitens die Vorgänge beim Tritiumeinbau in biochemischen Prozessen sich komplizierter darstellen, als es auf den ersten Blick erscheinen mag.

Bei Samenpflanzen kommt als zusätzlicher Aspekt hinzu, daß Assimilationsvorgänge in den verschiedenen Organen in sehr unterschiedlichem Maße ablaufen und daß Transportvorgänge zwischen den Geweben eine Rolle spielen. Untersuchungen des Assimilattransportes, bei denen HTO über die Blätter appliziert wurde, führten z.B. Biddulph und Cory (1957), Gage und Aronoff (1960), Neeracher (1966) und Trip und Gorham (1968) durch. Diese Autoren zielten speziell auf die Transportvorgänge ab und arbeiteten daher mit relativ kurzen Versuchszeiten (maximal wenige Stunden). Die Verteilung von organisch gebundenem Tritium in der gesamten Pflanze bei Exposition gegenüber gasförmigem HTO und Expositionszeiten von mehr als 24 h ist hingegen bisher kaum untersucht. Dieses Problem soll daher in der vorliegenden Arbeit Berücksichtigung finden. Dazu sollen Gemüsepflanzen unter kontrollierten Laborbedingungen mit HTO-Dampf begast und die Tritiumaufnahme durch oberirdische Pflanzenteile untersucht werden. Es soll sowohl, wie bereits ausgeführt, der Verlauf der Tritiumkonzentration im freien Gewebewasser (HTO) der Pflanzen bestimmt, als auch die Bildung tritiiertes organischer Substanz festgestellt werden, wobei zwischen austauschbar organisch gebundenem Tritium (exchangeably organically bound tritium,  $OBT_{ex}$ ) und nicht austauschbar organisch gebundenem Tritium (non-exchangeably  $OBT_{nx}$ ) zu unterscheiden ist. Besondere Aufmerksamkeit soll dem Transport tritiiertes Verbindungen in nicht direkt exponierte unterirdische Speicherorgane geschenkt werden.

Hauptziel der Arbeit ist es, eine Übersicht über den Umsatz von über die Blätter in Form von Wasser aufgenommenem Wasserstoff in der gesamten Pflanze zu geben. Dabei werden die pflanzenphysiologischen Bereiche des Wasserhaushaltes und der Assimilatproduktion und -translokation angesprochen. Praktische Bedeutung erhalten die Untersuchungen dadurch, daß sie zu einer genaueren Beurteilung der radioaktiven Belastung von Nutzpflanzen infolge von Tritiumfreisetzungen in die Atmosphäre beitragen können.

### 3. Material und Methoden

#### 3.1 Pflanzenmaterial

##### 3.1.1 Versuchspflanzen

Als Versuchspflanzen wurden folgende drei Gemüsearten ausgewählt:

- Radies (Raphanus sativus L. var. radiculata minor, Brassicaceae, Sorte Sperling's Parat).
- Möhre (Daucus carota L. var. sativus, Apiaceae, Sorte Pariser Markt).
- Buschbohne (Phaseolus vulgaris K. var. nanus, Fabaceae, Sorte Hild's Marona).

Entsprechend der Themenstellung, die Aufnahme und den Transport von tritiierten Verbindungen in eßbare Pflanzengewebe unter kontrollierten Bedingungen zu untersuchen, sind diese Gemüsepflanzen sowohl als Nutzpflanzen interessant als auch für Versuche in Expositions-kammern geeignet. Sie zeichnen sich durch gute Kultivierbarkeit, relativ schnelles Wachstum, geeignete Größe und Verschiedenartigkeit der als Nahrungsmittel genutzten Pflanzenorgane aus: das Speicherorgan des Radieschens ist eine Hypokotylknolle, die Rübe der Möhre wird im wesentlichen von der Wurzel gebildet, und Früchte können gut bei der Buschbohne untersucht werden.

##### 3.1.2 Aufzucht der Versuchspflanzen

Die Versuchspflanzen wurden zu 1 bis 4 Exemplaren in Kunststofftöpfen (ca. 14 cm Durchmesser) in einem Substrat aus Einheitserde Typ P (Fa. Balster Einheitserdewerk, 5758 Fröndenberg) kultiviert. Zur Düngung wurde Hakaphos Nährsalz (Fa. Compo, 44 Münster) verwendet, ein mineralischer NPK-Dünger (15 %, 11 %, 15 % und Spurenelemente). Um ganzjährig möglichst einheitliches Pflanzenmaterial zur Verfügung zu haben, erfolgte die Aufzucht in einem klimatisierten Gewächshaus bei einer Tagestemperatur von 19° C und einer Nachtabsenkung um 6° C. Die natürliche Beleuchtung in diesem Glashaus wurde bei Bedarf durch eine Zusatzbeleuchtung (400 W-HQL-Lampen) ergänzt, so daß über eine Belichtungsperiode von 12 h eine Mindest-

beleuchtungsintensität von ca. 5 000 Lux sichergestellt war.

Ein Teil der Versuchspflanzen wurde auch in dem für die HTO-Exposition vorgesehenen Pflanzenwuchsschrank unter vergleichbaren Bedingungen aufgezogen. In beiden Fällen wurde das Wachstum von Pflanzen stichprobenartig durch Bestimmung der Trockenmasse-Zunahme verfolgt.

### 3.1.3 Bestimmung von Wachstumsraten

Zu bestimmten Zeitpunkten während der Entwicklung der Pflanzen wurden nach Einwaage des frischen Materials jeweils 5 Pflanzen getrocknet; bei Radies getrennt in Blätter und Knollen, bei Buschbohne in Blattfiedern und übrige Pflanzenteile. Die Trocknung erfolgte bei 105 °C über eine Zeit von 3 h. Nach Abkühlen im evakuierten Exsikkator über Kieselgel wurde die Trockensubstanz ausgewogen. Auf diese Weise wurden prozentuale Trockenmassegehalte und die zeitliche Zunahme der Trockenmasse zur Berechnung von Wachstumsraten nach Sestak et al. (1971) ermittelt.

Die von Sestak als relative Wachstumsrate ("relative growth rate") bezeichnete Größe kann man als "Steigungsrate" einer beliebigen Wachstumskurve verstehen, d. h. als den Quotienten aus der Kurvensteigung in einem bestimmten (Zeit)punkt und dem Ordinatenwert der Kurve in diesem (Zeit)punkt:

$$R'_W = \frac{dm}{dt} \frac{1}{m} \quad \text{Gl. (3.1)}$$

Für einen Zeitraum von  $t_1^W$  bis  $t_2^W$ , innerhalb dessen die Biomasse von einem Wert  $m_1$  stetig auf einen Wert  $m_2$  anwächst, läßt sich eine mittlere Wachstumsrate berechnen. Dazu wurde folgende Formel verwendet:

$$R_W = \frac{1}{t_2^W - t_1^W} \ln \frac{m_2}{m_1} \quad \text{Gl. (3.2)}$$

Diese Wachstumsrate läßt sich sowohl für die ganze Pflanze ( $R_W$ ) als auch für einzelne Pflanzenteile angeben (für die Blätter:  $R_{Bl}$ ).

Zur Angabe einer "net assimilation rate", in der deutschsprachigen Literatur (Egle, 1960; Walter, 1960) auch als Assimilationsleistung bezeichnet, wird die Zunahme der Trockenmasse auf eine den Umfang des Photosyntheseapparates repräsentierende Größe (G) bezogen. Hierzu wurde ursprünglich die Blattfläche verwendet, jedoch kann auch auf Blattprotein- oder -chlorophyll-

gehalt oder - wie hier - auf Blatt-Trockenmasse bezogen werden. Die Assimilationsleistung in einem beliebigen Zeitpunkt wird wie folgt definiert:

$$P' = \frac{dm}{dt} \frac{1}{W} \frac{1}{G} \quad \text{Gl. (3.3)}$$

Für eine möglichst genaue Berechnung der mittleren Assimilationsleistung im Zeitraum  $t_1^W$  bis  $t_2^W$  sollte das Verhältnis ( $\alpha_W$ ) von  $R_W$  zu  $R_{Bl}$  bekannt sein. Durch Annehmen von  $\alpha_W = 1$  und  $\alpha_W = 2$  werden bei Sestak zwei Formeln hergeleitet, die für entsprechende Wertebereiche von  $\alpha_W$  verwendet werden können. Sie lassen sich folgendermaßen schreiben:

$$\text{für } 0,5 \leq \alpha_W \leq 1,5: \quad P = \frac{m_2 - m_1}{(G_2 - G_1) (t_2^W - t_1^W)} \ln \frac{G_2}{G_1} \quad \text{Gl. (3.4)}$$

$$\text{für } 1,5 \leq \alpha_W \leq 2,5: \quad P = \frac{2 (m_2 - m_1)}{(G_1 + G_2) (t_2^W - t_1^W)} \quad \text{Gl. (3.5)}$$

## 3.2 Tritiummarkierung

### 3.2.1 HTO-Begasung

Die Begasung der Versuchspflanzen mit HTO-Dampf wurde in einem Pflanzenwuchsschrank (Bioclim, Typ 1200 E, Fa. Weiss Technik, 6301 Reiskirchen) durchgeführt, in dessen Prüfraum Temperatur und Luftfeuchte im Tag/Nachtwechsel geregelt werden können. Verschiedene Lichtintensitäten (Beleuchtung mit Leuchtstoff- und Glühlampen) können ebenfalls über Zeitschaltuhren im Wechsel eingestellt werden. Die Klimatisierung erfolgt mit Hilfe eines Luftstromes, der über Klimatisierungseinrichtungen, die neben dem Prüfraum gelegen sind, und außerdem vertikal von unten nach oben durch den Prüfraum geleitet wird (Windgeschwindigkeit im Prüfraum ca. 0,1 - 1 m/s). Die Klimatisierungseinrichtungen bestehen u.a. aus einem Lamellenwärmetauscher, der gleichzeitig als Taupunktkühler wirkt und einer Befeuchtungswasserschale mit ca. 2 l Volumen. Durch dieses Be-/Entfeuchtungssystem, das reine Verdunstungsvorgänge benutzt, wird eine aerosolfreie Luftfeuchtigkeit und somit eine Exposition mit rein gasförmigem HTO erzielt, wie es im Sinne der

Fragestellung zu fordern war. Die Erzeugung von tritiiertem Luftfeuchtigkeit konnte infolgedessen einfach durch Zugabe von tritiiertem Wasser (Fa. Amersham, je Versuch ca. 18,5 MBq) in die Befeuchterschale erreicht werden.

Ohne das Klima in der Kammer zu beeinflussen und ohne ein Austreten von Aktivität in das Labor zu riskieren, konnten Manipulationen an den Pflanzen (Wiegen, Ernte etc.) während den Expositionen durch eine zusätzliche Plexiglasprüfraumtür mit Handschuhdurchführungen vorgenommen werden. Die Pflanztöpfe selbst mußten für die Exposition vorbereitet werden, um eine Kontamination der Böden und damit Verfälschung der in den Pflanzen gemessenen Aktivität zu vermeiden. Hierzu wurden die Oberflächen der Böden mit einer Wachsschicht abgedeckt und die Töpfe zudem mit Alufolie umkleidet. Gleichzeitig mußte eine kontaminationsfreie Bewässerung der Pflanzen ermöglicht werden. Daher waren Silikonschläuche durch die Wachsschichten geführt und zu einem Schlauchsystem verbunden, so daß die Wasserversorgung mit Hilfe einer Pumpe von außen erfolgen konnte. - Abb. 3.1 zeigt einen Blick in den Prüfraum während einer Exposition von Radiespflanzen. -

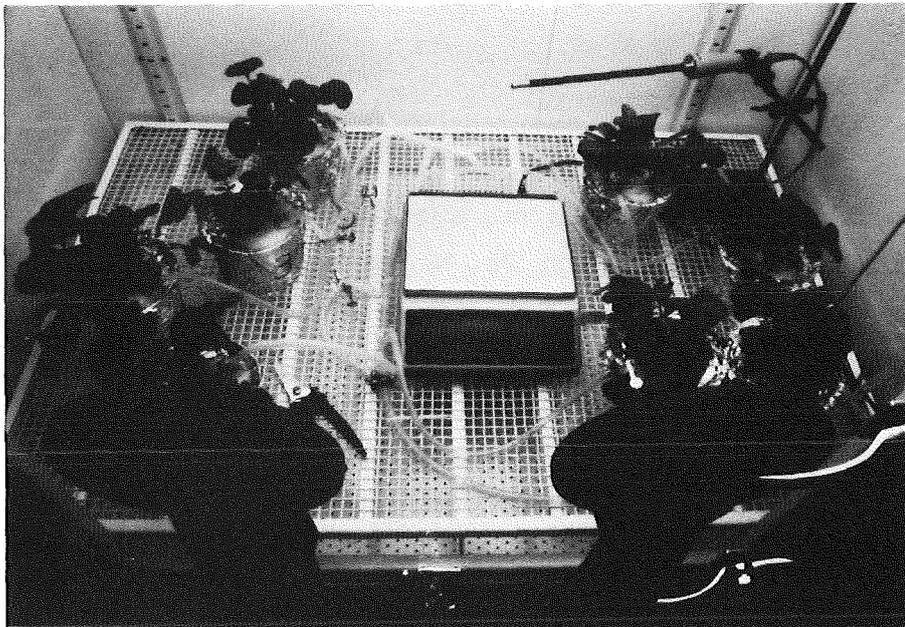


Abb. 3.1 HTO-Expositionskammer

Um die Transpirationseigenschaften der Blätter nicht durch veränderte Bodensaugspannung zu beeinflussen, wurde versucht, den Wassergehalt der Böden einigermaßen konstant zu halten, indem der Wasserverlust der Pflanzen zweimal täglich durch Wiegen der Töpfe ermittelt und entsprechend ausgeglichen wurde. Bei einem Teil der Versuche wurde diese Bestimmung des Wasserverlustes zur Berechnung von Transpirationsraten (s. Abschn. 4.2.4.1 und 4.2.6.1) bzw. Diffusionswiderständen (s. Abschn. 4.1.2 und Garland et al., 1981) benutzt. Ein Einfluß durch Evaporation der Böden war dabei durch das Abdecken ausgeschaltet. Die für die Berechnungen außerdem benötigten Blattwassergehalte wurden bei der Gefriertrocknung (s.u.) des Materials erhalten, Blattflächen wurden durch Übertragung der Blattumrisse auf Millimeterpapier und Wiegen desselben bestimmt.

Während der Tritium-Exposition wurden Temperatur und Luftfeuchte kontinuierlich mit einem elektronischen Thermohygrometer (Hygroskop DT, Fa. Rotronic, 605 Offenbach) gemessen und analog registriert. Das Meßgerät weist nach Herstellerangabe für die Temperaturmessung (Temperatursensor: Pt 100, Fühlertoleranz:  $\pm 0,1^{\circ}$  C) einen maximalen Systemfehler von  $\pm 0,4^{\circ}$  C und für die Feuchtemessung (Feuchtesensor: Elektrolyt-Meßzelle, Meßprinzip: Impedanzmessung) von  $\pm 2$  % rF auf. Die Einhaltung dieser Toleranzen wurde für die Versuchsbedingungen mit einem Aspirations-Psychrometer nach Abmann mit amtlich geeichten Thermometern überprüft.

Bei den für die Expositionsversuche angegebenen Klimameßwerten kann daher unter Mitberücksichtigung von räumlichen und zeitlichen Schwankungen des Klimas selbst von Gesamt-Toleranzen von ca.  $\pm 1^{\circ}$  C bzw. ca.  $\pm 4$  % rF ausgegangen werden. Die zeitliche Abweichung der Meßwerte allein lag dagegen nur bei max.  $\pm 0,5^{\circ}$  C bzw.  $\pm 1$  % rF.

Die photosynthetisch aktive Strahlung (PAR) wurde über einen Quantum Sensor (LI-190S-1, Fa. LI-COR, USA) gemessen. Sie weist durch unterschiedliche Abstände der Blätter von der Lichtquelle und Abschattung innerhalb des Pflanzenbestandes größere Schwankungen auf. Sie stellt jedoch für die vorliegenden Untersuchungen keine direkte Rechengröße dar.

Die Bestimmung der Tritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit erfolgte durch Ausfrieren einer geringen Menge (200 - 400 mg) von Feuchtigkeit aus einem nach außen geführten Prüfluftstrom und anschließendes Auszählen der Probe mit Hilfe der Flüssigszintillationsmeßtechnik (s.u.). Zur Ernte wurden die Pflanzen, in die zu untersuchenden Fraktionen getrennt, zerkleinert, in

Plastikfolie eingeschweißt und sofort in flüssigem Stickstoff tiefgefroren. Das Material wurde bis zur Weiterverarbeitung im Gefrierschrank bei ca.  $- 30^{\circ}$  C aufbewahrt. Es wurden auch Proben der Böden genommen und in gleicher Weise der HTO-Messung zugeführt.

### 3.2.2 Vakuuminfiltration

Als weiteres Verfahren zur Tritiummarkierung von Pflanzenmaterial wurde die aus der mikroskopischen Technik bekannte Vakuuminfiltration zu diesem Zweck modifiziert. In mehreren 1 l-Bechergläsern wurden in je 250 ml Infiltrationsflüssigkeit, einer 0,1 M  $\text{NaHCO}_3$ -Lösung in tritiiertem Wasser (ca. 2 700 Bq/g  $\text{H}_2\text{O}$ ), je 10-12 g Radiesblätter untergetaucht. Das Material wurde über 15 min. in Exsikkatoreninfiltriert und anschließend entweder dunkelgehalten oder mit ca. 20 000 Lux belichtet. Nach bestimmten Zeitspannen, max. nach 24 h, wurden die Blätter zwischen Fließpapier sorgfältig getrocknet, zerkleinert und tiefgefroren.

### 3.3 Gefriertrocknung

Zur Bestimmung der Tritiumaktivität des freien Gewebewassers des Pflanzenmaterials wurden die Proben gefriergetrocknet und das Kondensat zur Flüssigszintillationsmessung verwendet.

Die Gewinnung von Kondensatproben erfolgte in einer Anlage gemäß Abb. 3.2. Die Anlage wurde mit einer Drehschieberpumpe auf ca. 0,5 Pa evakuiert und das Gewebewasser der einzelnen in Rundkolben vorgelegten Pflanzenproben (ca. 10-20 g Frischgewicht) jeweils in einer mit Ethanol-Trockeneis (ca.  $- 75^{\circ}$  C) gekühlten Glaskühlfalle (Mod. Quickfit, Fa. Corning) ausgefroren, so daß es nach Abtauen und Auffangen in kleinen Rundkolben für die Messung zur Verfügung stand. Während dieses Trocknungsprozesses wurden die Proben im Luftbad (ca.  $50^{\circ}$  C) beheizt. Eine weitere Trocknung des Pflanzenmaterials wurde jeweils in einer mit Tauchkühler gekühlten Igelkammer (Lyocor M 1901, Fa. Secfroid, Schweiz) vorgenommen.

Um eine Verfälschung von Messungen des organisch gebundenen Tritiums durch Rest-HTO zu vermeiden, wurde angestrebt, eine von Restfeuchte freie Trockensubstanz zu erhalten. Daher wurde das Material über mehrere Tage getrocknet, wobei es zeitweise im  $100^{\circ}$  C-Luftbad beheizt und mit  $\text{N}_2$  begast wurde. Um

andererseits einem Verlust von austauschbar organisch gebundenem Tritium durch Rückaustausch mit Luftfeuchtigkeit entgegenzuwirken, erfolgte das Brechen des Vakuums grundsätzlich mit  $N_2$ . Auch die weitere Handhabung des getrockneten Materials bis zur Verbrennung (Pulverisieren in einer Analysenmühle) wurde unter  $N_2$  vorgenommen.

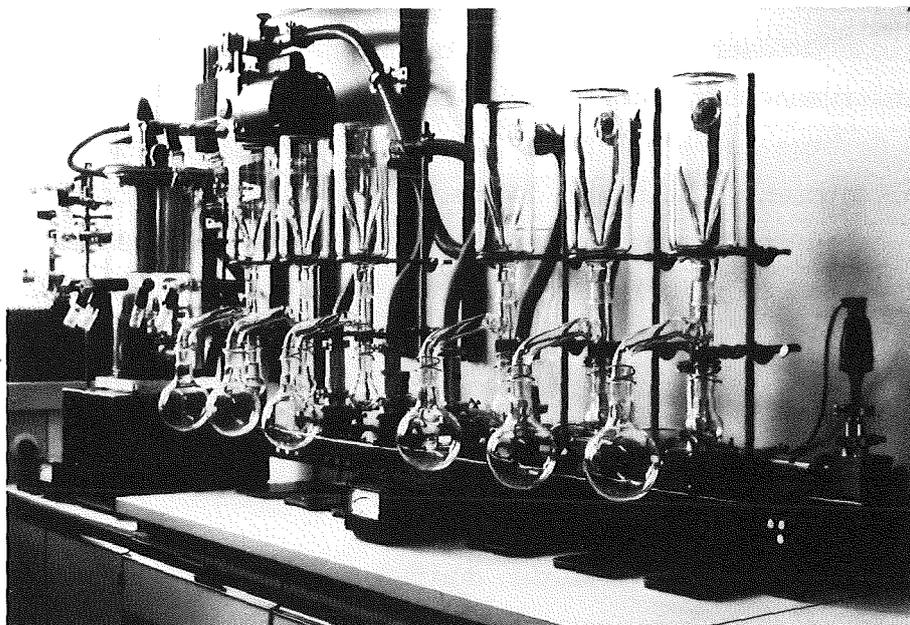


Abb. 3.2 Gefriertrocknungsanlage

### 3.4 Probenvorbereitung für Bestimmungen des organisch gebundenen Tritiums

#### 3.4.1 Tritiumaustausch

Nach Verbrennung (s.u.) eines Teils einer getrockneten Pflanzenprobe zur Bestimmung des organisch gebundenen Tritiums (OBT) wurde der Rückaustausch von austauschbar gebundenen Tritiumatomen herbeigeführt, indem die restliche pulverisierte Trockensubstanz für 1 Woche wasserdampfgesättigter Luft ausgesetzt wurde. Hierzu wurde ein Luftstrom mittels einer Membranluftpumpe durch eine Gaswaschflasche mit inaktivem  $H_2O$  und einen Exsikkator, der die Trockensubstanzproben enthielt, geleitet. Anschließend wurde das Material im Trockenschrank wieder getrocknet und zur erneuten Tritiummessung verbrannt.

Die auf diese Weise ermittelten Aktivitäten werden in der vorliegenden Arbeit als  $OBT_{nx}$ -Aktivität (non-exchangeably organically bound tritium) bezeichnet.

### 3.4.2 Oxidation der Trockensubstanz

Zur Bestimmung der Aktivität des organisch gebundenen Tritiums wurde nach Verbrennung der Trockensubstanz die Aktivität des Verbrennungswassers gemessen. Für diese Oxidation wurde ein Verbrennungsautomat (OX-300, Fa. R.J. Harvey Instrument Corporation, USA) benutzt.

Herzstück des Gerätes ist ein auf  $900^{\circ}C$  aufheizbares Quarzrohr, das zum Teil mit Katalysatoren (Platinnetz, Kupferoxid) gefüllt ist und während elektronisch gesteuerter Verbrennungszeiten von  $O_2$  (und dazwischen von  $N_2$ ) durchströmt (ca.  $350\text{ cm}^3/\text{min.}$ ) wird. Die Verbrennungsgase werden direkt in Szintillationsfläschchen geleitet, wobei das Oxidationswasser in einem geeigneten Szintillationscocktail (Unisolve I, Fa. Zinsser Analytic, Frankfurt) aufgenommen wird. Pro Verbrennung wurden (abhängig vom Pflanzenmaterial) 200-400 mg pulverisierte Trockensubstanz eingesetzt und eine Verbrennungszeit von 4 min. gewählt.

Aschegehalte (s. Abschn. 4.1.1) wurden durch Auswaage ermittelt. Die Menge des jeweils entstandenen Verbrennungswassers im Cocktail wurde mit Hilfe eines entsprechenden Analyseautomaten (KF-Coulometer 652, Fa. Metrohm, Schweiz) durch Karl-Fischer-Titration mit coulometrischer Joderzeugung bestimmt. Dabei wurde für jede Bestimmungsreihe eine Korrektur über einen Standard (eingewogenes  $H_2O$ -Aliquot in Cocktail) vorgenommen.

Der Wirkungsgrad des Verbrennungsautomaten scheint in gewissem Maße von Art und Menge des zu verbrennenden Materials abhängig zu sein. Anhand der Verbrennung von Tritiumstandards und von definierten Verbindungen wurde ein durchschnittlicher Wirkungsgrad von 82 % ermittelt. Er hat freilich nur auf die Angabe von in der Trockensubstanz gebundenen Aktivitätsmengen Einfluß, für auf Verbrennungswassermenge bezogene spezifische Aktivitäten ist er ohne praktische Bedeutung, da Verluste an Aktivität zwangsläufig mit einem Verlust von Verbrennungswasser - dessen Menge ja bestimmt wird - verbunden sein sollten.

### 3.5 Aktivitätsmessung

Die Tritiumaktivität der Proben wurde mit Hilfe der Flüssigszintillationsmeßtechnik bestimmt. Die benutzten Geräte (LS 7800 und LS 9800, Fa. Beckman, USA - München) berechnen aus den gemessenen Impulsraten Absolutwerte für die spezifischen Aktivitäten, indem ein unterschiedlicher Quenchgrad der Proben berücksichtigt wird. Dazu werden mit einer externen  $\gamma$ -Quelle Compton-Elektronen im Szintillator erzeugt. Die vom Quenchgrad der Probe abhängige Verschiebung des Compton-Spektrums wird in Form einer sog. H-Number erfaßt und über eine elektronisch gespeicherte Eichkurve mit dem Zählwirkungsgrad in Beziehung gesetzt. Für die Aufstellung der Eichkurve wurden Eichstandards (tritiiertes Wasser) der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB, Braunschweig) und (zur Erzeugung unterschiedlicher Quenchwerte)  $\text{FeCl}_3$ -Lösung benutzt.

Zur Messung wurden die HTO-Proben (Gewebewasser, Bodenwasser, Luftfeuchtigkeit) in Plastiksintillationsfläschchen mit 14 ml Cocktail (Unisolve I, Fa. Zinsser) angesetzt; die OBT-Proben wurden nach Verbrennung und KF-Titration (s. o.) gemessen. Tabelle 3.1 gibt einen Überblick über einige Daten zu den Messungen.

Tab. 3.1: Daten zu den Flüssigszintillationsmessungen

	HTO	OBT
Probenvolumen [ $\mu\text{l}$ ]	1 000	80 - 150
Zählzeit [min.]	30	60
Zählwirkungsgrad	0,36 - 0,38	0,32 - 0,36
Nulleffekt [ipm]	4,9	5,4
Nachweisgrenze, typisch [Bq/g $\text{H}_2\text{O}$ ]	0,053	0,4
Meßkanal-Nr.	70 - 270	

Die Nachweisgrenze (NWG) wurde nach folgender Gleichung berechnet, die durch Umformung (zur Umrechnung in die hier verwendeten Einheiten) der von König et al. (1976) angegebenen Beziehung erhalten wurde:

$$\text{NWG} = \frac{1}{15\eta V} \sqrt{\frac{I_0}{2t_Z}} \quad [\text{Bq/g H}_2\text{O}] \quad \text{Gl. (3.6)}$$

Die Meßkanaleinstellung (Zählfenster) wurde im Sinne eines möglichst günstigen Verhältnisses von Nulleffekt  $I_0$  und Wirkungsgrad  $\eta$ , d. h. einer möglichst niedrigen Nachweisgrenze (über die Analyse der Spektren von Standard- und Blindproben) optimiert. Damit sollte erreicht werden, die eingesetzten Markierungsaktivitätsmengen gering halten und gleichzeitig auch bei kleinen Probenmengen (Oxidationswasser) die Meßwerte nur schwach markierter Proben möglichst sicher beurteilen zu können.

### 3.6 Statistische Auswertung

#### 3.6.1 Fehlerbetrachtung

##### 3.6.1.1 Aktivitätsmessungen

Die angegebenen spezifischen Tritiumaktivitäten werden durch Fehlerangaben ergänzt, die eine Aussage machen sollen über die "wahre" Tritiumaktivität der Probe. Dies ermöglicht den unmittelbaren Vergleich der Aktivitäten der einzelnen Tritiumkompartimente (Luftfeuchtigkeit, Gewebewasser oder organisch gebundenes Tritium einer bestimmten Pflanzenfraktion) eines Versuches und auch verschiedener Versuchsansätze untereinander. Dazu wird ein Gesamtfehler ermittelt, indem rechnerisch die Einzelfehler verschiedener Arbeitsschritte zusammengefaßt werden. Im Unterschied zu anderen Verfahren, z. B. mehrfaches Zählen einer Probe und Bestimmung von Mittelwert und Standardfehler aus den Einzelmeßwerten, ist hier eine Aussage sowohl über Reproduzierbarkeit als auch Richtigkeit enthalten.

Der Fehler der Impulsrate läßt sich rechnerisch ermitteln, wenn man davon ausgeht, daß die Zufallsvariable "Impulse pro Zeit" - d. h. sowohl die Anzahl der Impulse in der Zählzeit ( $Z$ , "gross counts") als auch die Impulsrate ( $I=Z/t_Z$ ) - Poisson-verteilt ist und sich dementsprechend

(s. z. B. Geigy Scientific Tables, 1982) die Standardabweichung der Impulsrate aus der Standardabweichung der Anzahl der Impulse in der Zählzeit ( $s_Z = \sqrt{Z}$ ) berechnen läßt:

$$\frac{s_I}{I} = \frac{s_Z}{Z} = \frac{\sqrt{Z}}{Z} = \sqrt{\frac{Z}{Z^2}} = \sqrt{\frac{t_Z I}{t_Z^2 I^2}} = \frac{1}{I} \sqrt{\frac{I}{t_Z}} \quad s_I = \sqrt{\frac{I}{t_Z}}$$

Der Fehler bei der Bestimmung des Nulleffektes läßt sich in geeigneter Weise mitberücksichtigen (s. u.). Zur Angabe des Fehlers anderer Variablen wurden Vergleichsmessungen durchgeführt (Zählwirkungsgrad) oder Erfahrungswerte verwendet (Pipettieren). Da die einzelnen Variablen verschiedenen, teilweise unbekanntem Verteilungen entstammen, ist die Angabe einer bestimmten Vertrauenswahrscheinlichkeit problematisch. Es werden daher der Einfachheit halber 2s-Fehlergrenzen angegeben. Allerdings darf beispielsweise für pipettierte Volumina wohl Normalverteilung angenommen werden und auch die Poisson-Verteilung geht bei höheren Werten in die Normalverteilung über - nach Sachs (1982) läßt sich der Vertrauensbereich für Werte über 200 (d. h. in diesem Fall mehr als 200 "gross counts") unter Benutzung der Quantile der Standardnormalverteilung berechnen (d. h. 1,96 für den 95%-Vertrauensbereich). Wenn man nicht allzu strenge Maßstäbe anlegt, lassen sich die angegebenen Fehlergrenzen daher im Sinne angenäherter 95%-Vertrauensgrenzen verstehen.

Einflüsse bei Ernte, Gefriertrocknung oder Oxidation der Trockensubstanz sind bei dieser Fehlerberechnung nicht mitberücksichtigt. Die Berechnungen wurden entsprechend den Untersuchungen von König et al. (1976) durchgeführt, mit Hilfe der dort angegebenen Gleichungen und Modifikationen gemäß der eigenen Versuchsanordnung:

Die spezifische Aktivität (C) wird folgendermaßen berechnet:

$$C = \frac{I_N}{60\eta V} \quad [\text{Bq/g H}_2\text{O}] \quad \text{Gl. (3.7)}$$

mit:  $I_B - I_O = I_N$ : Nettoimpulsrate [ipm]  
 $\eta$  : Zählwirkungsgrad  
 $V$  : Probenvolumen bzw. -masse [g]

Nach dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz läßt sich der Gesamtfehler der spezifischen Aktivität aus den Fehlern bei der Bestimmung dieser einzelnen Größen ermitteln:

$$\frac{s}{C} = \sqrt{\left(\frac{s_{I_N}}{I_N}\right)^2 + \left(\frac{s_{\eta}}{\eta}\right)^2 + \left(\frac{s_V}{V}\right)^2} \quad \text{Gl. (3.8)}$$

Die Standardabweichung der Nettoimpulsrate erhält man ihrerseits durch Anwendung des Fehlerfortpflanzungsgesetzes aus den Standardabweichungen von Bruttoimpulsrate und Nulleffekt. Bei gleicher Zählzeit von Probe und Blindprobe ergibt sich dann:

$$\frac{s_{I_N}}{I_N} = \sqrt{\frac{1}{t_Z} \frac{I_B + I_O}{(I_B - I_O)^2}} \quad \text{Gl. (3.9)}$$

Der Fehler bei der Bestimmung des Wirkungsgrades setzt sich ebenfalls in entsprechender Weise aus Einzelfehlern zusammen:

- der Meßunsicherheit des verwendeten PTB-Eichstandards: PTB-Angabe: 2,5 % bei 99 % Konfidenz - d. h. für den 2,58s-Bereich - und somit ca. 1 % für den 1s-Fehler
- den Fehlern beim Ansetzen der Eichkurve (Verdünnen des Standards, Halbwertszeitkorrektur u. ä.) bzw. bei der Bestimmung des Zählwirkungsgrades aus der Messung der H-Number durch das Gerät: für diese Fehler werden nach Vergleichsmessungen insgesamt 2 % eingesetzt.

Nimmt man ferner für den Variationskoeffizienten beim Pipettieren der HTO-Proben 1 % an, so erhält man für den 2s-Fehler von HTO-Messungen:

$$2s_{\text{HTO}} = \sqrt{\frac{4}{t_Z} \frac{I_B + I_O}{(I_B - I_O)^2} + 0,0024} \cdot C_{\text{HTO}} \quad \text{Gl. (3.10)}$$

Für die Bestimmung der Probenmasse (Oxidationswasser) durch Karl-Fischer-Coulometrie wird ein empirisch ermittelter Fehler für die Titration der Probe und die Titration des Korrekturstandards von jeweils 2,5 % (1s) be-

rücksichtigt. Für OBT-Proben ergibt sich dann der 2s-Fehler zu:

$$2s_{\text{OBT}} = \sqrt{\frac{4}{t_Z} \frac{I_B + I_O}{(I_B - I_O)^2} + 0,007} \cdot C_{\text{OBT}} \quad \text{Gl. (3.11)}$$

### 3.6.1.2 Abgeleitete Größen

Das Gaußsche Fehlerfortpflanzungsgesetz (nach Kreyszig, 1977) wurde auch zur Berechnung der Fehler von aus Tritiumkonzentrationen abgeleiteten Größen benutzt. Eine solche Größe ist das aus drei Tritiumkonzentrationen gebildete Verhältnis  $R_{\text{ex}}$ :

$$R_{\text{ex}} = \frac{C_2 - C_3}{C_1}$$

Nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz kann dann formuliert werden:

$$s_{R_{\text{ex}}} = \sqrt{\left(\frac{\partial R_{\text{ex}}}{\partial C_1}\right)^2 s_1^2 + \left(\frac{\partial R_{\text{ex}}}{\partial C_2}\right)^2 s_2^2 + \left(\frac{\partial R_{\text{ex}}}{\partial C_3}\right)^2 s_3^2}$$

mit den partiellen Ableitungen:

$$\frac{\partial R_{\text{ex}}}{\partial C_1} = -\frac{C_2 - C_3}{C_1^2} \quad \frac{\partial R_{\text{ex}}}{\partial C_2} = \frac{1}{C_1} \quad \frac{\partial R_{\text{ex}}}{\partial C_3} = -\frac{1}{C_1}$$

Damit ergibt sich:

$$s_{R_{\text{ex}}} = \sqrt{s_1^2 \frac{(C_2 - C_3)^2}{C_1^4} + \frac{s_2^2 + s_3^2}{C_1^2}} \quad \text{Gl. (3.12)}$$

$$= \sqrt{\frac{s_1^2}{C_1^2} + \frac{s_2^2 + s_3^2}{(C_2 - C_3)^2}} \cdot R_{\text{ex}}$$

### 3.6.1.3 Andere Messungen

Für verschiedene Messungen wird aus mehreren Meßwerten ein Mittelwert ( $\bar{x}$ ) gebildet. Dann wird als Maß für die Streuung der Meßwerte die Stichprobenstandardabweichung (s) angegeben (s. Abschn. 4.1.1), oder der Mittelwert

durch seinen Standardfehler ( $s_{\bar{x}}$ ) näher charakterisiert (s. Abschn. 4.1.2; nach Sachs, 1982).

### 3.6.2 Regressionsanalyse

Bei einigen Aktivitätsbestimmungen wird angestrebt, die Abhängigkeit der Meßwerte von der Expositionsdauer auf einen sich aus theoretischen Überlegungen ergebenden funktionalen Zusammenhang zurückzuführen. Dazu versucht man zunächst, über Regressionsanalysen einen entsprechenden stochastischen Zusammenhang nachzuweisen.

Für lineare Beziehungen kann diese Regression nach der üblichen Methode der kleinsten Quadrate vorgenommen werden, die sich bei bekanntem bzw. als bekannt angenommenem (Gleichgewichtswert)  $a$  nach linearisierender Transformation der Gleichung auch auf eine Funktion der allgemeinen Form

$$y = a (1 - e^{-bx})$$

anwenden läßt. Durch Logarithmieren erhält man:

$$\ln (a - y) = \ln a + bx$$

Durch Verwendung des Ausdruckes  $\ln (a - y)$  als "neuen"  $y$ -Wert läßt sich dann mit Hilfe der üblichen Formeln (s. z. B. Sachs, 1982) der Regressionskoeffizient  $b$  ermitteln.

Bei unbekanntem Wert für  $a$  oder bei komplizierteren Gleichungen wurden die Funktionen mit Hilfe eines programmierbaren Taschenrechners und einem numerischen Verfahren den Daten direkt approximativ angepaßt. Das Programm (s. Anhang) berechnet für die Regressionsfunktionen auch ein allgemeines Bestimmtheitsmaß (nach Sachs, 1985; Förster und Rönz, 1979):

$$B = 1 - \frac{\sum (y - \hat{y})^2}{\sum (y - \bar{y})^2} \quad \text{Gl. (3.13)}$$

mit:  $y$ : Meßwerte  
 $\hat{y}$ : Regreßwerte  
 $\bar{y}$ : arithmetisches Mittel der Meßwerte

Das Bestimmtheitsmaß  $B$  beschreibt den Anteil der durch die Regressionsfunktion erklärten Varianz an der Gesamtvarianz der Meßwerte; es darf für beliebige Funktionen angegeben und statistisch geprüft werden. Wird ein linearer Zusammenhang untersucht, ist das Bestimmtheitsmaß gleich dem Quadrat des linearen Korrelationskoeffizienten ( $B = r^2$ ). Die statistische Prüfung ist mit Hilfe eines F-Testes möglich (Förster und Rönz, 1979). Damit läßt sich zeigen, ab welchem Wert  $B$  als signifikant von Null verschieden betrachtet werden darf. Mit den hier verwendeten Methoden werden meist zwei Parameter geschätzt, der Stichprobenumfang ist meist  $n = 8$ ; bei diesen Bedingungen läßt sich ein Bestimmtheitsmaß  $\geq 0,5$  ( $0,7$ ) mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit  $< 5\%$  ( $1\%$ ) als statistisch gesichert betrachten.

## 4. Ergebnisse

### 4.1 Charakterisierung des Pflanzenmaterials

#### 4.1.1 Zusammensetzung des Pflanzenmaterials

Den Ergebnissen der Tritiummessungen sollen zunächst einige Daten vorangestellt werden, die das Pflanzenmaterial charakterisieren und für die Beurteilung der Tritiummessungen nicht ohne Bedeutung sind.

In Tab. 4.1 sind die bei der Gefriertrocknung des Materials ermittelten Trockenmasseanteile der verschiedenen Pflanzenfraktionen Werten gegenübergestellt, die durch mehrstündige Trocknung bei 105° C erhalten wurden. Ein Vergleich der Werte zeigt, daß bei dem benutzten Gefriertrocknungsverfahren eine praktisch vollständige Trocknung erreicht wird. Die in Tab. 4.2 aufgeführten Asche- und Wasserstoffgehalte beziehen sich auf nach Oxidation im Verbrennungsautomaten erhaltene Werte. Die durch KF-Titration bestimmten Verbrennungswassermengen wurden unter Berücksichtigung der Ascheanteile und eines Wirkungsgrades von 82 % auf den Wasserstoffanteil der organischen Substanz umgerechnet. Den gemessenen sind in Tab. 4.3 die theoretischen Werte für einige Verbindungen sowie deren prozentuale Anteile an den eßbaren Teilen von Radies, Möhre und Bohne (nach Souci et al., 1981) gegenübergestellt. Für die meisten Makromoleküle können selbstverständlich nur ungefähre Werte errechnet werden. So ist der H-Gehalt des Pektins vom Methylierungsgrad, derjenige des Lignins stark vom Vernetzungsgrad abhängig (s. Denffer, 1983). Als Beispiel eines Fettes wird ein mehr oder weniger willkürlich herausgegriffenes Neutrallipid angegeben - für polare Lipide ergeben sich etwas niedrigere Werte -, die aufgeführten Aminosäuren kommen nach Souci et al. (1981) relativ häufig in Karotten und Schnittbohnen vor. Die Schwankungen der experimentell ermittelten H-Anteile dürften z.T. auf jeweils unterschiedliche Zusammensetzung der Pflanzenteile, z.T. aber auch auf experimentelle Einflüsse wie z.B. leichte Schwankungen des Oxidizer-Wirkungsgrades zurückzuführen sein. Der Vergleich mit Tab. 4.3 zeigt jedoch, daß bei Berücksichtigung des zugrundegelegten Wirkungsgrades sinnvolle Werte gemessen werden.

Tab. 4.1: Trockenmassegehalte (in % Frischgewicht) der verschiedenen Pflanzenfraktionen. Gemessen nach Gefriertrocknung (Mittelwerte und Standardabweichungen der Meßwerte einzelner Versuche), nach Trocknung bei 105° C und Literaturwerte (Souci et al., 1981).

Pflanzenmaterial	Gefriertrocknung		105° C		Literatur
	$\bar{x}$	s	$\bar{x}$	s	
Radies					
Blätter	8,3	0,5	8,8	0,4	-
Blattspreiten	11,6	1,3	11,9	1,1	-
Blattstiele	5,4	0,7	7,8	0,9	-
Knollen	5,3	0,5	6,6	0,6	4,5-6,7
Möhre					
Blattspreiten	16,5	1,9	-	-	-
Blattstiele	8,5	0,6	-	-	-
Rüben	9,6	0,9	-	-	10,3-12,5
Buschbohne					
Blattspreiten	13,6	0,6	16,2	-	-
Blattstiele	19,6	1,3	-	-	-
Stengel	22,4	1,1	19,9	-	-
Früchte	10,3	0,7	15,3	-	8,5-11,1

Tab. 4.2: Aschegehalte (in % Trockenmasse) und Wasserstoffgehalte (in % Organische Substanz) der verschiedenen Pflanzenfraktionen (Mittelwerte und Standardabweichungen der Meßwerte einzelner Versuche).

Pflanzen- material	Aschegehalt [% Tr.M.]		Wasserstoffgehalt [% Org. Subst.]	
	$\bar{x}$	s	$\bar{x}$	s
Radies				
Blätter	16,1	1,3	5,8	0,2
Blattspreiten	11,7	1,3	6,3	0,3
Blattstiele	18,2	1,5	5,4	0,3
Knollen	14,9	2,7	5,8	0,6
Möhre				
Blattspreiten	13,1	4,3	6,5	0,6
Blattstiele	26,5	3,4	6,6	0,4
Rüben	10,1	2,5	5,8	0,4
Buschbohne				
Blattspreiten	15,1	1,2	6,2	0,2
Blattstiele	5,3	1,5	5,8	0,3
Stengel	3,4	0,7	5,6	0,2
Früchte	5,3	0,6	5,4	0,2

Tab. 4.3: Theoretische Wasserstoffgehalte (in % Organische Substanz) bestimmter Stoffklassen bzw. Verbindungen und deren Gehalte (in % Trockenmasse) in den eßbaren Anteilen der Versuchspflanzen nach Souci et al. (1981).

Stoffklasse Verbindung	theoret. Wasserstoff- gehalte	Gehalt [% Tr. M.] in		
		Radieschen	Möhre (Karotten)	Bohne (Schnittbohnen)
Kohlenhydrate + Rohfaser	-	62,7	82,7	65,5
Saccharose	6,4	2,0	14,9	4,4
Cellulose	6,2	12,5	8,1	15,0
Pektin*	ca. 5	7,1	11,4	14,3
Lignin	< 5-6	0,7	0,5	9,1
Protein	-	18,8	8,3	24,6
Leucyl-Valyl- Cystein	8,1	-	-	-
Fett	-	2,5	1,7	2,5
Trioleyl- glycerin	11,2	-	-	-

\*zu ca. 50 % methylierte Polygalakturonsäure

#### 4.1.2 Blattdiffusionswiderstände

Von besonders großer Bedeutung für die Aufnahme von (Tritium-)Wasserdampf sind die Diffusionswiderstände der Oberflächen der Pflanzenteile, die wesentlich von der Struktur der Epidermis bestimmt werden. Abb. 4.1 und 4.2 zeigen jeweils lichtmikroskopische Aufnahmen der Epidermis des Blattstiels und der Blattspreite von Radies. Deutlich sind dabei zahlreiche Spaltöffnungen in der Epidermis der Blattspreite zu erkennen, die sich bei Radies in ähnlicher Zahl an Blattober- und -unterseite finden (amphisto-

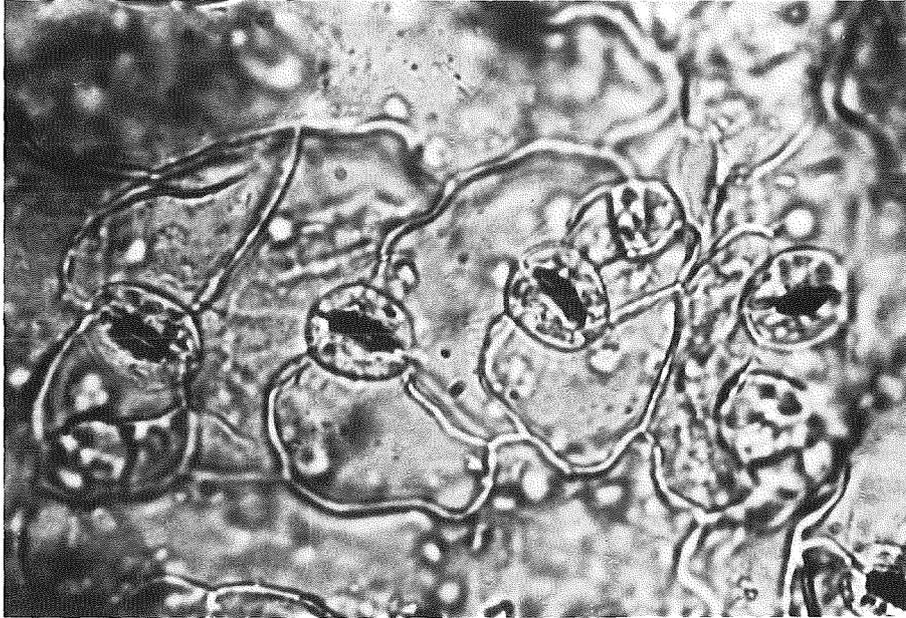


Abb. 4.1: Radies, Blattstiel, Epidermis in der Aufsicht, ZEISS-Lichtmikroskop, Vergr. 250 x.

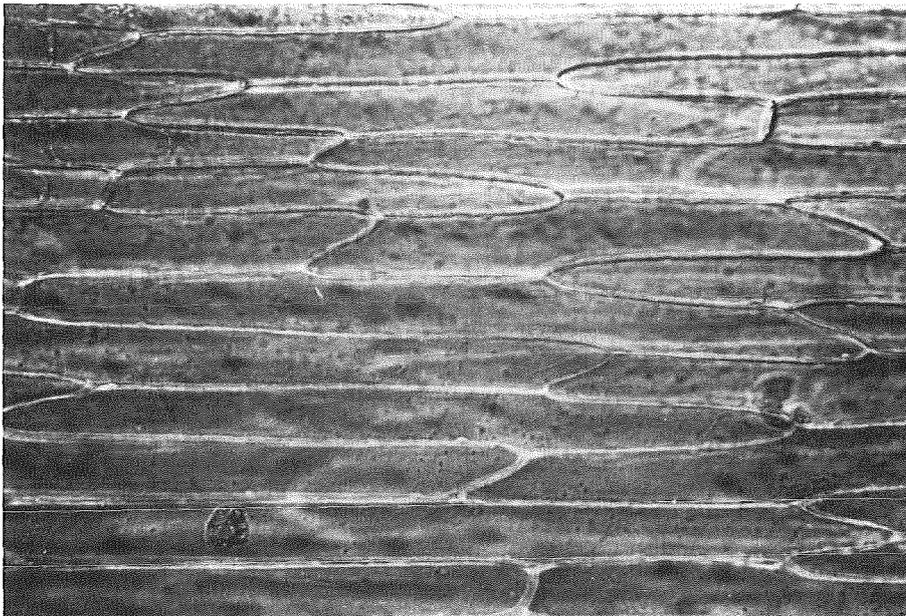


Abb. 4.2: Radies, Blattunterseite, Epidermis in der Aufsicht, ZEISS-Lichtmikroskop, Vergr. 800 x

matische Blätter), während bei der Bohne die Zahl der Stomata auf der Unterseite überwiegt (Verhältnis nach Flindt, 1985: 7:1). Diese Unterschiede machen sich bei der Messung des Diffusionswiderstandes mit einem Porometer (LI-1600 Steady State Porometer, LI-COR inc., USA) bemerkbar: an der Oberseite von Bohnenblättern ließ sich nur ein unendlich großer Diffusionswiderstand messen, während er an der Unterseite  $3,5 \pm 0,6$  s/cm (Mittelwert  $\pm$  Standardfehler; PAR ca.  $150 \mu\text{E}/\text{m}^2\text{s}$ ) betrug. Unter ähnlichen Bedingungen (PAR ca.  $190 \mu\text{E}/\text{m}^2\text{s}$ ) wurden dagegen an Radiesblättern  $5,3 \pm 1,1$  s/cm (oben) und  $3,7 \pm 0,6$  s/cm (unten) gemessen.

Ein Blattdiffusionswiderstand ( $r$ ) läßt sich auch über die Messung des Wasserverlustes der Pflanze nach Gl. (4.1) bestimmen (s. auch Gl. (4.14), Abschn. 4.3.4.1). In diesem Falle erhält man einen empirischen Durchschnittswert für die Blätter der ganzen Pflanze unter Mitberücksichtigung des (relativ geringen) Grenzschichtwiderstandes.

$$r = \frac{\rho_s - \rho}{Tr} = \frac{E}{Tr} \quad [\text{s/cm}] \quad \text{Gl. (4.1)}$$

Der auf diese Weise während eines HTO-Begasungsversuches an Radiesblättern (s. Abschn. 3.2.1) ermittelte Wert lag bei  $6,6 \pm 0,5$  s/cm ( $150 \mu\text{E}/\text{m}^2\text{s}$ ) und damit etwas höher als die Porometerwerte. Unter Beachtung der ein wenig unterschiedlichen Lichtintensitäten (und eventueller Meßfehler des Gerätes und bei der Bestimmung der Blattflächen) erscheinen die Werte jedoch vergleichbar.

#### 4.1.3 Wachstumsraten

Während der Aufzucht der Versuchspflanzen wurden bei einigen Radies- und Bohnenpflanzen durch Trockenmasse-Auswaage Wachstumsraten nach Sestak et al. (1971) bestimmt (s. Abschn. 3.1.3). Sie sollen als einfaches Vergleichsmaß für die Zunahmeraten von organisch gebundenem Tritium dienen.

In Tab. 4.4 sind die Meßwerte der Trockenmasse-Auswaage und die daraus errechneten Raten aufgeführt. Bei Betrachtung der Werte fällt die - auch allgemein zu beobachtende (Sestak et al., 1971) - Abnahme der Raten mit dem zunehmenden Alter der Pflanzen auf. Der Aufbau der Knolle macht sich bei Radies in der 4. Woche am stärksten in hohen  $\alpha_W$ -Werten bemerkbar. Ein entsprechender Effekt ist bei der Bohne bei der Bildung der Früchte zu beobachten.

Tab. 4.4: Durch Trockenmasse-Auswaage ermittelte Wachstumsraten von Radies und Buschbohne.

Tage nach der Aussaat	Trockenmasse pro Pflanze [mg]		$R_W$	$R_{Bl}$	P	$\alpha_W$	Beleuchtung	PAR $\frac{\mu E}{m^2 s}$	
	Ges.	Blätter	[d <sup>-1</sup> ]						
Radies									
17	115	115	-	-	-	-	Leuchtstoff- Lampen (12 h)  Tageslicht + HÖL-Zusatz-bel. (14 h)	300	
24	413	281	0,183	0,128	0,229	1,43		300	
32	903	428	0,098	0,053	0,173	1,86		190	
34	878	387	-	-	-	-		190	
40	1253	646	0,059	0,085	0,124	0,69		190	
47	1662	936	0,040	0,053	0,075	0,76		190	
Buschbohne									
14	272	125	-	-	-	-		ca. 100 - 400	
19	549	287	0,140	0,166	0,284	0,84			
27	1522	900	0,127	0,143	0,227	0,89			
53	7356	2553	0,061	0,040	0,130	1,51			

## 4.2 Versuche zur Aufnahme und zum Umsatz von HTO

### 4.2.1 Erläuterung der benutzten Abkürzungen und Begriffe

Da bei der Beschreibung der Tritiummeßergebnisse mit einigen Gleichungen gearbeitet wird, in denen zahlreiche Symbole vorkommen, seien die Abkürzungen und Größen kurz erläutert.

Für Aktivität wird grundsätzlich das Symbol A, für spezifische Aktivität, für die hier auch synonym der Begriff Tritiumkonzentration gebraucht wird (1 g H<sub>2</sub>O  $\hat{=}$  1 ml H<sub>2</sub>O), wird C benutzt. Fläche wird mit F, Masse mit m, Zeitkonstanten in Exponentialfunktionen (Änderungsraten, Steigungsraten) werden mit k bezeichnet. Die berechneten Änderungsraten werden in den meisten Fällen durch die Angabe der etwas anschaulicheren Größe  $t_{1/2} = \ln 2/k$  ergänzt. Diese Größe wird als Halbwertszeit bezeichnet. Der Begriff wird also im weitesten Sinne gebraucht, sowohl für abnehmende (z. B. Ausscheidung) als auch für zunehmende Vorgänge (z. B. Aufnahme). Im letzteren Fall gibt  $\ln 2/k$  diejenige Zeit an, in der 50 % des Gleichgewichtswertes erreicht werden.

Die einzelnen Größen werden gegebenenfalls durch Indizes näher spezifiziert. Dabei bezieht sich die erste Ziffer (i) auf die Form, in der der Wasserstoff bzw. das Tritium vorliegt; es bedeuten:

i = 0 :	atmosphärisches HTO
1 :	HTO, Gewebewasser
2 :	OBT, Verbrennungswasser
3 :	OBT <sub>nx</sub> , Trockensubstanz

Die zweite Ziffer (j) bezieht sich auf die Pflanzenfraktion, mit:

j = 1 :	Blatt bzw. Blattspreite
2 :	Blattstiel
3 :	Stengel bzw. Knolle bzw. Rübe
4 :	Frucht
5 :	Boden

Beispiele:

A <sub>34</sub> :	Aktivität des OBT <sub>nx</sub> von Früchten
C <sub>21</sub> :	spezifische Aktivität des OBT von Blättern

#### 4.2.2 Versuch I: HTO-Vakuuminfiltration

In Vorversuchen hatte sich gezeigt, daß bei HTO-Begasungsversuchen - u. a. aufgrund von sich stark ändernden HTO-Konzentrationen in den Blättern - die Beurteilung des organisch gebundenen Tritiums, vor allem die Unterscheidung zwischen austauschbar und nicht austauschbar gebundenem, Schwierigkeiten bereiten konnte. Daher wurden Experimente durchgeführt, bei denen das HTO durch Vakuuminfiltration in die Blätter gebracht wurde. Dieses Verfahren hat den Vorteil, daß die Aktivität zunächst rasch ins Gewebe eindringt und sich ihre Konzentration anschließend relativ wenig ändert. Außerdem kann das Gewebe dann auch im Dunkeln gehalten und so Photosynthese ausgeschlossen werden.

Die Ergebnisse von Messungen an Blättern, die nach dem Infiltrieren dunkel gehalten worden waren, sind in Tab. 4.5 aufgeführt. Angegeben sind die Konzentrationen des Tritiums im freien Gewebewasser, des organisch gebundenen Tritiums und seines nicht austauschbaren Anteils (mit den jeweiligen 2s-Meßfehlern). Wie die Tabelle zeigt, findet sich unter diesen Bedingungen auch nach 24stündigem Einwirken der Infiltrationslösung (ca. 2700 Bq/g H<sub>2</sub>O) nur ein sehr geringer Anteil an nicht austauschbar organisch gebundenem Tritium in Höhe von etwa 1 % der spezifischen Aktivität des Gewebewassers. In der letzten Spalte der Tabelle ist der Anteil an austauschbar gebundenem Tritium als  $R_{ex}$ -Wert aufgeführt. Diese Größe wurde berechnet als Verhältnis der Differenz der spezifischen Aktivitäten von OBT und OBT<sub>nx</sub> zur spezifischen Aktivität des Gewebewassers (s. Abschn. 3.6.1.2). Bereits nach 10 min. hat dieses Verhältnis einen Maximalwert erreicht. Daß der Wert im weiteren Verlauf des Versuchs wieder absinkt, erscheint überraschend. Zufällige Meßwertschwankungen sind auszuschließen, nach den 2s-Meßfehlern beurteilt (s. Abschn. 3.6.1.1 und 3.6.1.2), sind die Unterschiede statistisch signifikant. Die nächstliegende Erklärung sind Einflüsse bei der Gefriertrocknung bzw. bei der anschließenden Aufbewahrung des getrockneten Materials und der Überführung zur Veraschung. Aufgrund eben der Austauschbarkeit des solchermaßen gebundenen Tritiums besteht bei der Handhabung des Materials ein sehr großes Risiko eines Rückaustausches von Tritiumatomen mit inaktiver Luftfeuchtigkeit. Bei diesem zeitlich ersten der hier geschilderten Versuche fehlten noch wichtige Erfahrungen (rasche Handhabung, konsequentes Arbeiten unter N<sub>2</sub>) zur Beherrschung dieses Problems (bzw. hier wurden diese Erfahrungen gemacht).

Beim belichteten Ansatz (Tab. 4.6) scheint ebenfalls bereits beim ersten Erntezeitpunkt ein Gleichgewicht hinsichtlich des Tritiumaustauschs er-

Tab. 4.5: Versuch I: Vakuumfiltration von Radiesblättern. Spezifische Aktivitäten und Verhältnis  $R_{ex}$  nach Dunkelhalten der infiltrierten Blätter ( $\pm 2s$ -Meßfehler).

Zeit [h]	H <sub>2</sub> O (C <sub>1</sub> )	OBT (C <sub>2</sub> )	OBT <sub>nx</sub> (C <sub>3</sub> )	$R_{ex}$
	[Bq/g H <sub>2</sub> O]			
0,17	1472 $\pm$ 73	303 $\pm$ 26	8,6 $\pm$ 1,6	0,20 $\pm$ 0,02
0,5	1719 $\pm$ 85	354 $\pm$ 30	10,3 $\pm$ 1,2	0,20 $\pm$ 0,02
1,0	1957 $\pm$ 96	298 $\pm$ 26	14,5 $\pm$ 1,6	0,14 $\pm$ 0,02
2,0	2204 $\pm$ 108	351 $\pm$ 30	- -	- -
3,0	2261 $\pm$ 111	346 $\pm$ 20	19,3 $\pm$ 2,0	0,14 $\pm$ 0,02
5,0	- -	- -	- -	- -
24	2528 $\pm$ 124	358 $\pm$ 31	27,8 $\pm$ 2,6	0,13 $\pm$ 0,02

Tab. 4.6: Versuch I: Vakuumfiltration von Radiesblättern. Spezifische Aktivitäten und Verhältnis  $R_{ex}$  nach Belichtung (ca. 350  $\mu E/m^2 s$ ) der infiltrierten Blätter ( $\pm 2s$ -Meßfehler).

Zeit [h]	H <sub>2</sub> O (C <sub>1</sub> )	OBT (C <sub>2</sub> )	OBT <sub>nx</sub> (C <sub>3</sub> )	$R_{ex}$
	[Bq/g H <sub>2</sub> O]			
0,17	- -	- -	- -	- -
0,5	1759 $\pm$ 87	342 $\pm$ 29	20,1 $\pm$ 2,0	0,18 $\pm$ 0,02
1,0	2082 $\pm$ 102	386 $\pm$ 33	27,2 $\pm$ 2,6	0,17 $\pm$ 0,02
2,0	2378 $\pm$ 117	401 $\pm$ 34	39,8 $\pm$ 3,6	0,15 $\pm$ 0,02
3,0	2504 $\pm$ 123	465 $\pm$ 40	55,1 $\pm$ 4,9	0,16 $\pm$ 0,02
5,0	2533 $\pm$ 124	509 $\pm$ 43	70,2 $\pm$ 6,2	0,17 $\pm$ 0,02
24	2555 $\pm$ 125	723 $\pm$ 61	218 $\pm$ 19	0,20 $\pm$ 0,03

reicht zu sein; die  $R_{ex}$ -Werte schwanken auch ein wenig, es läßt sich jedoch kein zeitlicher Trend erkennen. Ohne daß dies bewiesen werden könnte, dürfte dieser Unterschied zwischen unbelichtetem und belichtetem Material nicht auf unterschiedliche Reaktionen während der Exposition, sondern auf die erwähnten experimentellen Einflüsse zurückzuführen sein, die bei der Fehlerangabe unberücksichtigt sind. Bildet man daher ungeachtet der "signifikanten" Unterschiede der Werte jeweils ein arithmetisches Mittel, zeigt sich mit  $\bar{R}_{ex} = 0,16$  für den Dunkelansatz und  $\bar{R}_{ex} = 0,17$  für die belichteten Blätter eine Vergleichbarkeit der Ansätze bezüglich des austauschbar organisch gebundenen Tritiums.

Zusätzlich findet sich dagegen bei Belichtung ein mit der Zeit ansteigender Anteil an nicht austauschbar organisch gebundenem Tritium, dessen Konzentration nach 24 h 8,5 % der HTO-Konzentration beträgt.

#### 4.2.3 Versuch II: HTO-Begasung von Radiespflanzen

##### 4.2.3.1 HTO-Aufnahme in die Blätter

Beim ersten Experiment, bei dem Radiespflanzen einer Atmosphäre ausgesetzt waren, deren Luftfeuchtigkeit Tritium in einer annähernd konstanten Konzentration enthielt, wurden die Blätter der Pflanzen einschließlich der Blattstiele und die Knollen (Radieschen) getrennt auf ihre Aktivitätsaufnahme untersucht.

Die Temperatur während der Exposition betrug  $18^{\circ}\text{C}$ , die relative Luftfeuchte 70 % rF und die Beleuchtungsintensität während der gesamten Begasungsdauer von 46 h in Höhe der Blätter ca. 5000 Lux, entsprechend einer photosynthetisch aktiven Strahlung von ca.  $90 \mu\text{E}/\text{m}^2 \text{s}$ . Vor dem Einsetzen in den Prüfraum wurden die Pflanzen für 1 h mit einer 400 W HQL-Lampe bestrahlt, um ein Öffnen der Stomata auszulösen.

Ziel dieses Versuches war es, die Charakteristik der HTO-Aufnahme bei konstanter Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit kennenzulernen. Von besonderem Interesse war dabei die Höhe einer eventuellen Gleichgewichtstritiumkonzentration im Gewebewasser der Blätter.

Die Meßwerte in Abb. 4.3. zeigen, daß ein solcher Gleichgewichtszustand

auf einem bestimmten Niveau unterhalb der spezifischen Aktivität der Luftfeuchtigkeit erreicht wird. Zur rechnerischen Schätzung der Höhe dieser Gewebewasseraktivität wurde nicht die Mittelwertbildung, sondern eine nicht-lineare Regression benutzt, um dadurch unter Einbeziehung der Meßwerte aus der Anfangsphase der Exposition auch eine Aussage über die Geschwindigkeit der Aktivitätsaufnahme zu erhalten. Als anzupassende Funktion wurde dabei folgende Exponentialfunktion verwendet:

$$C_{11} = C_{11}^{\infty} (1 - e^{-k_1^{\text{eff}} t}) \quad \text{Gl. (4.2)}$$

Diese Gleichung entspricht der "Grundform" des in der Literatur (Belot et al., 1979; Couchat et al., 1983) aus theoretischen Überlegungen zur Berechnung der Tritiumaufnahme durch Blätter hergeleiteten Modells. Sie wurde auch von Kline und Stewart (1974) und von Dinner et al. (1980) zu eher deskriptiven Zwecken benutzt. In diesem Sinne soll sie hier zunächst auch angewandt werden. Mit Hilfe der Regressionsanalyse werden 2 Parameter geschätzt: die Gleichgewichts-Tritiumkonzentration  $C_{11}^{\infty}$  und die Anstiegsrate der Tritiumkonzentration  $k_1^{\text{eff}}$ , die sozusagen die "relative Geschwindigkeit" angibt. Mit der in Abschn. 3.6.2 geschilderten Methode (Programm im Anhang) erhält man die Werte  $C_{11}^{\infty} = 2486 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$  und  $k_1^{\text{eff}} = 0,53 \text{ h}^{-1}$  ( $B = 0,959$ ). Zu einem Vergleich mit der Aktivität der Luftfeuchtigkeit muß auch deren Tritiumkonzentration angegeben werden können. Entgegen der Versuchsplanung war die spezifische Aktivität der Luftfeuchtigkeit nicht völlig konstant, sondern sank - wohl durch Transpiration der Pflanzen - von einem Anfangswert von  $4820 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$  auf einen etwas niedrigeren Gleichgewichtswert ab. Zur Angabe dieses Gleichgewichtswertes wird deshalb ebenfalls kein Mittelwert gebildet, sondern wiederum - zu rein deskriptiven Zwecken - eine Regression gerechnet, wobei die Information aller Meßpunkte benutzt werden kann. Zur Beschreibung dieses Aktivitätsverlaufes scheint die Annahme geeignet, daß die Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit exponentiell um die Differenz zwischen Anfangswert  $C_0^0$  und Gleichgewichtswert  $C_0^{\infty}$  auf eben diesen Wert  $C_0^{\infty}$  abnimmt, was sich mit Hilfe folgender Formel ausdrücken läßt:

$$C_0 = C_0^{\infty} + (C_0^0 - C_0^{\infty}) e^{-k_0 t} \quad \text{Gl. (4.3)}$$

Mit der Regression erhält man einen Gleichgewichtswert von  $4230 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$ . Dies bedeutet, daß im Gleichgewichtszustand die spezifische Aktivität des Gewebewassers der Blätter 59 % der spezifischen Aktivität der Luftfeuchtig-

keit erreicht; d. h. für den Quotienten aus den spezifischen Aktivitäten erhält man:

$$f = \frac{C_{11}^{\infty}}{C_0^{\infty}} = \frac{2486 \text{ Bq/g H}_2\text{O}}{4230 \text{ Bq/g H}_2\text{O}} = 0,588$$

Dieser Wert läßt sich bereits mit dem nach dem erwähnten Modell erwarteten theoretischen Verhältnis  $f_B$  vergleichen. Nach Gl. (2.5) ergibt sich hierfür entsprechend der relativen Luftfeuchte von 70 % rF ( $\rho/\rho_s \approx 0,70$ ) ein deutlich höherer Wert  $f_B = 0,77$ . Die Anwendbarkeit des Modells setzt jedoch voraus, daß im flüssigen Gewebewasser des Blattes die gleiche Tritiumkonzentration wie in der Gasphase der Interzellularräume erreicht wird. Bei den verwendeten Radiesblättern mit ihrem kräftigen, "fleischigen" Stiel darf dies nicht unbedingt angenommen werden. Es wurde daher vermutet, daß bei getrenntem Messen des Gewebewassers von Blattspreite und Blattstiel andere, differenziertere Ergebnisse erhalten würden. In weiteren Versuchen sollte dies geprüft werden.

Ein unmittelbarer Vergleich der gemessenen Aufnahmerate  $k_1$  mit der nach dem Modell von Belot berechneten  $k_B$  war für diesen Versuch nicht vorgesehen, Messungen aller hierfür benötigten Größen wurden nicht durchgeführt. Ein Problem bei diesem Vergleich wäre auch die gerade in der wichtigen Anfangsphase nicht konstante Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit. Daher wurde oben auch eine effektive Anstiegsrate  $k_1^{\text{eff}}$  angegeben. Um den tatsächlichen Einfluß einer zeitlich veränderlichen Konzentration  $C_0(t)$  auf den Wert der eigentlichen Aufnahmerate beurteilen zu können und um in weiteren Versuchen gegebenenfalls eine besser vergleichbare Rate  $k_1$  berechnen zu können, wurde ein Weg gesucht, diesen Effekt mathematisch mitzuberücksichtigen. Für die Interpretation der Tritiumaufnahme ins Gewebewasser des Blattes wurde deshalb eine geeignet erscheinende Funktion (Gl. (4.6) bzw. (4.7)) verwendet, deren Herleitung - im folgenden zusammengefaßt dargestellt - von König (1985) mitgeteilt wurde:

Man geht davon aus, daß der Aufnahmeprozess durch folgende Differentialgleichung beschrieben wird:

$$\frac{dC_{11}}{dt} = -k_1 C_{11} + k_1 f C_0(t) \quad \text{Gl. (4.4)}$$

Diese Gleichung entspricht Gl. (2.3), wobei nun die nicht näher erklärten Parameter  $f$  und  $k_1$  verwendet sind (und ausmultipliziert und umgestellt wurde). Für den Fall  $C_O(t) = \text{konstant}$  lautet die Lösung dieser Differentialgleichung (vgl. Gl. (2.4), Gl. (4.2)):

$$C_{11} = fC_O (1 - e^{-k_1 t}) \quad \text{Gl. (4.5)}$$

Ist  $C_O$  dagegen zeitlich veränderlich, so ergibt sich mit  $C_{11} = 0$  für  $t = 0$  folgende Lösung:

$$C_{11} = k_1 f e^{-k_1 t} \int_0^t C_O(t') e^{k_1 t'} dt' \quad \text{Gl. (4.6)}$$

Im vorliegenden Fall wurde der Verlauf von  $C_O$  durch Gl. (4.3) beschrieben. Setzt man diese Gleichung für  $C_O(t)$  in Gl. (4.6) ein, erhält man:

$$C_{11} = fC_O^{\infty}(1 - e^{-k_1 t}) + f(C_O^0 - C_O^{\infty}) \frac{k_1}{k_1 - k_0} (e^{-k_0 t} - e^{-k_1 t}) \quad \text{Gl. (4.7)}$$

Die Funktion ist definiert für  $k_1 \neq k_0$  und geht für  $C_O^0 - C_O^{\infty} \rightarrow 0$  erwartungsgemäß in Gl. (4.5) über.

Die Anpassung von Gl. (4.3) an die Aktivitätsmeßwerte der Luftfeuchtigkeit lieferte folgende Werte für die Parameter der Regressionsfunktion:

$$C_O^{\infty} = 4230 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$C_O^0 - C_O^{\infty} = 580 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$k_0 = 0,42 \text{ h}^{-1}$$

$$(B = 0,962)$$

Zur Bestimmung von  $f$  und  $k_1$  in Gl. (4.7) wurden diese Werte (als Konstanten) eingesetzt und dann wieder eine Regression gerechnet -

mit folgenden Ergebnissen:

$$\begin{aligned}
 f &= 0,587 \\
 k_1 &= 0,46 \text{ h}^{-1} \\
 t_{1/2} &= 1 \text{ h } 30 \text{ min.} \\
 (B &= 0,959)
 \end{aligned}$$

Die Ausgleichskurve mit diesen Werten sowie die Kurve nach Gl. (4.3) für die Luftfeuchtigkeit ist zusammen mit den jeweiligen Meßwerten in Abb. 4.3 eingetragen.

Wie kaum anders zu erwarten, unterscheiden sich die nach Gl. (4.2) und Gl. (4.7) ermittelten  $f$ -Werte kaum: die Lage des Gleichgewichts ist unabhängig vom die Kinetik der Aufnahme beschreibenden Modell. Die über Gl. (4.7) geschätzte Aufnahme rate  $k_1$  ist um ca. 13 % kleiner als die zunächst berechnete effektive Zunahmerate der HTO-Konzentration  $k_1^{eff}$ ; die entsprechenden Halbwertszeiten (Zeit bis zum Erreichen halbmaximaler Werte) unterscheiden sich um ca. 11 min. ( $t_{1/2}^{eff} = 1 \text{ h } 19 \text{ min.}$ ). Dieser Unterschied ist gering, aber immerhin feststellbar. Leider ließ sich auch in den folgenden Versuchen das Problem einer sich leicht ändernden Tritiumkonzentration der

Tab. 4.7: Versuch II: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Spezifische Aktivität des freien Wassers von Knollen und Boden und Verhältnis dieser Aktivitäten sowie Verhältnis der spezifischen Aktivitäten des freien Wassers von Blättern und Boden ( $\pm 2s$ -Meßfehler. Nachweisgrenze für die HTO-Messungen: 0,053 Bq/g H<sub>2</sub>O).

Zeit [h]	HTO Bo. (C <sub>15</sub> )	HTO Kn. (C <sub>13</sub> )	$\frac{C_{13}}{C_{15}}$	$\frac{C_{11}}{C_{15}}$
	[Bq/g H <sub>2</sub> O]			
0,5	0,76 $\pm$ 0,09	0,41 $\pm$ 0,08	0,54 $\pm$ 0,13	618 $\pm$ 80
1,5	0,44 $\pm$ 0,08	0,56 $\pm$ 0,08	1,27 $\pm$ 0,30	2930 $\pm$ 552
3,0	1,01 $\pm$ 0,11	1,00 $\pm$ 0,11	0,99 $\pm$ 0,16	2201 $\pm$ 263
5,8	1,21 $\pm$ 0,12	1,23 $\pm$ 0,12	1,02 $\pm$ 0,15	1751 $\pm$ 194
22,0	6,13 $\pm$ 0,36	5,33 $\pm$ 0,32	0,87 $\pm$ 0,08	414 $\pm$ 32
26,0	13,6 $\pm$ 0,8	7,26 $\pm$ 0,42	0,53 $\pm$ 0,05	182 $\pm$ 14
30,0	5,56 $\pm$ 0,33	3,85 $\pm$ 0,25	0,69 $\pm$ 0,06	435 $\pm$ 34
46,0	5,05 $\pm$ 0,31	5,71 $\pm$ 0,34	1,13 $\pm$ 0,10	517 $\pm$ 41

Luftfeuchtigkeit technisch nicht bewältigen. Zu einem Vergleich von beobachteten und nach dem Modell von Belot erwarteten Aufnahme­raten soll daher in den entsprechenden Versuchen der geschilderten Methode zur Schätzung von  $k_1$  der Vorzug gegeben werden.

#### 4.2.3.2 HTO-Aktivität der Knollen

Im Gegensatz zu den Blättern finden sich im Gewebewasser der Knollen auch nach zweitägiger Exposition der Pflanzen nur geringe Tritiumkonzentrationen. Da trotz des Abdeckens der Böden sich eine leichte Kontamination des Bodenwassers nicht vermeiden ließ, könnte die Aktivität des Gewebewassers in diesem Fall auf eine Aufnahme aus dem Boden zurückgeführt werden. In Tab. (4.7) sind die Verhältnisse der HTO-Konzentrationen von Gewebewasser der Radieschen und Bodenwasser sowie von Blatt- und Bodenwasser aufgeführt.  $C_{11}/C_{15}$  ist in allen Fällen um 2 bis 3 Zehnerpotenzen größer als  $C_{13}/C_{15}$ , das offenbar um 1 streut.

Aufgrund einer vermutlich inhomogenen Kontamination des Bodens und da die Bestimmung der Bodenaktivität in einer vergleichsweise kleinen Bodenprobe vorgenommen wird, dürfte sich für  $C_{13}/C_{15}$  ein von der Probenahme abhängiger Fehler ergeben, der die reinen Meßfehler übersteigt. Doch selbst bei Zugrundelegung nur des Meßfehlers wird in keinem Fall ein Wert erhalten, der signifikant  $> 1$  ist. Ein Einfluß von Blatt-HTO ist somit in den Speicherorganen nicht nachweisbar.

#### 4.2.3.3 Organisch gebundenes Tritium

Bei Betrachtung der spezifischen Aktivität des in der Trockensubstanz der Blätter gebundenen Tritiums läßt sich ein zunächst rasch ansteigender Verlauf feststellen, der in einem wesentlich flacheren übergeht, aber nach 46 h noch deutlich von einem Gleichgewicht entfernt zu sein scheint. Der Wert, der nach 46 h erreicht wird, beträgt dabei etwa 35 % der spezifischen Gewebewasseraktivität. Wenn man davon ausgeht, daß der unterschiedlich rasche Anstieg der OBT-Konzentration auf zwei verschiedene Anteile zurückzuführen ist, die mit jeweils unterschiedlicher Rate aus dem Gewebewasser mit der HTO-Konzentration  $C_{11}$  eingebaut werden, ließe sich der Vorgang

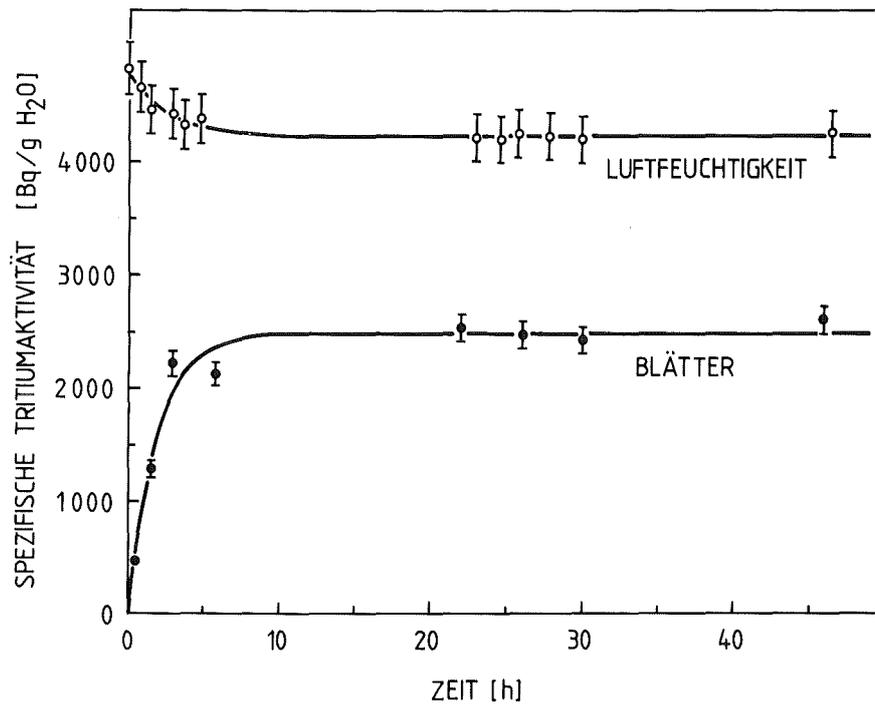


Abb. 4.3: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Verlauf der spezifischen Tritiumaktivitäten der Luftfeuchtigkeit und des freien Gewebewassers der Blätter.

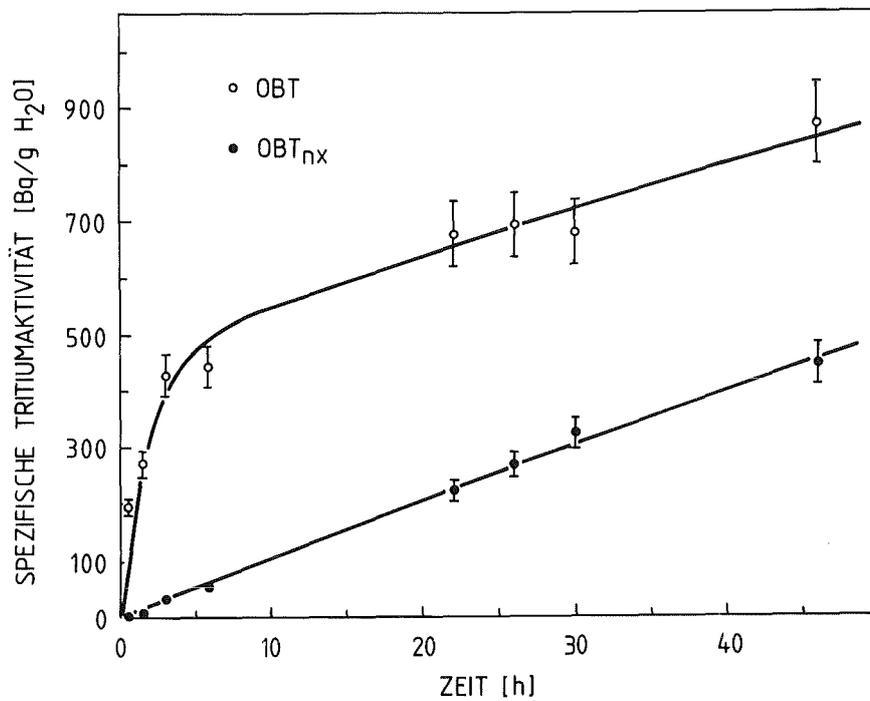


Abb. 4.4: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Verlauf der spezifischen Aktivität des OBt und des OBt<sub>nx</sub> der Blätter.

durch Addition zweier Exponentialfunktionen der Form von Gl. (4.2) beschreiben. Die Ergebnisse der Vakuuminfiltrationsversuche haben gezeigt, daß ein Protium-Tritium-Austausch von organischen Molekülen mit dem umgebenden Wasser mit einer sehr kurzen - in den Versuchen nicht meßbaren - Halbwertszeit abläuft. Man darf daher annehmen, daß der schnelle Anstieg durch diesen Austausch zustande kommt und die Anstiegsrate durch die Zunahme der HTO-Konzentration  $k_1^{eff}$  bestimmt wird. Für die langsame Komponente wird ein Einbau durch Photosynthese und eine Zunahmerate  $k_{31}$  angenommen. Für einen theoretischen, unendlich langen Zeitraum wird das Erreichen eines Gleichgewichtswertes in Höhe der Tritiumkonzentration des Gewebewassers  $C_{11}^{\infty}$  für möglich gehalten, durch den Austausch sollte ein Maximalwert von  $R_{ex} \cdot C_{11}^{\infty}$  erreicht werden. Dabei bedeutet  $R_{ex}$  das Verhältnis der Konzentrationen von  $OBT_{ex}$  und HTO, das dem Anteil der austauschbaren Wasserstoffatome am gesamten organischen Wasserstoff entspricht. Als Gleichung kann für die Zunahme der spezifischen Aktivität des gesamten  $OBT$  der Blätter  $C_{21}$  formuliert werden:

$$C_{21} = C_{11}^{\infty} (1 - R_{ex} e^{-k_1^{eff} t} - (1 - R_{ex}) e^{-k_{31} t}) \quad \text{Gl. (4.8)}$$

Setzt man für  $C_{11}^{\infty}$  und  $k_1^{eff}$  die bereits berechneten, gerundeten Werte 2490 Bq/g  $H_2O$  und  $0,53 \text{ h}^{-1}$  ein, so ergibt die Anpassung von Gl. (4.8) an die Meßwerte:

$$R_{ex} = 0,185$$

$$k_{31} = 0,0046 \text{ h}^{-1}$$

$$(B = 0,965)$$

Für den Anteil des austauschbaren Tritiums erhält man also einen Wert von 18,5 %, was mit dem Befund der Vakuuminfiltrationsversuche gut vergleichbar ist.

In Abb. (4.4) sind dieser Kurvenverlauf und die Meßwerte eingezeichnet; ebenso der Verlauf des  $OBT_{nx}$ . Diese Meßpunkte liegen praktisch auf einer Geraden ( $r^2 = B = 0,995$ ), lassen sich aber wohl treffender entsprechend der oben angesprochenen Betrachtungsweise beschreiben: Für die Gleichung

$$C_{31} = C_{11}^{\infty} (1 - e^{-k_{31}t}) \quad \text{Gl. (4.9)}$$

ergibt die Anpassung dann die Rate:

$k_{31} = 0,0044 \text{ h}^{-1}$  ( $t_{1/2} = 158 \text{ h}$ ,  $B = 0,997$ ), die sehr gut mit der langsamen Anstiegsrate von  $0,0046 \text{ h}^{-1}$  für das gesamte OBT übereinstimmt. Die Konzentration dieses nicht austauschbaren Tritiums, das auf photosynthetischen Einbau zurückgeführt wird, beträgt nach 46 h mit  $447 \pm 38 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$  18 % der HTO-Konzentration.

Der entsprechende  $OBT_{nx}$ -Wert der Knollen liegt mit  $88,9 \pm 7,6 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$  deutlich niedriger, aber um ein Vielfaches über der HTO-Konzentration der Knollen.

Es fällt außerdem auf, daß sich hier die OBT- und  $OBT_{nx}$ -Konzentrationen praktisch in keinem Fall signifikant unterscheiden - der Gesamt-OBT-Wert bei 46 h beträgt z.B.  $87,9 \pm 7,5 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$ . Diese Befunde stimmen gut mit der Vorstellung überein, daß das austauschbare Tritium im direkten Gleichgewicht mit dem Gewebewasser steht - und sich so bei den niedrigen HTO-Konzentrationen der Radieschen in diesen nicht finden läßt - und daß die OBT-Aktivität der Radieschen von in den Blättern photosynthetisiertem und in die Speicherorgane transportiertem Material hervorgerufen wird.

Ein direkter Vergleich der  $OBT_{nx}$ -Konzentrationen der Radieschen mit denjenigen der Blätter wird bei dieser Betrachtungsweise dadurch erschwert, daß diese Konzentrationen nicht nur von der Menge der transportierten Substanz, sondern auch von der bereits vorhandenen Biomasse der Knollen abhängig sind. Es soll daher versucht werden, eine mittlere Gesamtkonzentration an fest eingebautem Tritium für die ganze Pflanze anzugeben. Dazu ist eine Wichtung mit dem Wasserstoffgehalt bzw. mit der Trockenmasse der Pflanzenfraktionen erforderlich. Die Gesamt- $OBT_{nx}$ -Konzentration ( $C_3$ ) wird demnach berechnet aus der absoluten Gesamt- $OBT_{nx}$ -Aktivität ( $A_3$ ) und der Gesamtmenge an Verbrennungswasser ( $m_2$ ):

$$C_3 = \frac{A_3}{m_2} = \frac{\sum_j \gamma_j m_{3j} C_{3j}}{\sum_j \gamma_j m_{3j}} \quad \text{Gl. (4.10)}$$

mit  $m_{3j}$  : Trockenmasse der jeweiligen Pflanzenfraktion.

Mit  $\gamma$  sei das Verhältnis von Verbrennungswassermenge und der entsprechenden Trockenmasse bezeichnet ( $m_2/m_3$ ). Die im vorliegenden Fall tatsächlich geringen Unterschiede der  $\gamma$ -Werte für Blätter und Knollen sollen hier vernachlässigt werden.  $C_3$  wurde daher berechnet nach:

$$C_3 = \frac{m_{31} C_{31} + m_{33} C_{33}}{m_{31} + m_{33}} \quad \text{Gl. (4.11)}$$

Es zeigt sich, daß der Verlauf dieser Konzentration ebenfalls nahezu linear ist, wobei nur ein Meßwert bei  $t = 30$  h stärker abweicht. Bleibt dieser Wert unberücksichtigt, erhält man bei Betrachtung des Konzentrationsverlaufs analog zu Gl. (4.9) für die Zeitkonstante  $k_3 = 0,0030 \text{ h}^{-1}$  ( $t_{1/2} = 231 \text{ h}$ ,  $B = 0,991$ ). Nach 46 h wird ein Maximalwert von 12,4 % der Gleichgewichtskonzentration des Blatt-H<sup>3</sup>O erreicht.

#### 4.2.3.4 Tritiumbilanz

Besonders unter Strahlenschutzaspekten von Bedeutung ist die Tritiumbilanz, d.h. die Größe und Verteilung der insgesamt aufgenommenen Aktivitätsmenge. Die Gesamt-Aktivität ( $A_{\text{Ges}}$ ) der Pflanze wurde berechnet als Summe der Gewebe- und Verbrennungswasseraktivität sämtlicher Pflanzenfraktionen. Bei der Berechnung der Verbrennungswasseraktivität ist dabei der Wirkungsgrad des Verbrennungsautomaten von 82 % zu berücksichtigen:

$$A_{\text{Ges}} = \sum_j m_{1j} C_{1j} + 1,22 \sum_j \gamma_j m_{3j} C_{2j} \quad \text{Gl. (4.12)}$$

Außerdem sollen Werte angegeben werden, die diese Gesamtaktivität auf die entsprechenden Gesamt-H-Gehalte beziehen (mit H-Gehalten gewichtete mittlere Gesamtritiumkonzentration):

$$C_{\text{Ges}}^{\text{H}} = 9 \frac{A_{\text{Ges}}}{\sum_j m_{1j} + 1,22 \sum_j \gamma_j m_{3j}} \quad [\text{Bq/g H}] \quad \text{Gl. (4.13)}$$

In Tab. 4.8 sind diese Werte sowie die prozentualen Anteile der OBT- und OBT<sub>nx</sub>-Aktivitäten an den Gesamtaktivitäten aufgeführt. Es zeigt sich, daß die Hauptmenge der aufgenommenen Aktivität vom HTO der Blätter gestellt wird und daß aufgrund der im Vergleich zum Gewebewasser geringen organischen Wasserstoffmenge die Aktivität des OBT nach 2 Tagen 1,5 % der gesamten in die Pflanze aufgenommenen Aktivität nicht erreicht. Die nicht austauschbar festgelegte Aktivitätsmenge bleibt nach diesen 2 Tagen Dauerbelichtung sogar deutlich unter 1 %.

Tab. 4.8 Versuch II: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Insgesamt in die Pflanze aufgenommene Tritiumaktivität  $A_{\text{ges}}$ , auf Wasserstoffgehalt bezogene mittlere spezifische Tritiumaktivität der ganzen Pflanze  $C_{\text{Ges}}^{\text{H}}$ . Prozentuale Anteile (an  $A_{\text{Ges}}$ ) des HTO der Blätter  $A_{11}^{\text{rel}}$ , des gesamten organisch gebundenen Tritiums  $A_2^{\text{rel}}$  und des gesamten nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums  $A_3^{\text{rel}}$ .

Zeit	$A_{\text{Ges}}$ [Bq]	$C_{\text{Ges}}^{\text{H}}$ [Bq/g H]	$A_{11}^{\text{rel}}$ (HTO Bl. %)	$A_2^{\text{rel}}$ (OBT %)	$A_3^{\text{rel}}$ (OBT <sub>nx</sub> %)
0,5	6 371	2 098	98,22	1,69	0,02
1,5	21 077	3 447	99,12	0,78	0,02
3,0	18 930	6 472	99,18	0,73	0,06
5,8	33 876	5 442	99,05	0,81	0,10
22,0	38 974	10 846	98,75	1,02	0,35
26,0	54 047	11 620	98,65	1,10	0,43
30,0	31 709	7 251	98,41	1,29	0,63
46,0	40 057	11 551	98,36	1,42	0,70
$C_{\text{O}}^{\text{H}}$ [Bq/g H]		38 070			

Von pflanzenphysiologischem Interesse ist auch die prozentuale Verteilung des  $OBT_{nx}$  auf Blätter und Knollen, die ja der Verteilung der neusynthetisierten Biomasse entsprechen sollte. Nach 0,5 h und 1,5 h ist in den Knollen noch keine  $OBT_{nx}$ -Aktivität sicher nachzuweisen, dann findet sich ein über die gesamte Begasungsdauer des Versuches relativ konstanter Anteil an der photosynthetisierten Substanz (s. Abb. 4.5).

#### 4.2.4 Versuch III: HTO-Begasung von Radiespflanzen

##### 4.2.4.1 HTO-Aufnahme in Blattspreiten und Blattstiele

Im vorausgegangenen Versuch war im Gewebewasser von Radiesblättern eine Gleichgewichts-Tritiumkonzentration in Höhe von 59 % der Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit gefunden worden. Nach dem in der Literatur angegebenen Modell wäre ein Wert von ca. 77 % zu erwarten gewesen (Gl. (2.5), s. Abschn. 2. und 4.2.3.1). Da angenommen wurde, daß die Abweichung darauf beruhen könnte, daß sich über die Blattstiele der Einfluß inaktiven Bodenwassers stärker bemerkbar macht, wurde ein Expositionsversuch durchgeführt, bei dem die Blattstiele - mit dem größeren Teil der Mittelrippe - und die eigentlichen Blattspreiten getrennt untersucht wurden.

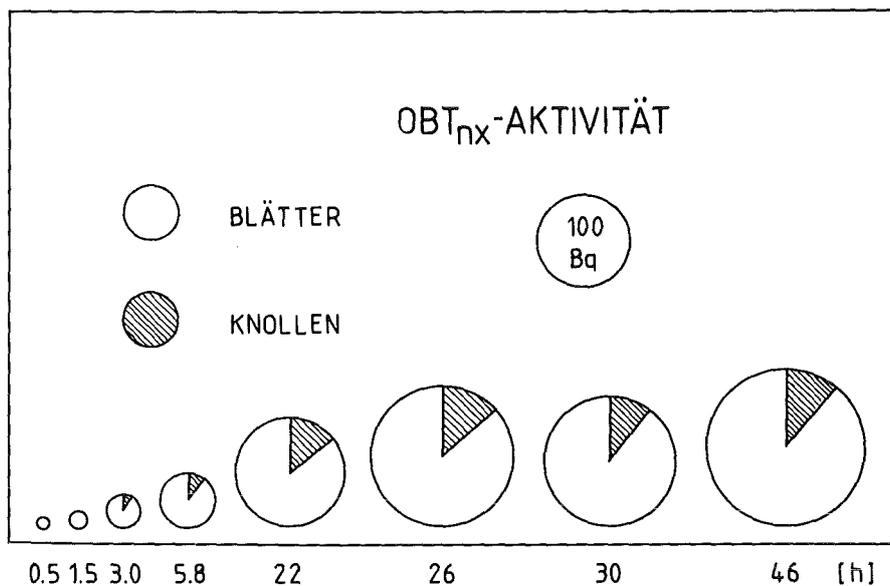


Abb. 4.5: Versuch II: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Gesamtaktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums, auf Blätter und Knollen entfallende prozentuale Anteile.

In diesem Versuch sollten die gemessenen Gewebewasseraktivitäten und die daraus mit Hilfe der nicht-linearen Regression berechneten Parameter  $f$  und  $k_1$  mit den entsprechenden nach dem Modell erwarteten Werten verglichen werden. Die hierzu nötigen Messungen wurden ähnlich Garland et al. (1981) durchgeführt. Das Modell von Belot wurde jedoch so umgeformt, daß zur Bestimmung von  $k_B$  auf die Kenntnis der Blattfläche (Größe  $\mu$ ) verzichtet werden konnte und daß zugleich die Aufnahmezeit in der Einheit  $h^{-1}$  vorlag. Dazu wurde folgendermaßen verfahren:

$k_B$  sei gegeben nach Gl. (2.6):

$$k_B = 0,9 \frac{\rho_S}{\mu r} = 0,9 \frac{\rho_S F}{m_{11} r} \quad [s^{-1}]$$

mit  $m_{11}$  = Wassergehalt des Blattes

Der Blattdiffusionswiderstand  $r$  ergibt sich seinerseits durch die Anwendung des Fick'schen Gesetzes auf die Transpiration (s. auch Ziegler, 1983). Geht man davon aus, daß  $m_{11}$  aufgrund des Nachstromes aus dem Xylem konstant bleibt, läßt sich für die pro Zeiteinheit transpirierte Gewebewassermenge schreiben (s. Abschn. 4.1.2):

$$\frac{\Delta m_{11}}{\Delta t_B} = \frac{1}{r} F (\rho_S - \rho) \quad \text{Gl. (4.14)}$$

Bezeichnet man die Transpirationsrate bezogen auf Blattfläche mit  $Tr = \Delta m_{11}/F\Delta t_B$ , so erhält man:

$$r = \frac{\Delta \rho}{Tr} \quad \text{Gl. (4.1)}$$

In Gl. (2.6) eingesetzt und umgerechnet in  $k_1^B = Q k_B$ , ergibt sich:

$$k_1^B = 0,9 \frac{\rho_S}{\Delta \rho} k_T \quad [h^{-1}] \quad \text{Gl. (4.15)}$$

mit der Transpirationsrate  $k_T$ :

$$k_T = \frac{\Delta m_{11}}{m_{11} \Delta t} = Q \frac{\Delta m_{11}}{m_{11} \Delta t_B} \quad \text{Gl. (4.16)}$$

Wie man sieht, genügt zur Berechnung von  $f_B$  und  $k_1^B$  die Kenntnis der pro Zeiteinheit transpirierten Wassermenge, des Blattwassergehaltes sowie der Temperatur und relativen Luftfeuchte.

Die Klimabedingungen für diesen Versuch sind in Tab. (4.9) angegeben. Damit erhält man:

$$f_B = 0,803 \quad k_1^B = 3,33 k_T \text{ [h}^{-1}\text{]}$$

In Tab. (4.10) sind die durch Messung des Gewichtsverlustes bestimmten Transpirationswerte der Pflanzen und die daraus errechneten Raten aufgeführt. Es zeigt sich, daß obwohl die Pflanzen vor Expositionsbeginn für 6 h mit 400 W-HQL-Lampen (PAR  $\approx 150 \mu\text{E}/\text{m}^2\text{s}$ ) bestrahlt worden waren, die Öffnung der Stomata bei  $t = 0$  offenbar noch weit von einem Maximum entfernt ist und der Blattwiderstand sich unter den Versuchsbedingungen allmählich verringert. Daher ist  $k_1$  nicht konstant, sondern erhöht sich in der Anfangsphase der Begasung. Die tatsächlich gemessene spezifische Aktivität des Blattspreiten-H<sup>3</sup>O steigt mit einer effektiven Halbwertszeit von 1 h 46 min. auf einen Gleichgewichtswert von 3400 Bq/g H<sub>2</sub>O (berechnet mit nicht-linearer Regression wie bei Versuch II; B = 0,985). Wie in Abschn. 4.2.3.1 beschrieben, wird die Aufnahmerate  $k_1$  wegen der leicht absinkenden Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit über Gl. (4.7) berechnet. Dabei muß allerdings berücksichtigt werden, daß auch dadurch nur ein mittlerer Wert für die Aufnahmerate erhalten wird, da sie aufgrund der Transpirationsmessungen als nicht konstant angesehen werden muß.

Die einzelnen Parameter der Ausgleichskurven wurden wie folgt geschätzt:

$$C_O^0 = 4621 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$C_O^\infty = 4035 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$k_O = 0,36 \text{ h}^{-1}$$

$$(B = 0,937)$$

$$f = 0,842$$

$$k_1 = 0,34 \text{ h}^{-1} \quad t_{1/2} = 2 \text{ h } 2 \text{ min.}$$

$$(B = 0,985)$$

Tab. 4.9: Versuch III: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Versuchsbedingungen.

Temperatur, T	18,5° C
rel. Luftfeuchte, U	72 % rF
abs. Luftfeuchte, $\rho$	11,6 · 10 <sup>-6</sup> g/cm <sup>3</sup>
Sättigungsfeuchte, $\rho_s$	15,9 · 10 <sup>-6</sup> g/cm <sup>3</sup>
$\Delta\rho$	4,3 · 10 <sup>-6</sup> g/cm <sup>3</sup>
Beleuchtung, PAR	Dauerlicht, ca. 150 $\mu\text{E}/\text{m}^2 \text{ s}$

Tab. 4.10: Versuch III: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Blattwasser-  
gehalte  $m_{11}$ , Gewichtsverluste der Pflanzen pro Zeiteinheit  
 $\Delta m_{11}/\Delta t$ , Transpirationsraten  $k_T$  und berechnete HTO-Aufnahme-  
raten  $k_1^B$  sowie berechnete HTO-Konzentrationen  $C_B$ .

Zeit [h]	$m_{11}$ [g]	$\Delta m_{11}/\Delta t$ [g h <sup>-1</sup> ]	$k_T$ [h <sup>-1</sup> ]	$k_1^B$ [h <sup>-1</sup> ]	$C_B$ [Bq/g H <sub>2</sub> O]
0,3	10,99	0,71	0,06	0,20	235
0,8	15,59	1,79	0,11	0,37	963
1,5	19,69	2,55	0,13	0,43	1708
2,5	18,76	3,14	0,17	0,56	2652
4,0	16,67	3,43	0,21	0,70	3214
7,5	14,38	4,04	0,28	0,93	3288
23,5	12,82	5,18	0,40	1,33	3240
30,0	12,62	4,18	0,33	1,10	3240

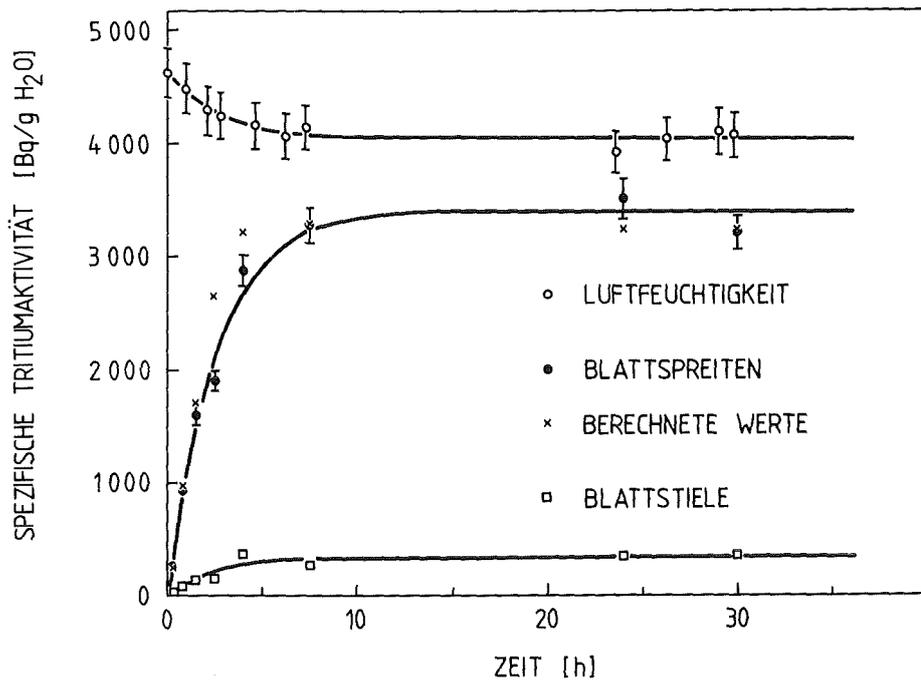


Abb. 4.6: Versuch III: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Verlauf der spezifischen Aktivität der Luftfeuchtigkeit und des freien Gewebewassers von Blattspreiten und Blattstielen.

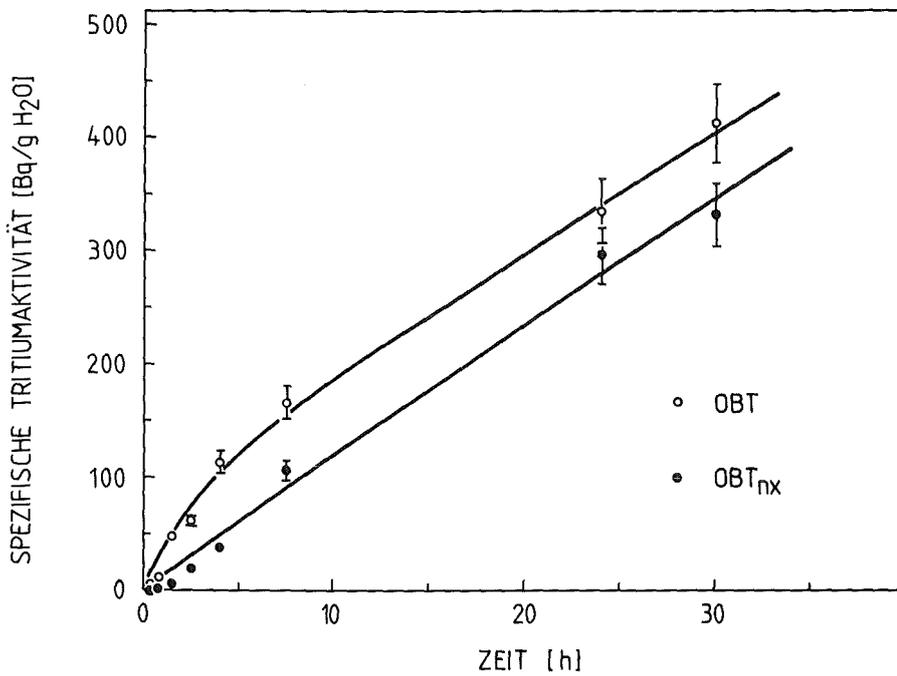


Abb. 4.7: Versuch III: HTO-Begasung von Radiespflanzen. Verlauf der spezifischen Aktivität des OBt und OBt<sub>nx</sub> der Blattstiele.

Die theoretischen HTO-Werte  $C_B$  wurden ebenfalls über Gl. (4.7) berechnet, da die Anwendung von Gl. (2.4) eine zeitlich konstante Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit voraussetzt und auch hier die entsprechende Korrektur vorgenommen werden soll. Es wurden  $f_B = 0,803$  (s. o.), die jeweiligen theoretischen Aufnahmearten  $k_1^B$  nach Tab. 4.10 und für  $C_0^O$ ,  $C_0^{\infty}$  und  $k_0$  die durch Regression erhaltenen Werte eingesetzt. In Abb. 4.6 sind Meßwerte, die Ausgleichskurven und die theoretischen Werte  $C_B$  eingezeichnet.

Ebenfalls dargestellt ist der Verlauf der HTO-Konzentration der Blattstiele. Die mit einer effektiven Halbwertszeit von 1 h 49 min. ( $k_{12} = 0,38$ ,  $B = 0,878$ ) erreichte Gleichgewichtskonzentration von 346 Bq/g  $H_2O$  beträgt nur rund 10 % der entsprechenden Konzentration der Blattspreiten. Zusammen mit der weitgehenden Vergleichbarkeit der für die Blattspreiten theoretisch berechneten Parameter und Aktivitätswerte mit den experimentellen Daten unterstützt dies die Annahme, daß sich bei der Messung der HTO-Konzentration der ganzen Blätter ein Einfluß der Blattstiele bemerkbar macht, die Verhältnisse in den Blattspreiten aber durch die von Belot et al. (1979) angegebene Beziehung in guter Näherung beschrieben werden.

Auf eine Aktivitätsmessung der Knollen wurde bei diesem Experiment verzichtet, jedoch eine Kontrolle der Kontamination der Böden vorgenommen. Sie ist mit einer maximalen Konzentration von  $4,19 \pm 0,27$  Bq/g  $H_2O$  für die Aktivität der Blattfraktionen ohne Bedeutung.

#### 4.2.4.2 Organisch gebundenes Tritium

Das organisch gebundene Tritium der Blattspreiten zeigt ein dem vorausgegangenem Versuch II völlig entsprechendes Verhalten. Bei Einsetzen von  $C_{11}^{\infty} = 3400$  und  $K_1^{eff} = 0,39$  in Gl. (4.8) ergeben sich die Werte  $R_{ex} = 0,124$  und  $k_{31} = 0,0060 \text{ h}^{-1}$  ( $B = 0,989$ ). Bei Vernachlässigung des stärker abweichenden Meßwertes bei  $t = 7,0 \text{ h}$  läßt sich für das nicht austauschbar gebundene Tritium bei einer Einbaurate  $k_{31} = 0,0049 \text{ h}^{-1}$  ein Bestimmtheitsmaß der Funktion gemäß Gl. (4.9)  $B = 0,999$  angeben. Der Maximalwert dieser Tritiumkonzentration bei 30 h beträgt 13,7 % der entsprechenden HTO-Konzentration.

Gl. (4.8) läßt sich auch für das OBT der Blattstiele ( $C_{22}$ ) anwenden. Hier muß lediglich berücksichtigt werden, daß das austauschbare Tritium von der HTO-Konzentration der Blattstiele selbst bestimmt wird, der nicht austauschbare Anteil hingegen im wesentlichen von Material herrühren dürfte, das in

der Blattspreite synthetisiert und im Phloem transportiert worden ist. Daher gilt:

$$C_{22} = C_{11}^{\infty} (1 - b e^{-k_{12}t} - (1 - b) e^{-k_{32}t}) \quad \text{Gl. (4.17)}$$

mit:

$$b = \frac{C_{12}^{\infty}}{C_{11}^{\infty}} R_{\text{ex}}$$

Für diese OBT-Meßwerte ist eine größere Schwankung zu erwarten, da vor allem die  $\text{OBT}_{\text{nx}}$ -Aktivität von verschiedenen Faktoren abhängig ist (Photosyntheserate, Transportgeschwindigkeit, Masseverhältnis Blattspreite/Blattstiel). Dennoch ergeben sich gute Anpassungen:

Für OBT nach Gl. (4.17):

$$b = 0,0216 \quad R_{\text{ex}} = 0,212 \quad k_{32} = 0,0035 \text{ h}^{-1} \quad (B = 0,995)$$

Für  $\text{OBT}_{\text{nx}}$  entsprechend Gl. (4.9):

$$k_{32} = 0,0036 \text{ h}^{-1} \quad t_{1/2} = 193 \text{ h} \quad (B = 0,991)$$

Wie auch aus der Parallelität der Kurven in Abb. (4.7) ersichtlich ist, stimmen die für OBT und  $\text{OBT}_{\text{nx}}$  erhaltenen Werte für  $k_{32}$  sehr gut überein.

#### 4.2.5 Versuch IV: HTO-Begasung von Radies- und Möhrenpflanzen bei Tag/Nachtwechsel

In Versuch II war in den Knollen eine gegenüber den Blättern vernachlässigbare HTO-Konzentration gemessen worden. Da während der Begasung jedoch Dauerlicht geherrscht hatte, könnte man argumentieren, daß die Radieschen durch den Transpirationsstrom ständig "gespült" wurden und daß bei geschlossenen Spaltöffnungen mit einer größeren Kontamination zu rechnen wäre. Es sollte daher untersucht werden, wie sich das Vorhandensein oder Fehlen

eines Transpirationsstromes auf die Verteilung von über die Blätter aufgenommenem Wasser in unterirdischen Speicherorganen auswirkt.

Dazu wurden je 2 Töpfe mit Radies- und Möhrenpflanzen über 3 Tage exponiert, wobei ein Tag/Nachtwechsel mit einer Belichtungsperiode von 14 h gefahren wurde. Die Randbedingungen der jeweiligen Beleuchtungsperioden sind in Tab. (4.11) angegeben. Am Ende der dritten Dunkelperiode vor dem Wiedereinschalten der Beleuchtung wurde je 1 Radies- und Möhrenpflanze geerntet, die Vergleichspflanzen wurden dann nach 6,5 h Belichtung aus dem Prüfraum genommen. Bei den Radiespflanzen wurden Blattspreiten und Blattstiele - wie in Versuch III - sowie Knollen getrennt behandelt, bei den Möhren erfolgte eine Trennung in Blattfiedern (= Blattspreitenfraktion), Blattspindeln zusammen mit Blattstielen und Rüben (Karotten).

Betrachtet man zunächst das Gewebewasser der Blattspreiten, so kann man aus Tab. (4.12) ersehen, daß sich in den dunkelgehaltenen Pflanzen bei geringerer Tritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit, aber höherer relativer Luftfeuchte höhere HTO-Konzentrationen finden als in den belichteten. Eine gute Übereinstimmung des Verhältnisses von  $C_{11}$  und  $C_0$  mit den theoretischen  $f_B$ -Werten (Gl. (2.5)) fällt besonders bei Radies auf, und auch für die Fiederblätter der Möhren läßt sich eine Abhängigkeit der Aufnahme von atmosphärischem HTO von der relativen Luftfeuchte erkennen. Nur in einem Fall liegt der theoretische  $f_B$ -Wert(knapp) außerhalb des Vertrauensbereiches des Meßwertes.

Tab. 4.11: Versuch IV: HTO-Begasung von Radies- und Möhrenpflanzen bei Tag/Nachtwechsel. Versuchsbedingungen.

	Tag (14 h)	Nacht (10 h)
Temperatur, T	18,0° C	12,0° C
rel. Luftfeuchte, U	70 % rF	80 % rF
abs. Luftfeuchte, $\rho$	$11,0 \cdot 10^{-6} \text{ g/cm}^3$	$8,7 \cdot 10^{-6} \text{ g/cm}^3$
Sättigungsfeuchte, $\rho_s$	$15,4 \cdot 10^{-6} \text{ g/cm}^3$	$10,7 \cdot 10^{-6} \text{ g/cm}^3$
PAR	ca. 190 $\mu\text{E/m}^2 \text{ s}$	0

Tab. 4.12: Versuch IV: HTO-Begasung von Radies- und Möhrenpflanzen bei Tag/Nachtwechsel. Spezifische Aktivitäten von Luftfeuchtigkeit ( $C_0$ ) und freiem Gewebewasser der Blattspreiten ( $C_{11}$ ) und gemessenes und berechnetes Verhältnis dieser Aktivitäten ( $\pm 2s$ -Meßfehler).

Beleuchtung	Pflanze	$C_0$	$C_{11}$	$f = \frac{C_{11}}{C_0}$	$f_B = 1,1 \frac{\rho}{\rho_S}$
		[Bq/g H <sub>2</sub> O]			
Licht	Radies	1295 $\pm$ 64	1025 $\pm$ 50	0,79 $\pm$ 0,06	0,786
	Möhre		904 $\pm$ 45	0,70 $\pm$ 0,05	
Dunkel	Radies	1176 $\pm$ 58	1077 $\pm$ 53	0,92 $\pm$ 0,07	0,894
	Möhre		997 $\pm$ 49	0,85 $\pm$ 0,06	

Die spezifischen Aktivitäten von Blattstielen und Speicherorganen sind in Abb. (4.8) dargestellt; es stehen jeweils die Werte für "Licht" (linker Balken) und "Dunkel" (rechter Balken) nebeneinander. Man sieht, daß auch in den Blattstielen im Dunkeln eine höhere Aktivität gemessen wird; sie beträgt fast das Doppelte der Aktivität der nach Belichtung geernteten Pflanze. Hier scheint tatsächlich der Transpirationsstrom eine bedeutende Rolle zu spielen. In den Speicherorganen läßt sich dagegen in keinem Fall ein direkter Einfluß der Aktivität der Luftfeuchtigkeit nachweisen. Auch beim mutmaßlichen Fehlen eines Saftflusses ist keine Erhöhung der Aktivität festzustellen, sondern die HTO-Konzentrationen bleiben im Bereich der geringen (max. 4,49  $\pm$  0,28 Bq/g H<sub>2</sub>O) Kontamination der Böden.

Ein ganz anderes Bild bietet sich bei Betrachtung des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums. Die Konzentrationen liegen hier in den Speicherorganen - wie auch in Versuch II beschrieben - deutlich über den jeweiligen HTO-Aktivitäten, wobei sich die höheren Konzentrationen in den nach Belichtung geernteten Pflanzen finden. Dies ist offensichtlich auf die längere Gesamtbelichtungsdauer (43 h gegenüber 36,5 h) dieser Pflanzen zurückzuführen. Auch in den Blattstielen ist keine Beziehung zwischen der

$OBT_{nx}$ -Aktivität und der HTO-Aktivität der Blattstiele selbst feststellbar, sondern nur eine Abhängigkeit von der Gesamtbelichtungsdauer. Dies deutet wiederum klar auf einen Transport von in den Spreiten photosynthetisiertem Material in die Blattstiele und Speicherorgane hin.

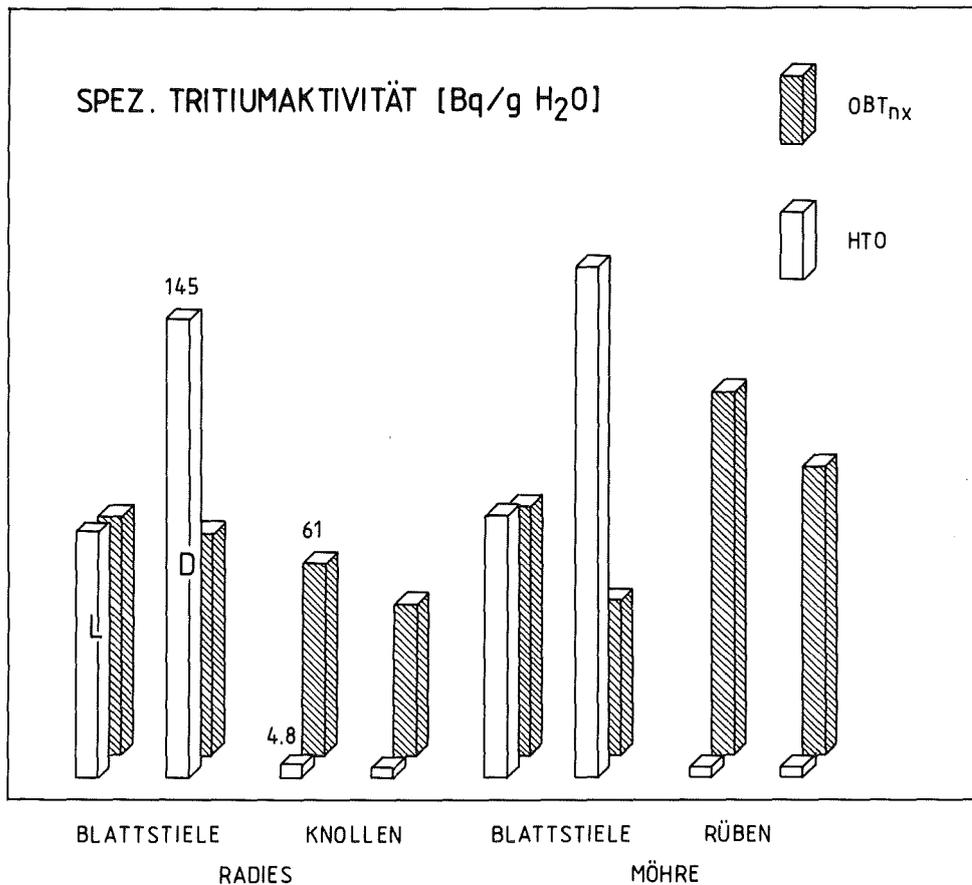


Abb. 4.8: Versuch IV: HTO-Begasung von Radies- und Möhrenpflanzen bei Tag/Nachtwechsel. Spezifische Aktivitäten der Blattstiele und Speicherorgane von belichteten (L) und dunkelgehaltenen (D) Pflanzen.

#### 4.2.6 Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen

##### 4.2.6.1 HTO-Aufnahme und Umsatz in Blattspreiten

In diesem weiteren Expositionsversuch sollte geprüft werden, inwieweit sich die bisher untersuchten Gesetzmäßigkeiten bei einer anderen Pflanze bestätigen bzw. auf ein weiteres Pflanzenorgan (Frucht) erweitern lassen. Hierzu wurden Buschbohnenpflanzen verwendet, die Früchte trugen, die noch grün und "fleischig" und deren Samen noch relativ wenig entwickelt (ca. 5 mm lang) waren. Vor der Begasung waren die Primärblätter und die ersten Fiederblätter der Pflanzen entfernt worden. Getrennt verarbeitet wurden die Früchte, die Stengel unterhalb des zweiten Fiederblattes (d.h. unterhalb der "Blattregion") und die Spreiten der Blattspreiten ohne den größeren Teil ihres Hauptnerven; diese Hauptnerven, Blattspindeln, eigentliche Blattstiele sowie die Stengelteile ab dem Knoten des zweiten Fiederblattes wurden zur Blattstielfraktion zusammengefaßt.

Die Untersuchung der HTO-Aufnahme in die Blattspreiten mit der Berechnung der Parameter  $f_B$  und  $k_1^B$  aus Gl. (2.4) wurde entsprechend Versuch III vorgenommen. Die Versuchsbedingungen sind in Tab. (4.13) aufgeführt. Daraus ergibt sich nach Gl. (2.5) und Gl. (4.15):

$$f_B = 1,1 \frac{\rho}{\rho_S} = 0,718 \quad \text{und}$$

$$k_1^B = 0,9 \frac{\rho_S}{\Delta\rho} k_T = 2,595 k_T$$

Aus Tab. (4.14) können die sich für die jeweiligen Erntezeitpunkte ergebenden  $k_1^B$ -Werte entnommen werden. Die unter Verwendung dieser Werte mittels Gl. (4.7) errechneten theoretischen Aktivitätswerte, die gemessenen Aktivitätswerte sowie ihre Ausgleichskurve sind in Abb. (4.9) eingezeichnet. Es zeigt sich, daß in diesem Begasungsversuch von Bohnenpflanzen den bei Radies in Versuch III gewonnenen Resultaten allgemein sehr ähnliche Ergebnisse erhalten werden. Dies gilt im Besonderen sowohl für den - wohl auf einer fortschreitenden Öffnung der Stomata beruhenden - Anstieg der Transpirationsrate in der Anfangsphase der Exposition als auch für den Grad der

Übereinstimmung von berechneten und gemessenen Werten. Während ein großer Teil der theoretischen Werte im Bereich der Meßfehler der Aktivitätsmessung liegt, zeigt sich, daß für die Zeit kurz vor Erreichen des Gleichgewichts die Aktivitäten theoretisch leicht überschätzt werden. Dies könnte dadurch erklärt werden, daß nicht alles Gewebewasser für einen schnellen Ausgleich mit der Gasphase innerhalb des Blattes zur Verfügung steht. Es muß aber auch im Zusammenhang mit der bei der Berechnung der Parameter aus den Klima- und Transpirationsmessungen überhaupt erzielbaren Genauigkeit noch eingehender diskutiert werden. Unter diesem Gesichtspunkt kann auch die Beobachtung gesehen werden, daß in Versuch III die gemessene Gleichgewichtskonzentration etwas oberhalb, im vorliegenden Versuch jedoch etwas unterhalb der theoretischen liegt.

Tab. 4.13: Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen, Versuchsbedingungen.

Temperatur	20,0 <sup>0</sup> C
rel. Luftfeuchte, U	63,5 % rF
abs. Luftfeuchte, $\rho$	11,3 · 10 <sup>-6</sup> g/cm <sup>3</sup>
Sättigungsfeuchte, $\rho_s$	17,3 · 10 <sup>-6</sup> g/cm <sup>3</sup>
$\Delta\rho$	6,0 · 10 <sup>-6</sup> g/cm <sup>3</sup>
Beleuchtung, PAR	Dauerlicht ca. 160 $\mu\text{E}/\text{m}^2 \text{ s}$

Auch die Ergebnisse der OBT-Messungen bestätigen die bislang erhaltenen Befunde (s. Abb. 4.10).

Tab. 4.14: Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Blattwasser-  
 gehalte  $m_{11}$ , Gewichtsverluste der Pflanzen pro Zeiteinheit  
 $\Delta m_{11}/\Delta t$ , Transpirationsraten  $k_T$  und berechnete HTO-Aufnahme-  
 raten  $k_1^B$  sowie berechnete HTO-Konzentrationen  $C_B$ .

Zeit [h]	$m_{11}$ [g]	$\Delta m_{11}/\Delta t$ [g h <sup>-1</sup> ]	$k_T$ [h <sup>-1</sup> ]	$k_1^B$ [h <sup>-1</sup> ]	$C_B$ [Bq/g H <sub>2</sub> O]
0,5	11,31	1,20	0,11	0,29	359
1,5	16,33	1,86	0,11	0,29	893
3,5	17,56	4,28	0,24	0,62	2040
7,0	14,03	5,25	0,37	0,96	2100
11,0	16,33	8,15	0,50	1,30	2062
23,0	16,94	5,50	0,32	0,83	2056
31,0	22,45	7,61	0,34	0,88	2056
48,0	19,31	8,54	0,44	1,14	2056

In der folgenden Aufstellung sind die Ergebnisse der nicht-linearen Regres-  
 sion für die Aktivitätsmeßwerte von Luftfeuchtigkeit und Bohnen-Blattfiedern  
 zusammengefaßt.

1. Luftfeuchtigkeit

Gl. (4.3)

$$C_o^o = 3815 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$C_o^{oo} = 2864 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$k_o = 0,48 \text{ h}^{-1}$$

$$(B = 0,912)$$

2. HTO Blattfiedern, effektiv Gl. (4.2)

$$C_{11}^{\infty} = 1960 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$k_1^{\text{eff}} = 0,53 \text{ h}^{-1} \quad t_{1/2}^{\text{eff}} = 1 \text{ h } 18 \text{ min.}$$

$$(B = 0,977)$$

3. HTO Blattfiedern Gl. (4.7)

$$f = 0,682$$

$$k_1 = 0,40 \text{ h}^{-1} \quad t_{1/2} = 1 \text{ h } 44 \text{ min.}$$

$$(B = 0,979)$$

4. OBT Blattfiedern Gl. (4.8)

$$R_{\text{ex}} = 0,222$$

$$k_{31} = 0,0025 \text{ h}^{-1} \quad t_{1/2} = 277 \text{ h}$$

$$(B = 0,948)$$

5. OBT<sub>nx</sub> Blattfiedern Gl. (4.9)

$$k_{31} = 0,0019 \text{ h}^{-1} \quad t_{1/2} = 365 \text{ h}$$

$$(B = 0,866)$$

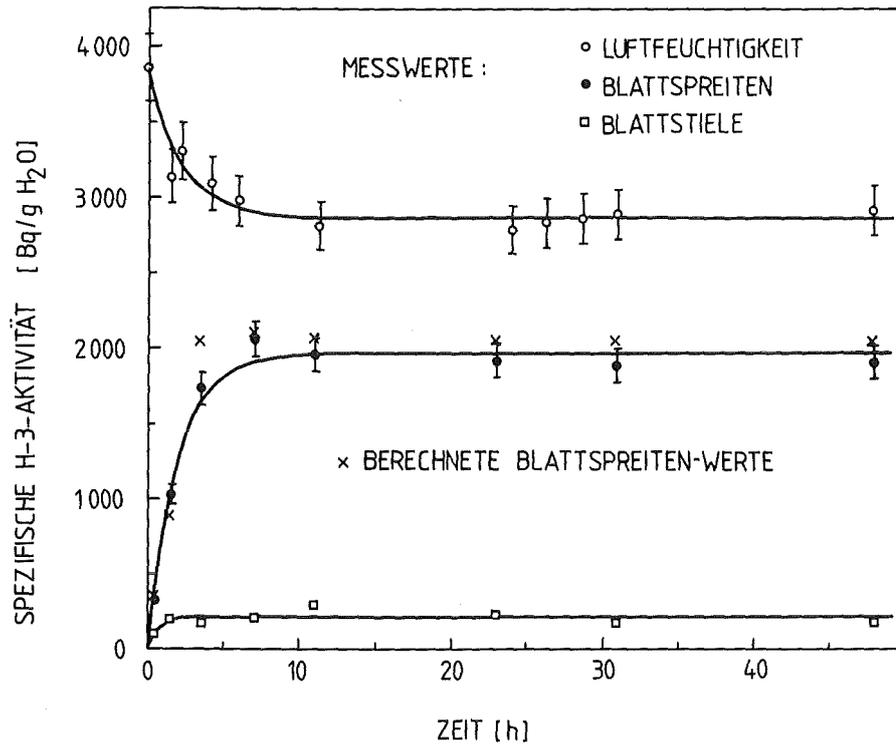


Abb. 4.9: Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Verlauf der spezifischen Aktivitäten der Luftfeuchtigkeit und des freien Gewebewassers von Blattspreiten und Blattstielen.

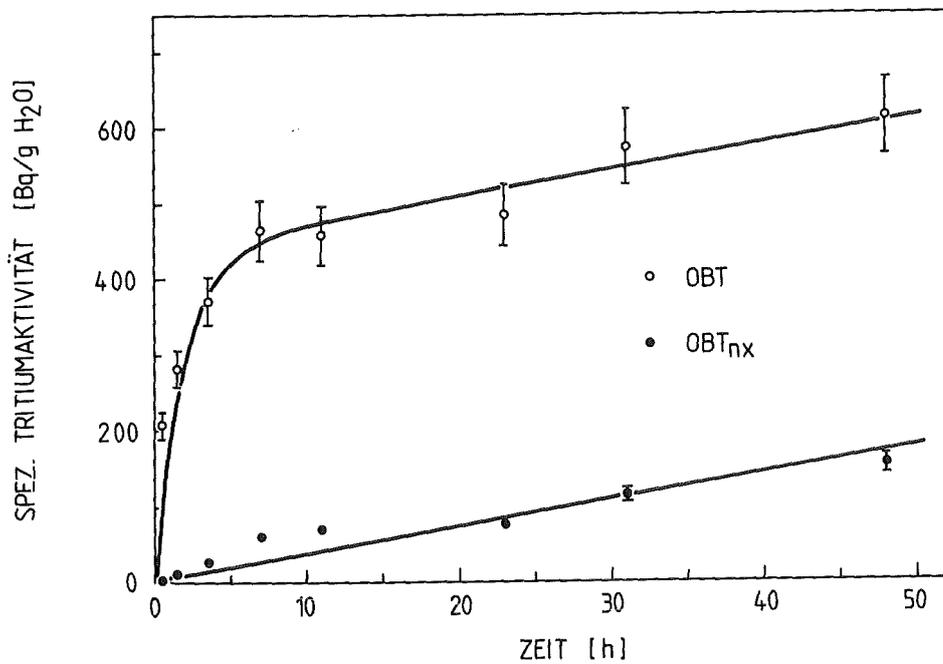


Abb. 4.10: Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Verlauf der spezifischen Aktivitäten des OBT und des OBT<sub>nx</sub> der Blattfiedern.

#### 4.2.6.2 HTO-Aufnahme und -Umsatz in Blattstielen, Stengeln und Früchten

Auch bei der Buschbohne gelangte in die Blattstielfraktion nur ein Bruchteil der in die Blattspreiten aufgenommenen HTO-Konzentration. Der Mittelwert der nach mehr als 10-stündiger Begasung gemessenen Konzentrationen liegt bei ca. 11 % der Gleichgewichtskonzentration in den Blattfiedern (s. auch Abb. 4.9). Die Streuung der Meßwerte ist allerdings so groß, daß keine sinnvolle Kurvenanpassung möglich ist (entsprechend Gl. (4.2):  $B = 0,407$ ). Dasselbe gilt für die HTO-Werte der Stengelfraktion, die jedoch noch deutlich unter den Werten der Blattstiele liegen: während der Expositionsdauer wurden max. 123 Bq/g  $H_2O$  ( $\hat{=} 6,3 \% C_{11}^{OO}$ ) gemessen gegenüber max. 300 Bq/g  $H_2O$  bei der Blattstielfraktion. Für die HTO-Konzentrationen der Früchte kann (bei Vernachlässigen des Meßwertes bei  $t = 23$  h als Ausreißer) eine sehr gut bestimmte lineare Abhängigkeit von den Erntezeitpunkten ( $B = r^2 = 0,997$ ) festgestellt werden. Dies kann so interpretiert werden, daß die Tritiumaktivität des Gewebewassers der Früchte mit einer wesentlich größeren Halbwertszeit einem Gleichgewicht ähnlich der Blattwasseraktivität zustrebt, das während der 48-stündigen Expositionsdauer bei weitem nicht erreicht wird: max. Aktivität 493 Bq/g  $H_2O$   $\hat{=} 25 \% C_{11}^{OO}$ . Dabei deuten zwei Befunde darauf hin, daß eine Aufnahme direkt aus der Atmosphäre stattfindet. Erstens übersteigen die HTO-Werte der Früchte diejenigen der Blattstielfraktion deutlich, was bei einem Transport von kontaminiertem Wasser aus den Blattfiedern durch die Blattstiele hindurch in die Früchte nicht zu erwarten wäre. Zweitens wurden in den Früchten einer Pflanze, bei der eine Tritiumaufnahme über Blattspreiten unmöglich war, da diese abgetrennt worden waren, Aktivitäten gefunden, die größer waren als bei einer über einen vergleichbaren Zeitraum exponierten intakten Pflanze. Bei der erwähnten Pflanze waren unmittelbar vor Beginn der Exposition die Blattfiedern entfernt worden; die Pflanze wurde anschließend zusammen mit den anderen Bohnenpflanzen dieses Versuchs exponiert und nach  $t = 11,5$  h in Blattstiele, Stengel und Früchte getrennt geerntet. Vergleicht man die betreffenden HTO-Konzentrationen mit den Werten der bei  $t = 11,0$  h geernteten, "normalen" Pflanze, so finden sich in allen Fraktionen über den Vergleichswerten liegende HTO-Konzentrationen. Dieser Sachverhalt ist in Abb. 4.11 dargestellt: die jeweils linken Balken symbolisieren dabei die Werte der Vergleichspflanze (mit Blattfiedern), die rechten diejenigen der

Pflanze ohne Blattfiedern. Die beobachtete Aktivitätsaufnahme dieser Pflanze deutet auf eine Aufnahme direkt aus der Atmosphäre hin. Außerdem wird angenommen, daß bei der blattlosen Pflanze kein oder nur ein geringer Transpirationsstrom vorhanden ist. Darauf könnten die in diesem Fall erhöhten HTO-Konzentrationen zurückgeführt werden, entsprechend den Effekten, die in Versuch IV bei dunkelgehaltenen und belichteten Pflanzen beobachtet wurden (s. Abschn. 4.2.5).

Ein Einfluß der Kontamination des Bodenwassers wird in beiden Fällen ausgeschlossen, sie betrug bei der "normalen" Versuchspflanze  $1,00 \pm 0,11$  Bq/g  $H_2O$ , bei der entlaubten  $1,05 \pm 0,11$  Bq/g  $H_2O$  (max. Bodenwasseraktivität während des gesamten Begasungsversuchs bei  $t = 48$  h:  $4,55 \pm 0,28$  Bq/g  $H_2O$ ).

Ohne direkten Bezug zu den HTO-Konzentrationen zeigen sich, ebenso wie im Versuch IV, die  $OBT_{nx}$ -Konzentrationen. Wie aus Abb. 4.11 ersichtlich, kann in den Fraktionen der blattlosen Pflanze nur eine äußerst geringe Aktivität von organisch gebundenem Tritium gemessen werden. Dies stimmt sehr gut mit der Vorstellung überein, daß es sich bei dem in beliebigen Pflanzenteilen gefundenen, nicht austauschbar gebundenen Tritium praktisch ausschließlich um in den Blattspreiten photosynthetisch eingebautes und in das betreffende Gewebe transportiertes Tritium handeln dürfte.

In den übrigen Pflanzen dieses Versuches weisen die  $OBT_{nx}$ -Konzentrationen der Blattstiele, Stengel und Früchte gewisse Schwankungen auf, die zumindest z.T. als Folge unterschiedlicher Trockenmasseverhältnisse zu verstehen sind. Es erscheint daher sinnvoll, wiederum wie in Versuch II (Abschn. 4.2.3.3) die mit der Trockenmasse gewichtete mittlere spezifische  $OBT_{nx}$ -Aktivität der gesamten Pflanze zu betrachten. Sie ist nach Gl. (4.10) und bei Vernachlässigung der geringen Unterschiede der  $\gamma$ -Werte der verschiedenen Gewebe gegeben nach:

$$C_3 = \frac{\sum_j m_{3j} C_{3j}}{\sum_j m_{3j}} \quad \text{Gl. (4.18)}$$

Eine sinnvolle Beschreibung des Verlaufs dieser Größe, die den Zuwachs an photosynthetisch fixiertem Wasserstoff und damit den photosynthetischen Substanzzuwachs für die ganze Pflanze wiedergibt, ist anhand der Gleichung:

$$C_3 = C_{11}^{\infty} (1 - e^{-k_3 t}) \quad \text{Gl. (4.19)}$$

möglich. Man erhält dann als Zuwachsrates  $k_3 = 0,0017 \text{ h}^{-1}$  ( $\hat{=} t_{1/2} = 408 \text{ h}$ ,  $B = 0,987$ ). Die prozentuale Verteilung dieser Tritiumkonzentration auf die einzelnen Pflanzenfraktionen entspricht der prozentualen Verteilung der absoluten  $\text{OBT}_{\text{nx}}$ -Aktivitätsmenge und ist im nächsten Abschnitt dargestellt.

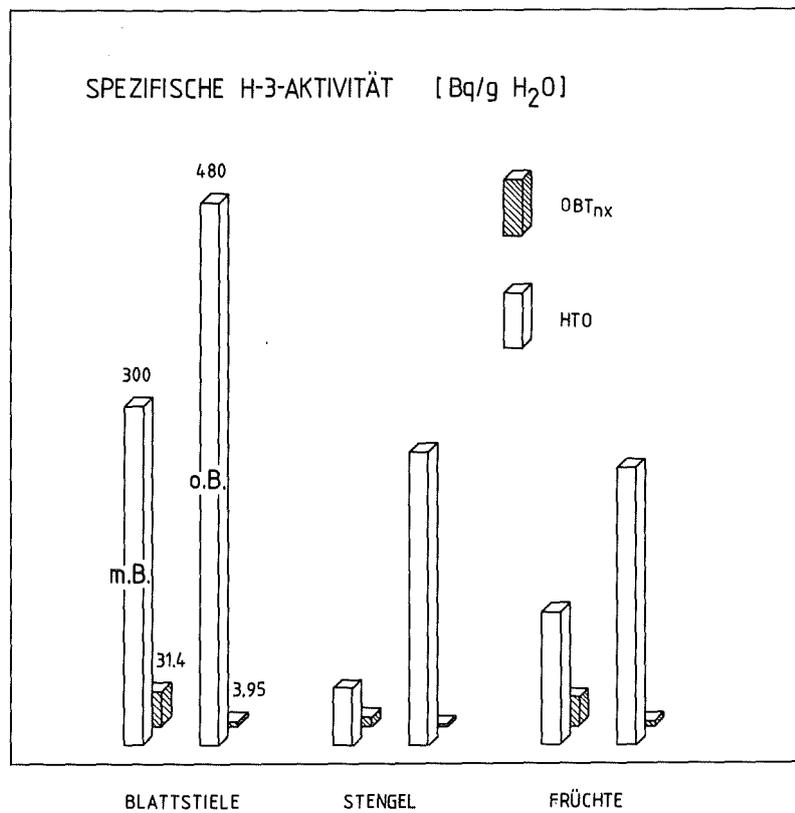


Abb. 4.11: Versuch Va: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen mit (m.B.) und ohne (o.B.) Blattfiedern. Spezifische Aktivitäten von Blattstielen, Stengeln und Früchten.

#### 4.2.6.3 Tritiumbilanz

Da im vorliegenden Versuch sämtliche Teile der Pflanzen (mit Ausnahme der nur eine geringe Masse besitzenden und deshalb vernachlässigten Wurzeln) untersucht wurden, ist es möglich, die auf die einzelnen Wasserstoff- und Pflanzenfraktionen entfallenden Aktivitätsmengen anzugeben, d.h. eine Bilanzierung des aufgenommenen Tritiums durchzuführen. Die Gesamtaktivitätsmengen für das im Gewebewasser und in der organischen Substanz der gesamten Pflanze enthaltene Tritium wurden nach Gl. (4.12) berechnet und sind in Tab. 4.15 aufgeführt. Im oberen Teil der Tabelle sind außerdem die - nach Gl. (4.13) berechneten - mittleren auf g H bezogenen Gesamt-Tritiumkonzentrationen angegeben ( - die auf g H bezogene Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit betrug 25 800 Bq/g H). Danebengestellt sind die auf das gesamte organisch gebundene und das gesamte nicht austauschbar organisch gebundene Tritium entfallenden Anteile der Gesamt-Aktivität  $A_{Ges}$ . Angemerkt werden muß hierzu, daß die austauschbaren Anteile des organischen Tritiums von Blattstielen, Stengeln und Früchten in diesem Versuch unberücksichtigt blieben. Wenn man den Anteil an austauschbarem Wasserstoff in diesen Geweben jedoch entsprechend den Messungen im Blattgewebe (aufgerundet) auf 25 % schätzt, kann man zeigen, daß sich für den 48 h-Wert der Prozentsatz des gesamten OBT von gemessenen 2,5 % auf lediglich 3 % erhöht. Der Anteil des fest eingebauten Tritiums verringert sich dann formal sogar leicht. Er erreicht nach den durchgeführten Messungen bei 48 h nach einem kontinuierlichen Anstieg einen Maximalwert von 1,3 % des gesamten aufgenommenen Tritiums.

Wie der untere Teil von Tab. 4.15, in dem die prozentualen Anteile des Gewebewasser-Tritiums der verschiedenen Fraktionen aufgeführt sind, zeigt, findet sich auch bei diesem Versuch (vgl. Abschn. 4.2.3.4, Tab. 4.8) der Hauptanteil der Aktivität im Gewebewasser der Blattspreiten. Allerdings ist festzustellen, daß sich nach 24-stündiger Exposition die ins Gewebewasser der Früchte gelangten Aktivitäten prozentual durchaus bemerkbar machen.

Schließlich sei noch auf die Verteilung des photosynthetisch gebundenen Tritiums in der Pflanze eingegangen. Zum Vergleich der  $OBT_{nx}$ -Aktivitäten untereinander werden diese sinnvollerweise nicht auf  $A_{Ges}$ , sondern auf die gesamte  $OBT_{nx}$ -Aktivität  $A_3$  bezogen. In Abb. 4.12 ist daher die zeitliche

Tab. 4.15: Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Insgesamt in die Pflanze aufgenommene Tritiumaktivität  $A_{Ges}$ , auf Wasserstoffgehalt bezogene mittlere spezifische Tritiumaktivität der ganzen Pflanze  $C_{Ges}^H$ . Prozentuale Anteile (an  $A_{Ges}$ ) des gesamten organisch gebundenen Tritiums  $A_2^{rel}$ , des gesamten nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums  $A_3^{rel}$  und des HTO der einzelnen Pflanzenfraktionen  $A_{1j}^{rel}$ .

Zeit [h]	$A_{Ges}$ [Bq]	$C_{Ges}^H$ [Bq/g H]	$A_2^{rel}$ (OBT %)	$A_3^{rel}$ (OBT <sub>nx</sub> %)
0,5	4 520	1 130	3,60	0,06
1,5	18 578	4 132	1,80	0,08
3,5	33 386	4 641	1,50	0,14
7,0	32 300	6 229	1,59	0,30
11,0	38 059	5 867	1,65	0,40
23,0	44 080	7 610	1,66	0,52
31,0	52 251	7 637	2,43	0,91
48,0	58 248	7 370	2,49	1,29
	$A_{11}^{rel}$ Blattspreiten	$A_{12}^{rel}$ Blattstiele	$A_{13}^{rel}$ Stengel	$A_{14}^{rel}$ Früchte
0,5	82,29	11,22	0,74	2,15
1,5	90,53	5,87	0,57	1,22
3,5	91,50	3,57	0,12	3,32
7,0	89,62	3,51	0,24	5,04
11,0	83,79	5,62	0,42	8,53
23,0	73,88	3,58	0,29	20,59
31,0	80,87	2,88	0,44	13,39
48,0	63,19	2,22	0,39	31,71

Zunahme dieser Aktivität und ihre Aufteilung auf Blattfiedern, Blattstiele und Stengel und auf Früchte graphisch dargestellt. Dabei ist zu erkennen, daß in der Entwicklungsphase, in der sich die Pflanzen während des Versuches befanden, wesentliche Anteile der neusynthetisierten Substanz aus den Blättern zur Bildung der Frucht abtransportiert werden, was sich in einer Zunahme der prozentualen  $OBT_{nx}$ -Anteile der Früchte auf Kosten der Blattfiedern äußert. Aus der Abb. nicht zu ersehen, aber erwähnenswert ist die Tatsache, daß sich in der Stengelfraktion für sich allein betrachtet stets nur weniger als 3 %  $A_3$  finden.

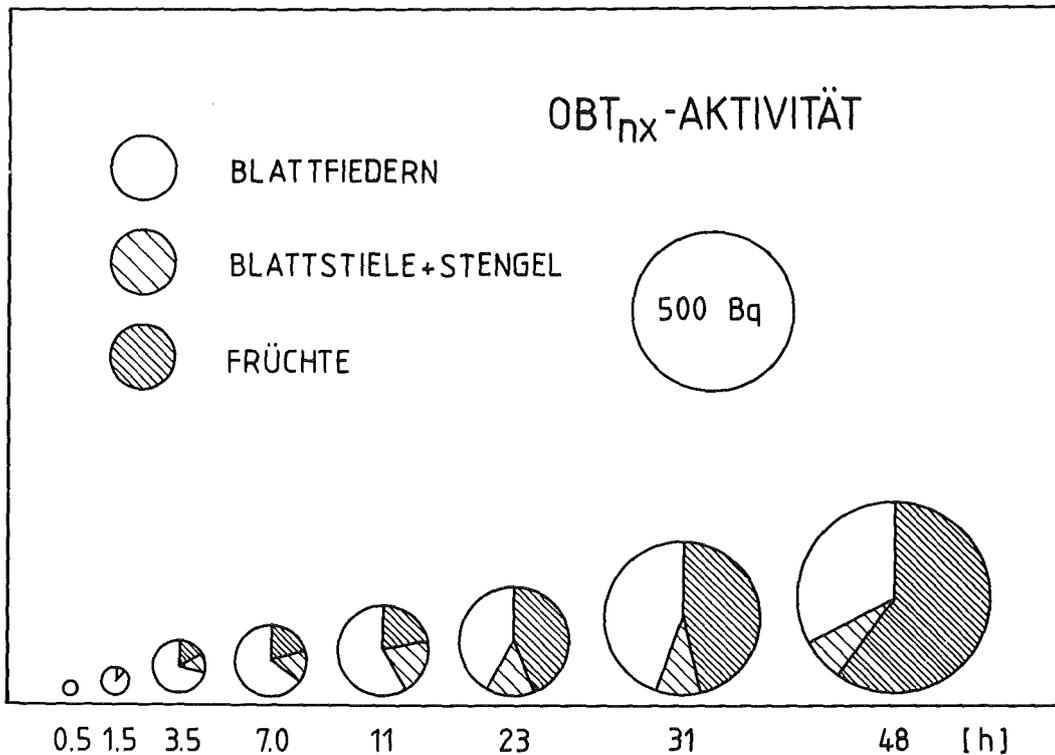


Abb. 4.12: Versuch V: HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Gesamtaktivitäten des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums; auf Blattfiedern, Blattstiele und Stengel sowie auf Früchte entfallende prozentuale Anteile.

#### 4.2.7 Versuch VI: Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium

##### 4.2.7.1 Gewebewasser

Zum Abschluß der Versuche sollte untersucht werden, mit welchen Raten das aus der Atmosphäre aufgenommene Tritium aus den verschiedenen Pflanzenteilen wieder ausgeschieden wird. Dazu wurde wieder auf Radiespflanzen als Versuchsobjekte zurückgegriffen, die zunächst ähnlich den vorausgegangenen Versuchen im Klimaschrank gegenüber HTO-Dampf exponiert wurden. Die Versuchsbedingungen waren dabei mit denjenigen von Versuch IV (s. Abschn. 4.2.5) identisch. Nach 66-stündiger Exposition (Gesamtbelichtungsdauer 36 h) wurden die Pflanzen aus der aktiven Atmosphäre genommen und am geöffneten Fenster aufgestellt. Durch die Abgabe von tritiiertem Wasser durch die Pflanzen stieg die spezifische Aktivität der Luftfeuchtigkeit des Laborraumes in der Umgebung der Pflanzen kurzfristig geringfügig an, blieb aber unter 1 Bq/g H<sub>2</sub>O, so daß die Atmosphäre als tritiumfrei im Sinne des Versuches betrachtet wurde. Über einen maximalen Beobachtungszeitraum von 5 Tagen wurden die Pflanzen dann in dieser Umgebung belassen und die Stichproben zu bestimmten Zeitpunkten geerntet. In der für die Ausscheidung des Gewebewasser-Tritiums entscheidenden Anfangsphase betrug die Temperatur ca. 22<sup>o</sup> C, die relative Luftfeuchtigkeit 60 - 70 % rF.

In Abb. 4.13 ist der Verlauf der spezifischen Gewebewasseraktivitäten von Blattspreiten und Blattstielen dargestellt. Für die Blattspreiten ergibt sich eine exponentielle Abnahme der Tritiumkonzentration, die sich nach

$$C_{11} = C_{11}^0 e^{-k_1 t} \quad \text{Gl. (4.20)}$$

beschreiben läßt. Die Ausgangskonzentration  $C_{11}^0$  wurde zu 1072 Bq/g H<sub>2</sub>O ermittelt, die Ausscheidungsrate  $k_1$  zu 0,52 h<sup>-1</sup> (B = 0,9996); d.h. die Ausscheidung erfolgt mit einer den gefundenen effektiven Aufnahmezeiten sehr ähnlichen effektiven Rate bzw. Halbwertszeit ( $t_{1/2} = 1 \text{ h } 20 \text{ min.}$ ).

Für das Gewebewasser der Blattstiele läßt sich eine vergleichbar rasche Ausscheidung des Tritiums erkennen. In beiden Fraktionen bleiben zwar bis zum Ende des Beobachtungszeitraumes geringe Tritiumkonzentrationen zurück,

die deutlich über der Nachweisgrenze (von 0,053 Bq/g H<sub>2</sub>O) liegen; dies läßt sich aber durch die Kontamination des Bodenwassers erklären. Zur Verdeutlichung des Sachverhaltes sind in Tab. 4.16 die Quotienten aus den HTO-Konzentrationen von Pflanzenfraktionen und Böden aufgeführt.\*) Auch hier zeigt sich im Gewebewasser der Knollen (C<sub>13</sub>) kein Einfluß des von anderen Pflanzenteilen aufgenommenen Tritiums. Und für die Blattfraktion liegen ab t = 29 h die Aktivitäten ebenfalls nicht über der Aktivität des Bodenwassers, es kann im Gegenteil eher eine merkliche Verdünnung der Konzentration (durch die Luftfeuchtigkeit?!) festgestellt werden. Es ergeben sich somit keine Hinweise auf eine Retention von aufgenommenem atmosphärischem HTO im Gewebewasser selbst.

#### 4.2.7.2 Organisch gebundenes Tritium

Für das nicht austauschbar organisch gebundene Tritium der Blattspreiten (s. Abb. 4.13) wird bei Beendigung der Exposition nach 36 h Gesamtblichtungsdauer ein Wert von  $173 \pm 15$  Bq/g H<sub>2</sub>O gemessen, das entspricht 16 % der HTO-Konzentration und ist somit gut mit dem Wert vergleichbar, der sich in Versuch III (Abschn. 4.2.4.2) für denselben Belichtungszeitraum durch Extrapolation ergeben würde (16,2 %). Die  $OBT_{nx}$ -Konzentration nimmt nach Beendigung der Exposition nicht sofort ab, sondern hat bei t = 7,0 h noch praktisch denselben Wert ( $170 \pm 15$  Bq/g H<sub>2</sub>O). Ein leichter Anstieg bei t = 3,0 kann als zufällige Schwankung (auch im Zusammenhang mit entsprechend niedrigeren Konzentrationen in Blattstielen und Knollen) interpretiert werden (s.u.). Im Verlauf des Beobachtungszeitraumes geht die  $OBT_{nx}$ -Konzentration dann allmählich auf ca. 57 % des Ausgangswertes zurück. Aus Abb. 4.13 ist ersichtlich, daß ab etwa 5 h nach Beendigung der Exposition die  $OBT_{nx}$ -Konzentrationen wesentlich über den entsprechenden HTO-Konzentrationen liegen. Wird also zu einem solchen Zeitpunkt ein Quotient  $R = C_{OBT}/C_{HTO}$  gebildet, erhält man beliebig über 1 liegende Werte.

\*) Anmerkung: In die Tabelle mitaufgenommen sind die spezifischen Aktivitäten von während der Exposition im Laborraum aufgestellten Kontrollpflanzen. In diesen Pflanzen ist praktisch keine Aktivität nachweisbar.

Tab. 4:16: Versuch VI: Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Spezifische Aktivität des Bodenwassers  $C_{15}$ . Verhältnis der spezifischen Aktivität des HTO von Knollen, Blattstielen und Blattspreiten zur spezifischen Aktivität des Bodenwassers. Spezifische Aktivitäten von Kontrollpflanzen. ( $\pm 2s$ -Meßfehler).

Zeit [h]	$C_{15}$ [Bq/g H <sub>2</sub> O]	$\frac{C_{13}}{C_{15}}$	$\frac{C_{12}}{C_{15}}$	$\frac{C_{11}}{C_{15}}$
0	3,90 $\pm$ 0,25	0,85 $\pm$ 0,08	37,2 $\pm$ 3,0	276 $\pm$ 23
1,0	4,10 $\pm$ 0,26	1,23 $\pm$ 0,11	12,7 $\pm$ 1,1	153 $\pm$ 13
3,0	4,27 $\pm$ 0,27	0,74 $\pm$ 0,07	8,3 $\pm$ 0,7	56,4 $\pm$ 4,6
7,0	2,79 $\pm$ 0,20	0,88 $\pm$ 0,09	9,5 $\pm$ 0,9	7,6 $\pm$ 0,7
29	3,26 $\pm$ 0,22	0,66 $\pm$ 0,07	0,71 $\pm$ 0,08	0,59 $\pm$ 0,06
72	4,57 $\pm$ 0,28	0,81 $\pm$ 0,08	0,82 $\pm$ 0,08	0,54 $\pm$ 0,06
120	2,99 $\pm$ 0,21	0,37 $\pm$ 0,05	0,32 $\pm$ 0,04	0,19 $\pm$ 0,03
Kontrolle [Bq/g H <sub>2</sub> O]	$C_{15}$	$C_{13}$	$C_{12}$	$C_{11}$
	0,037 $\pm$ 0,055	0,003 $\pm$ 0,052	0,015 $\pm$ 0,054	0,19 $\pm$ 0,06

Für den Verlauf der  $OBT_{nx}$ -Konzentrationen der Blattstiele läßt sich ein prinzipiell ähnliches Verhalten unterstellen (Abb. 4.13). Die Werte liegen jedoch stets niedriger und weisen - wie auch die Werte der Knollen - eine größere Streuung auf. Um einen der zahlreichen Faktoren, die diese Konzentration beeinflussen, mitzuberücksichtigen (s. Abschn. 4.2.6.2), erscheint es deshalb sinnvoll, wiederum die mit den Trockenmassen gewichtete mittlere spezifische Aktivität für die ganze Pflanze  $C_3$  zu betrachten (Berechnung nach Gl. (4.10), Abschn. 4.2.3.3). In Abb. 4.14 sind diese Werte und die auf die jeweiligen Pflanzenfraktionen entfallenden prozentualen Anteile

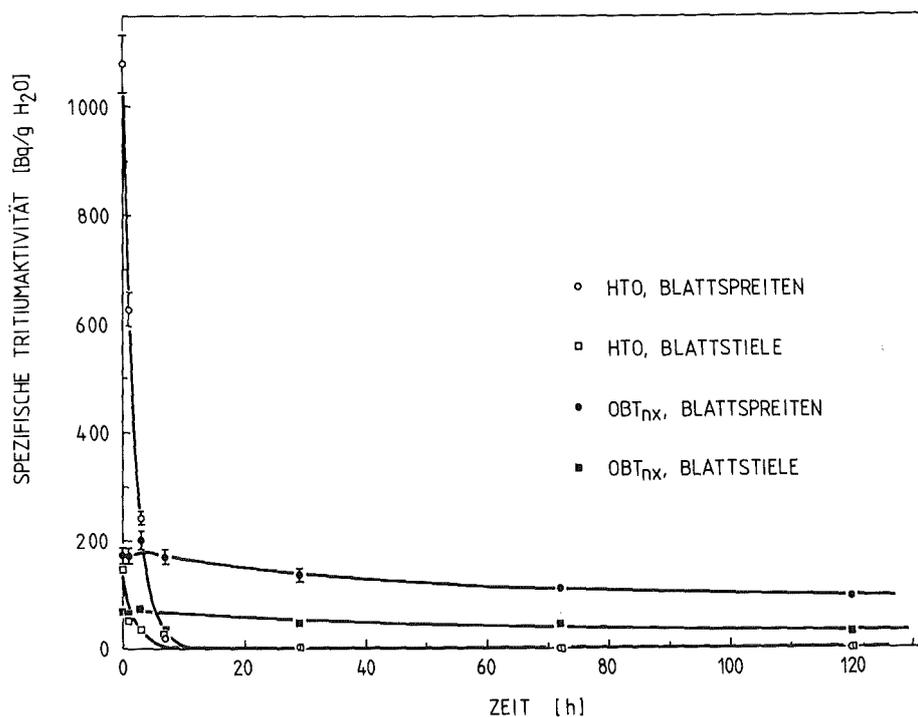


Abb. 4.13: Versuch VI: Ausscheidung von Tritium durch Radiespflanzen. Verlauf der spezifischen Aktivitäten des freien Gewebewassers und des OBT<sub>nx</sub> von Blattspreiten und Blattstielen.

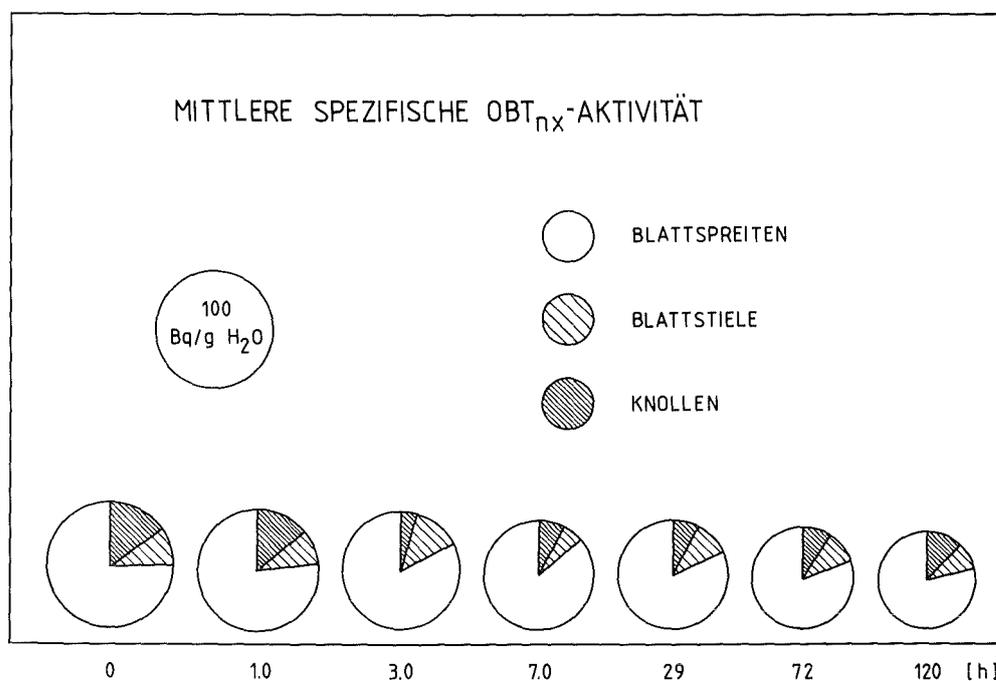


Abb. 4.14: Versuch VI: Ausscheidung von Tritium durch Radiespflanzen. Mittlere spezifische Aktivität des OBT<sub>nx</sub> der Gesamt-Pflanzen, auf die einzelnen Pflanzenfraktionen entfallende prozentuale Anteile.

als Kreis-Diagramme dargestellt. Man erkennt eine allmähliche leichte Abnahme der Gesamt-Aktivität im Laufe der 5 Tage und einen Anteil der Blattspreiten, der stets bei 75 - 85 % liegt. Für  $t = 3,0$  h fällt ein besonders geringer Anteil des Knollen- $OBT_{nx}$  auf. Dem steht eine erhöhte  $OBT_{nx}$ -Konzentration in den Blattspreiten gegenüber (s.o). In dieser Pflanze scheint also ein verminderter Transport von synthetisiertem Material in die Knolle stattgefunden zu haben. Im übrigen läßt sich für die relativen spezifischen  $OBT_{nx}$ -Aktivitäten der einzelnen Fraktionen keine Abhängigkeit von der Zeit feststellen. Man kann die geringen Unterschiede der Anteile der Blattstiel- und Knollenfraktion eher als zufällige Schwankung eines mittleren Anteils von jeweils ca. 10 % interpretieren. Somit scheint eine Ausscheidung des organisch fixierten Tritiums (Veratmung) unter den gegebenen Bedingungen in den untersuchten Geweben mit einer ähnlichen Halbwertszeit zu erfolgen.

## 5. Diskussion

### 5.1 Tritium im freien Gewebewasser (HTO)

#### 5.1.1 Aufnahme von tritiiertem Wasserdampf durch Blätter

Die durchgeführten HTO-Begasungen erlauben den Schluß, daß zwischen Luftfeuchtigkeit und Gewebewasser der Blätter von Samenpflanzen nennenswerte Austauschvorgänge ablaufen. In den Experimenten für die vorliegende Arbeit wurden für drei Species Gleichgewichtskonzentrationen an HTO im freien Wasser von Blattgewebe gefunden, die zwischen 59 % und 92 % der spezifischen Tritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit lagen. Diese Werte sind zu hoch, als daß sie sich dadurch erklären ließen, daß - beispielsweise - durch kondensierte Luftfeuchtigkeit an der Blattoberfläche anhaftende Aktivität gemessen wurde. Ihr Zustandekommen läßt sich jedoch gut als Folge eines dynamischen Diffusionsgleichgewichtes von HTO-Molekülen durch die Stomata verstehen. Eine auf diese Weise in Blättern erreichte HTO-Gleichgewichtskonzentration sollte nach der von Belot et al. (1979) vorgeschlagenen Beziehung (s.S. 17 ) der relativen Luftfeuchte proportional sein.

Koranda und Martin (1973) geben für das Verhältnis von Blattwasser- und Luftfeuchtigkeitsaktivität in verschiedenen Species Werte von 0,17 bis 0,49 an, die durchaus in der zu erwartenden Größenordnung liegen. Dabei muß auch berücksichtigt werden, daß bei den Expositionszeiten dieser Autoren von 30 und 60 min. das Erreichen eines Gleichgewichtszustandes nicht unbedingt zugrundegelegt werden kann. Dinner et al. (1980) konnten in Klimakammerversuchen für Blätter von Tomatenpflanzen bei einer relativen Luftfeuchte von 70 % einen Gleichgewichtswert von 0,45 messen. Sie untersuchten auch den Verlauf der Gewebewasseraktivität vom Beginn der HTO-Begasung an und stellten einen raschen, dem Verlauf der Aktivität der Luftfeuchtigkeit folgenden Aktivitätsanstieg fest. Mason et al. (1973) fanden ein Erreichen des Gleichgewichtszustandes der HTO-Aufnahme in Wuchskammerversuchen mit *Medicago sativa* und *Festuca arudinacea* bereits nach ca. 15 min. Unter Zugrundelegen einer Exponentialfunktion der Form von Gl. (4.2) erhielten Kline und Stewart (1974) aus den HTO-Meßwerten von Grasblättern durch Regressionsanalyse eine Halbwertszeit von 66 min.

Nach dem Modell von Belot kann die Aufnahmerate oder die Halbwertszeit aus der relativen Luftfeuchte, dem Blattwassergehalt pro Blattfläche und dem Blattwiderstand berechnet werden. Belot selbst untersuchte in Freilandver-

suchen die Tritiumkonzentration im Blattwasser von Weinreben in Abhängigkeit von der auf Gasvolumen bezogenen spezifischen Tritiumaktivität der Luft und bestimmte die Blattwiderstände mittels Porometermessungen. Er fand für den größten Teil experimenteller Werte innerhalb gewisser Fehlergrenzen (meist < 10 %) eine gute Übereinstimmung mit den theoretisch berechneten Größen. Auch Garland und Cox (1982), die mit Bohnenpflanzen arbeiteten und den Blattwiderstand durch Messung des Gewichtsverlustes bestimmten, bestätigen eine Abhängigkeit der Blatt- $\text{HTO}$ -Konzentrationen von der Tritiumaktivität der Luft (bezogen auf Gasvolumen) entsprechend dem Modell; für Abweichungen einzelner Meßwerte, welche die erwartenden Fehler überschritten, konnten sie allerdings keine einfache Erklärung finden.

Von Couchat et al. (1983) wurde in Begasungsversuchen in einem Phytotron festgestellt, daß sich die Gleichung auf die Aufnahme von  $\text{HTO}$  durch Sonnenblumenblätter anwenden ließ, wenn berücksichtigt wurde, daß nur ca. 80 % des Gewebewassers für den Austausch zugänglich waren. Diese Feststellung bestätigt sich in den eigenen Experimenten insofern, als in die Berechnungen offenbar strenggenommen nur das Parenchym der Blattspreite einbezogen werden darf. In dem Versuch, in dem komplette Radies-Blätter verarbeitet worden waren, konnten nur 75 % der theoretisch zu erwartenden  $\text{HTO}$ -Gleichgewichtskonzentration gemessen werden. Wurden die Blattspreiten getrennt von den Blattstielen und dem größeren Teil der Mittelrippen ausgemessen, ergaben sich deutlich höhere Aktivitätswerte. Der Sachverhalt ist in Abb. 5.1 in einer Zusammenfassung von Ergebnissen der Versuche II und III graphisch dargestellt.

Ein Vergleich gemessener Werte der  $\text{HTO}$ -Aufnahme mit nach dem Modell von Belot erwarteten Werten wurde in den Versuchen III und V für das Blattspreitengewebe von Radies- und Bohnenpflanzen angestellt. Da sich die Aktivität der Luftfeuchtigkeit in der für die Bestimmung der Aufnahme rate entscheidenden Anfangsphase der Exposition leicht veränderte, wurde für den Vergleich von gemessenen und theoretischen Aktivitätswerten eine Korrektur vorgenommen, indem letztere durch Einsetzen der aus Luftfeuchte, Sättigungsfeuchte und Transpirationsrate berechneten Parameter  $f_B$  und  $k_1^B$  in Gl. (4.7) anstatt in Gl. (2.4) ermittelt wurden. Die Übereinstimmung zwischen den solchermaßen berechneten und den gemessenen Werten ist bei den beiden untersuchten Species sehr ähnlich. Wie die Abb. 4.6 und 4.9 zeigen, liegen die meisten berechneten Werte innerhalb der Fehlerbereiche der Meßwerte oder zumindest sehr nahe daran.

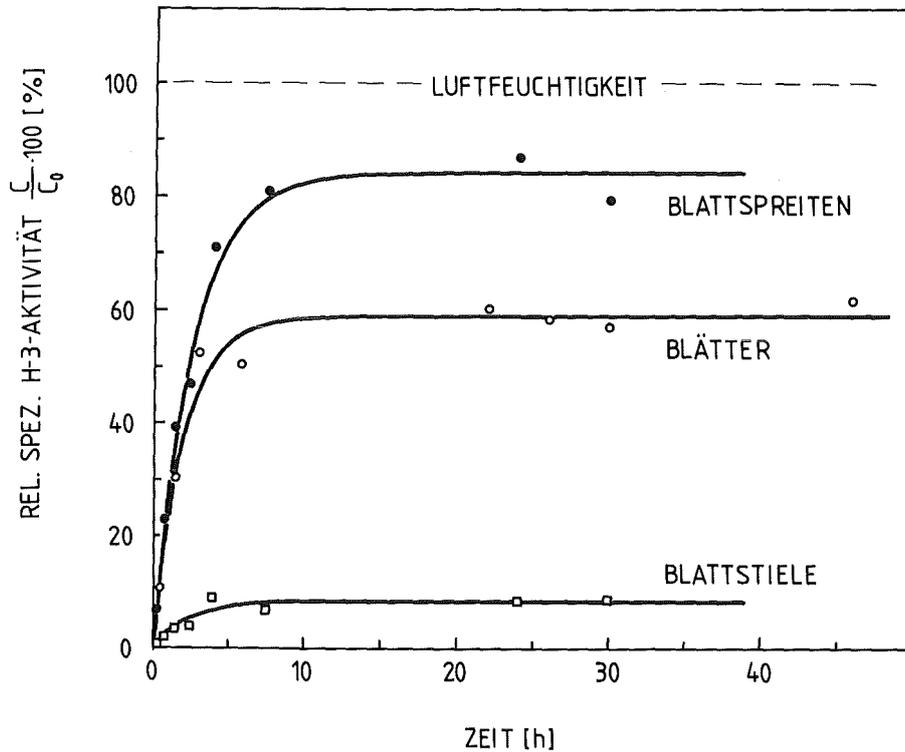


Abb. 5.1: Verlauf der relativen spezifischen Aktivitäten (bezogen auf die spezifische Gleichgewichtsaktivität der Luftfeuchte) des Gewebewassers verschiedener Blattfraktionen während einer HTO-Exposition.

Iediglich kurz vor Erreichen des Gleichgewichtszustandes fällt bei beiden Versuchen auf, daß die Meßwerte um mehr als 10 % unter den theoretischen Werten liegen. Da die Anwendbarkeit des Modells voraussetzt, daß das Wasser der Gasphase im Blatt in unmittelbarem Gleichgewicht mit dem gesamten flüssigen Gewebewasser steht, könnte hier vermutet werden, daß ein Teil des Gewebewassers nicht genügend schnell für den Austausch zugänglich ist, so daß sich die endgültige Gleichgewichtseinstellung verzögert. Bei der Beurteilung der Differenzen zwischen berechneten und gemessenen Aktivitätskonzentrationen müssen auch die Fehlermöglichkeiten berücksichtigt werden, die sich bei der Bestimmung der Klimawerte ergeben: Bei der Messung der relativen Luftfeuchte kann von einer Abweichung vom tatsächlichen Wert von max. 4 % ausgegangen werden (s. Abschn. 3.2.1), die sowohl den Parameter  $f$  wie die Größe  $k_1$  beeinflussen kann. Auch eine von der Luft-

temperatur verschiedene Blattemperatur müßte strenggenommen in die Rechnung miteingehen. Hierauf wird auch von Murphy (1984) hingewiesen, der die Abhängigkeit des Gleichgewichtsverhältnisses  $C_{II}^{OO}/C_O$  von derartigen Temperaturunterschieden untersuchte. Er berücksichtigt dabei vor allem eine mögliche Temperaturerhöhung des Blattes durch Absorption von Wärmestrahlung, was zu einer Erniedrigung des Verhältnisses  $f = C_{II}^{OO}/C_O$  führen würde. Eigene Messungen (mit den Temperaturfühlem des Porometers) deuteten allerdings eher auf eine leichte Temperaturerniedrigung ( $\leq 0,5$  °C) der Blattoberfläche (Transpiration) hin. Das für den Versuch mit Radies errechnete Verhältnis  $f_B = 0,803$  (s.S. 59) würde sich beispielsweise bei einer um  $0,5$  °C gegenüber der Luft niedrigeren Blattemperatur auf  $0,829$  erhöhen (Erniedrigung der Sättigungsfeuchte  $\rho_s$  auf  $15,4 \cdot 10^{-6}$  g/cm<sup>3</sup>, s. Tab. 4.9). Umgekehrt würde eine um  $0,5$  °C höhere Blattemperatur den Wert auf  $0,783$  erniedrigen ( $\rho_s = 16,3 \cdot 10^{-6}$  g/cm<sup>3</sup>). Dazu ist noch zu bedenken, daß zwischen einzelnen Pflanzen sicher individuelle Unterschiede vorhanden sind. Aufgrund der vorliegenden Befunde kann daher die Hypothese, daß sich die berechneten und die im Experiment gefundenen Tritiumkonzentrationen entsprechen, nicht abgelehnt werden.\* Die Aufnahme von gasförmigem HTO durch das untersuchte Blattspreitengewebe scheint sich nach der von Belot angegebenen Formel in guter Näherung beschreiben zu lassen.

Als Konsequenz würde sich daraus z. B. meßtechnisch ergeben, daß umgekehrt Transpirationsraten und Blattwiderstände aus der HTO-Aufnahmerate von Blättern berechnet werden können. Dies ist allerdings eine eher theoretische Möglichkeit, da die Methode in der Praxis vergleichsweise aufwendig ist und nur in Sonderfällen Anwendungsmöglichkeiten finden dürfte.

\*) Anm.: Die Beziehung zwischen den gemessenen (x) und den berechneten (y) Werten läßt sich auch mit Hilfe einer linearen Korrelations- bzw. Regressionsanalyse verdeutlichen (s. auch Couchat et al., 1983): für die 16 Wertepaare der Versuche III und V erhält man einen linearen Korrelationskoeffizienten  $r = 0,974$ . Nach  $y = a + bx$  erhält man eine Regressionskonstante  $a \pm s_a = 112 \pm 132$ , die nicht signifikant von 0 verschieden ist und einen Regressionskoeffizienten  $b \pm s_b = 0,999 \pm 0,063$ , der nicht signifikant von 1 verschieden ist (Berechnung der Standardabweichungen  $s_a$  und  $s_b$  nach Sachs, 1982).

Die prinzipielle Bedeutung einer raschen Aufnahme von atmosphärischem Tritium ins Gewebewasser der Blätter insbesondere von Futterpflanzen und Blattgemüse (das hier nicht untersucht wurde) unter Aspekten der Strahlenhygiene ist offensichtlich. Auch unter dem Gesichtspunkt der Grundlagenforschung erscheint interessant, daß davon ausgegangen werden muß, daß sich das Wasser im Blattgewebe nicht nur aus dem Wasser des Bodens, sondern auch der Luftfeuchtigkeit zusammensetzt (s. auch Strack, 1982), oder anders ausgedrückt, daß die Halbwertszeit, mit der das Gewebewasser ersetzt wird, kürzer ist, als sich aus der Transpirationsrate ergibt. Bezeichnet man das Verhältnis  $\rho/\rho_s$ , das (theoretisch absolut und praktisch nahezu) gleich dem Verhältnis  $p/p_s$  (aktueller Wasserdampfdruck/Sättigungswasserdampfdruck) ist, mit  $h$  (relative Luftfeuchte), so läßt sich nach dem Modell (s. Gl. 4.15) die Austauschrate  $k_1^B$  folgendermaßen annähern:

$$k_1^B = 0,9 \frac{\rho_s}{\Delta\rho} k_T = \frac{0,9}{1-\rho/\rho_s} k_T = \frac{0,9}{1-h} k_T \quad \text{Gl. (5.1)}$$

Aus dieser Gleichung läßt sich entnehmen, um welchen Faktor die Austauschrate - abhängig von der relativen Luftfeuchte - die Transpirationsrate ( $k_T$ ) übersteigen müßte. Es folgt dann z.B.

für	10 % rF :	$k_1^B = k_T$
	55 % rF :	$k_1^B = 2 k_T$
	70 % rF :	$k_1^B = 3 k_T$
	85 % rF :	$k_1^B = 6 k_T$

### 5.1.2 Ausscheidung von aufgenommenem HTO

Daß die Wasseraustauschrate die Transpirationsrate übertrifft, kann auch an der HTO-Ausscheidung nach Beendigung einer Exposition (Versuch VI) gezeigt werden. Die hier gemessene Tritiumausscheidungsrate von  $0,52 \text{ h}^{-1}$  ( $t_{1/2} = 80 \text{ min.}$ ) entspricht eher den in Versuch II und V gemessenen Aufnahmeraten von  $0,53 \text{ h}^{-1}$  ( $t_{1/2} = 78 \text{ min.}$ ) als den Transpirationsraten (Tab. 4.10 und Tab. 4.14). (Die Verhältnisse sind zwar nicht exakt vergleichbar, da die Ausscheidung nicht im Klimaschrank erfolgte, doch dürfen ähnlich niedrige

Transpirationsraten für die Anfangsphase unterstellt werden, da die Pflanzen bis unmittelbar vor Beginn der Ausscheidung dunkel gehalten worden waren).

Auch Belot et al. (1979) haben keine wesentlichen Unterschiede zwischen den nach Gl. (2.6) berechneten und in Ausscheidungsversuchen für den größten Teil des Blattwassers gemessenen Ausscheidungsraten gefunden. Während diese Autoren jedoch eine zweite Komponente des Gewebewassers (< 10 %) mit einer wesentlich längeren Halbwertszeit identifizieren konnten (s. auch Guenot und Belot, 1984) sind den eigenen Experimenten keine Hinweise darauf zu entnehmen. Die nach 29 h verbliebene Restaktivität ist kleiner als 0,2 % der Ausgangsaktivität und kann durch Aktivitätsspuren des Bodens erklärt werden. Belot (1984) diskutiert für die langsamer ausgeschiedenen Komponenten des tritiierten Gewebewassers einen schlechter zugänglichen Wasseranteil in der Pflanze und eine allmähliche Freisetzung von organisch gebundenem Tritium, schließt jedoch auch eine Remobilisierung von tritiiertem Wasser aus Speicherorganen nicht aus. Bereits 1959 konnte in Untersuchungen mit (flüssigem) HDO von Hübner gezeigt werden, daß das gesamte in der Pflanze enthaltene Wasser austauschfähig ist und der Austausch rasch abläuft. Es ergaben sich keine Hinweise auf in der Zellwand, dem Protoplasma oder der Vakuole aktiv gebundenes Wasser.

Die Halbwertszeiten, die für die Ausscheidung von über die Wurzeln aufgenommenem HTO gemessen werden, sind sehr unterschiedlich und naturgemäß stark von der untersuchten Species abhängig. Da bei diesem Vorgang der Weg des Wassers durch die Pflanze eine Rolle spielt, sind solche Werte nicht mit den nach Aufnahme aus der Luft gemessenen Halbwertszeiten vergleichbar, es sollen daher hier nur einige Beispiele angegeben werden: Gogate et al. (1975) untersuchten drei Species und fanden für *Raphanus sativus* L. eine Halbwertszeit von ca. 40 h, für *Amaranthus viridis* L. zwei Komponenten mit ca. 2,4 h bzw. 90 h Halbwertszeit und für *Phyllanthus fraternus* Webster ebenfalls zwei Komponenten (ca. 30 h und 230 h). Mantell et al. (1979) geben in einer Literaturübersicht Werte für die mittlere Lebensdauer ( $t_m = t_{1/2} / \ln 2$ ) des aus dem Boden aufgenommenen Tritiums im Gewebewasser von Blättern an: die Spanne reicht von 3 h bei der Sonnenblume bis zu Werten von maximal 11 d bei Waldbäumen.

### 5.1.3 Überlegungen zur Aufnahme von HTO aus Atmosphäre und Boden

Die 29, 72 und 120 h nach Beendigung der HTO-Exposition in Versuch VI für das Blattspreiten-HTO gemessenen Werten liegen auffälligerweise deutlich unter der Restaktivität des Bodenwassers und auch der Knollen und Blattstiele (s. Tab. 4.16). Da für das Bodenwasser keine homogene Aktivitätsverteilung zu unterstellen ist, dürfen die Werte nur mit Vorsicht interpretiert werden, sie können jedoch im Sinne einer Verdünnung der Tritiumkonzentration durch die inaktive Luftfeuchtigkeit gedeutet werden. Entsprechende Effekte, die sich aus einem Austausch des Gewebewassers mit der Luftfeuchtigkeit zwangsläufig ergeben würden, wurden bereits beobachtet: Cline (1953) führte Versuche zur HTO-Aufnahme von Bohnenpflanzen aus Nährlösung durch und stellte fest, daß sich nach 72 h noch kein Aktivitätsgleichgewicht zwischen Blattwasser und Nährlösung eingestellt hatte. Mantell et al. (1979) untersuchten gezielt diesen Effekt an Orangenbäumchen. Sie fanden bei einer relativen Luftfeuchte von 55 % rF im Gleichgewichtszustand, der sich nach etwa 30 h eingestellt hatte, in den Blattspreiten nur 45 - 60 % der Tritiumkonzentration der Nährlösung, während die Konzentration der Mittelrippen höher war und in den Stengeln und Wurzeln dem Wert der Nährlösung gleichkam. Überziehen der Blätter mit einer Silikonschicht führte zu einem starken Rückgang der Aktivitätsaufnahme; dieselbe Wirkung hatte ein teilweises Entlauben der Pflanzen. Wurden die Bäumchen in einem trockenen Luftstrom gehalten ( $\approx 0$  % rF), waren die Tritiumkonzentrationen in allen Pflanzenteilen mit der Konzentration der Nährlösung annähernd identisch, während sie in einem wasserdampfgesättigten Luftstrom ( $\approx 100$  % rF) 7 % der Konzentration der Nährlösung nicht erreichten. Diese Befunde lassen sich durch eine Aufnahme der Aktivität mit dem Transpirationsstrom und einen Austausch von Blattwasser mit Luftfeuchtigkeit plausibel erklären. Raney und Vaadia (1965) gaben nach Untersuchungen mit Sonnenblumen folgende Beziehung für die spezifische Gleichgewichtsaktivität im Blattwasser bei HTO-Aufnahme über die Wurzeln an:

$$C_1/C_0 = 1 - p_2/p_1$$

oder mit den in der vorliegenden Arbeit benutzten Symbolen ( $p_2/p_1 = h \hat{=} \text{rel. Luftfeuchte}$ ):

$$C_{11}^{\infty} = (1 - h) C_{15}$$

Garland und Cox (1982) und Belot (1984) leiten dementsprechend als Näherungswert für die Gleichgewichtsaktivität bei gleichzeitigem Vorliegen von nennenswerten Tritiumkonzentrationen im Boden und in der Luftfeuchtigkeit folgende Beziehung her:

$$C_{11}^{\infty} = h C_0 + (1 - h) C_{15} \quad \text{Gl. (5.2)}$$

Für die vorliegende Arbeit wurden keine Versuche zur Beschreibung des Aktivitätsverlaufs bei gleichzeitiger Verabreichung von HTO über die Blätter und das Wurzelsystem unternommen. Auch aus der Literatur sind keine Angaben bekannt, die obige Gleichung unter konstanten, kontrollierten Bedingungen experimentell bestätigen würden. Versuche mit dieser Zielsetzung könnten daher weitere Beiträge zum Verständnis des Problems liefern.

Strack (1982) beschäftigte sich mit dem Verhalten von Tritium im Blattwasser von Bäumen unter natürlichen, dynamischen Bedingungen. Davon ausgehend gibt er ein Kompartiment-Modell an, wonach die Änderungsrate der HTO-Konzentration im Blatt in Abhängigkeit von Boden- und Luftaktivität durch die Rate des reinen Wasserdampfaustausches zwischen Blatt und Luftfeuchtigkeit ( $k_E$ , vapour exchange) und die Transpirationsrate ( $k_T$ ) bestimmt wird. Für den Gleichgewichtszustand gilt demnach (vgl. Gl. 5.2):

$$C_{11}^{\infty} = \frac{k_E C_0 + k_T C_{15}}{k_E + k_T} = \frac{k_E}{k_E + k_T} C_0 + \left(1 - \frac{k_E}{k_E + k_T}\right) C_{15} \quad \text{Gl. (5.3)}$$

#### 5.1.4 Aufnahme von tritiiertem Wasserdampf durch Blattstiele, Stengel und Früchte

Für den Fall, daß die Pflanzen ausschließlich über die Luft gegenüber HTO exponiert sind ( $C_{15} = 0$ ), vereinfacht sich das von Strack (1982) vorgeschlagene Modell auf folgenden Ausdruck:

$$C_{11} = \frac{k_E}{k_E + k_T} C_0 (1 - e^{-(k_E + k_T)t}) \quad \text{Gl. (5.4)}$$

Auch bei dieser Überlegung wird deutlich, daß die tatsächliche Halbwertszeit des Blattwassers kürzer ist ( $k_1 = k_E + k_T$ ), als sich aus der reinen Transpirationsrate ergibt. Die Gleichung läßt sich zudem zur Beschreibung der Verhältnisse in den Blattstielen anwenden. Dabei ging man davon aus, daß  $k_E$  den Einstrom von Wasser mit der spezifischen Aktivität  $C_0$  aus der Luft - oder auch von Wasser mit der spezifischen Aktivität  $C_{11}$  aus der Blattspreite - beschreibt und  $k_T$  den Einstrom von Wasser (mit der spezifischen Aktivität  $C = 0$ ) aus dem Boden über den Transpirationsstrom.

In Versuch III (s.S. 62) wurde folgende Funktion durch Regressionsanalyse an die Aktivitätsmeßwerte des Blattstiel-H<sub>2</sub>O angepaßt:

$$C_{12} = C_{12}^{\infty} (1 - e^{-k_{12}t})$$

Für  $C_{12}^{\infty}$  wurde ein Wert von 346 Bq/g H<sub>2</sub>O und für  $k_{12}$  von 0,38 h<sup>-1</sup> gefunden. Mit  $C_{12}^{\infty} = b C_0^{\infty}$  und  $C_0^{\infty} = 4\,035$  Bq/g H<sub>2</sub>O ergibt sich:

$$b = \frac{C_{12}^{\infty}}{C_0^{\infty}} = \frac{k_E}{k_E + k_T} = 0,086$$

$$k_{12} = k_E + k_T = 0,38 \text{ h}^{-1}$$

Daraus folgt:

$$k_E = 0,033 \text{ h}^{-1}$$

$$k_T = 0,35 \text{ h}^{-1}$$

Der auf diese Weise erhaltene Wert für  $k_T$  liegt zwischen den im Versuch durch Bestimmung des Gewichtsverlustes gemessenen Extremwerten von 0,1 h<sup>-1</sup> und 0,4 h<sup>-1</sup> für die Transpirationsrate (Tab. 4.10). Für den Einstrom von Aktivität ergibt sich erwartungsgemäß eine sehr niedere Rate  $k_E$ , auf die auch die niedere Gleichgewichtskonzentration zurückzuführen ist. Es läßt sich allerdings zunächst nicht entscheiden, ob dieser Einstrom in erster Linie direkt als Austausch mit der Luftfeuchtigkeit oder aus dem Blattspreitengewebe erfolgt. Zur Prüfung dieser Frage können weitere an Blattstielen gemachte Beobachtungen herangezogen werden:

So zeigte sich (Versuch IV, Abb. 4.8), daß in den Blattstielen von im

Dunkeln gehaltenen Radies- und Möhrenpflanzen höhere HTO-Konzentrationen gemessen werden konnten als in entsprechenden Pflanzen, die nach dem Dunkelhalten für 6 h belichtet worden waren. Hier macht sich offenbar der Stillstand oder eine wesentliche Verlangsamung des Transpirationsstromes bemerkbar (s. auch Gl. (5.4)).

Ein ähnlicher Effekt einer Aktivitätserhöhung in den Blattstielen von Bohnenpflanzen wurde in Versuch V (Abb. 4.11) durch das Abtrennen der Blattspreiten bewirkt. Während in Versuch IV der Aktivitätseinstrom in die Blattstiele theoretisch auch als HTO-Diffusion aus dem Mesophyll im Apoplasten oder eventuell auch als HTO-Strömung im Phloem erfolgt sein könnte, ist in Versuch V nur eine Aufnahme aus der Luft vorstellbar. Für diese Deutung spricht auch, daß sich in nicht direkt exponierten unterirdischen Speicherorganen (Radieschen und Karotten, Versuch II, IV und VI, Tab. 4.7, Abb. 4.8, Tab. 4.16) keine aus oberirdischen Pflanzenteilen translocierte Aktivität nachweisen ließ. Die Aufnahme aus der Luftfeuchtigkeit in Blattstiele (sowie Stengel und Früchte, s. Versuch V) ist sowohl als Diffusion durch eventuell vorhandene Stomata als auch als Diffusion durch die Cuticula vorstellbar, entsprechend der cuticulären Transpiration. Wenn die Wasserdurchlässigkeit der Cuticula auch gering ist, so ist grundsätzlich eine Diffusion auch von flüssigem Wasser möglich (Wetzel, 1924; Gessner 1956). Kline und Stewart (1974) machen für in Grashalmen gemessene HTO-Aktivität direkten Durchtritt durch die Epidermis verantwortlich. Vartapetian und Kursanov (1961) fanden einen Austausch von  $H_2O^{18}$  mit dem Gewebewasser der Stengel von Bohnenpflanzen, der allerdings wesentlich langsamer vor sich ging als bei den Blättern der Pflanzen. Einige Autoren untersuchten HTO-Aktivitäten in Blattstielen und Stengeln, um Hinweise auf die Transportmechanismen im Phloem zu erhalten: so konnten Trip und Gorham (1968) zwar durch entsprechende Experimente ("steam-girdling") die Möglichkeit eines Flusses von HTO aus der Blattspreite in den Blattstiel im Xylem ausschließen, die Möglichkeit einer Lösungsströmung im Phloem hielten sie jedoch für gegeben. Sie schlossen dies aus dem Befund, daß sich für HTO und  $^{14}C$ -Glukose, die über die "flap-feeding"-Technik (Eintauchen eines einzelnen abgelösten Blattleitbündels in die Fütterungslösung) appliziert worden waren, nach 1 bis 3 h im Blattstiel (von Kürbispflanzen) vergleichbare Gradienten fanden. Zuvor waren Biddulph und Cory (1957), Gage und Aronoff (1960) und Choi und Aronoff (1966) zu einem anderen Ergebnis gekommen. Biddulph und Cory (1957) hatten nach Applikation von flüssigem HTO an Bohnenblättern und  $^{14}CO_2$ -Begasung unter-

schiedliche Transportgeschwindigkeiten für Wasser und organische Moleküle gefunden: 87 cm/h für HTO und 107 cm/h für  $^{14}\text{C}$ -Saccharose. Gage und Aronoff (1960) stellten nach einstündiger HTO-Begasung von Sojabohnenblättern zwar einen Transport von Photosyntheseprodukten in den Stengeln, jedoch nicht von HTO fest. Choi und Aronoff (1966) exponierten die Blättchen und Blattstiele von Sojabohnenpflanzen getrennt gegenüber HTO-Dampf. Bei Exposition der Blättchen konnte nach 80 min. nur im obersten von 8 Blattstielsegmenten nennenswerte HTO-Aktivität gemessen werden (bei zeitweiser Belichtung geringer als bei Dunkelheit!), während sich in den einzelnen Segmenten für das (bei Belichtung) organisch fixierte Tritium größere relative Aktivitäten ergaben. Ein Vergleich ihrer Befunde mit den Ergebnissen von ausführlichen mathematischen Modellrechnungen führte die Autoren zu dem Schluß, daß in den untersuchten Pflanzen eine Massenströmung bei der Assimilattranslokation keine bedeutende Rolle spielt. Bei ausschließlicher Exposition des Blattstieles fanden die Autoren nur bei Belichtung (35 min.) eine Translokation von HTO in die Blattspreite, hingegen nicht bei Dunkelhalten der Pflanze über einen entsprechenden Zeitraum.

Der bei den eigenen Experimenten untersuchte umgekehrte Fall, d.h. die Erhöhung der Aktivität in Pflanzenteilen beim mutmaßlichen Fehlen eines Transpirationsstromes, wurde oben für Blattstiele diskutiert. Eine entsprechende Beobachtung wurde auch für Früchte (Bohnen) gemacht. Dabei wurde der Stillstand des Wasserstromes durch Abszision der Spreiten bewirkt. Der Effekt erscheint bei Früchten überraschend, leider liegt zu diesem Problem jedoch nur eine Einzelmessung vor.

Keinen Hinweis auf einen kontinuierlichen Ein- bzw. Durchstrom von (inaktivem) Bodenwasser ergibt der zeitliche Verlauf der HTO-Konzentration der Früchte von intakten Bohnenpflanzen (Versuch V). Man kann hier einen anfangs linearen Anstieg bis hin zu einem Gleichgewichtswert annehmen, wie er von Dinner et al. (1980) für HTO-exponierte Tomaten beschrieben wurde. Diese Autoren fanden einen demjenigen der Blätter ähnlichen Gleichgewichtswert und eine Halbwertszeit von 200 h. Im eigenen Versuch V wurde innerhalb der Versuchsdauer in den Früchten kein Gleichgewicht erreicht. Geht man jedoch von einem den Blättchen entsprechenden Gleichgewichtswert aus, läßt sich eine Halbwertszeit von 120 h errechnen. Dieser Wert ist viel zu hoch bzw. die Aufnahmezeit ist viel zu niedrig, um eine Beteiligung der

Transpirationsrate an der effektiven Aufnahmerate ähnlich Gl. (5.4) vermuten zu lassen. Der Vorgang läßt sich eher als langsamer Austausch von Luftfeuchtigkeit mit dem Gewebe der vergleichsweise voluminösen, wasserreichen Frucht verstehen. Daher erhält man einen Aktivitätsverlauf, der sich grundsätzlich von jenem in Blattstielen unterscheidet, der - in der beschriebenen Weise - nach relativ kurzer Halbwertszeit ein Gleichgewicht auf niedrigem Niveau zu erreichen scheint.

Für die HTO-Konzentrationen der Blattstielfraktion der Bohnenpflanzen (s. Tab. 8.14) läßt sich zwar aufgrund der Streuung der Meßwerte keine Anpassung entsprechend Gl. (4.2) oder Gl. (5.4) vornehmen, doch ist aus den Werten auch hier das Erreichen eines - vermutlich von der Stärke des Transpirationsstromes mitbestimmten - Niveaus erkennbar, das ca. eine Zehnerpotenz unter dem des Blattspreiten-HTO liegt.

Betrachtet man die bei der Exposition von Radies-, Möhren- und Bohnenpflanzen gegenüber gasförmigem HTO bei der Untersuchung der Tritiumaktivitäten des Gewebewassers gemachten Beobachtungen im Zusammenhang, ergibt sich folgendes Bild:

Bei geöffneten Stomata ist die Halbwertszeit für die Erneuerung des Gewebewassers von Blattspreitengewebe (Mesophyll) in Folge eines Austausches mit Luftfeuchtigkeit kürzer, als sich aus der Transpirationsrate ergibt. In anderen oberirdischen Pflanzenteilen (Mittelrippen, Blattstielen, Stengeln) jedoch findet sich ein wesentlich geringerer Anteil an aus der Luft stammender Feuchtigkeit, die Erneuerung des Gewebewassers erfolgt gerade bei geöffneten Stomata der Blattspreiten in der Hauptsache aus dem Boden und durch den Transpirationsstrom. Das Gewebewasser von nicht mit der Luftfeuchtigkeit in direkter Berührung stehenden Pflanzenteilen (Knollen, Rüben) scheint praktisch ausschließlich vom Bodenwasser gebildet zu werden.

## 5.2 Höhe der absoluten Tritiumaktivität und ihre Verteilung in der Pflanze

Besonders unter Strahlenschutzaspekten sind außer den Tritiumkonzentrationen auch die absoluten Mengen der in die Pflanzen aufgenommenen Aktivität und ihre Verteilung auf verschiedene Pflanzenorgane von Interesse. Da die Hauptmasse der meisten Gewebe von Wasser gebildet wird, findet sich nach einer Exposition von Nutzpflanzen gegenüber HTO-Dampf über zwei bis drei Tage entsprechend dem oben Gesagten der bei weitem überwiegende Anteil an Tri-

tiumaktivität im Gewebewasser von Blättern oder auch anderen wasserreichen oberirdischen Pflanzenteilen (Früchten). So war in Radiespflanzen (Versuch II, Tab. 4.8) über den gesamten Expositionszeitraum stets deutlich über 98 % der gesamten aufgenommenen Aktivitätsmenge im Gewebewasser der Blätter lokalisiert, bei den untersuchten Bohnenpflanzen (Versuch V, Tab. 4.15) stellte das Gewebewasser von Blattfiedern und Früchten nach 48 h Begasung zusammen ca. 95 % der Gesamtaktivität, davon entfielen 32 % auf die Früchte. Demgegenüber ist die in Stengeln oder den unterirdischen Speicherorganen enthaltene HTO-Aktivität gering.

Mengenmäßig gering ist auch die Aktivität des organisch gebundenen Tritiums. Zwar erreichte die spezifische Aktivität (bezogen auf die Masse des Verbrennungswassers) des organisch festgelegten Tritiums ( $OBT_{nx}$ ) z.B. in Versuch II in den Blättern etwa 18 % der spezifischen Aktivität des Gewebewassers (bei Mitberücksichtigung der durch Isotopenaustausch reversibel gebundenen Tritiumatome etwa 35 %), diese Tritiumkonzentrationen entsprechen jedoch wesentlich geringeren Anteilen an der aufgenommenen Aktivitätsmenge. In dem erwähnten Beispiel bleibt der Anteil der Aktivität des in der gesamten Pflanze vorhandenen organisch gebundenen Tritiums unter 1,5 %, der des  $OBT_{nx}$  unter 1 % der Gesamtaktivität (s. Tab. 4.8). Diese Werte wurden nach 46 h Dauerlicht erhalten, d.h. unter Bedingungen, die in der Natur einem Zeitraum von 4 bis 5 Tagen entsprechen würden. Bei längeren Photosynthesezeiten ist zumindest für einen bestimmten Zeitraum mit einem annähernd linearen Anstieg zu rechnen (s. Abschn. 5.3.2). Bei Kenntnis der Höhe der atmosphärischen Tritiumaktivität und der Dauer einer eventuell erhöhten Aktivität in der Umwelt können hieraus Schlüsse auf eine mögliche länger dauernde Belastung von Gemüse infolge von Tritiumfreisetzungen gezogen werden.

Die Höhe der in den vorliegenden Untersuchungen eingesetzten Aktivität war so niedrig, daß ein feststellbarer Einfluß der Strahlenwirkung auf physiologische Vorgänge nicht in Betracht zu ziehen war. Untersuchungen, die sich mit Strahlenwirkungen von Tritium auf das Wachstum von Sojabohnen befaßten, wurden von Chorney et al. (1965) durchgeführt. Sie zogen die Pflanzen in HTO-enhaltendem Milieu auf und beschrieben sichtbare Veränderungen im Vergleich mit Kontrollpflanzen. Dabei stellten sie folgendes fest: die exponierten Pflanzen bildeten weniger Knoten, Früchte und Samen, sie zeigten tumorartige Wucherungen im Bereich der Sproßspitzen und die jüngsten Blätter

hatten chlorophyllfreie Bezirke; aus sofort nach der Ernte gepflanzten Samen entwickelten sich vollkommen normale Pflanzen, aus nach 44 Wochen Lagerung gepflanzten Samen entwickelten sich weitgehend normale Pflanzen, wobei nur die Primärblätter einige Pigmentanomalien aufwiesen. Diese Effekte zeigten sich, nachdem die Pflanzen über 90 Tage in einer Nährlösung mit einer spezifischen Aktivität von 400  $\mu\text{Ci/g H}$  (14,8 MBq/g H) kultiviert worden waren, wobei die Pflanzen selbst dann eine spezifische Aktivität von 337,8  $\mu\text{Ci/g H}$  (12,5 MBq/g H) aufwiesen. Bei den eigenen Untersuchungen wurde mit folgenden maximalen spezifischen Aktivitäten gearbeitet: Luftfeuchtigkeit: 38 kBq/g H (Versuch II); Gewebewasser: 31 kBq/g H (Blattspreiten, Versuch III); Gesamtpflanze: 12 kBq/g H (Versuch II, Tab. 4.8). Diese Aktivitäten, die nur über wenige Stunden oder Tage auf die Pflanzen einwirkten, liegen um ca. drei Zehnerpotenzen unter denjenigen, mit denen Chorney arbeitete, so daß hier feststellbare Strahlenwirkungen weder erwartet noch beobachtet wurden.

### 5.3 Organisch gebundenes Tritium (OBT)

#### 5.3.1 Isotopenaustausch

In den Experimenten, in denen versucht wurde, durch Isotopenaustausch in der organischen Substanz gebundenes Tritium zu bestimmen, zeigte sich, daß diese Austauschvorgänge zwischen Wasserstoffatomen von organischen Molekülen und Wasser überraschend schnell ablaufen. In den beiden Vakuumfiltrationsversuchen wurden die maximal erreichten R-Werte für das austauschbare Tritium bereits bei den jeweils zeitlich ersten Meßwerten erhalten (nach 10 bzw. 30 min.), so daß Angaben über die Halbwertszeit nicht möglich waren. Bei den Begasungsversuchen ließ sich der Verlauf der spezifischen Aktivität des organisch gebundenen Tritiums von Blattgewebe gut beschreiben (Gl. 4.8), indem für die Anstiegsrate des austauschbaren Anteils die Anstiegsrate der spezifischen Aktivität des Gewebewassers selbst eingesetzt wurde. Daraus kann gefolgert werden, daß die für einen Austausch zugänglichen Wasserstoffatome organischer Moleküle praktisch im direkten Austauschgleichgewicht mit dem Wasserstoff des umgebenden Wassers stehen. Eine Unterschätzung des raschen Austausches von Tritium in Wasser und OH-Gruppen beispielsweise von Kohlenhydraten kann nach Kirchmann (1984) leicht zu Fehlinterpretationen von OBT-Bestimmungen von biologischem Material führen. Andererseits kann ge-

rade die leichte Austauschbarkeit des solchermaßen gebundenen Tritiums durch Rückaustausch mit Luftfeuchtigkeit zu einem Verlust von Aktivität während der Verarbeitung des markierten Materials führen. So weisen Guenot und Belot (1984) darauf hin, daß sie einen austauschbaren Anteil am OBT nach mehrstündiger HTO-Begasung von Kartoffel- und Weinpflanzen nur fassen konnten, wenn sie das gefriergetrocknete Pflanzenmaterial unter Ausschluß von Luftfeuchtigkeit weiterverarbeiteten. Dies bestätigte sich in ähnlicher Form bei den eigenen Untersuchungen: wurden bei der Verarbeitung von getrocknetem Material Vorkehrungen für einen Schutz der Proben vor Luftfeuchtigkeit getroffen (Belüften der Gefriertrocknungsanlage mit N<sub>2</sub> usw., siehe Abschn. 3.3) - was bei allen beschriebenen Versuchen der Fall war - so konnten etwa zwei- bis viermal größere  $R_{ex}$ -Werte gemessen werden, als wenn auf besondere Vorsichtsmaßnahmen verzichtet wurde, wie dies bei Vorversuchen praktiziert worden war<sup>1)</sup>. Der Anteil der austauschfähigen H-Atome an der Gesamtzahl der in organischen Molekülen gebundenen H-Atome - der durch den in der vorliegenden Arbeit als  $R_{ex}$  bezeichneten Wert gegeben ist - wurde von Guenot und Belot (1984) für das untersuchte Blattmaterial zu ca. 20 % ermittelt. Diese Zahl kann gut als durchschnittlicher Richtwert auch für die bei den Untersuchungen an Radies-, Bohnen- und Möhrenblättern<sup>2)</sup> erhaltenen Befunde gelten. Die Werte weisen dabei eine gewisse Schwankung auf, so reicht die Spannweite der durch Kurvenanpassung ermittelten  $R_{ex}$ -Werte von 12,4 % bei Radiesblattspreiten über 18,5 % bei kompletten Radiesblättern bis 22,2 % bei den Buschbohnenblattfiedern.

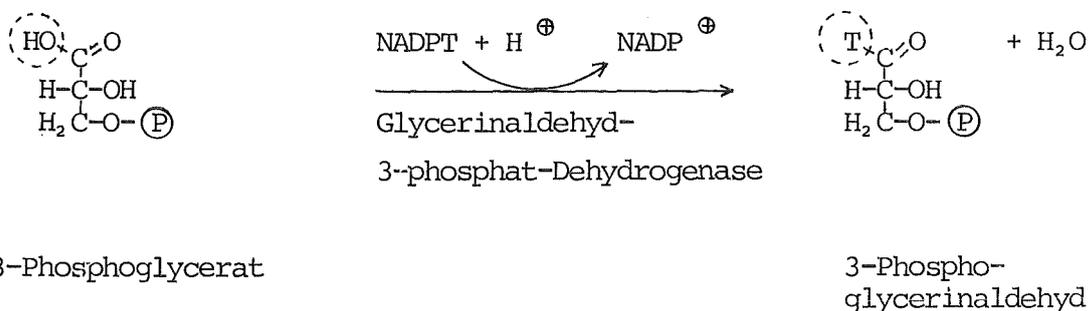
1) Anm.: Stichprobenartig wurde auch der Verlauf des Rückaustausches des OBT<sub>ex</sub> von pulverisiertem Pflanzenmaterial, das an der Luft stehen gelassen wurde, verfolgt. Dabei ergab sich ein 50 %iger Rückaustausch nach ca. 1 bis 2 h. Die Aussagekraft dieser Messung ist begrenzt, weil die Geschwindigkeit des Vorgangs wohl stark vom Grad der Pulverisierung, von der exponierten Oberfläche, der Luftfeuchte usw. abhängt.

2) Anm.: Die an Möhren-Blattfiedern gemachten Einzelmessungen ergaben  $R_{ex}$ -Werte von 20,8 % (L) bzw. 20,6 % (D) ( $C_{OBT}$ : 394 bzw. 351 Bq/g H<sub>2</sub>O, s. auch Tab. 8.11).

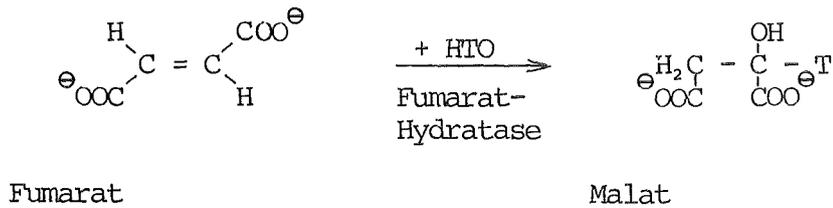
Der damit größenordnungsmäßig abgesteckte Bereich von 10 - 25 % scheint jedoch für das gesamte untersuchte Blattmaterial charakteristisch zu sein. Er mag etwas niedrig erscheinen, wenn man von einer Austauschbarkeit aller an O, N oder S gebundenen H-Atome ausgeht. Einerseits können hier experimentelle Einflüsse nicht völlig ausgeschlossen werden, andererseits muß aber durchaus auch mit einer nicht 100 %igen Zugänglichkeit der grundsätzlich austauschbaren H-Atome gerechnet werden. Dies belegen Untersuchungen von Lang und Mason (1960) und Sepall und Mason (1961), die sich mit der Zugänglichkeit der Hydroxylgruppen verschiedener Polysaccharide für einen Wasserstoffaustausch beschäftigten. Sie stellten fest, daß sich zwar bei Amylose und Amylopektin der Wasserstoff praktisch aller vorhandenen OH-Gruppen austauschen ließ, daß die Austauschrate der meisten anderen untersuchten Proben jedoch deutlich unter der theoretischen lag. Für Cellophan oder Cellulosefilm ergab sich noch eine gute Zugänglichkeit (70 - 80 %), jedoch eine relativ geringe für bakterielle Cellulose und Baumwollfasern (40 %). Für diese Erscheinungen machen die Autoren zumindest z.T. die Struktur der jeweiligen Stoffe verantwortlich, so wird für amorphe Molekülbezirke eine höhere Zugänglichkeit vermutet als für kristalline.

### 5.3.2 Tritium im Stoffwechsel

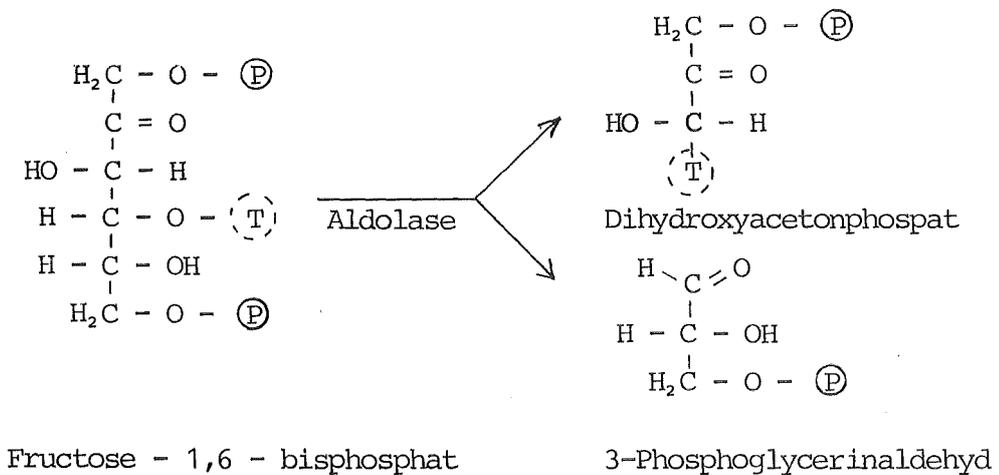
Für einen Einbau von Tritium aus HTO in stabile C-T-Bindungen sind verschiedene Wege denkbar (s. Moses und Calvin, 1959; Simon et al., 1964). Zunächst ist natürlich die enzymatische Reduktion von Phosphoglycerinsäure zu Phosphoglyceraldehyd im Rahmen der Photosynthese in Betracht zu ziehen:



Außerdem sind aber noch einige andere Reaktionen als Einbauwege vorstellbar, z.B. der direkte Einbau von Wasser in ein organisches Molekül. Ein Beispiel hierfür ist die Bildung von Malat aus Fumarat im Citratzyklus:

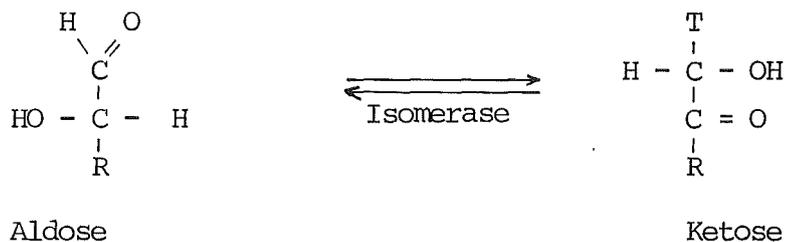


Eine weitere Möglichkeit ist die enzymatische Translokation eines durch Isotopenaustausch an O, N oder S gebundenen Tritiumatoms. Folgendes Beispiel läßt sich hierfür anführen:



Bei dieser Darstellung handelt es sich aber um eine formale Schreibweise; tatsächlich wird nicht dasselbe Tritium, das die Hydroxylgruppe verläßt, an das C-3-Atom des entstehenden Dihydroxyacetonphosphats gebunden. Prinzipiell gilt bei all diesen Reaktionen, daß der genaue Reaktionsmechanismus unter Einbeziehung der Vorgänge am aktiven Zentrum der Enzyme betrachtet werden muß. Im Falle obiger Aldolasereaktion würde dies bedeuten, daß die SH-Gruppe eines Cysteins als Tritionenacceptor und der Imidazolring eines Histidins als Tritionendonator beteiligt sein müßten (s. Karlson, 1980). Die C-T-Bindung würde also über den Austausch eines HTO-Tritiumatoms gegen ein - in austauschfähiger Position - an den Stickstoff des Imidazolrings gebundenes Protiumatom zustande kommen.

Ein Einbau von Tritium in C-T-Bindungen ist ferner in Isomerase-, Epimerase-, Transaldolase und Transketolasereaktionen (Pentosephosphatzyklus) denkbar, z. B.:



Derartige Reaktionen machen Simon und Trebst (1961) und Simon et al. (1964) in erster Linie dafür verantwortlich, daß sie in Photosyntheseversuchen nach T/<sup>14</sup>C--Doppelmarkierung in Zuckern T/<sup>14</sup>C-Verhältnisse fanden, die das beim alleinigen T-Einbau durch Reduktionsreaktionen theoretisch zu erwartende Verhältnis von 7/6 deutlich überstiegen. Die Autoren konnten in Versuchen mit Chlorella-Suspensionen und isolierten Chloroplasten nach Photosyntheszeiten von wenigen Minuten in Hexosen T/<sup>14</sup>C-Verhältnisse von bis zu 7/1 feststellen. Für den Gesamt-Tritiumeinbau pro <sup>14</sup>C war jedoch innerhalb eines Versuches ein Absinken mit der Belichtungszeit zu registrieren, so z.B. von 4,6 bei 0,5 min. auf 2,2 bei 5 min. Es ist daher vorstellbar, daß sich ein verstärkter Tritiumeinbau durch das Ablaufen von Reaktionen des Pentosephosphatzyklus, dessen Ausmaß nach Simon und Trebst (1961) durch das T/<sup>14</sup>C-Verhältnis erfaßt werden könnte, v.a. nach sehr kurzen Photosyntheszeiten bemerkbar macht, für den Aufbau der Biomasse jedoch mit der Zeit an Bedeutung verliert. So zeigen Ergebnisse von Belot et al. (1983) und Guenot und Belot (1984) bei Photosyntheszeiten von einigen Stunden eine geringere Tritium- als <sup>14</sup>C-Markierung. Diese Autoren arbeiteten mit Landpflanzen, die sie über maximal 6 bzw. 4 h mit HTO-Dampf und <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> begasten. Sie untersuchten dann die Beziehung der relativen spezifischen Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums (spezifische Aktivität bezogen auf spezifische Aktivität des Gewebewassers, als R<sub>T</sub> bezeichnet) zur relativen spezifischen <sup>14</sup>C-Aktivität (spezifische Aktivität bezogen auf spezifische Aktivität des <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> der Luft, als R<sub>C</sub> bezeichnet) durch Regressionsanalyse und stellten eine gute lineare Korrelation der Werte fest. Wurde R<sub>T</sub> gegen R<sub>C</sub> aufgetragen, ergab sich bei Belot et al. (1983) für die Blätter von Kartoffel- und Maispflanzen eine Steigung der Regressionsgeraden von 0,37 und bei Guenot und Belot (1984) für die Blätter von Kartoffel- und Weinpflanzen von 0,6 ± 0,1. Die Werte liegen deutlich unter dem theoretisch zu erwartenden Verhältnis von ca. 1. Die Autoren führen diesen Effekt zum Teil auf einen Verlust von durch biochemische Prozesse in aus-

tauschbare Positionen gebundenen Tritiumatomen zurück und zum Teil auch auf eine Diskriminierung von Tritium gegenüber Protium. Eine derartige Diskriminierung zeigte sich (außer bei Algen s. S. 19) auch in Versuchen, in denen Landpflanzen während ihres gesamten Wachstums einer konstanten Konzentration von HTO ausgesetzt waren. So fand McFarlane (1976) in Luzerne am Ende des Beobachtungszeitraumes in der organischen Substanz 77,5 % der Tritiumkonzentration des externen HTO (bei einer Gewebs-HTO-Konzentration von 97,4 %) und Garland und Ameen (1979) stellten nach einer Aufzucht-dauer von 30 Tagen in der organischen Substanz von Mais und Gerste ein deutlich niedrigeres T/H-Verhältnis als in der Umgebung fest.

Bei den eigenen Untersuchungen zeigte sich zunächst in den Vakuumfiltrationsversuchen, daß bei Fehlen von Licht, d.h. bei mangelnder Bereitstellung von mit Tritium reduziertem NADP nur ein geringer T-Einbau in stabile Positionen stattfindet. Nach 24 Stunden fanden sich in den dunkelgehaltenen Radiesblättern in organisch stabil gebundener Form nur 1,1 % der Tritiumkonzentration des Gewebewassers gegenüber 8,5 % in den belichteten Blättern. Weitere Hinweise auf die Lichtabhängigkeit des T-Einbaus erbringen die Begasungsversuche mit Radiespflanzen. Man kann nämlich die in den unter Dauerlicht durchgeführten Versuchen (Versuche II und III) erhaltenen Werte mit denjenigen des im Tag/Nachtwechsel gefahrenen Versuchs (IV) vergleichen. So betrug in Versuch IV die Gesamtbegasungsdauer 66 h, die Gesamtbelichtungsdauer jedoch nur 36 h. Am Ende der Begasung wurde in den Blattspreiten eine relative spezifische  $OBT_{nx}$ -Aktivität ( $= R_{nx} \cdot 100 \%$ ) von 16,1 % gemessen (s. D-Werte, Tab. 8.10). Dieser Wert stimmt sehr gut mit den sich für Blätter (Versuch II) bzw. Blattspreiten (Versuch III) durch Inter- bzw. Extrapolation (Gl. 4.9, S. 54 und 62) für einen Expositionszeitraum von 36 h Dauerlicht ergebenden Werten von 14,6 % bzw. 16,2 % überein. In diesen Versuchen würden sich für eine theoretische Expositionsdauer von 66 h durch Extrapolation die wesentlich höheren Werte von 25,2 % bzw. 27,6 % ergeben.

Entsprechende Effekte wie beim Fehlen von Licht lassen sich auch beim Fehlen der Blattspreiten in nicht oder weniger assimilierenden Geweben beobachten. So wurde in Versuch V bei intakten Buschbohnenpflanzen nach einer Expositions-dauer von 11 h in der Blattstielfraktion eine  $OBT_{nx}$ -Konzentration von 31,4 Bq/g  $H_2O$  gemessen, in Stengeln 8,08 Bq/g  $H_2O$  und in Früchten 25 Bq/g  $H_2O$ . In Pflanzen, deren Blattfiedern entfernt worden waren, fanden

sich dagegen nach 11,5 h Exposition nur die wesentlich geringeren Werte von 3,95 Bq/g H<sub>2</sub>O bzw. 2,90 Bq/g H<sub>2</sub>O bzw. 3,78 Bq/g H<sub>2</sub>O. Die HTO-Konzentrationen waren dabei in diesen Geweben deutlich höher als in den entsprechenden Teilen der intakten Pflanzen (s. Abb. 4.11). Die nach Abszission der Spreiten gefundene  $OBT_{nx}$ -Aktivität könnte zum Teil auf eine geringe Assimilation der (auch grünen) Gewebe zurückgeführt werden, zum Teil aber - wie die  $OBT_{nx}$ -Aktivität der dunkelgehaltenen Blätter der Vakuumfiltration - auf solche nicht lichtabhängigen Reaktionen wie sie in Beispielen am Anfang dieses Abschnitts aufgeführt sind.

Ein wesentlicher T-Einbau scheint jedoch in den untersuchten Zeiträumen von 2 bis 3 Tagen nur bei Bereitstellung von NADPT abzulaufen. Über diese Zeitspanne ist dann die Zunahme der  $OBT_{nx}$ -Konzentration der Blätter bzw. Blattspreiten ( $C_{31}$ ) nahezu linear von der Expositionsdauer abhängig (s. Abb. 4.4, 4.10, 5.2). Für die mittlere  $OBT_{nx}$ -Konzentration der Gesamtpflanze ( $C_3$ ; Gl. 4.10, Tab. 8.6 und 8.21) läßt sich ebenfalls ein linearer Verlauf feststellen (linearer Korrelationskoeffizient  $r = 0,995$  für Versuch II und  $r = 0,994$  für Versuch V). Vernachlässigt man eine eventuelle Diskriminierung des Tritiums beim Einbau, so kann man den Verlauf dieser Aktivitäten auch als exponentielle Zunahme gegen einen Gleichgewichtswert in Höhe der HTO-Gleichgewichtskonzentration ( $C_{11}^{\infty}$ ) beschreiben (Gl. 4.19). Um eine Vorstellung von der Größenordnung zu erhalten, in der die sich dabei ergebenden Raten  $k_{31}$  und  $k_3$  liegen, können diese Raten mit den durch Bestimmung der Trockenmassenzunahme ermittelten relativen Wachstumsraten verglichen werden. Geht man nämlich davon aus, daß das nicht austauschbar gebundene Tritium des Blattes (Konzentration  $C_{31}$ ) im wesentlichen durch Reduktionsreaktionen bei der photosynthetischen Substanzproduktion nach der vereinfachten Summenformel:



eingebaut wird, so ergibt sich der Anstieg von  $C_{31}$  mit der Rate

$$k_{31} = \frac{d C_{31}}{(C_{11}^{\infty} - C_{31}) dt}$$

direkt durch den Einbau in die mit der Rate

$$k_{Bl} = \frac{dm_{Bl}}{m_{Bl} dt}$$

wachsende Biomasse  $m_{Bl}$ . Dabei wird ein gleicher Wasserstoffanteil von vorhandener und neu synthetisierter Biomasse vorausgesetzt. Dann lassen sich  $k_{31}$  und  $k_{Bl}$  und - wenn man die Wachstumsrate der ganzen Pflanze mit  $k_W$  bezeichnet -  $k_3$  und  $k_W$  vergleichen. Die Raten  $k_{Bl}$  und  $k_W$  entsprechen den durch Messung der Trockenmasse-Zunahme ermittelten und in Tab. 4.4 aufgeführten Raten  $R_{Bl}$  und  $R_W$ , es muß nur in die Einheit  $h^{-1}$  umgerechnet werden. Für den Vergleich erscheinen die auf die jeweils ältesten Pflanzen bezogenen Wachstumsraten am besten geeignet, da diese Pflanzen ihrem Alter nach den Versuchspflanzen am nächsten kommen und die Wachstumsraten ja vom Alter abhängig sind. Rechnet man entsprechend den Photoperioden von 12 h bzw. 14 h um, dann ergeben sich die Raten  $k_{Bl}$  und  $k_W$  für Radies- bzw. Buschbohnenpflanzen, die in Tab. 5.1 neben die entsprechenden Raten gestellt sind, die in den Versuchen II und V ermittelt wurden.<sup>1)</sup> In die Tabelle mitaufgenommen sind die Verhältnisse der Raten  $\alpha_T = k_3/k_{31}$  und  $\alpha_W = k_W/k_{Bl}$ , die ein Maß für den Aufbau von Organen wie Knollen und Früchten darstellen (s. S. 42).

Tab. 5.1: Vergleich der  $OBT_{nx}$ -Einbauraten und Wachstumsraten [ $h^{-1}$ ] und der Verhältnisse der Raten ( $\alpha_T$  und  $\alpha_W$ ).

	$k_{31}$	$k_{Bl}$	$k_3$	$k_W$	$\alpha_T$	$\alpha_W$
Radies	0,0044	0,0044	0,0030	0,0033	0,68	0,76
Bohne	0,0019	0,0029	0,0017	0,0044	0,89	1,51

<sup>1)</sup> Anmerkung: Für den Anstieg von  $C_{31}$  in Versuch III wurde eine Rate  $k_{31} = 0,0049 h^{-1}$  erhalten,  $k_3$  wurde hier nicht bestimmt.

Die überaus gute Übereinstimmung der Anstiegsraten bei Radies ist selbstverständlich zu einem gewissen Grad als zufallsbedingt zu betrachten, zumal die Bestimmung der Wachstumsraten aufgrund ihrer Abhängigkeit vom Entwicklungsgrad der Pflanzen und anderen Faktoren wie der Lichtintensität während des Wachstums nicht mit der entsprechenden Genauigkeit möglich ist. Eine völlige Gleichheit der Randbedingungen während der Aufzucht der Pflanzen, d.h. während der Messung des Wachstums und den Expositionsversuchen war technisch nicht realisierbar. Unter diesem Gesichtspunkt kann man auch die etwas weniger gute Übereinstimmung der Raten bei den Bohnenpflanzen besonders bei der Gesamtwachstumsrate erklären. Hier könnte sich u.a. der gegenüber dem Zeitpunkt der  $R_w$ -Bestimmung fortgeschrittene Reifezustand der Früchte der Versuchspflanzen während der Tritiumexposition bemerkbar machen, so daß sich hier auch ein geringeres Verhältnis  $\alpha_T$  ergibt. In den jeweiligen Entwicklungsphasen der Pflanzen findet sich bei den Bohnenpflanzen ein höherer  $\alpha_T$ -Wert als bei den Radiespflanzen, d.h. ein relativ stärkerer Assimilattransport in die Bohnenfrüchte als in die Radieschenknollen. Dementsprechend übersteigt in den Bohnenfrüchten die  $OBT_{nx}$ -Aktivität nach 48 h Exposition diejenige der Blattspreiten (s. Abb. 4.12), während die  $OBT_{nx}$ -Aktivität der Radieschen nur jeweils ca. 10 - 15 % der Blattaktivität beiträgt (s. Abb. 4.5). Dies wird als für den betreffenden Entwicklungszustand der Versuchspflanzen charakteristisch betrachtet. Bei verstärktem Aufbau der Knolle ist mit einem größeren  $OBT$ -Transport in dieses Organ zu rechnen, wie sich dies auch in stichprobenartigen Messungen in Vorversuchen andeutete.

Da die  $OBT_{nx}$ -Aktivität von nicht oder wenig assimilierenden Geweben offensichtlich auf in den Blättern synthetisiertes und in die betreffenden Gewebe transportiertes Material zurückgeht, besteht in diesen Geweben zwischen den  $OBT_{nx}$ - und  $HTO$ -Konzentrationen kein unmittelbarer Zusammenhang. Daher werden hier auch  $R_{nx}$ -Werte erhalten, die deutlich über 1 liegen, s. z.B. S. 54, Abb. 4.8, Tab. 8.3, Tab. 8.10 und 8.11.

Ohne daß eine Anreicherung gegen ein Konzentrationsgefälle vermutet werden muß, wurden auch für Blattspreiten  $R_{nx}$ -Werte  $> 1$  erhalten - und zwar im Ausscheidungsversuch VI. Der Sachverhalt ist durch Zusammenfassung von Ergebnissen der Versuche III und VI in Abb. 5.2 noch einmal verdeutlicht. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die relativen spezifischen Aktivitäten bezogen auf die jeweils maximale  $HTO$ -Konzentration der Blattspreiten ( $C_{max}$ , Gleichgewichts- bzw. Ausgangskonzentration) aufgetragen. Man sieht, daß ab

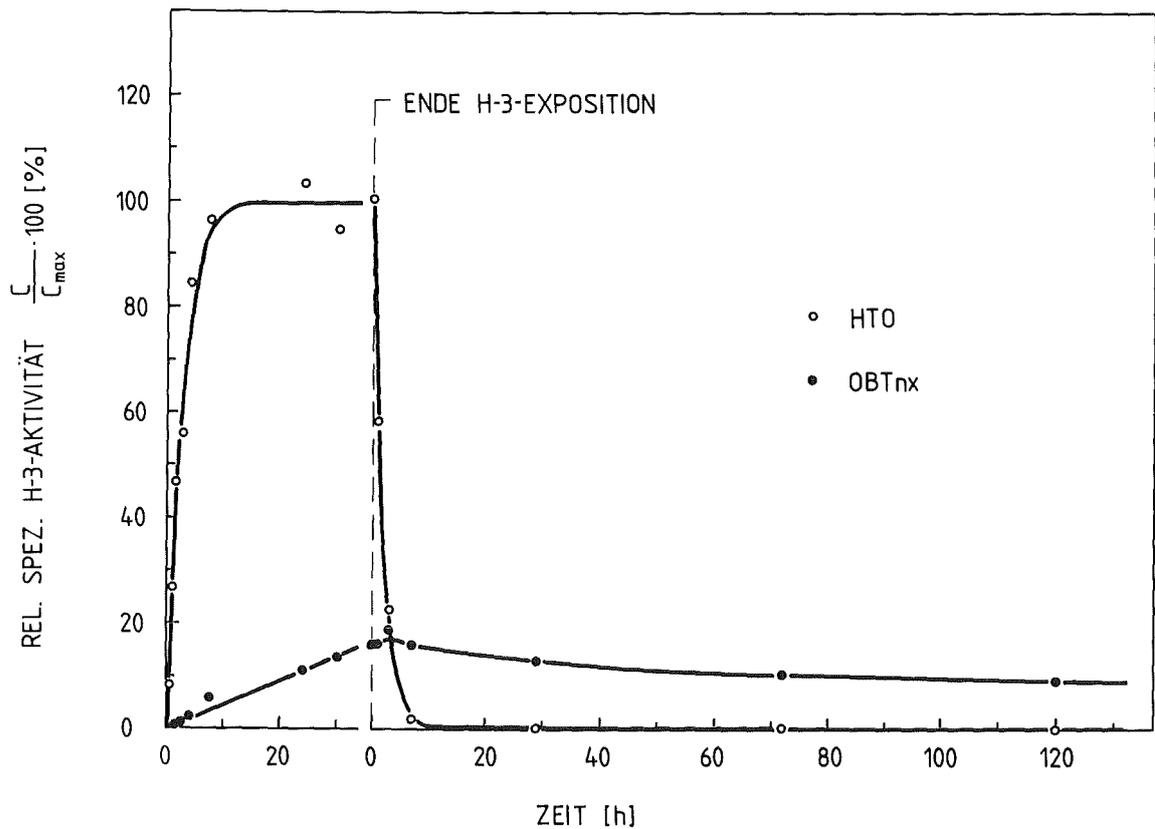


Abb. 5.2: Verlauf der relativen spezifischen Aktivitäten (bezogen auf die spezifische Gleichgewichts- bzw. Ausgangsaktivität des Gewebewassers) des Gewebewassers und des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums von Blattspreiten während und nach einer HTO-Exposition.

ca. 5 h nach Beendigung der Exposition höhere  $OBT_{nx}$  - als HTO-Konzentrationen gemessen wurden, während die  $OBT_{nx}$ -Konzentration beim Einbau des Tritiums nicht einmal 20 % der HTO-Konzentration erreicht.

Betrachtet man den Verlauf der  $OBT_{nx}$ -Konzentration nach Ende der Exposition, so zeigt sich, daß bei  $t = 0, 1$  h und 7 h praktisch identische Werte (s. Tab. 8.23) gemessen wurden, d.h., daß diese Konzentrationen zunächst nicht abnehmen. Dies erscheint verständlich, wenn man berücksichtigt, daß der Umsatz der organischen Substanz vergleichsweise langsam erfolgt und daß die HTO-Konzentrationen zwar rasch sinken, jedoch zunächst noch über den  $OBT_{nx}$ -Werten liegen. Der deutlich höhere Wert bei  $t = 3$  h kann im Zusammenhang mit den  $OBT_{nx}$ -Werten der Knolle dieser Pflanze (s. S. 82) auch als etwas abweichendes Verhalten der betreffenden Pflanze aufgefaßt werden. Im weiteren Verlauf ist dann ein allmählicher Rückgang der  $OBT_{nx}$ -Konzentration erkennbar.

Betrachtet man daneben den Verlauf der mittleren spezifischen  $\text{OBT}_{\text{nx}}$ -Aktivität der Gesamtpflanze ( $C_3$ ) und die auf die einzelnen Pflanzenfraktionen entfallenden Anteile (s. Abb. 4.14), so kann man folgern, daß die Aktivitätsabnahme in den Blattspreiten nicht durch einen Transport von Material in andere Pflanzenteile bewirkt wird. Ein solcher Transport ist nur für neusynthetisierte Verbindungen beim Einbau des Tritiums zu beobachten. Der beobachtete Rückgang der Tritiumaktivität ist dagegen im wesentlichen wohl auf Veratmung organischer Substanz zurückzuführen.

Aufgrund der relativ geringen Anzahl an Meßwerten für den betreffenden Zeitraum ist eine mathematische Beschreibung des Verlaufs der  $\text{OBT}_{\text{nx}}$ -Konzentrationen problematisch. Dennoch soll darauf hingewiesen werden, daß sich die Abnahme dieser Aktivität in den Blattspreiten sehr gut durch eine Kombination zweier Exponentialfunktionen beschreiben läßt. Man erhält dann für die Werte ab einschließlich  $t = 7$  h (mit  $t' = t - 7$  [h],  $B = 0,99999$ ):

$$C_{31} = a (0,248e^{-bt'} + 0,752e^{-ct'})$$

$$\text{mit : } a = 170 \text{ Bq/g H}_2\text{O}$$

$$b = 0,042 \text{ h}^{-1}$$

$$c = 0,0024 \text{ h}^{-1}$$

Auf diese Weise könnte man für den Umsatz der organischen Substanz zwei Halbwertszeiten angeben: ein kleinerer Anteil von ca. 25 % wird mit einer Halbwertszeit von 16,5 h abgebaut, für den Rest erhält man eine Halbwertszeit von 12 Tagen (289 h). Dieser Anteil wäre demnach als Strukturmaterial anzusprechen.

Guenot und Belot (1984) fanden in ihren Doppelmarkierungsversuchen mit Wein- und Kartoffelpflanzen für die Konzentrationsabnahme des nicht austauschbaren Tritiums und des  $^{14}\text{C}$  in Blättern nach Beendigung einer 4-h-Exposition jeweils einen vergleichbaren Verlauf. Die Konzentrationen sanken bereits in den ersten Stunden auf etwa 50 % der Ausgangswerte, die Restaktivität ging mit einer Halbwertszeit von ca. 80 h zurück. Diese im Vergleich mit den vorliegenden Ergebnissen schnellere Ausscheidung kann als Folge der wesentlich kürzeren Expositionsdauer betrachtet werden: nach kurzen Expositionen überwiegt der Anteil kurzlebiger Stoffwechselprodukte, in Abhängigkeit von der Expositionsdauer gewinnt dann die Bildung von Strukturmaterial mit einer geringen Umsatzrate zunehmend an Bedeutung.

### 5.3.3 Modell zur Beschreibung des Einbaus von Tritium in die organische Substanz von Blättern

Zum Abschluß dieser Betrachtungen soll auf eine Möglichkeit hingewiesen werden, den Einbau des gesamten organisch gebundenen Tritiums in Blättern - bei konstanter Tritiumkonzentration der Luftfeuchtigkeit und Vernachlässigung einer Aktivitätsaufnahme aus dem Boden - quantitativ zu beschreiben. Dazu geht man von Gl. (4.8) aus:

$$C_{21} = C_{11}^{\infty} (1 - R_{\text{ex}} e^{-k_1 t} - (1 - R_{\text{ex}}) e^{-k_{31} t})$$

Nach den erhaltenen Befunden scheinen sich dabei die verschiedenen Parameter folgendermaßen abschätzen zu lassen:

$C_{11}^{\infty}$  wäre nach Belot et al. (1979) gegeben:

$$C_{11}^{\infty} = C_B^{\infty} = 1,1 h C_O$$

Da für das  $\text{OBT}_{\text{ex}}$  und das Gewebe-HTO dasselbe kinetische Verhalten beobachtet wurde, könnte für die Zeitkonstante dieses Anteils des  $\text{OBT}$  ebenfalls das zitierte Modell benutzt werden (s. S. 52 und 87):

$$k_1^B = 0,9 \cdot \frac{\rho_s}{\mu r} = \frac{0,9}{1-h} k_T$$

Der Anteil  $R_{\text{ex}}$  scheint beim untersuchten Blattmaterial relativ konstant bei 15 - 20 % zu liegen. Er müßte für anderes Material gegebenenfalls neu bestimmt werden. Da angenommen wird, daß der Anstieg des nicht austauschbaren Anteils durch die Nettophotosyntheserate der Blätter beschrieben wird, die bei den vorliegenden Versuchen durch die Wachstumsrate der Blätter  $k_{\text{Bl}}$  repräsentiert ist, läßt sich also schreiben:

$$C_{21} = 1,1 h C_O (1 - R_{\text{ex}} e^{-\frac{0,9}{1-h} k_T t} - (1 - R_{\text{ex}}) e^{-k_{\text{Bl}} t}) \quad \text{Gl. (5.5)}$$

In den Versuchen II, III und V herrschten während den Begasungen zwar keine völlig identischen, doch immerhin recht ähnliche Bedingungen. Daher kann versucht werden, den Verlauf der OBT-Konzentrationen der Blätter aus diesen Versuchen mit Hilfe obiger Gleichung durch eine einzige Kurve zu beschreiben. Dazu wurden die Meßwerte als relative spezifische Aktivitäten bezogen auf die jeweilige Gleichgewichtsaktivität der Luftfeuchtigkeit aufgetragen und  $C_0$  gleich 100 % gesetzt. Die relative Luftfeuchte in den Versuchen betrug 70 % bzw. 72 % bzw. 64 %. Dementsprechend wird für  $h$  ein Mittelwert von 0,69 angenommen. Zur Abschätzung von  $k_T$  wird ein arithmetisches Mittel aus den in den Begasungsversuchen bestimmten Werten gebildet. Berücksichtigt man die Werte des für den Anstieg des Gewebe-H<sup>3</sup>O relevanten Zeitraumes bis 7,5 h (Tab. 4.10) bzw. 7 h (Tab. 4.14), so ergibt sich aus diesen 10 Meßwerten für

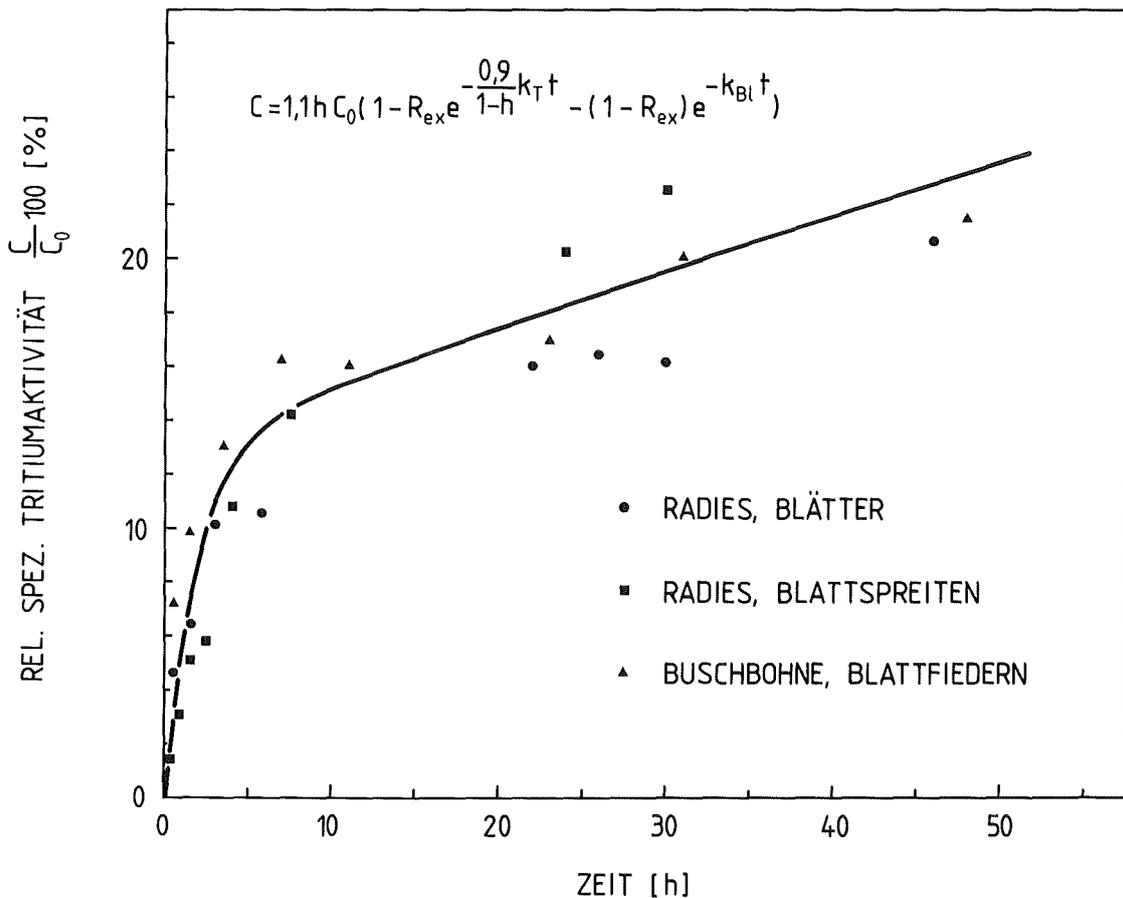


Abb. 5.3: Vergleich von gemessenen Blatt-OBT-Konzentrationen mit einem theoretischen Verlauf.

$k_T$ :  $0,18 \text{ h}^{-1}$ . Für  $R_{\text{ex}}$  wird ein mittlerer Wert von  $0,17$  angenommen und als Durchschnittswert aus den beiden  $k_{\text{Bl}}$ -Werten nach Tab. 5.1 ergibt sich  $0,0037 \text{ h}^{-1}$ . Setzt man diese Zahlenwerte in die Gleichung ein, erhält man den Kurvenverlauf, der in Abb. 5.3 wiedergegeben ist.

Es zeigt sich, daß sich mit Hilfe des Modells die richtige Größenordnung der OBT-Konzentration von über wenige Tage gegenüber HTO-Dampf exponierten Blättern vorausberechnen läßt. Die relative Wachstumsrate scheint zumindest für eine grobe Abschätzung des Verlaufs der Aktivität der langsamen Komponente zugrundegelegt werden zu können.

Umgekehrt kann somit eine Tritiummarkierung von Blättern durch HTO-Begasung offensichtlich grundsätzlich zur Bestimmung von Photosyntheseraten herangezogen werden. Dabei müßte allerdings noch näher untersucht werden, inwieweit neben Reduktionsreaktionen andere Einbauwege und Isotopeneffekte eine Rolle spielen. Hierzu bieten sich weitere vergleichende Versuche mit  $^{14}\text{CO}_2$ -Markierungen oder auch Vergleiche mit dem  $\text{CO}_2/\text{O}_2$ -Gaswechsel an. Bei gezielter Untersuchung des Tritium-Einbaus in einzelne Zellkompartimente, Stoffklassen und Verbindungen sind weitere Erkenntnisse über das Schicksal des Wasserstoffs im Stoffwechsel zu erwarten.

Wesentlich komplizierter als bei den Blättern ist die Abschätzung des Tritiumeinbaus bei anderen Pflanzenorganen. Die hier erhaltenen Aktivitätswerte lassen sich im Zusammenhang mit Vorgängen der Assimilatbildung und -translokation zwar verstehen, da diese Vorgänge jedoch von vielen Faktoren bestimmt sind, ist eine Vorausberechnung des Aktivitätsverlaufs äußerst schwierig. Eine Tritiummarkierung von Blättern als Mittel gerade zur Untersuchung der Assimilatverteilung in der Pflanze erscheint dagegen durchaus erfolgversprechend.

## 6. Zusammenfassung

1. Seit etwa 1975 hat die Möglichkeit der Aufnahme von atmosphärischem HTO durch die Blätter von Landpflanzen größere Aufmerksamkeit gefunden. Ziel der vorliegenden Untersuchung war es, diesen Aufnahmevorgang näher zu untersuchen und einen Überblick über den Umsatz des solchermaßen aufgenommenen Wasserstoffs in der Pflanze zu gewinnen. Dazu wurden die oberirdischen Teile der drei Gemüsearten *Raphanus sativus radiculata minor* (Radies), *Daucus carota* (Möhre) und *Phaseolus vulgaris* (Buschbohne) in einem Pflanzenwuchschrank unter kontrollierten Bedingungen über 2 bis 3 Tage gegenüber gasförmigem HTO exponiert. Es wurde der Verlauf der spezifischen Aktivität des durch Gefrier Trocknung gewonnenen Gewebewassers während oder nach einer Exposition verfolgt. Dabei wurden die Blätter bzw. Blattspreiten und Blattstiele, die Stengel sowie die eßbaren Früchte und die unterirdischen, nicht direkt exponierten Speicherorgane getrennt untersucht. Es wurde auch die spezifische Aktivität (bezogen auf Masse Verbrennungswasser) des austauschbar und des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums ( $OBT_{ex}$  bzw.  $OBT_{nx}$ ) nach Oxidation der Trockensubstanz bestimmt.

2. Der Verlauf der HTO-Konzentration von Blattgewebe während und nach einer Exposition gegenüber tritiiertem Wasserdampf bestätigt, daß infolge Diffusion von HTO-Molekülen durch die Stomata eine Tritiumaufnahme in das Gewebewasser stattfindet. In den Experimenten wurden für die HTO-Aufnahme und HTO-Ausscheidung Halbwertszeiten zwischen 1 und 2 Stunden gemessen. Der Vorgang scheint sich für die Blattspreite in guter Näherung nach einem Modell von Belot mit Hilfe des 1. Fick'schen Gesetzes beschreiben zu lassen. Dies bedeutet, daß für die Erneuerung des Gewebewassers von Blättern aufgrund eines Austausches mit der Luftfeuchtigkeit eine kürzere Halbwertszeit anzunehmen ist, als sich aus der Transpirationsrate ergibt. Dem Austausch scheint das gesamte Gewebewasser des Mesophylls zugänglich zu sein.

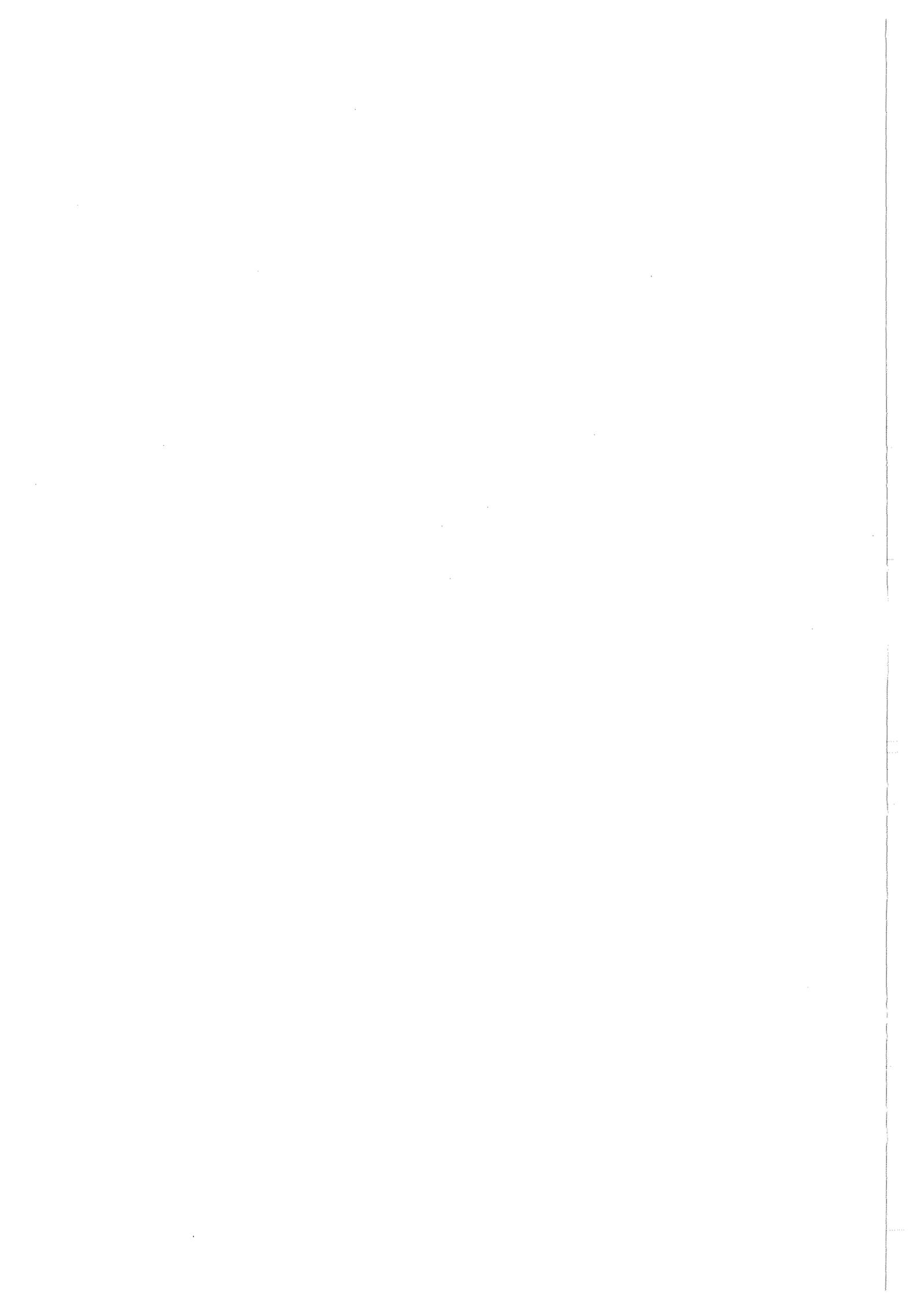
3. In wesentlich geringerem Maße als in die Blattspreiten findet eine Aufnahme von HTO aus der Luft auch in andere oberirdische Pflanzenteile (Blattstiele, Stengel, Früchte) statt. In Blattstielen wurden Gleichgewichtskonzentrationen von etwa 10 % der Gleichgewichtskonzentration der Blattspreiten gemessen. Die Gleichgewichtseinstellung scheint in Blattstielen und Stengeln von der Stärke des Transpirationsstromes beeinflußt zu werden. Die Translokation von Wasser aus dem Mesophyll in andere Pflanzenteile wird als

äußerst gering eingeschätzt. Über die gesamten Versuchszeiträume war in den unterirdischen Speicherorganen (Knollen, Rüben) kein Blatt- $\text{HTO}$  nachweisbar.

4. Ein Teil der H-Atome von organischen Molekülen steht mit dem Wasserstoff von umgebendem Wasser in unmittelbarem Austauschgleichgewicht. Der Anteil dieser H-Atome am gesamten organisch gebundenen Wasserstoff läßt sich durch das Verhältnis der Konzentration des auf diese Weise austauschbar gebundenen Tritiums zur Tritium-Konzentration des Gewebewassers ( $R_{\text{ex}}$ -Wert) angeben. Er wurde für das untersuchte Blattmaterial zu ca. 15-20 % bestimmt.

5. In allen untersuchten Pflanzenteilen wurde nicht austauschbar organisch gebundenes Tritium gefunden. Seine Konzentration erreichte maximal etwa 20 % der Tritiumkonzentration des Gewebewassers der Blattspreiten. Der Anstieg der Konzentration in Blättern und der mittleren Konzentration in der Gesamtpflanze war bei Dauerlicht während der Expositionszeiträume nahezu linear. Die Anstiegsrate gegen einen - angenommenen - Gleichgewichtswert in Höhe der Gleichgewichtskonzentration des Blatt- $\text{HTO}$  ist in diesen Fällen vergleichbar mit den für Radies- und Bohnenpflanzen als Maß der Nettophotosyntheserate bestimmten relativen Wachstumsraten der Blätter bzw. der Gesamtpflanze. In nicht assimilierenden Pflanzenorganen gefundenes  $\text{OBT}_{\text{nx}}$  wird auf einen von der Entwicklungsphase der Pflanze abhängigen Transport aus den Blattspreiten zurückgeführt. Durch diesen Transport kann das Verhältnis der  $\text{OBT}_{\text{nx}}$ - zur  $\text{HTO}$ -Konzentration des betreffenden Pflanzenteils ( $R_{\text{nx}}$ -Wert) den Wert 1 übersteigen. Der Verlauf der Abnahme der  $\text{OBT}_{\text{nx}}$ -Konzentrationen nach Beendigung einer Exposition zeigt, daß ein wesentlicher Anteil des  $\text{OBT}_{\text{nx}}$  in Strukturmaterial mit einer Abbau-Halbwertszeit von mehr als 10 Tagen eingebaut wurde. Dadurch erhält man wenige Stunden nach Beendigung der Exposition auch für Blattmaterial  $R_{\text{nx}}$ -Werte  $> 1$ . Hinweise auf eine Tritiumanreicherung in der organischen Substanz entgegen einem Konzentrationsgefälle ergeben sich nicht.

6. Der Verlauf der Konzentration des gesamten organisch gebundenen Tritiums ( $\text{OBT}$ ) von Blättern während  $\text{HTO}$ -Expositionen unter Dauerlicht ließ sich durch Kombination von zwei Exponentialfunktionen als Anstieg gegen einen Gleichgewichtswert beschreiben. Wurde als Gleichgewichtswert die Gleichgewichtstritiumkonzentration des Gewebewassers angenommen, so ließ sich für die rasch ansteigende Komponente ( $\text{OBT}_{\text{ex}}$ ) die Aufnahmerate des  $\text{HTO}$  selbst und für die langsam ansteigende Komponente ( $\text{OBT}_{\text{nx}}$ ) näherungsweise die Wachstumsrate von Blättern einsetzen.



7. Literaturverzeichnis

- Anspaugh, L. R., J. J. Koranda, W. L. Robinson and J. R. Martin: The dose to man via food-chain transfer resulting from exposure to tritiated water vapor. In: Moghissi, A. A. and M. W. Carter (eds.): Tritium, Messenger Graphics, Phoenix, 405-422 (1973)
- Aronoff, S. and J. C. Choi: Specific activity of photosynthetic sugars in soybean leaves equilibrated with tritiated water. Arch. Biochem. Biophys. 102, 159-162 (1963)
- Balonov, M. I., I. A. Likhtarev and YU. I. Moskalev: The metabolism of  $^3\text{H}$  compounds and limits for intakes by workers. Health Phys. 47, 761-773 (1984)
- Belot, Y., D. Gauthier, H. Camus and C. Caput: Prediction of the flux of tritiated water from air to plant leaves. Health Phys. 37, 575-583 (1979)
- Belot, Y., J. Guenot and C. Caput: Incorporation of tritium into organic matter of terrestrial plants exposed to tritiated-water releases of short duration. Health Phys. 44, 666-668 (1983)
- Belot, Y.: Transfer of tritiated water into the plants: a review. In: Commission of the European Communities: Radiation protection, European seminar on the risks from tritium exposure: Proc. of a meeting, Mol, Belgium, 22-24 Nov. 1982, EUR 9065, 173-190 (1984)
- Biddulph, O. and R. Cory: An analysis of translocation in the phloem of the bean plant using THO,  $\text{P}^{32}$ , and  $\text{C}^{14}$ . Plant Physiol. 32, 608-619 (1957)
- Bogen, D. C., G. A. Welford and C. G. White: Tritium distribution in man and his environment. In: Freeman, S. (ed.): Behaviour of tritium in the environment, IAEA-SM-232/75, Vienna, 567-573 (1979)
- Breazeale, E. L., W. T. McGeorge and J. F. Breazeale: Moisture absorption by plants growing in an atmosphere of high humidity. Plant Physiol. 25, 413-419 (1950)

- Choi, J. C. and S. Aronoff: Photosynthetic transport using tritiated water. *Plant Physiol.* 41, 1119-1129 (1966)
- Chorney, W., N. J. Scully and H. J. Dutton: Radiation effects of carbon-14 and tritium on growth of soybeans. *Rad. Botany* 5, 257-263 (1965)
- Cline, J. F.: Absorption and metabolism of tritium oxide and tritium gas by bean plants. *Plant Physiol.* 28, 717-723 (1953)
- Cohen, L. K. and T. J. Kneip: Environmental tritium studies at a PWR power plant. In: Moghissi, A. A. and M. W. Carter (eds.): *Tritium*, Messenger Graphics, Phoenix, 623-639 (1973)
- Couchat, Ph. and G. Lasceve: Tritiated water vapour exchange method for the evaluation of whole plant diffusion resistance. *J. Exp. Bot.* 31, 1217-1222 (1980)
- Couchat, Ph., M. Puard and G. Lasceve: Tritiated water vapour exchange in sunflowers. *Health Phys.* 45, 757-764 (1983)
- von Denffer, D.: Morphologie. In: *Strasburger Lehrbuch der Botanik*, Gustav Fischer Verlag, Stuttgart - New York, 84-86 (1983)
- Dinner, P. J., D. J. Gorman and F. S. Spencer: Tritium dynamics in vegetables: experimental results. In: *Proceedings of the ANS national topical meeting on tritium technology in fission, fusion and isotopic applications*. Dayton, Ohio, April 29 - May 1, 9-13 (1980)
- Egle, K.: Methoden der Photosynthesemessung. Landpflanzen. In: Ruhland, W. (ed.): *Handbuch der Pflanzenphysiologie*, Band V. Die CO<sub>2</sub>-Assimilation. Springer Verlag, Berlin - Göttingen - Heidelberg, 117-120 (1960)
- Elwood, J. W.: Ecological aspects of tritium in the environment. *Nucl. Saf.* 12, 326-337 (1971)

- Ferron, F., J. Van Assche et C. Cosles: Recherches sur les transformations de l'eau dans les feuilles avec l'eau tritiée. *Ann. Physiol. veg.* 9, 245-271 (1967)
- Flindt, R.: *Biologie in Zahlen*. Gustav Fischer Verlag, Stuttgart - New York, 133 (1985)
- Förster, E. und B. Rönz: *Methoden der Korrelations- und Regressionsanalyse*. Verlag Die Wirtschaft, Berlin, 212 (1979)
- Gage, R. S. and S. Aronoff: Translocation III. Experiments with carbon 14, chlorine 36 and hydrogen 3. *Plant Physiol.* 35, 53-64 (1960)
- Garland, J. A. and M. Ameen: Incorporation of tritium in grain plants. *Health Phys.* 36, 35-38 (1979)
- Garland, J. A. and L. C. Cox: Uptake of tritiated water vapour by bean leaves. *Water, Air and Soil Pollut.* 17, 207-212 (1982)
- Geigy Scientific Tables. Volume 2. Ciba-Geigy Ltd., Basle, Switzerland, 224 (1982)
- Gessner, F.: Wasseraufnahme durch Blätter und Samen. In: Ruhland, W. (ed.): *Handbuch der Pflanzenphysiologie*, Band III, Springer Verlag, Heidelberg, 215-239 (1956)
- Gogate, S. S., M. Krishnamoorthy and S. D. Soman: Mean residence times for tritium in some terrestrial plants. *Indian J. Exp. Biol.* 13, 264-267 (1975)
- Guenot, J. and Y. Belot: Assimilation of  $^3\text{H}$  in photosynthesizing leaves exposed to  $\text{HTO}$ . *Health Phys.* 47, 849-855 (1984)
- Haines, F. M.: The absorption of water by leaves in an atmosphere of high humidity. *J. Exp. Bot.* 3, 95-98 (1952)
- Haines, F. M.: The absorption of water by leaves in fogged air. *J. Exp. Bot.* 4, 106-107 (1953)

- Hamill, W. H. and W. Freudenberg: Quantitative isotopic exchange reactions in the carbohydrate group. *J. Am. Chem. Soc.* 57, 1427-1430 (1935)
- Hübner, G.: Zum Wassertransport in *Vicia faba*. *Flora* 148, 549-594 (1959)
- Karlson, P.: Kurzes Lehrbuch der Biochemie. Georg Thieme Verlag, Stuttgart - New York, 66 (1980)
- Kirchmann, R.: The conversion to organic tritium in terrestrial plants.  
In: Commission of the European Communities: Radiation protection. European seminar on the risks from tritium exposure: Proc. of a meeting, Mol, Belgium, 22-24 Nov. 1982, EUR 9065, 173-190 (1984)
- Kline, J. R., J. R. Martin, C. F. Jordan and J. J. Koranda: Measurement of transpiration in tropical trees with tritiated water. *Ecology* 51, 1068-1073 (1970)
- Kline, J. R. and M. L. Stewart: Tritium uptake and loss in grass vegetation which has been exposed to an atmospheric source of tritiated water. *Health Phys.* 26, 567-573 (1974)
- König, L. A.: Umweltbelastung durch Tritium. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Bericht KfK 1560 (1972)
- König, L. A., M. Winter und H. Schüler: Tritium in Niederschlägen, Oberflächen-, Grund- und Trinkwasser. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Bericht KfK 2382 (1976)
- König, L. A.: Persönliche Mitteilung (1985)
- Koranda, J. J. and J. R. Martin: The movement of tritium in ecological systems. In: Moghissi, A. A. and M. W. Carter: *Tritium, Messenger Graphics*, Phoenix, 430-455 (1973)
- Kramer, P. J.: Roots as absorbing organs. In: Ruhland, W. (ed.): *Handbuch der Pflanzenphysiologie*, Band III, Springer Verlag, Heidelberg, 188-214 (1956)

- Kreyszig, E.: Statistische Methoden und ihre Anwendungen. Vandenhoeck und Ruprecht, Göttingen, 333 (1977)
- Lambacher-Schweizer Mathematisches Unterrichtswerk. Ausgabe B, Analysis, Ernst Klett Verlag Stuttgart, 197 (1970)
- Lang, A. R. G. and S. G. Mason: Tritium exchange between cellulose and water: accessibility measurements and effects of cyclic drying. *Can. J. Chem.* 38, 373-387 (1960)
- Luykx, F. and G. Fraser: The environmental tritium inventory. In: Commission of the European Communities: Radiation protection: European seminar on the risks from tritium exposure: Proc. of a meeting, Mol, Belgium, 22-24 Nov. 1982, EUR 9065, 3-15 (1984)
- Mantell, A., S. P. Monselise and E. E. Goldschmidt: Movement of tritiated water through young citrus plants. *J. Exp. Bot.* 30, 155-164 (1979)
- Mason, B. J., H. W. Hop and C. L. Miller: Transfer of tritium from methane to vegetation. In: Moghissi, A. A. and M. W. Carter: Tritium, Messenger Graphics, Phoenix, 455-461 (1973)
- McFarlane, J. C.: Tritium fractionation in plants. *Environ. Exp. Bot.* 16, 9-14 (1976)
- McFarlane, J. C., W. F. Beckert and K. W. Brown: Tritium in plants. *J. Environ. Qual.* 8, 269-276 (1979)
- Moghissi, A. A., M. W. Carter and R. Liebermann: Long-term evaluation of the biological half-life of tritium. *Health Phys.* 21, 57-60 (1971)
- Moses, V. and M. Calvin: Photosynthesis studies with tritiated water. *Biochim. Biophys. Acta* 33, 297-312 (1959)
- Murphy, C. E. jr.: The relationship between tritiated water activities in air, vegetation and soil under steady-state conditions. *Health Phys.* 47, 635-639 (1984)

- Neeracher, H.: Transportuntersuchungen an Zea mays mit Hilfe von THO und Mikroautoradiographie. Ber. Schweiz. Bot. Ges. 75, 303-345 (1966)
- Ordin, L. and J. Bonner: Permeability of Avena coleoptile sections to water measured by diffusion of deuterium hydroxide. Plant Physiol. 31, 53-57 (1956)
- Ordin, L. and S. Gairon: Diffusion of tritiated water into roots as influenced by water status of tissue. Plant Physiol. 36, 331-335 (1961)
- Rambeck, W. A. and J. A. Bassham: Tritium incorporation and retention in photosynthesizing algae. Biochim. Biophys. Acta 304, 725-735 (1973)
- Raney, F. and Y. Vaadia: Movement and distribution of tissue water and vapor transpired by shoots of Helianthus and Nicotiana. Plant Physiol. 40, 383-388 (1965)
- Rohwer, P. S. and E. L. Etnier: Estimation of dose to man from environmental tritium. In: Proceedings of the ANS national topical meeting on tritium technology in fission, fusion and isotopic applications. Dayton, Ohio, April 29 - May 1, 1-8 (1980)
- Sachs, L.: Statistische Methoden. Springer Verlag, Berlin - Heidelberg - New York (1982)
- Sachs, L.: Angewandte Statistik: Anwendung statistischer Methoden. Springer Verlag, Berlin - Heidelberg - New York - Tokyo, 346 (1984)
- Sepall, O. and S. G. Mason: Vapor/liquid partition of tritium in tritiated water. Can. J. Chem. 38, 2024-2025 (1960)
- Sepall, O. and S. G. Mason: Hydrogen exchange between cellulose and water. Can. J. Chem. 39, 1934-1943 (1961)
- Sestak, Z., J. Catsky and P. G. Jarvis: Plant photosynthetic production. Manual of methods. Dr. W. Junk N. V. Publishers, The Hague, 343-356 (1971)

- Simon, H. und A. Trebst: Über den Einbau von Tritium in einige Zucker bei der Photosynthese. Z. Naturforschg. 16b, 285-287 (1961)
- Simon, H., H. Dorrer und A. Trebst: Photosyntheseversuche in Tritiumwasser mit Chlorella. Z. Naturforschg. 19b, 734-744 (1964)
- Slatyer, R. O.: Absorption of water from atmosphere of different humidity and its transport through plants. Aust. J. Biol. Sci. 9, 552-558 (1956)
- Slatyer, R. O.: Plant-water relationships. Academic Press, London - New York (1967)
- Souci, S. W., W. Fachmann, H. Kraut: Die Zusammensetzung der Lebensmittel. Nährwert-Tabellen 1981/1982, Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft mbH, Stuttgart (1981)
- Strack, S.: Biokinetische Untersuchungen über organisch gebundenes Tritium in Algenkulturen. STH-Bericht 2/78, Dietrich Reimer Verlag, Berlin (1978)
- Strack, S. und L. A. König: Determination of organically bound tritium in environmental samples by application of the oxidizing plasma technique. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Bericht KfK 3249 (1981)
- Strack, S.: Behaviour of tritium in the water pool and organic pool of the leaves of a beech tree. Ann. de l'Ass. Belg. de Radioprot. 7, 213-228 (1982)
- Strack, S., S. Schulte und G. Pagliosa: Radioökologische Untersuchung über das Verhalten von Tritium in Bäumen. In: Kiefer, H., W. Koelzer und L. A. König (eds.): Jahresbericht 1981 der Hauptabteilung Sicherheit, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Bericht KfK 3272, 164-169 (1982)
- Trip, P. and P. R. Gorham: Translocation of sugar and tritiated water in squash plants. Plant Physiol. 43, 1845-1849 (1968)

- Vaadia, Y. and Y. Waisel: Water absorption by the aerial organs of plants. *Physiol. Plant.* 16, 44-51 (1963)
- Vartapetian, B. B. and A. L. Kursanov: Water exchange between plant tissues and liquid water and vapor in the environment. *Fiziol. Rastanii* 8, 569-575 (1961)
- Walter, H.: Einführung in die Phytologie. Band III, Grundlagen der Pflanzenverbreitung, Eugen Ulmer, Stuttgart, 399-409 (1960)
- Weinberger, D. and J. W. Porter: Incorporation of tritium into growing *Chlorella pyrenoidosa* cells. *Science* 117, 636-639 (1953)
- Wetzel, K.: Die Wasseraufnahme der höheren Pflanzen gemäßigter Klimate durch oberirdische Organe. *Flora* 117, 221-269 (1924)
- Ziegler, H.: Physiologie des Stoff- und Energiewechsels. In: Strasburger Lehrbuch der Botanik, Gustav Fischer Verlag, Stuttgart - New York, 312-332, 364 (1983)

8. Anhang

8.1 Tabellen

Tab. 8.1: Versuch II. HTO-Bega-  
sung von Radiespflanzen. Spezi-  
fische Aktivität ( $\pm 2s$ -Meßfeh-  
ler) der Luftfeuchtigkeit.  
(vgl. Abb. 4.3).

Zeit (h)	spez. Aktivität (Bq/g H <sub>2</sub> O)
0	4 821 $\pm$ 236
0,8	4663 $\pm$ 229
1,5	4460 $\pm$ 219
2,9	4428 $\pm$ 217
3,7	4322 $\pm$ 212
4,8	4378 $\pm$ 215
22,9	4208 $\pm$ 206
24,6	4200 $\pm$ 206
25,8	4249 $\pm$ 208
27,8	4221 $\pm$ 207
29,9	4199 $\pm$ 206
46,5	4254 $\pm$ 209

Tab. 8.2: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Blätter. Spezifische Aktivitäten ( $\pm 2s$ -Meßfehler) von Gewebewasser (HTO, vgl. Abb. 4.3), insgesamt organisch gebundenem Tritium (OBT, vgl. Abb. 4.4) und nicht austauschbar organisch gebundenem Tritium (OBT<sub>nx</sub>, vgl. Abb. 4.4).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	HTO	OBT	OBT <sub>nx</sub>
0,5	470 ± 24	196 ± 17	2,53 ± 0,78
1,5	1289 ± 64	272 ± 23	6,85 ± 1,00
3,0	2223 ± 109	428 ± 36	34,7 ± 3,3
5,8	2119 ± 104	443 ± 38	53,1 ± 4,8
22,0	2539 ± 124	675 ± 57	223 ± 19
26,0	2473 ± 121	693 ± 59	270 ± 23
30,0	2421 ± 119	680 ± 58	327 ± 28
46,0	2609 ± 128	872 ± 74	447 ± 38

Tab. 8.3: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Knollen (wie Tab. 8.2).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	HTO	OBT	OBT <sub>nx</sub>
0,5	0,41 ± 0,08	1,27 ± 0,40	0,52 ± 0,35
1,5	0,56 ± 0,08	1,30 ± 0,37	0,29 ± 0,30
3,0	1,00 ± 0,11	2,65 ± 0,41	2,83 ± 0,46
5,8	1,23 ± 0,12	4,02 ± 0,50	4,21 ± 0,55
22,0	5,33 ± 0,32	59,0 ± 5,20	65,9 ± 5,8
26,0	7,26 ± 0,42	79,6 ± 6,80	78,8 ± 6,8
30,0	3,85 ± 0,25	31,8 ± 2,80	31,4 ± 2,8
46,0	5,71 ± 0,34	87,9 ± 7,50	88,9 ± 7,6

Tab. 8.4: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Blätter. Wassergehalt, Trockenmasse und Massenverhältnis von Verbrennungswasser und Trockensubstanz ( $\gamma$ , gemessen bei  $OBT_{nx}$ -Bestimmungen).

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	$\gamma$
0,5	13,314	1,236	0,300
1,5	16,207	1,384	0,319
3,0	8,446	0,730	0,322
5,8	15,835	1,415	0,330
22,0	15,159	1,313	0,329
26,0	21,559	1,837	0,333
30,0	12,889	1,308	0,341
46,0	15,102	1,388	0,330

Tab. 8.5: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Knollen. (wie Tab. 8.4).

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	$\gamma$
0,5	13,147	0,834	0,338
1,5	37,420	1,788	0,331
3,0	17,115	0,945	0,328
5,8	38,565	2,168	0,334
22,0	16,259	0,851	0,283
26,0	19,061	1,035	0,318
30,0	25,155	1,508	0,370
46,0	15,091	0,870	0,331

Tab. 8.6: Versuch II. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Gesamtaktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums ( $A_3$ ), auf Blätter und Knollen entfallende prozentuale Anteile (vgl. Abb. 4.5). Mittlere spezifische Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums ( $C_3$ ).

Zeit (h)	$A_3$ (Bq)	Blätter %	Knollen %	$C_3$ (Bq/g $H_2O$ )
0,5	1,32	≈ 100	≈ NWG	1,72
1,5	3,90	≈ 100	≈ NWG	3,15
3,0	11,0	90,3	9,7	16,7
5,8	34,0	89,0	11,0	23,5
22,0	137	85,9	14,1	161
26,0	233	86,4	13,6	201
30,0	1199	89,3	10,7	169
46,0	281	88,9	11,1	309

Tab. 8.7: Versuch III. HTO-Begasung von Radiespflanzen. Spezifische Aktivität ( $\pm 2s$ -Meßfehler) der Luftfeuchtigkeit. (vgl. Abb. 4.6).

Zeit (h)	spez. Aktivität (Bq/g $H_2O$ )
0	4614 $\pm$ 226
1,0	4472 $\pm$ 219
2,1	4286 $\pm$ 210
2,8	4233 $\pm$ 208
4,6	4154 $\pm$ 204
6,2	4059 $\pm$ 199
7,3	4141 $\pm$ 203
23,6	3918 $\pm$ 192
26,3	4033 $\pm$ 198
29,0	4099 $\pm$ 201
29,8	4067 $\pm$ 199

Tab. 8.8: Versuch III. HTO-Begasung von Radiesspflanzen. Blattspreiten. Spezifische Aktivitäten ( $\pm 2s$ -Meßfehler) von Gewebewasser (HTO, vgl. Abb. 4.6), insgesamt organisch gebundenem Tritium (OBT) und nicht austauschbar organisch gebundenem Tritium (OBT<sub>nx</sub>).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	HTO	OBT	OBT <sub>nx</sub>
0,33	282 ± 14	55,8 ± 25,9	1,39 ± 0,55
0,83	917 ± 46	127 ± 31	8,72 ± 1,03
1,5	1595 ± 79	204 ± 37	25,0 ± 2,4
2,5	1903 ± 94	235 ± 39	39,6 ± 3,6
4,0	2875 ± 141	431 ± 55	81,1 ± 7,1
7,5	3273 ± 161	571 ± 49	205 ± 18
24,0	3510 ± 172	817 ± 69	376 ± 32
30,0	3214 ± 158	907 ± 77	466 ± 40

Tab. 8.9: Versuch III. HTO-Begasung von Radiesspflanzen. Blattstiele. Wie Tab. 8.8 (vgl. Abb. 4.6 und Abb. 4.7).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	HTO	OBT	OBT <sub>nx</sub>
0,33	30,8 ± 1,6	5,28 ± 1,10	<NWG
0,83	83,5 ± 4,2	12,5 ± 1,6	2,46 ± 0,75
1,5	142 ± 7	47,3 ± 4,4	6,44 ± 1,03
2,5	163 ± 8	61,8 ± 5,6	19,4 ± 2,0
4,0	368 ± 19	114 ± 10	37,9 ± 3,6
7,5	275 ± 14	166 ± 15	107 ± 10
24,0	344 ± 17	335 ± 29	297 ± 26
30,0	358 ± 18	413 ± 35	333 ± 29

Tab. 8.10: Versuch IV. HTO-Begasung von Radiespflanzen bei Tag/Nacht-Wechsel. Spezifische Aktivitäten (in Bq/g H<sub>2</sub>O, ± 2s-Meßfehler) der Fraktionen von belichteten (L) und dunkelgehaltenen (D) Pflanzen (vgl. Abb. 4.8).

		Blatt-spreiten	Blattstiele	Knollen	Boden
HTO	L	1025 ± 51	78,0 ± 3,9	4,79 ± 0,29	3,65 ± 0,24
	D	1077 ± 53	145 ± 8	3,33 ± 0,22	3,90 ± 0,25
OBT <sub>nx</sub>	L	188 ± 16	75,6 ± 6,6	61,2 ± 5,3	-
	D	173 ± 15	70,0 ± 6,2	47,4 ± 4,2	-

Tab. 8.11: Versuch IV. HTO-Begasung von Möhrenpflanzen bei Tag/Nacht-Wechsel. Wie Tab. 8.10 (vgl. Abb. 4.8).

		Blatt-fiedern	Blattstiele	Rüben	Boden
HTO	L	904 ± 45	82,8 ± 4,2	3,77 ± 0,24	4,29 ± 0,27
	D	997 ± 49	161 ± 8	3,75 ± 0,24	4,49 ± 0,28
OBT <sub>nx</sub>	L	206 ± 18	49,1 ± 4,5	115 ± 10	-
	D	146 ± 13	78,6 ± 6,9	90,3 ± 7,8	-

Tab. 8.12: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnen. Spezifische Aktivität (± 2s-Meßfehler) der Luftfeuchtigkeit. (vgl. Abb. 4.9).

Zeit (h)	spez. Aktivität (Bq/g H <sub>2</sub> O)
0	3872 ± 190
1,4	3133 ± 154
2,2	3303 ± 162
4,1	3097 ± 152
6,0	2972 ± 146
11,2	2807 ± 138
24,0	2785 ± 137
26,2	2833 ± 139
28,7	2861 ± 140
30,7	2893 ± 142
47,7	2908 ± 143

Tab. 8.13: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Blattspreiten. Spezifische Aktivitäten ( $\pm 2s$ -Meßfehler) von Gewebewasser (HTO, vgl. Abb. 4.9), insgesamt organisch gebundenem Tritium (OBT, vgl. Abb. 4.10) und nicht austauschbar organisch gebundenem Tritium (OBT<sub>nx</sub>, vgl. Abb. 4.10).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	HTO	OBT	OBT <sub>nx</sub>
0,5	329 ± 17	207 ± 18	2,06 ± 0,52
1,5	1030 ± 51	282 ± 24	10,4 ± 1,2
3,5	1740 ± 86	371 ± 32	26,0 ± 2,5
7,0	2063 ± 101	465 ± 40	59,1 ± 5,2
11,0	1953 ± 96	458 ± 39	69,7 ± 6,1
23,0	1923 ± 95	484 ± 41	75,1 ± 6,5
31,0	1882 ± 93	573 ± 49	114 ± 10
48,0	1906 ± 94	613 ± 52	153 ± 13

Tab. 8.14: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Spezifische Aktivitäten von Gewebewasser von Blattstielfraktion (vgl. Abb. 4.9), Stengel und Früchten.

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	Blattstiele	Stengel	Früchte
0,5	115 ± 6	19,6 ± 1,1	6,0 ± 0,4
1,5	206 ± 11	50,7 ± 2,6	16,6 ± 0,9
3,5	184 ± 9	20,8 ± 1,1	32,3 ± 1,7
7,0	214 ± 11	44,3 ± 2,3	72,1 ± 3,6
11,0	300 ± 15	51,7 ± 2,6	116 ± 6
23,0	242 ± 12	44,1 ± 2,3	408 ± 21
31,0	174 ± 9	123 ± 7	290 ± 15
48,0	174 ± 9	119 ± 6	493 ± 25

Tab. 8.15: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Spezifische Aktivitäten des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums von Blattstielfraktion, Stengel und Früchten.

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	Blattstiele	Stengel	Früchte
0,5	<NWG	<NWG	0,53 ± 0,29
1,5	1,72 ± 0,49	<NWG	0,43 ± 0,28
3,5	4,38 ± 0,62	0,70 ± 0,44	4,62 ± 0,56
7,0	21,3 ± 2,1	6,88 ± 0,78	18,4 ± 1,7
11,0	31,4 ± 2,9	8,08 ± 0,93	25,0 ± 2,3
23,0	34,7 ± 3,2	17,8 ± 1,8	84,5 ± 7,2
31,0	32,6 ± 2,9	20,4 ± 2,0	168 ± 15
48,0	51,9 ± 4,6	22,9 ± 2,2	199 ± 17

Tab. 8.16: Versuch Va. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Spezifische Aktivitäten (in Bq/g H<sub>2</sub>O) der Fraktionen von intakten Pflanzen (m.B., t = 11,0 h) und Pflanzen ohne Blattfiedern (o.B., t = 11,5 h) (vgl. Abb. 4.11).

		Blattstiele	Stengel	Früchte	Boden
HTO	m.B.	300 ± 15	51,7 ± 2,6	116 ± 6	1,00 ± 0,11
	o.B.	480 ± 24	258 ± 13	245 ± 13	1,05 ± 0,11
OBT <sub>nx</sub>	m.B.	31,4 ± 2,9	8,08 ± 0	25,0 ± 2,3	-
	o.B.	3,95 ± 0,64		3,78 ± 0,50	-

Tab. 8.17: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Blattfiedern. Wassergehalt, Trockenmasse und Massenverhältnis von Verbrennungswasser und Trockensubstanz ( $\gamma$ , gemessen bei OBT<sub>nx</sub>-Bestimmung).

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	$\gamma$
0,5	11,305	1,722	0,408
1,5	16,329	2,465	0,406
3,5	17,556	2,684	0,403
7,0	14,031	2,190	0,398
11,0	16,329	2,566	0,408
23,0	16,935	2,625	0,395
31,0	22,451	3,706	0,409
48,0	19,312	3,352	0,392

Tab. 8.18: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Blattstielfraktion, wie Tab. 8.17

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	$\gamma$
0,5	4,410	1,220	0,410
1,5	5,296	1,924	0,408
3,5	6,478	2,578	0,391
7,0	5,302	1,142	0,401
11,0	7,125	1,733	0,401
23,0	6,526	1,489	0,407
31,0	8,643	2,086	0,448
48,0	7,418	1,909	0,387

Tab. 8.19: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Stengel, wie Tab. 8.17

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	Y
0,5	1,698	0,434	0,384
1,5	2,095	0,588	0,396
3,5	1,932	0,574	0,385
7,0	1,750	0,530	0,400
11,0	3,055	0,905	0,404
23,0	2,884	0,776	0,398
31,0	1,883	0,565	0,400
48,0	1,925	0,585	0,402

Tab. 8.20: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Früchte, wie Tab. 8.17

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	Y
0,5	16,099	1,924	0,381
1,5	13,656	1,395	0,390
3,5	34,268	3,680	0,379
7,0	22,602	2,502	0,373
11,0	27,986	3,074	0,366
23,0	22,247	2,601	0,375
31,0	24,119	2,875	0,374
48,0	37,468	4,844	0,387

Tab. 8.21: Versuch V. HTO-Begasung von Buschbohnenpflanzen. Gesamtaktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums (A<sub>3</sub>), auf die einzelnen Pflanzenfraktionen entfallenden prozentuale Anteile (vgl. Abb. 4.12). Mittlere spezifische Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums (C<sub>3</sub>).

Zeit (h)	A <sub>3</sub> (Bq)	Blattfiedern %	Blattstiele %	Stengel %	Früchte %	C <sub>3</sub> (Bq/g H <sub>2</sub> O)
0,5	2,47	100	<NWG	<NWG	≈ NWG	0,95
1,5	14,7	88,8	11,2	<NWG	≈ NWG	4,65
3,5	47,7	71,9	11,3	0,4	16,5	10,4
7,0	97,4	64,5	12,2	1,8	21,5	32,0
11,0	154	58,0	17,3	2,4	22,4	38,4
23,0	228	41,7	11,3	2,9	44,1	64,4
31,0	474	44,5	7,8	1,2	46,5	107
48,0	753	32,5	6,2	0,9	60,4	149

Tab. 8.22: Versuch VI. Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Spezifische Aktivitäten des Gewebewassers von Blattspreiten, Blattstielen und Knollen (vgl. Abb. 4.13; spezifische Aktivität der Luftfeuchtigkeit für  $t = 0$ :  $1176 \pm 58$  Bq/g H<sub>2</sub>O; spezifische Aktivität des Bodenwassers s. Tab. 4.16).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	Blattspreiten	Blattstiele	Knollen
0	1077 ± 53	145 ± 8	3,33 ± 0,22
1,0	626 ± 31	52,0 ± 2,7	5,04 ± 0,31
3,0	241 ± 12	35,4 ± 1,8	3,18 ± 0,21
7,0	21,1 ± 1,1	26,5 ± 1,4	2,45 ± 0,18
29	1,93 ± 0,15	2,33 ± 0,17	2,16 ± 0,16
72	2,49 ± 0,18	3,76 ± 0,25	3,69 ± 0,24
120	0,56 ± 0,08	0,96 ± 0,10	1,10 ± 0,11

Tab. 8.23: Versuch VI. Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Spezifische Aktivitäten des nicht austauschbaren organisch gebundenen Tritiums von Blattspreiten, Blattstielen und Knollen (vgl. Abb. 4.13).

Zeit (h)	(Bq/g H <sub>2</sub> O)		
	Blattspreiten	Blattstiele	Knollen
0	173 ± 15	70,0 ± 6,2	47,4 ± 4,2
1,0	172 ± 15	66,8 ± 6,0	40,4 ± 3,6
3,0	201 ± 18	74,6 ± 6,6	10,3 ± 1,1
7,0	170 ± 15	36,6 ± 3,5	14,2 ± 1,4
29	138 ± 12	48,9 ± 4,4	21,4 ± 2,0
72	112 ± 10	45,0 ± 4,1	19,2 ± 1,8
120	97,7 ± 8,4	29,8 ± 2,8	33,3 ± 3,0

Tab. 8.24: Versuch VI. Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Blattspreiten. Wassergehalt, Trockenmasse und Massenverhältnis von Verbrennungswasser und Trockensubstanz ( $\gamma$ ).

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	$\gamma$
0	17,175	1,558	0,393
1,0	13,412	1,314	0,403
3,0	10,985	1,043	0,386
7,0	9,779	1,058	0,375
29	19,979	1,723	0,391
72	15,610	1,491	0,397
120	24,003	2,417	0,405

Tab. 8.25: Versuch VI. Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Blattstiele, wie Tab. 8.24

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	$\gamma$
0	12,785	0,659	0,299
1,0	10,844	0,550	0,305
3,0	10,403	0,562	0,298
7,0	8,165	0,413	0,312
29	14,462	0,718	0,325
72	11,863	0,617	0,294
120	18,993	1,143	0,329

Tab. 8.26: Versuch VI. Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Knollen, wie Tab. 8.24

Zeit (h)	Wassergehalt (g)	Trockenmasse (g)	Y
0	27,252	1,310	0,337
1,0	28,358	1,273	0,320
3,0	24,515	1,118	0,370
7,0	27,272	1,253	0,328
29	25,926	1,220	0,341
72	27,888	1,229	0,317
120	23,592	1,361	0,326

Tab. 8.27: Versuch VI. Ausscheidung von aus der Atmosphäre aufgenommenem Tritium durch Radiespflanzen. Mittlere spezifische Aktivität des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums ( $C_3$ ), auf die einzelnen Pflanzenfraktionen entfallende prozentuale Anteile.

Zeit (h)	$C_3$ (Bq/g $H_2O$ )	Blattspreiten %	Blattstiele %	Knollen %
0	112	75,3	9,8	14,9
1,0	108	76,7	9,4	13,9
3,0	99,3	82,9	12,8	4,4
7,0	83,3	86,5	6,1	7,5
29	85,7	82,1	10,1	7,9
72	70,5	80,9	10,0	9,1
120	67,6	78,6	9,2	12,2

Tab. 8.28: Vergleich des Verlaufs der relativen spezifischen Tritiumaktivitäten des Gewebewassers (bezogen auf die spezifische Gleichgewichtstritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit,  $C/C_0 \times 100 \%$ ) von Blättern, Blattspreiten und Blattstielen (von Radiespflanzen, Versuch II und III) während HTO-Expositionen bei vergleichbarer relativer Luftfeuchte (vgl. Abb. 5.1).

Zeit (h)	Blätter	Zeit (h)	Blattspreiten	Blattstiele
0,5	11,1	0,33	7,0	0,8
1,5	30,5	0,83	22,7	2,1
3,0	52,6	1,5	39,5	3,5
5,8	50,1	2,5	47,2	4,0
22,0	60,0	4,0	71,3	9,1
26,0	58,5	7,5	81,1	6,8
30,0	57,2	24,0	87,0	8,5
46,0	61,7	30,0	79,7	8,9

Tab. 8.29: Vergleich des Verlaufs der relativen spezifischen Aktivitäten (bezogen auf den Regreßwert für die jeweilige maximale Aktivität des Gewebewassers,  $C/C_{max} \times 100 \%$ ) des Gewebewassers und des nicht austauschbar organisch gebundenen Tritiums von Radies-Blattspreiten während und nach einer HTO-Expositon (Versuch III und VI, vgl. Abb. 5.2).

Zeit (h)	Aufnahme		Zeit (h)	Ausscheidung	
	HTO	OBT <sub>nx</sub>		HTO	OBT <sub>nx</sub>
0,33	8,4	0	0	100,2	16,1
0,83	27,0	0,3	1,0	58,2	16,0
1,5	47,0	0,7	3,0	22,4	18,7
2,5	56,0	1,2	7,0	2,0	15,8
4,0	84,5	2,4	29	0,2	12,8
7,5	96,2	6,0	72	0,2	10,4
24,0	103,2	11,0	120	0	9,1
30,0	94,5	13,7			

Tab. 8.30: Vergleich des Verlaufs der relativen spezifischen Aktivität (bezogen auf die jeweilige spezifische Gleichgewichtstritiumaktivität der Luftfeuchtigkeit,  $C/C_0 \times 100 \%$ ) des organisch gebundenen Tritiums von Blattfraktionen (Versuch II, III und V) mit nach Gl. (5.5) berechneten Werten (vgl. Abb. 5.3).

Zeit (h)	Radies-Blätter	Radies-Blatt-spreiten	Bohnen-Blatt-spreiten	Berechnet
0,33	-	1,4	-	2,1
0,5	4,6	-	7,2	3,1
0,83	-	3,1	-	4,7
1,5	6,4	5,1	9,8	7,4
2,5	-	5,8	-	10,0
3,0	10,1	-	-	10,9
3,5	-	-	13,0	11,6
4,0	-	10,7	-	12,2
5,8	10,5	-	-	13,6
7,0	-	-	16,2	14,2
7,5	-	14,2	-	14,4
11,0	-	-	16,0	15,4
22,0	16,0	-	-	17,8
23,0	-	-	16,9	18,0
24,0	-	20,2	-	18,3
26,0	16,4	-	-	18,7
30,0	16,1	22,5	-	19,5
31,0	-	-	20,0	19,7
46,0	20,6	-	-	22,8
48,0	-	-	21,4	23,2

## 8.2 Rechenprogramm

### - Nicht lineare Regression -

Das nachstehend aufgeführte Rechenprogramm dient zur Anpassung einer der folgenden Funktionen an eine beliebige Zahl von Meßwertpaaren:

Funktion-Nr.	Gleichung	Beispiel
1	$y = f(1-e^{-kx})$	Gl.(4.2).Gl.(4.9)
2	$y = a+fe^{-kx}$	Gl.(4.3)
3	$y = a(1-fe^{-bx}-(1-f)e^{-kx})$	Gl.(4.8)
4	$y = a(fe^{-bx} + (1-f)e^{-kx})$	Abschn. 5.3.2
5	$y = fa(1-e^{-kx}) + fb\frac{k}{k-c} (e^{-cx}-e^{-kx})$	Gl. (4.7)

Grundsätzlich kann die Anpassung auch an eine beliebige andere Funktion vorgenommen werden, deren Gleichung hierzu in eine der Programmzeilen 810 bis 850 einzuschreiben ist. Es können jeweils die Werte für zwei Parameter (f,k) optimiert werden. Das Programm wählt aus einer gegebenen Anzahl möglicher Werte durch Probieren diejenigen Werte aus, für die sich eine kleinste Summe der Abweichungsquadrate ergibt. Die Anzahl der zu probierenden Werte, die durch Eingabe eines unteren und oberen Grenzwertes sowie einer Schrittweite (Auflösung, Inkrement) bestimmt wird, darf dabei jeweils 20 betragen. Durch wiederholte Programmausführung lassen sich die Parameter entsprechend genauer bestimmen. Für die optimierte Funktion berechnet das Programm ein allgemeines Bestimmtheitsmaß (s. Abschn. 3.6.2), außerdem können Regreßwerte für beliebige Werte der Variablen x berechnet werden.

Das Programm wurde für den programmierbaren Taschenrechner CASIO FX-720P geschrieben, ist jedoch auch in andere BASIC-Dialekte übertragbar.

```
10 PRINT "Start(J\N)?";
20 $= KEY$
30 IF $="N" THEN PRINT : GOTO 140
40 IF $="J" THEN 20
50 CLEAR : PRINT
60 PRINT "X";I+1;: INPUT $
70 IF $="E" THEN 110
80 I=I+1: DEFM (2*I+58)
90 X(60+I)= VAL($ )
100 GOTO 60
110 FOR J=1 TO I
120 PRINT "Y";J;: INPUT X(60+I+J)
130 NEXT J
140 INPUT "Fkt.Nr.",P
150 INPUT "a",$: IF $="" THEN 210
160 S= VAL($ )
170 INPUT "b",$: IF $="" THEN 210
180 T= VAL($ )
190 INPUT "c",$: IF $="" THEN 210
200 U= VAL($ )
210 INPUT "f Min.",A: INPUT "f Max.",B: INPUT "f Inkrement",C
220 INPUT "k Min.",D: INPUT "k Max.",E: INPUT "k Inkrement",F
230 PRINT "Computing";
240 Q=19
250 FOR G=A TO B STEP C:M=-1
260 FOR K=D TO E STEP F:R=0
270 FOR J=1 TO I
280 ON P GOSUB 810,820,830,840,850
290 R=R+(X(60+I+J)-N)2
300 NEXT J
310 M=M+1:W(M)=R
320 IF M>19 THEN H$="k": GOTO 650
330 NEXT K
340 L=1E10
```

```
350 FOR J=0 TO M
360 IF W(J)<L THEN L=W(J):O=J
370 NEXT J
380 Q=Q+1:W(Q)=L:W(Q+20)=O*F+D
390 IF Q>39 THEN H$="f": GOTO 650
400 NEXT G
410 L=1E10
420 FOR J=20 TO Q
430 IF W(J)<L THEN L=W(J):O=J-20
440 NEXT J
450 G=O*C+A:K=W(O+40)
460 PRINT : BEEP 0: PRINT "f=";G,"k=";K
470 A=0:B=0
480 FOR J=1 TO I
490 A=A+X(60+I+J)
500 NEXT J
510 A=A/I
520 FOR J=1 TO I
530 B=B+(X(60+I+J)-A)2
540 NEXT J
550 C=1-L/B: SET F4: PRINT "B=";C
560 J=0: SET F2
570 PRINT "Y-Ber. (J\N)?"
580 $= KEY$
590 IF $="N" THEN PRINT : SET N: PRINT "ENDE";: END
600 IF $="J" THEN 580
610 PRINT : INPUT "X",X(60)
620 ON P GOSUB 810,820,830,840,850
630 PRINT "Y=";N
640 GOTO 570
650 PRINT : BEEP 1: BEEP 1: BEEP 1
660 PRINT "Speicher (";H$;) ueberladen!!": GOTO 210
810 N=G*(1- EXP(-K*X(60+J))): RETURN
820 N=G+G* EXP(-K*X(60+J)): RETURN
830 N=1-G* EXP(-T*X(60+J))-(1-G)* EXP(-K*X(60+J))
835 N=N*S: RETURN
```

```
840 N=G* EXP(-T*X(60+J))+(1-G)* EXP(-K*X(60+J))
845 N=N*S: RETURN
850 N=G*T*K/(K-U)*( EXP(-U*X(60+J))- EXP(-K*X(60+J)))
855 N=N+G*S*(1- EXP(-K*X(60+J))): RETURN
```

Herrn Prof. Dr. U. Kull danke ich herzlich für die gute Betreuung der Arbeit. Bei allen auftretenden Problemen fand ich stets freundliche und bereitwillige Unterstützung.

Besonderer Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. H. Kiefer für die Anregung zu dem Thema, die Bereitstellung des Arbeitsplatzes und stete Förderung der Arbeit.

Herrn Prof. Dr. D. Hülser danke ich für hilfreiche Ratschläge und die Übernahme der Berichterstattung.

Mein weiterer Dank gilt Herrn Dr. L.A. König und Herrn Dr. S. Strack für wertvolle Hinweise und Diskussionen.