

KfK 3715

Mai 1984

Radioökologische Studien der Auswirkungen von Tritiumemissionen am Beispiel des KfK

**Befristete Einzeluntersuchungen in
Erweiterung und Ergänzung eines seit
Jahren laufenden Meßprogramms**

**L.A. König, K.-G. Langguth, G. Pagliosa, D. Papadopoulos,
A. Radziwill, S. Schulte, S. Strack
Hauptabteilung Sicherheit**

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Hauptabteilung Sicherheit

KfK 3715

**Radioökologische Studien der Auswirkungen von Tritiumemissionen
am Beispiel des KfK**

**- Befristete Einzeluntersuchungen in Erweiterung und
Ergänzung eines seit Jahren laufenden Meßprogramms -**

**L.A. König, K.-G. Langguth, G. Pagliosa, D. Papadopoulos,
A. Radziwill, S. Schulte, S. Strack**

Abschlußbericht des BMI-geförderten Forschungsvorhabens St.Sch. 800

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Das Kernforschungszentrum Karlsruhe leitet jährlich in der Größenordnung 200 TBq Tritium über Abluft und Abwasser ab. Dies bietet die Möglichkeit, Untersuchungen über das radioökologische Verhalten von Tritium in der Umwelt unter realistischen Bedingungen durchzuführen. Im Rahmen eines vom BMI geförderten Programms wurden im einzelnen untersucht:

Auswirkungen der Tritiumableitungen über den Luftpfad:

- Ablagerung durch Niederschläge (Regen und Schnee)
- Kontamination des Bodens und Migration in das Grundwasser
- Tritium in Pflanzen (Gewebewasser und organische Substanz)

Auswirkungen der Tritiumableitungen über den Abwasserpfad:

- Beaufschlagung des Vorfluters
- Tritium in Wasserpflanzen und Fischen (Gewebewasser und organische Substanz)
- Ausbreitung über das Grundwasser
- Tritium in landwirtschaftlichen Produkten.

Über erste Resultate der Versuche zur modellmäßigen Beschreibung des beobachteten radioökologischen Verhaltens wird berichtet. Da aus den vorliegenden Ergebnissen ableitbare radioökologische Parameter (Washout, Migrationsgeschwindigkeit) eine statistische Verteilung aufweisen, sind weitere Messungen notwendig. Die Untersuchungen werden mit dem Schwerpunkt "Verbesserung der modellmäßigen Beschreibung" fortgesetzt.

Radioecological Studies of the Impacts of Tritium Emissions as Explained by the Example of KfK. - Limited Specific Studies Expanding and Supplementing a Programme of Measurements Launched a Number of Years ago.

Abstract

The amount of tritium discharged every year by the Karlsruhe Nuclear Research Centre via gaseous and liquid effluents is of the order of 200 TBq. This offers the opportunity of studying the radioecological behaviour of tritium in the environment under real conditions. Within the framework of a programme supported by the Federal Ministry of the Interior (BMI) the following problems have been investigated:

Effects of tritium released via the air pathway:

- deposition through precipitates (rain and snow),
- contamination of the soil and migration into the ground water,
- tritium in plants (tissue water and organic substance).

Effects of tritium released via the liquid effluent pathway:

- burden on the main canal,
- tritium in water plants and fish (tissue water and organic substance),
- spread via the ground water,
- tritium in agricultural produces.

First results are reported about the attempts for describing by model the radioecological behaviour observed. Since parameters (washout, rate of migration) which can be derived from the results available are distributed statistically, further measurements will be required. The investigations will be continued with the "improvement of description by models" as the central point of activity.

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>	
1.	Einleitung	1
2.	Tritiumableitungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe	1
3.	Auswirkungen der Tritiumableitungen über den Luftpfad	4
3.1	Ablagerung von in die Atmosphäre freigesetztem Tritium durch Niederschlag	4
3.2	Washoutmodell	6
3.3	Meßergebnisse	7
3.4	Auswertung	9
3.5	Ablagerung von in die Atmosphäre emittiertem Tritium bei Schneefall	15
3.6	Zusammenfassung	18
3.7	Kontamination des Bodens und des Grundwassers mit Tritium durch Ableitungen über den Luftpfad	21
3.8	Tritiumkonzentration in Pflanzen	28
3.8.1	Methoden	28
3.8.1.1	Gefriertrocknung und Tritiummessung	28
3.8.1.2	Plasmaoxidation	29
3.8.2	Ergebnisse	33
3.8.2.1	Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus den Hauptausbreitungssektoren	33
3.8.3	Tritium in Kiefernnadeln	44
3.8.4	Tritium in Pilzen	45
3.8.5	Systematische Langzeituntersuchung der Tritiumkonzentrationen in einer Buche	46
3.8.5.1	Verlauf der Tritiumkonzentration in der Vegetations- periode 1981	48
3.8.5.2	Verlauf der Tritiumkonzentration in der Vegetationsperiode 1982	52
3.8.5.3	Modellmäßige Beschreibung des Verhaltens von Tritium im Baum	55
3.8.5.4	Mathematische Berechnung und Simulation	
3.8.5.5	Statistische Auswertung	65

4.	Beaufschlagung der Umgebung über den Wasserpfad	72
4.1	Beaufschlagung des Vorfluters	72
4.2	Wasserpflanzen und Fische	76
4.3	Tritiumausbreitung über das Grundwasser	77
4.4	Tritiumkonzentrationen in Proben aus landwirtschaftlichen Betrieben im Gebiet um den Rheinniederungskanal	80
4.5	Beaufschlagung des Hirschkanals	86
4.6	Beaufschlagung des Rheines	87
5.	Schlußfolgerungen	88
6.	Schlußbemerkungen	89
7.	Literatur	90

Liste der Tabellen

- Tab. 2/1: Bilanzierte Tritiumemissionen mit der Abluft des Kernforschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1971 bis 1983 in TBq
- Tab. 2/2: Tritiumableitungen mit dem KfK-Abwasser
- Tab. 3/1: Tritiumabgabe mit der Kaminabluft des MZFR vom 1. Juni 1981 bis 15. Juli 1981 (Reaktor in Betrieb)
- Tab. 3/2: Tritiumkonzentration im Regenwasser an den Meßstellen 1 bis 12
- Tab. 3/3: Vergleich der Meßwerte mit den Rechenwerten der Bodenbelastung in Bq m⁻²
- Tab. 3/4: Gemessene (C_F^m) und berechnete (C_F^{th}) Tritiumaktivitätskonzentration im Regenwasser
- Tab. 3/5: Vergleich der Meßergebnisse mit den Rechenergebnissen für Schneefall ($c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$)
- Tab. 3/6: Tägliche Emission von Tritium mit der MZFR-Abluft (Emissionshöhe 100 m) für die Zeitperiode 08.-20.01.1982
- Tab. 3/7: Vorläufiger Vergleich gemessener und berechneter Daten für die Jahre 1981 und 1982
- Tab. 3/8: Tritiumkonzentration im Grund- und Trinkwasser in den Jahren 1980 - 1983 in Bq/l (Quartalswerte)
- Tab. 3/9: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. und 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK 1981
- Tab. 3/10: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. und 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK 1982
- Tab. 3/11: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. und 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK 1983 bis einschließlich August
- Tab. 3/12: Tritiumkonzentrationen in Rosenkohlpflanzen und Bodenproben aus der Umgebung des KfK und von einer Referenzstelle (Thomashof) 1980
- Tab. 3/13: Tritiumkonzentrationen in Rosenkohlpflanzen und Bodenproben aus der Umgebung des KfK und von einer Referenzstelle (Thomashof) 1981
- Tab. 3/14: Tritiumkonzentrationen in Pilzen vom Gelände des KfK (nahe alter Nordwache)

- Tab. 4/1: Tritiumkonzentrationen in Fischen und Wasserpflanzen aus dem Vorfluter des KfK 1982
- Tab. 4/2: Tritiumkonzentration in Grundwasserproben aus Brunnen des Vorfluterbereiches (Probenahmeorte s. Abb. 4/1)
- Tab. 4/3: Tritiumkonzentrationen pflanzlicher Nahrungsmittel von verschiedenen landwirtschaftlichen Betrieben in der Nähe des Rheinniederungskanals 1981 und 1982
- Tab. 4/4: Tritiumkonzentrationen in sonstigen Proben von verschiedenen landwirtschaftlichen Betrieben in der Nähe des Rheinniederungskanals 1981, 1982 und 1983
- Tab. 4/5: Relative Tritiumkonzentrationen R_1 und R_2 in Proben von landwirtschaftlichen Betrieben, bezogen auf die Tritiumkonzentration im Trinkwasser
- Tab. 4/6: Den einzelnen Sandfängen zugeordnete entwässerte Flächen sowie durchschnittliche Niederschlagsmengen

Liste der Abbildungen

- Abb. 2/1: Wöchentliche Tritiumableitungen mit dem Abwasser (Abszisse: Wochennummern)
- Abb. 3/1: Linien gleichen Washouts in m^{-2} . ISOLA-III-Ausgabe für Emissionshöhe 100 m und Washoutproportionalitätskonstante $c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$
- Abb. 3/2: Probenahmestellen für Regenwasser
- Abb. 3/3: Probenahmestellen für die Messung der HTO-Konzentration im Schneewasser
- Abb. 3/4: Lage der Bohrstellen
- Abb. 3/5: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B1 und P39
- Abb. 3/6: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B3 und P38
- Abb. 3/7: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B1b
- Abb. 3/8: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B3b
- Abb. 3/9: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B3c
- Abb. 3/10: Apparatur zur Plasma-Veraschung der gefriergetrockneten Proben und Rückgewinnung des Oxidationswassers für die Bestimmung von organisch gebundenem Tritium
- Abb. 3/11: Verlauf der Oxidation von Stärke
- Abb. 3/12: Verlauf der Oxidation von Milchpulver
- Abb. 3/13: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Friedrichstal) 1981
- Abb. 3/14: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Eggenstein-Leopoldshafen) 1981
- Abb. 3/15: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Friedrichstal) 1982
- Abb. 3/16: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Eggenstein-Leopoldshafen) 1982

- Abb. 3/17: Tritiumkonzentrationen in Rosenkohlpflanzen und Bodenproben (1980/81) in verschiedenen Ortschaften
- Abb. 3/18: Tritiumkonzentrationen in Kiefernadeln von verschiedenen Standorten auf dem Gelände des KfK (gewachsen 1978 bis 1980)
- Abb. 3/19: Fünfzigjährige Rotbuche (*Fagus silvatica*)
- Abb. 3/20: Verteilung der Blätter an der Rotbuche
- Abb. 3/21: Verlauf der Tritiumkonzentrationen während der Vegetationsperiode 1981
- Abb. 3/22: Profil der Tritiumkonzentrationen in den Streu- und Humusschichten (HTO und OBT) sowie der HTO-Werte in 30 cm dicken Bodenschichten von zwei Bohrungen am Standort der Buche (09.04. und 20.10.1981)
- Abb. 3/23: Zur Erfassung der mikro-klimatischen Bedingungen am Baum kontinuierlich gemessene und automatisch registrierte Daten
- Abb. 3/24: Verlauf der Tritiumkonzentrationen während der Vegetationsperiode 1982
- Abb. 3/25: Ausschnitt des Rechner-Plots der Tritiumaktivitäten und meteorologischen Daten des Langzeitversuches (vom 26.09. bis 16.10.) 1982
- Abb. 3/26: Blockdiagramm des Grundmodells mit den wichtigsten Kompartimenten und Tritium-Flüssen
- Abb. 3/27: Beziehungsdiagramm für die Blattkompartimente
- Abb. 3/28: Grundmodell zur Beschreibung des dynamischen Verhaltens von Tritium in Pflanzen
- Abb. 3/29: Simulation der HTO- und OBT-Werte in den Blättern. Gemessene Tritiumkonzentrationen: HTO und OBT
- Abb. 3/30: Simulation der HTO- und OBT-Werte in den Blättern für die Zeit vom 10.08.1982 bis 22.08.1982
- Abb. 3/31: Verlauf der HTO-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1981 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte
- Abb. 3/32: Verlauf der HTO-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte
- Abb. 3/33: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1981 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte

- Abb. 3/34: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte
- Abb. 3/35: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte und der Bodenfeuchte
- Abb. 3/36: Verlauf der HTO-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte
- Abb. 3/37: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte unter Berücksichtigung der mittleren HTO-Konzentrationen in der Bodenfeuchte während der Nacht.
- Abb. 4/1: Tritiumkonzentration im Vorfluter und in organischem Material aus dem Vorfluter
- Abb. 4/2: Tritiumkonzentration im Grundwasser (März 1983)
- Abb. 4/3: Tritiumkonzentration im Oberflächenwasser (Juli 1982)
- Abb. 4/4: Tritiumkonzentration im Trinkwasser
- Abb. 4/5: Tritiumkonzentrationen in verschiedenen Proben von einem landwirtschaftlichen Betrieb in der Nähe des Rheinniederungskanaals
- Abb. 4/6: Jahresmittelwerte der Tritiumkonzentration im Rhein zwischen Öhningen-Stiegen und Mannheim

1. Einleitung

Das Kernforschungszentrum Karlsruhe stellt mit jährlichen Ableitungen in der Größenordnung von 200 TBq Tritium über Abluft und Abwasser /JAH 70 - JAH 84/ den z. Z. größten Tritiumemittenten der Bundesrepublik Deutschland dar. Es lag daher nahe, das seit Jahren laufende Umgebungsüberwachungsprogramm, das durch Untersuchung von Stichproben einen die Strahlenschutzerfordernisse bei weitem abdeckenden Einblick in die Beeinflussung der Umgebung gewährt, durch ein gezieltes aufwendigeres Forschungsprogramm zu ergänzen, um die Kenntnisse über das Verhalten von Tritium in der Umgebung zu erweitern. Ein solches Programm erscheint um so angebrachter, als bei dem Betrieb von Wiederaufarbeitungsanlagen und Fusionsreaktoren mit Tritiumfreisetzungen in mindestens der gleichen Höhe zu rechnen ist.

Zielsetzung des BMI-geförderten Forschungsvorhabens (Förderungs-Nr. St.Sch. 800) war, Informationen über die Auswirkung langjähriger Tritiumfreisetzungen zu gewinnen und die Ausbreitung von freigesetztem Tritium sowie die Tritiumaufnahme von Pflanzen aus Bodenwasser und Luftfeuchte unter realistischen Bedingungen zu studieren. In vorliegendem Abschlußbericht werden im Interesse der Lesbarkeit einige Ergebnisse wiederholt, die in dem Abschlußbericht zu einem anderen BMI-geförderten Forschungsvorhaben (St.Sch. 802) berichtet sind /KÖN 83c/.

2. Tritiumableitungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe

Tab. 2/1 gibt eine Übersicht über die Tritiumableitungen des Kernforschungszentrums Karlsruhe mit der Abluft seit 1971, wobei die bei der Bilanzierung ermittelten Tritiumaktivitäten wiedergegeben sind. Da bei der Aufsummierung Zahlen verschiedener Größenordnung zu addieren waren, darf nicht erwartet werden, daß die Zahlenangaben für die Teil- und Endsummen der physikalisch erreichten Genauigkeit entsprechen.

Emittenten	Emissionshöhe in m	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977
WAK/LAVA	60	-	-	-	-	-	-	7,0
KTB/FR2	99	23,5	22,3	17,9	11,8	10,6	6,3	7,1
KBG/MZFR	99,5	41,8	20,1	40,4	40,7	28,3	26,0	37,7
HDB-Verbrennungsanlage	70	-	-	-	-	-	7,9	12,2
HDB, Bau 545	19	-	-	-	-	-	2,7	1,3
HDB, Bau 548	15	-	-	-	-	-	0,5	-
Summe		65,3	42,4	58,3	52,5	38,9	43,4	65,3
Emittenten	Emissionshöhe in m	1978	1979	1980	1981	1982	1983	Summe
WAK/LAVA	60	4,7	6,2	3,0	-	2,1	5,1	28,1
KTB/FR2	99	5,3	5,8	6,3	5,7	4,0	1,2	127,8
KBG/MZFR	99,5	38,4	36,7	43,6	71,0	20,0	51,0	495,7
HDB-Verbrennungsanlage	70	32,7	6,2	7,1	9,4	9,7	11,1	86,3
HDB, Bau 545	19	0,8	-	-	-	-	0,1	4,9
HDB, Bau 548	15	-	-	-	-	0,6	-	1,1
Summe		81,9	54,9	60,0	86,1	36,4	58,5	743,9

"-": Vernachlässigbar kleine Emissionen

Tab. 2/1: Bilanzierte Tritiumemissionen mit der Abluft des Kernforschungszentrums Karlsruhe in den Jahren 1971 bis 1983 in TBq /JAH 70 - JAH 84/

In Tab. 2/2 sind die Tritiumableitungen im Abwasser wiedergegeben. Sie stammen in erster Linie von den beiden schwerwassermoderierten Reaktoren MZFR (200 MW_{th}) und dem Ende 1981 stillgelegten Forschungsreaktor FR2 (44 MW_{th}) sowie der Wiederaufarbeitungsanlage. Auch diese Ableitungen sind stark zeitabhängig.

Tritiumableitungen in TBq a ⁻¹	
Jahr	Abwasser
1970	22
1971	27
1972	82
1973	58
1974	28
1975	100
1976	150
1977	150
1978	85
1979	120
1980	67
1981	44
1982	69
1983	128

Tab. 2/2: Tritiumableitungen mit dem KfK-Abwasser /JAH 71 - JAH 84/

In Abb. 2/1 sind die wöchentlichen Tritiumableitungen mit dem Abwasser seit Januar 1981 zusammengestellt. Pro Woche werden im Durchschnitt 14 - 15 Endbeckenfüllungen abgeleitet. Die 600 m³ fassenden Tritium enthaltenden Endbecken werden innerhalb von drei Stunden abgepumpt. Die Tritiumkonzentration schwankt - abhängig vom Betriebsablauf im Kernforschungszentrum - von Endbecken zu Endbecken erheblich, was die Schwankungen der Wochenwerte erklärt.

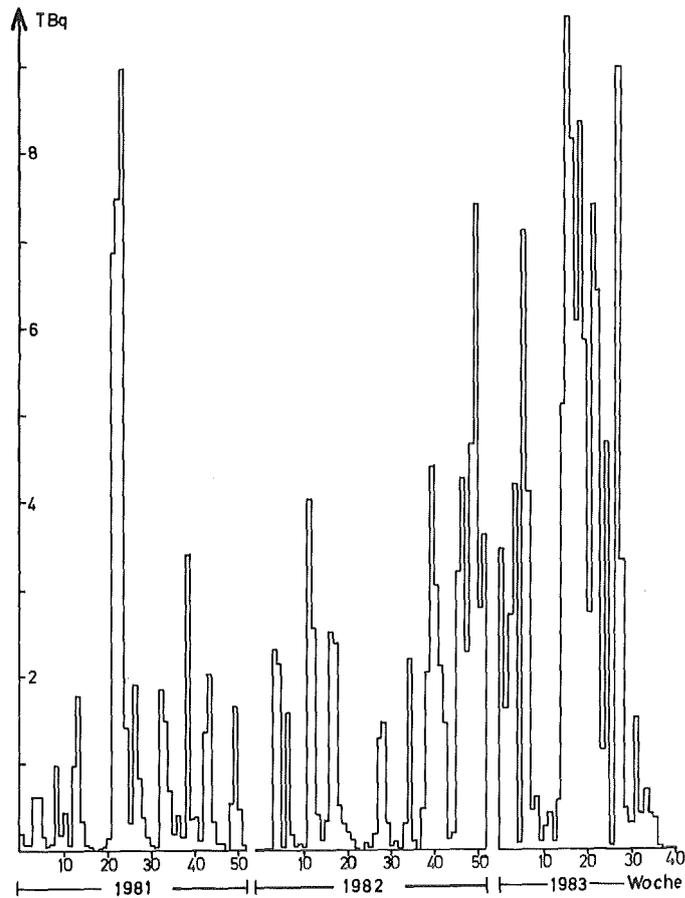


Abb. 2/1: Wöchentliche Tritiumableitungen mit dem Abwasser (Abszisse: Wochennummern) /KÖN 83a/

3. Auswirkungen der Tritiumableitungen über den Luftpfad

Die Tritiumableitungen des Kernforschungszentrums über den Luftpfad führen zu Ablagerungen am Boden (3.1), einer Migration tritiierten Wassers zum Grundwasser (3.2) sowie der Kontamination von Pflanzen (3.3).

3.1 Ablagerung von in die Atmosphäre freigesetztem Tritium durch Niederschlag

In der Zeit von 1971 bis 1983 wurden aus dem Kernforschungszentrum ca. 740 TBq Tritium in die Atmosphäre freigesetzt (s. Tab. 2/1). Es lag nahe, im Rahmen des Forschungsvorhabens berechnete mit gemessenen Tritiumkonzentrationen im Niederschlagwasser zu vergleichen, um Erfahrungen

über die Genauigkeit des Rechenmodells und der darin benutzten Parameter zu gewinnen. Zu diesem Zweck wurden sowohl ein befristetes Sondermeßprogramm durchgeführt als auch bei der Umgebungsüberwachung angefallene Daten ausgewertet. Wegen seines großen Beitrags zu den Tritiumemissionen des KfK während der letzten Jahre wurde der MZFR als Emittent ausgewählt. Das ISOLA-III-Computerprogramm /HÜB 78/ und die aus den langjährigen Messungen erstellte vierparametrische meteorologische Statistik für das Kernforschungszentrum Karlsruhe /VOG 80/ wurden benutzt, um Iso-Linien gleicher Tritiumkonzentration im Regenwasser aus den Ableitungen des MZFR zu bestimmen (s. Abb. 3/1). Die Ergebnisse der Berechnungen zeigen, daß meßbare Tritiumkonzentrationen im Regenwasser innerhalb eines Kreises mit einem Radius von ca. 500 m um den MZFR-Kamin zu erwarten sind und daß die Emittenten FR2, Verbrennungsanlage HDB und WAK nur geringe Beiträge zu diesen Konzentrationen erbringen.

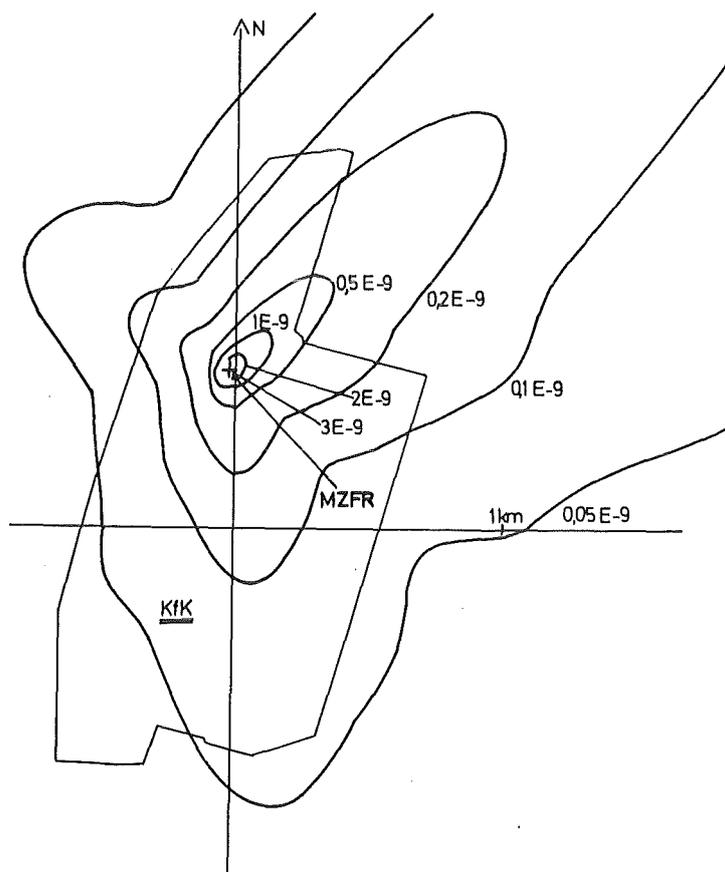


Abb. 3/1: Linien gleichen Washouts in m^{-2} . ISOLA-III-Ausgabe für Emissionshöhe 100 m und Washoutproportionalitätskonstante $c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ /HÜB 78, PAP 82/

3.2 Washoutmodell

Die Berechnung wurde gemäß der Gleichung (1)

$$B_{F,i}^{th} = A \frac{N}{2\pi x} \sum_{jmt} q_{ijmt} \frac{\Lambda_t}{u_{jm}} \quad (1)$$

durchgeführt (s. Gl. (4.12) der Berechnungsgrundlage /BMI 79/). Hierin haben die benutzten Symbole folgende Bedeutung:

$B_{F,i}^{th}$:	Bodenbelastung in Bq m ⁻²
A:	Emittierte Aktivität in Bq
N:	Nummer der Sektoren der Windrichtungen
x:	Abstand des Aufpunktes vom Kamin in m
q_{ijmt} :	Häufigkeit der Niederschläge (i: Sektor der Windrichtung; j: Stabilitätskategorie; m: Windgeschwindigkeitsstufe; t: Niederschlagsintensität)
u_{jm} :	Mittlere Windgeschwindigkeit in m s ⁻¹
Λ_t :	Washoutkonstante in s ⁻¹

Im folgenden wird die Zeitabhängigkeit der Niederschlagsintensität vernachlässigt, d. h. es wird nur die in einer bestimmten Zeit angefallene Niederschlagsmenge berücksichtigt. Unter der Annahme, daß die Washoutkonstante Λ direkt proportional zur Niederschlagsmenge θ ist, gilt die Beziehung

$$\Lambda = c \cdot \theta \quad (2)$$

mit

c:	Proportionalitätskonstante in a mm ⁻¹ s ⁻¹
θ :	Niederschlagsintensität in mm a ⁻¹

Mit Ausnahme von c sind alle Größen, die zur Berechnung von $B_{F,i}^{th}$ benötigt werden, durch Messungen bekannt. Um die Bodenkontamination infolge von Washout mit dem ISOLA-III-Programm zu berechnen, wurde versuchsweise $c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ eingesetzt. Durch Gegenüberstellung berechneter und gemessener Werte wurde versucht, den Wert für c zu verbessern. Hierzu wurde die Methode der kleinsten Quadrate angewandt.

3.3 Meßergebnisse[≠]

In einem ersten Meßprogramm wurde Regenwasser an zwölf Sammelstellen auf einem Kreis von ca. 500 m Radius (Nrn. 1 bis 12 in Abb. 3/2) zwischen dem 16. Juni 1981 und 6. Juli 1981 gesammelt. Tab. 3/1 gibt die ^3H -Emission aus dem MZFR-Kamin für diesen Zeitraum wieder. An der Sammelstelle A wurden Regenwasserproben nach jedem Regenfall arbeitstäglich gegen 10.00 Uhr während der Jahre 1981 und 1982 entnommen. Die Werte der täglichen Emissionen des MZFR und die Daten der während der Laufzeit der Meßprogramme herrschenden meteorologischen Verhältnisse lagen vor. Die meteorologischen Daten wurden an dem 200 m hohen Mast der Hauptabteilung Sicherheit/Umweltmeteorologie gemessen.

Probe- datum 1981	^3H -Emission in GBq d ⁻¹	Probenahme- datum 1981	^3H -Emission in GBq d ⁻¹	Probenahme- datum 1981	^3H -Emission in GBq d ⁻¹
01.06.	101	16.06.	101	01.07.	400
02.06.	83	17.06.	124	02.07.	133
03.06.	119	18.06.	131	03.07.	114
04.06.	91	19.06.	93	04.07.	103
05.06.	79	20.06.	91	05.07.	88
06.06.	60	21.06.	122	06.07.	109
07.06.	65	22.06.	150	07.07.	187
08.06.	52	23.06.	110	08.07.	160
09.06.	106	24.06.	142	09.07.	144
10.06.	198	25.06.	186	10.07.	129
11.06.	74	26.06.	140	11.07.	116
12.06.	106	27.06.	115	12.07.	101
13.06.	85	28.06.	111	13.07.	147
14.06.	71	29.06.	119	14.07.	147
15.06.	151	30.06.	124	15.07.	116

Tab. 3/1: Tritiumabgabe mit der Kaminabluft des MZFR vom 1. Juni 1981 bis 15. Juli 1981 (Reaktor in Betrieb) /PAP 82/

*Herrn Dr. E. Maraziotis, Laboratory of Nuclear Technology, University of Patras, Greece, danken wir für seine Mitarbeit bei den Messungen und Auswertungen im Sommer 1981.

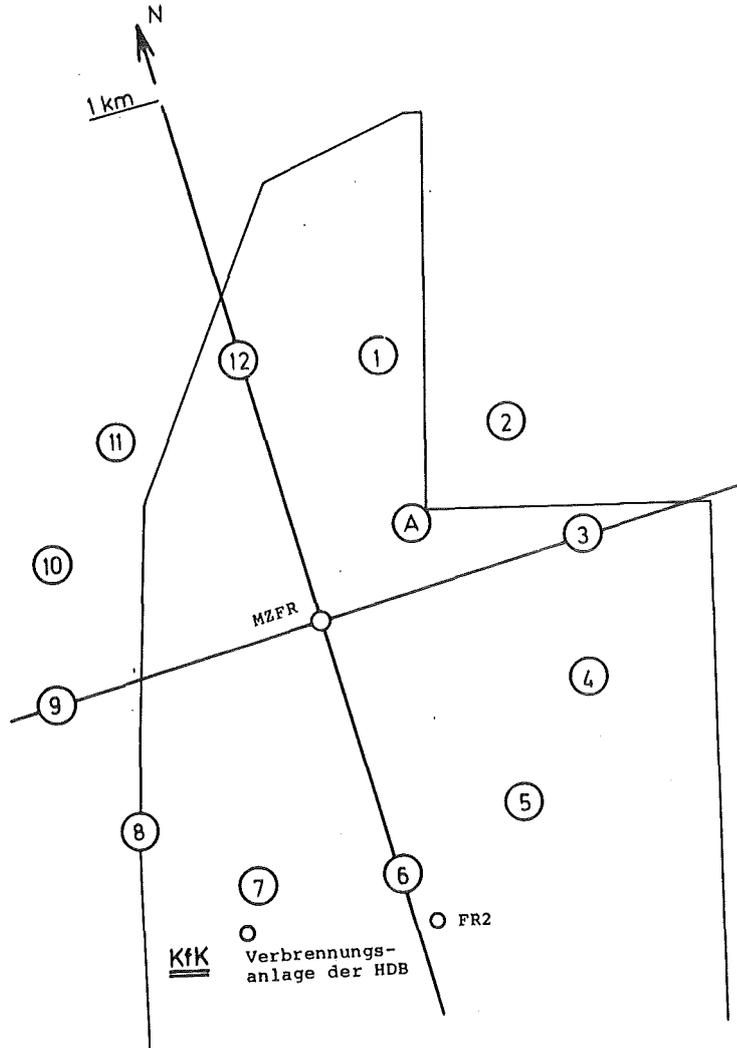


Abb. 3/2: Probenahmestellen für Regenwasser /PAP 82/

Die Niederschlagsproben an den Probenahmestellen 1 bis 12 wurden in Plastikflaschen unter Verwendung eines Trichters von 15,7 cm Durchmesser an der Oberkante gesammelt. Die Probenahme an der Stelle A erfolgte mit Hilfe eines Hellmann-Sammlers von 16,0 cm Durchmesser. Um die Verfälschung der Tritiummessung durch andere Radionuklide zu vermeiden, und um für eine möglichst einheitliche Probenqualität zu sorgen, wurden alle Regenwasserproben destilliert. Um Memory-Effekte in der Destillationsanlage zu vermeiden, wurde dieses System vor jeder neuen Füllung vakuumgetrocknet. Alle Proben wurden 100 min gemessen. Die Resultate der Regenwassersammlung an der Sammelstelle A in den Jahren 1981 und 1982 sind in Tab. 3/4 wiedergegeben. Die Resultate der Regenwassersammlung an den Sammelstellen 1 bis 12 in der Zeit vom 16. Juni 1981 bis 6. Juli 1981

und die Tritiumflächenbelastung, die aus der gemessenen Tritiumkonzentration und der Niederschlagsmenge resultiert, sind in Tab. 3/2 zusammengestellt.

3.4 Auswertung

Der Vergleich zeigt, daß gemessene und berechnete Bodenbelastung für einen Wert von c zwischen 1 und $3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ gut übereinstimmen. Für die Referenzstelle Turmberg/Augustenberg (etwa 10 km südöstlich des MZFR) wurden folgende Tritiumkonzentrationen im Niederschlag bestimmt:

zwischen dem 15.06.1981 und 30.06.1981 $9 \pm 6 \text{ Bq l}^{-1}$
 zwischen dem 30.06.1981 und 15.07.1981 $< 6,3 \text{ Bq l}^{-1}$ (Nachweisgrenze).

Diese Tritiumkonzentration ist nicht durch Tritiumemissionen aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, sondern ist vielmehr durch andere Quellen verursacht und muß aus diesem Grund von den im Kernforschungszentrum gefundenen Werten subtrahiert werden. Dementsprechend wurden folgende Untergrundpegel abgezogen:

$33,3 \text{ Bq m}^{-2}$ für die Sammelperiode vom 16.06.1981 bis 22.06.1981
 $121,4 \text{ Bq m}^{-2}$ für die Sammelperiode vom 22.06.1981 bis 01.07.1981 und
 $81,0 \text{ Bq m}^{-2}$ für die Sammelperiode vom 01.07.1981 bis 06.07.1981

Die so erhaltenen Werte sind in Tab. 3/4 zusammengestellt und mit den Werten verglichen, die sich nach der Richtlinie "Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer" /BMI 79/ ergeben.

Für den Vergleich zwischen den Meßwerten und den berechneten Werten für die Sammelstelle A sind folgende Daten verfügbar:

- die tägliche Tritiumemission des MZFR,
- die tägliche meteorologische Statistik aus den Messungen am 200 m hohen meteorologischen Mast und die Niederschlagsintensitäten, die auf der meteorologischen Wiese gemessen wurden.

Sammel- stelle Nr.	Sammelperiode: 16.06.1981 bis 22.06.1981				
	R /m/	ϕ /Grad/	V /ml/	C_w /mBq ml ⁻¹ /	B_F^m /Bq m ⁻² /
1	515	30	-	-	-
2	500	60	77	19+6	75+25
3	500	90	82	23+7	97+28
4	505	120	64	21+7	70+22
5	480	150	65	40+7	133+24
6	560	180	-	20+6	-
7	500	210	65	24+7	81+22
8	495	240	59	10+6	30+18
9	485	270	-	-	-
10	500	300	-	-	-
11	450	330	-	-	-
12	540	360	77	6+6	22+22
Sammel- stelle Nr.	Sammelperiode: 22.06.1981 bis 01.07.1981				
	R /m/	ϕ /Grad/	V /ml/	C_w /mBq ml ⁻¹ /	B_F^m /Bq m ⁻² /
1	515	30	256	21+7	280+90
2	500	60	255	24+7	310+100
3	500	90	250	14+7	180+90
4	505	120	240	13+6	170+80
5	480	150	251	13+6	170+80
6	560	180	249	13+6	170+80
7	500	210	254	13+6	180+80
8	495	240	252	13+6	160+80
9	485	270	266	12+6	170+80
10	500	300	266	12+6	170+90
11	450	330	257	9+6	120+80
12	540	360	257	10+6	130+80
Sammel- stelle Nr.	Sammelperiode: 01.07.1981 bis 06.07.1981				
	R /m/	ϕ /Grad/	V /ml/	C_w /mBq ml ⁻¹ /	B_F^m /Bq m ⁻² /
1	515	30	265	23+7	310+90
2	500	60	266	42+7	580+100
3	500	90	244	21+7	260+80
4	505	120	241	13+7	170+80
5	480	150	242	22+7	270+80
6	560	180	256	8+6	110+90
7	500	210	221	10+6	120+70
8	495	240	226	9+6	100+70
9	485	270	263	7+6	90+90
10	500	300	261	8+6	100+90
11	450	330	253	6+6	80+80
12	540	360	-	8+6	-

Tab. 3/2: Tritiumkonzentration im Regenwasser an den Meßstellen 1 bis 12 /PAP 82/

Sammelperiode: 16.06.1981 bis 22.06.1981			
Sammelstelle	B_F^m	$B_F^{th}(1)$	$B_F^{th}(2)$
1	-	85,5	28,9
2	41,8	134,7	44,8
3	64,0	276,4	92,1
4	36,6	120,3	40,0
5	99,9	273,1	91,0
6	-	41,4	13,7
7	47,4	3,0	1,1
8	0	0	0
9	-	0	0
10	-	0	0
11	-	0	0
12	0	6,3	2,2
Sammelperiode: 22.06.1981 bis 01.07.1981			
Sammelstelle	B_F^m	$B_F^{th}(1)$	$B_F^{th}(2)$
1	157,6	1472,6	491,0
2	186,1	435,1	144,7
3	55,5	620,5	207,2
4	44,0	48,1	15,9
5	51,4	44,4	14,8
6	50,0	361,9	121,0
7	53,7	469,5	156,5
8	35,2	42,6	14,4
9	46,6	67,0	22,2
10	46,6	8,6	3,3
11	1,5	35,9	11,8
12	10,0	333,7	111,4
Sammelperiode: 01.07.1981 bis 06.07.1981			
Sammelstelle	B_F^m	$B_F^{th}(1)$	$B_F^{th}(2)$
1	233,1	815,1	271,6
2	494,0	1318,3	439,6
3	180,2	130,6	43,7
4	85,1	2,2	0,4
5	187,6	7,8	2,6
6	26,6	100,3	33,7
7	37,4	7,8	2,6
8	22,6	0	0
9	9,6	4,1	1,5
10	23,7	48,1	15,9
11	0	5,2	1,5
12	-	75,9	25,2

"-": keine Probenahme

Tab. 3/3: Vergleich der Meßwerte mit den Rechenwerten der Bodenbelastung in $Bq\ m^{-2}$ /PAP 82/

1981 wurden für 105 und 1982 für 88 Regenfälle Proben genommen. Den gemessenen Werten für die Flächenbelastung wurden die mit dem ISOLA-III-Programm mit $c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ berechneten Werte gegenübergestellt. Von den 193 auf diese Weise erhaltenen Wertepaaren mußten verworfen werden:

- 9 Wertepaare wegen Computerausfall an der meteorologischen Station,
- 25 Wertepaare, da die gemessenen und berechneten Meßwerte zu gering waren,
- 54 Wertepaare wegen erheblicher Unterschiede in der Niederschlagsmenge zwischen der meteorologischen Niederschlagsmessung auf der meteorologischen Wiese und der Sammelstelle A,
- 16 Wertepaare wegen rascher Änderungen der Tritiumemission des MZFR,
- 1 Wertepaar wegen sehr geringem Niederschlag.

Nach dieser Auswahl verblieben 88 Wertepaare, die zusammen mit den Rechenwerten für $c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ in Tab. 3/4 eingetragen sind. Eine Korrekturrechnung, wie oben beschrieben, ergab einen Wert von

$$c \approx 2 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}.$$

Dieser Wert beschreibt die Bodenkontamination durch HTO besser als der ursprünglich in der Rechnung eingesetzte Wert.

Probenahme- datum	³ H-Aktivitätskonzentra- tion in Bq l ⁻¹ an der Meßstelle A		Niederschlag in mm an der Sammelstelle	
	C _F ^m	C _F th	A	meteorolog. Wiese
05.01.1981	13	8	19,0	22,3
13.01.1981	22	20	2,2	3,0
15.01.1981	29	13	10,0	12,1
04.02.1981	24	11	20,9	24,4
23.02.1981	21	1	1,0	1,2
13.03.1981	62	103	9,4	12,0
16.03.1981	19	24	4,6	4,9
17.03.1981	107	98	2,3	2,6
23.03.1981	32	49	5,7	5,2
24.03.1981	10	30	4,2	4,4
25.03.1981	33	123	2,3	2,9
26.03.1981	24	25	3,6	4,1
27.03.1981	32	20	0,7	0,7
13.04.1981	14	2	0,7	0,7
28.04.1981	238	254	21,8	20,5
29.04.1981	77	52	3,0	3,4
04.05.1981	159	280	13,0	14,4
13.05.1981	26	207	1,3	1,5
14.05.1981	15	87	8,4	7,6
26.05.1981	44	90	8,2	8,9
27.05.1981	116	229	12,3	13,2
03.06.1981	25	6	2,3	2,6
04.06.1981	9	0	29,5	33,4
05.06.1981	70	65	6,0	5,7
09.06.1981	38	29	6,1	7,4
10.06.1981	23	46	2,2	2,0
16.06.1981	11	9	7,8	6,9
19.06.1981	40	122	1,7	2,0
23.06.1981	12	0	4,9	4,6
03.07.1981	16	23	3,4	4,4
06.07.1981	85	127	8,5	8,9
13.07.1981	22	88	0,9	1,0
14.07.1981	23	23	1,5	1,5
21.07.1981	11	8	2,5	2,8
23.07.1981	23	78	16,0	15,0
27.07.1981	14	44	5,4	5,9
03.08.1981	17	60	2,1	2,2
11.08.1981	22	74	5,6	5,8
12.08.1981	25	69	0,6	0,6
21.08.1981	115	153	2,4	2,9
24.08.1981	43	59	11,0	9,4
01.09.1981	9	0	6,4	7,8
14.09.1981	19	4	0,5	0,4

Tab. 3/4: Gemessene (C_F^m) und berechnete (C_Fth) Tritiumaktivitätskonzentra-
tion im Regenwasser

Probenahme- datum	³ H-Aktivitätskonzentra- tion in Bq l ⁻¹ an der Meßstelle A		Niederschlag in mm an der Sammelstelle	
	C _F ^m	C _F th	A	meteorolog. Wiese
29.09.1981	6	30	9,7	8,4
06.10.1981	15	13	5,4	4,9
07.10.1981	13	64	2,8	2,5
16.10.1981	85	140	45,0	49,3
19.10.1981	108	243	9,1	8,6
22.10.1981	161	479	2,0	1,8
26.10.1981	21	25	4,0	4,9
28.10.1981	67	31	1,3	1,5
29.10.1981	287	450	1,5	1,3
30.10.1981	293	510	4,8	5,7
30.11.1981	113	128	13,4	13,2
27.01.1982	28	43	2,4	2,7
01.02.1982	47	13	9,3	10,6
09.02.1982	23	22	1,4	1,7
24.02.1982	23	28	6,0	5,0
11.03.1982	117	29	12,0	13,9
29.03.1982	23	20	1,0	0,8
30.03.1982	33	26	9,3	8,4
07.04.1982	67	24	1,2	1,5
04.05.1982	24	3	8,1	10,5
07.05.1982	39	37	8,4	7,3
21.06.1982	24	19	1,5	2,0
05.07.1982	17	21	11,5	11,1
26.07.1982	13	12	75,0	67,4
09.08.1982	34	77	24,0	20,3
18.08.1982	41	41	2,7	2,7
23.08.1982	30	32	4,1	6,1
25.08.1982	102	61	3,2	4,2
27.08.1982	33	33	1,2	1,3
31.08.1982	58	4	1,9	2,5
22.09.1982	25	24	11,2	15,1
27.09.1982	24	80	4,1	4,3
05.10.1982	11	7	1,2	1,4
07.10.1982	7	50	57,2	55,0
08.10.1982	118	4	9,4	10,3
11.10.1982	75	22	3,8	3,8
12.10.1982	31	4	6,8	7,3
15.10.1982	104	101	1,6	1,7
18.10.1982	49	91	7,8	6,3
25.10.1982	56	36	22,5	30,6
09.11.1982	22	4	4,7	4,8
15.11.1982	19	34	16,3	18,9
22.11.1982	51	25	1,6	1,5
25.11.1982	91	17	3,5	4,2
29.11.1982	16	34	1,8	2,1

Tab. 3/4: Fortsetzung

3.5 Ablagerung von in die Atmosphäre emittiertem Tritium bei Schneefall*

Nach einer längeren Trockenperiode fielen in der Zeit vom 8. Januar bis 12. Januar 1982 40,9 mm Niederschlag, teils als Schnee, teils als Regen. Vom 8. Januar bis 11. Januar 1982, 8.00 Uhr wurden insgesamt 23,8 mm Niederschlagswasser als Schnee (25 bis 30 cm Schneehöhe) gemessen. Am 11. Januar 1982 regnete es von 12.50 Uhr bis 20.00 Uhr, wobei die Niederschlagshöhe 7,9 mm betrug. Anschließend schneite es wieder bis zum 12. Januar 1982, 8.00 Uhr (9,2 mm Niederschlagswasser). Vom 12. Januar 1982, 8.00 Uhr bis zum 20. Januar 1982 kamen bis zum Einbruch des Tauwetters weitere 0,3 mm Niederschlagswasser hinzu. Im Endergebnis führten die abwechselnden Schnee- und Regenfälle zu einer 20 cm dicken Schneeschicht, die von einer ca. 1 cm dicken Eisschicht und einer weiteren 2 cm dicken Schneeschicht bedeckt war. Dieser Zustand blieb bis zum Einbruch des Tauwetters bestehen. Am 14. Januar 1982 wurden an verschiedenen Stellen im Betriebsgelände des Kernforschungszentrums Karlsruhe sowie in der näheren Umgebung Mischproben vom Gesamtniederschlag, d. h. von dem Schnee über und unter der Eisschicht und der Eisschicht selbst genommen. Es handelt sich dabei um die Proben 1 bis 32. Eine weitere Probenahme erfolgte am 19. Januar (Probenahmestelle 33 bis 41, s. Abb. 3/3). Zum Vergleich wurde am 20. Januar 1982 die Probenahme wiederholt. Das Einsetzen des Tauwetters verhinderte eine weitere Probenahme, das Ergebnis der Tritiummessungen ist in Tab. 3/5 dargestellt.

Während des Zeitraums der Niederschläge wurde vom MZFR Tritium emittiert. Die räumliche Verteilung der Tritiumkonzentration sowie die Ableitungen anderer Tritiumemittenten in dem Zeitraum deuteten darauf hin, daß die beobachtete Tritiumkontamination des Schnees auf Ableitungen des MZFR zurückzuführen war. In Tab. 3/6 sind die täglichen Tritiumemissionen des MZFR zusammengefaßt. Ausgehend von der Gleichung (1) wurden die Tritiumablagerungen berechnet. Hierbei wurde nicht zwischen Schnee und Regen unterschieden.

*Herrn Dr. E. Maraziotis, Laboratory of Nuclear Technology, University of Patras, Greece, danken wir für seine Mitarbeit bei der Auswertung im Sommer 1983.

Für die Proportionalitätskonstante c wurde der Wert $3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ in die Berechnung eingesetzt. Für die Berechnung der Flächenbelastung $B_{F,i}^{\text{th}}$ wurde das Rechenprogramm ISOLA-III verwendet, wobei die am meteorologischen Mast gemessenen Werte q_{ijmt} , u_{jm} und θ während der Niederschlagsdauer sowie die Tritiumableitungen des MZFR eingesetzt wurden.

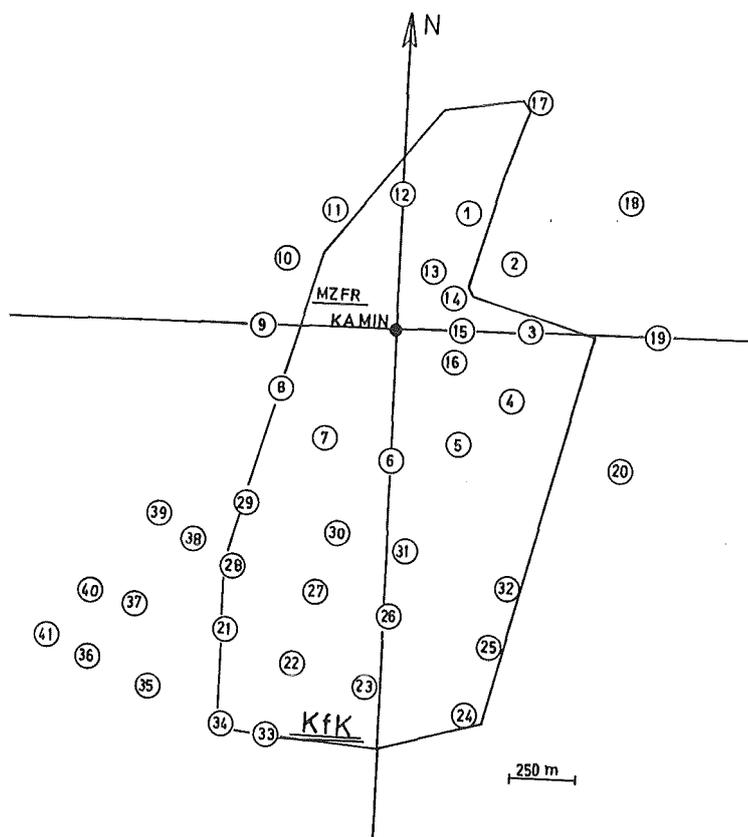


Abb. 3/3: Probenahmestellen für die Messung der HTO-Konzentration im Schneewasser

Berechnete und gemessene Werte weichen im ungünstigsten Fall um einen Faktor 3 voneinander ab. Dies sollte jedoch nicht voreilig überbewertet werden, da bei der Probenahme von den beiden Schneesichten und der dazwischen befindlichen Eisschicht nicht getrennte Proben untersucht worden waren. Dies war einerseits durch die für die Probenahme verfügbare Arbeitskapazität bedingt, andererseits war eine vergleichbare Untersuchung bisher nicht durchgeführt worden, so daß keine Klarheit darüber bestand, daß ein höherer Aufwand von Nutzen gewesen wäre.

Meß- stelle	Koordinaten vom MZFR- Kamin in m		Meßergebnisse der Proben- Aktivitätskonz. in Bq l ⁻¹			Berechnete Akti- vitätskonzentra- tion für die Zeit vom 08.01.- 12.01.82* in Bq l ⁻¹
	X (S - N)	Y (W - O)	Probenahmedatum 1982			
			14.01.	19.02.	20.01.	
1	250	440	<6	-	<5	0
2	430	260	<6	-	<5	0
3	500	0	<6	-	<5	0
4	430	-260	<6	-	-	0
5	250	-440	<6	-	<5	1
6	0	-500	13+6	-	8+6	18
7	-250	-440	45+7	-	63+8	34
8	-440	-250	<6	-	35+7	18
9	-500	0	<6	-	7+6	2
10	-430	250	<6	-	<5	0
11	-260	430	<5	-	<5	0
12	0	500	<6	-	<5	0
13	110	250	<5	-	<5	0
14	210	120	<5	-	<6	0
15	250	0	<5	-	<5	0
16	210	-130	<5	-	<5	0
17	480	860	<5	-	<5	0
18	860	500	<5	-	<5	0
19	990	0	<5	-	<5	0
20	860	-510	<5	-	<5	0
21	-600	-1170	23+6	-	-	14
22	-350	-1280	13+6	-	-	11
23	-60	-1370	17+6	-	-	7
24	310	-1450	<5	-	-	4
25	400	-1200	<5	-	-	2
26	10	-1100	22+6	-	-	8
27	-260	-10	23+6	-	-	13
28	-590	-930	41+7	-	-	16
29	-540	-700	55+8	-	-	19
30	-200	-780	24+7	-	-	18
31	60	-860	21+6	-	-	9
32	460	-970	<6	-	-	1
33	-430	-1550	-	16+6	-	9
34	-600	-1530	-	17+6	-	10
35	-880	-1400	-	21+5	-	11
36	-1110	-1300	-	26+6	-	10
37	-950	-1090	-	30+6	-	11
38	-750	-840	-	34+7	-	14
39	-880	-740	-	28+6	-	11
40	-1110	-1060	-	21+6	-	9
41	-1270	-1240	-	18+6	-	8

*Tritiumemission durch den MZFR $2,32 \cdot 10^{11}$ Bq

Tab. 3/5: Vergleich der Meßergebnisse mit den Rechenergebnissen für Schneefall ($c = 3 \cdot 10^{-9}$ a mm⁻¹ s⁻¹; S - N: Süd-Nord, W - O: West-Ost)

1982	Tritiumemission in 10^{10} Bq d $^{-1}$	Teilsummen in 10^{10} Bq
08.01.	5,0	23,2
09.01.	4,3	
10.01.	4,4	
11.01.	4,0	
12.01.	5,5	
13.01.	4,2	
14.01.	3,6	
15.01.	7,3	
16.01.	3,6	
17.01.	2,6	
18.01.	4,5	
19.01.	3,9	
20.01.	3,3	56,2

Tab. 3/6: Tägliche Emission von Tritium mit der MZFR-Abluft (Emissionshöhe 100 m) für die Zeitperiode 08.-20.01.1982

3.6 Zusammenfassung

Die durchgeführten Messungen sprechen dafür, daß im Gegensatz zu /BRE 76/ mit dem Ansatz $c = 3 \cdot 10^{-9} \text{ a mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ die Flächenbelastung im großen und ganzen sowohl für Regen als auch für Schnee richtig beschrieben wird. Dies wird durch Tab. 3/7 belegt, in der die bisher gesammelten Daten zusammengefaßt sind.

Der Auswertung wurde der Quotient

$$v = B_F^m / B_F^{th}$$

zugrunde gelegt, wobei die Gruppen $v \leq 1$ und $v > 1$ unterschieden wurden, die ihrerseits noch in willkürlich gebildete Untergruppen gegliedert wurden. Für jede Gruppe werden zusätzlich die Beiträge absolut und prozentual zu den Gesamtsummen von Niederschlagsmengen und Flächenbelastung gebildet. Da aus den vorstehend genannten Gründen nicht alle vorhandenen Daten berücksichtigt wurden, hat diese Auswertung einen nur vorläufigen Charakter. Auf ihre Wiedergabe wurde jedoch nicht verzichtet, weil sie sowohl die Problematik aufzeigt als auch die Notwendigkeit weiterer Untersuchungen, wie sie im Rahmen des BMI-geförderten Vorhabens St.Sch. 924 erfolgen werden, verdeutlicht.

Tab. 3/7 zeigt die Tendenz, daß im Einzelfall gemessener und theoretischer Wert in beiden Richtungen abweichen können, daß aber bei Aufsummierung aller Werte die Summe der Meßwerte unter der Summe der berechneten Werte bleibt.

v	Anzahl der Fälle pro		Niederschlags- gesamtmenge		Flächenbelastung in Bq m ⁻²			
	Unter- gruppe	Gruppe	mm	%*	in Bq m ⁻²		Prozentsatz	
					gem.	ber.	gem.	ber.
v ≤ 1								
< 0,3	10	44	389,1	51,8	24 453	42 978	66,0	87,4
0,3 - 1	34							
v > 1								
1 - 2	23	44	363,4	48,2	12 593	6 169	34,0	12,6
2 - 3	5							
3 - 10	10							
> 10	6							
Summe	88		753,3	100	37 046	49 147	100	100

*Bezogen auf Summe der berücksichtigten Daten (gem.: gemessen, ber.: berechnet)

Tab. 3/7: Vorläufiger Vergleich gemessener und berechneter Daten für die Jahre 1981 und 1982

Der Ansatz nach Gl. (2) ist sicher zu einfach, jedoch ist in der Praxis eine Niederschlagsmessung unter Aufschlüsselung nach der Tropfengröße und Berücksichtigung ihres zeitlichen Verlaufs nicht möglich.

Die für Schnee vorliegenden Daten sind noch zu spärlich, als daß daraus große Schlußfolgerungen gezogen werden könnten. Sie geben jedoch keinen Hinweis darauf, daß bei Schneefall erhöhte Flächenbelastungen zu erwarten sind. Weitere Messungen sind beabsichtigt, sobald sich hierfür eine Gelegenheit bietet.

3.7 Kontamination des Bodens und des Grundwassers mit Tritium durch Ableitungen über den Luftpfad

Um die Tritiumkontamination des Grundwassers über den Luftpfad näher zu untersuchen, wurden im Kernforschungszentrum Karlsruhe eine Reihe von Bohrungen niedergebracht und Tiefenprofile für verschiedene Radionuklide bestimmt. Besondere Aufmerksamkeit wurde dabei dem Radionuklid Tritium gewidmet, da dessen Konzentration seit 1971 im Niederschlagswasser regelmäßig gemessen wurde, und hierbei deutlich über der Nachweisgrenze liegende Meßwerte gefunden wurden.

An fünf Stellen im Betriebsgelände des Kernforschungszentrums wurden Tiefenbohrungen niedergebracht und Tiefenprofile der Tritiumkonzentration ermittelt. Die Lage der Bohrstellen ist Abb. 3/4 zu entnehmen. Für die Bohrstellen B3 und B4 wurde eine maximale Bohrtiefe von 6 m, für die Bohrstellen B1, P38 und P39 eine Bohrtiefe von 10 m festgelegt. Die beiden Bohrstellen P38 und P39 wurden nach Beendigung der Bohrung zu Beobachtungspegeln ausgebaut. Aus bohrtechnischen Gründen mußte die Bohrung B1 bei 9 m Tiefe beendet werden. Die Probenahme an der Bohrstelle P38 wurde bereits bei 5 m Tiefe abgebrochen. Das Einsetzen starker Regenfälle hatte hier zur Vermischung der Erdfeuchte mit Regenwasser geführt, so daß eine eindeutige Zuordnung der ^3H -Konzentration zur Erdfeuchte nicht mehr gegeben war. Die Bodenproben wurden mit Hilfe eines Bohrrohres - 70 cm lang, Durchmesser ca. 25 bis 30 cm - entnommen, das mit Preßluft in das Erdreich getrieben wurde. Aus dem so gewonnenen Bohrkern wurden bis zu einer Tiefe von 2 m alle 25 cm, dann alle 50 cm Erdproben entnommen. Ab 6 m Tiefe wurde jeweils nur noch alle 100 cm eine Probe genommen.

Das Meßgut wurde mit Hilfe der azeotropen Destillation aus den Bodenproben gewonnen. Um eine möglichst gleichbleibende Qualität zu erhalten, wurden alle Wasserproben ein weiteres Mal destilliert.

Die Abbn. 3/5 und 3/6 zeigen Beispiele für das Tiefenprofil der Tritiumkonzentration. Die dargestellten Tiefenprofile weisen zum Teil eine ausgeprägte Tiefenabhängigkeit der Tritiumkonzentration auf (B1 und B3). Bei den Bohrungen P39 und P38 wurden dagegen nur unbedeutende

Schwankungen der Tritiumkonzentration mit der Tiefe gefunden. In den Abbildungen sind nicht nur die Meßwerte eingezeichnet, sondern auch die 2- σ -Fehlerbereiche der Tritiummessung.

In jenen Fällen, wo erhebliche Schwankungen der Tritiumkonzentration mit der Tiefe feststellbar waren, bestand die Aussicht, durch Wiederholung der Messung zu einem späteren Zeitpunkt die vertikale Ausbreitung des Tritiums zu untersuchen.

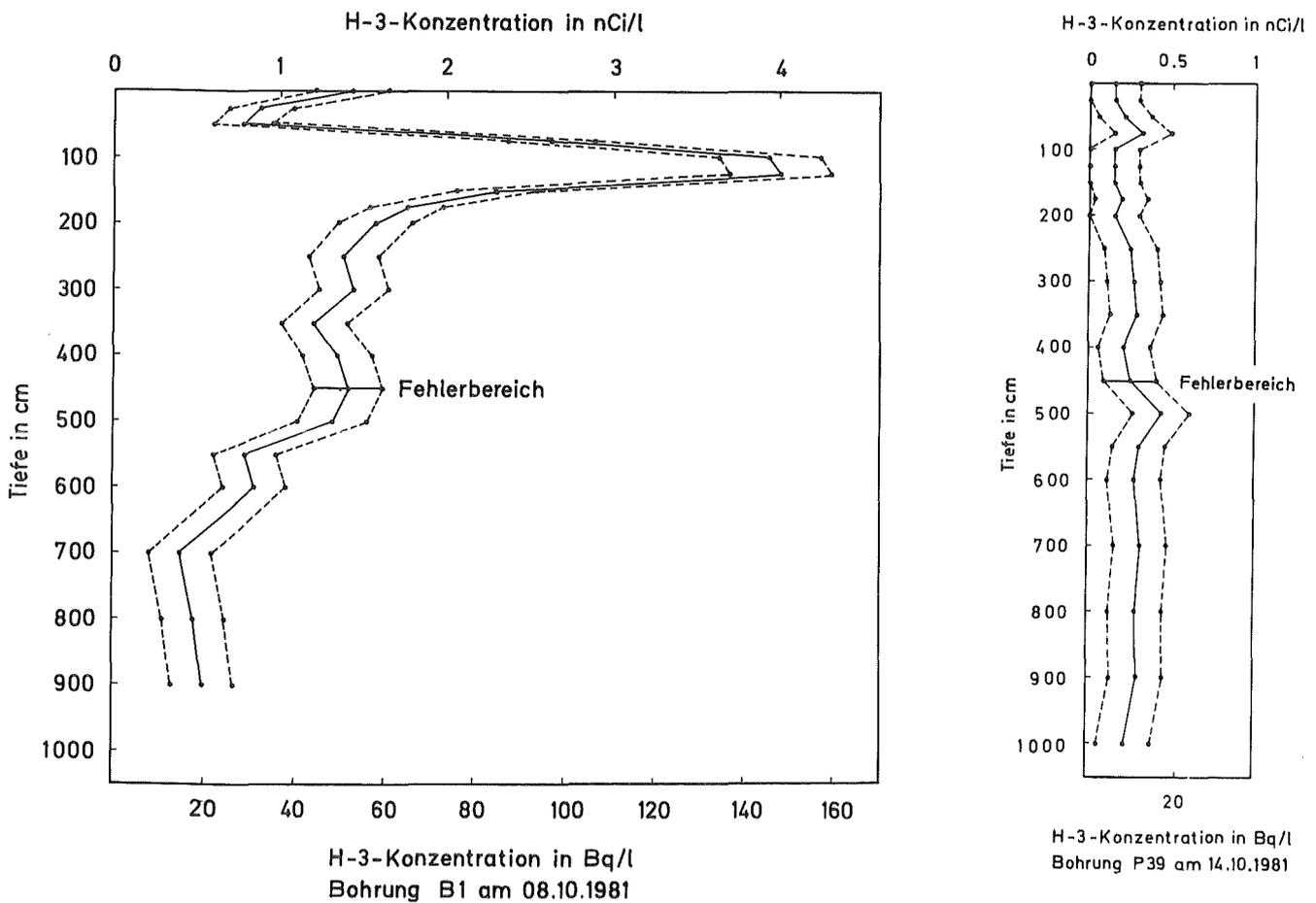


Abb. 3/5: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B1 und P39

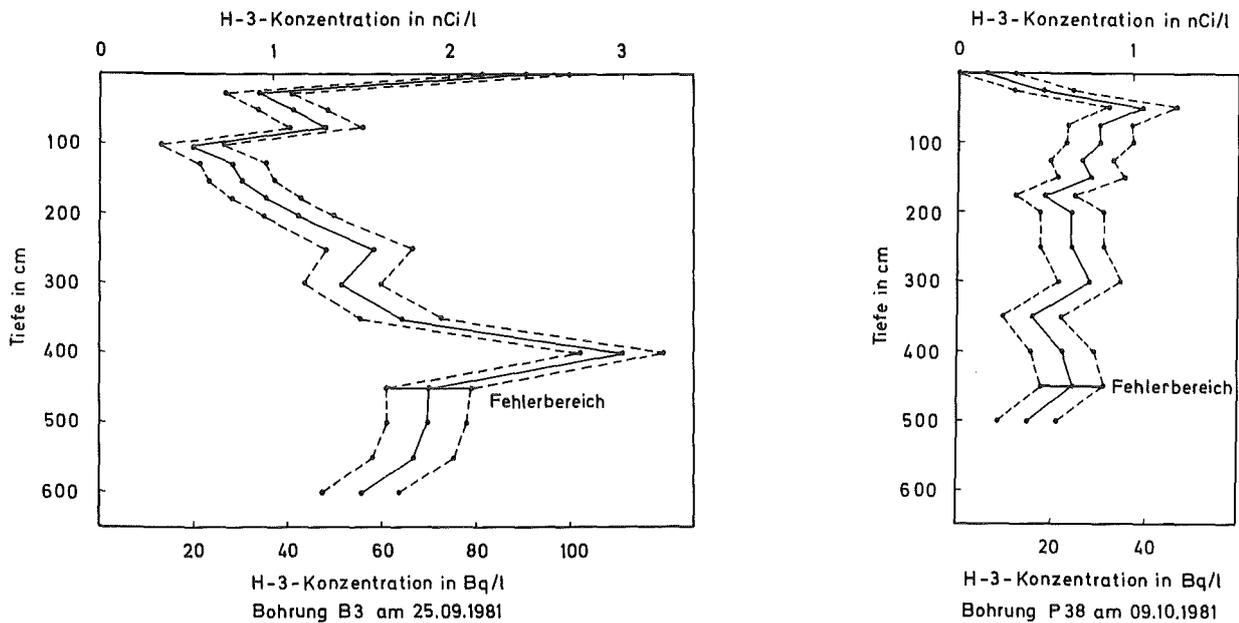


Abb. 3/6: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrungen B3 und P38

An den Bohrstellen B1 und B3 wurden in zeitlichen Abständen mehrere Bohrungen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in den Abbildungen 3/7, 3/8 und 3/9 zusammengefaßt. Die dargestellten Beispiele zeigen, daß solche Untersuchungen nicht leicht auszuwerten sind, da der vertikalen Bewegung der Bodenfeuchte, dem Versickern, eine mit partieller Rückhaltung verbundene Diffusion überlagert ist, die zu einer Verwischung des Tiefenprofils führt. Außerdem zeigt die Erfahrung, daß unter den am Standort Karlsruhe gegebenen Verhältnissen der zeitliche Abstand zwischen zwei Bohrungen nicht zu groß werden darf, damit ein beobachteter Peak der Tritiumkonzentration nicht in der Zwischenzeit das Grundwasser erreichen kann oder durch Diffusion unkenntlich wird, was eine Abschätzung der vertikalen Wandergeschwindigkeit erschwert. Durch Herausgreifen markanter Stellen im Kurvenverlauf und Vergleich mit den Meßergebnissen der späteren Bohrung lassen sich aus zwei Tiefenprofilen Werte für die vertikale Wandergeschwindigkeit ermitteln. Die auf diese Weise ermittelten Wandergeschwindigkeiten liegen im Bereich $2 - 5 \text{ m a}^{-1}$ und sind in den jeweiligen Abbildungsunterschriften im einzelnen angegeben.

ben. Die Angabe der Wandergeschwindigkeit stellt eine Extrapolation dar, denn es ist zu beachten, daß bei der zugrundeliegenden Modellvorstellung die Fortbewegung des Wassers nicht mit konstanter Geschwindigkeit, sondern schubweise entsprechend der Niederschlagstätigkeit erfolgt. Insofern ist nur die Angabe des Mittelwertes eine sinnvolle Größe, und bei der Messung muß über einen längeren Zeitraum gemittelt werden, um nicht rein zufällige Werte zu erhalten.

Ein wesentliches Ergebnis der Messung der Bohrproben ist, daß die Tritiumkonzentration im Grundwasser jener des darüberliegenden Erdreichs entspricht.

Eine Abschätzung des Gesamttritiuminventars bis zum Grundwasserspiegel erreicht $10 - 20 \text{ kBq m}^{-2}$ /KÖN 83c/. Bei einer angenommenen Wandergeschwindigkeit von 3 m a^{-1} gelangt man somit zu einer Tritiumzufuhr zum Grundwasser von $6 - 12 \text{ kBq a}^{-1}$. Bei einer Verdünnung dieser Aktivität mit nur 100 l Grundwasser erhielte man eine Tritiumkonzentration von $60 - 120 \text{ Bq l}^{-1}$, also eine - betrachtet unter Strahlenschutzaspekten - unbedeutende Konzentration. Zu der gleichen Beurteilung wäre man beim Vergleich des im Boden gespeicherten Tritiums mit der in der Bundesrepublik Deutschland zulässigen Tritiumzufuhr über Wasser und Nahrung von $5,8 \text{ MBq a}^{-1}$ gelangt /STV 76/. Trotzdem sollte bei größeren Tritiumableitungen in die Atmosphäre eine mögliche Einwirkung auf das Grundwasser überprüft werden.

Wenn auch für Tritium erheblich schwankende Wandergeschwindigkeiten gefunden wurden und eine modellmäßige Beschreibung der vertikalen Migration noch nicht möglich ist - nicht alle dafür erforderlichen Parameter sind bekannt -, so können die gefundenen Meßwerte für Abschätzungen der Strahlenexposition durch Kontamination des Grundwassers nützlich sein.

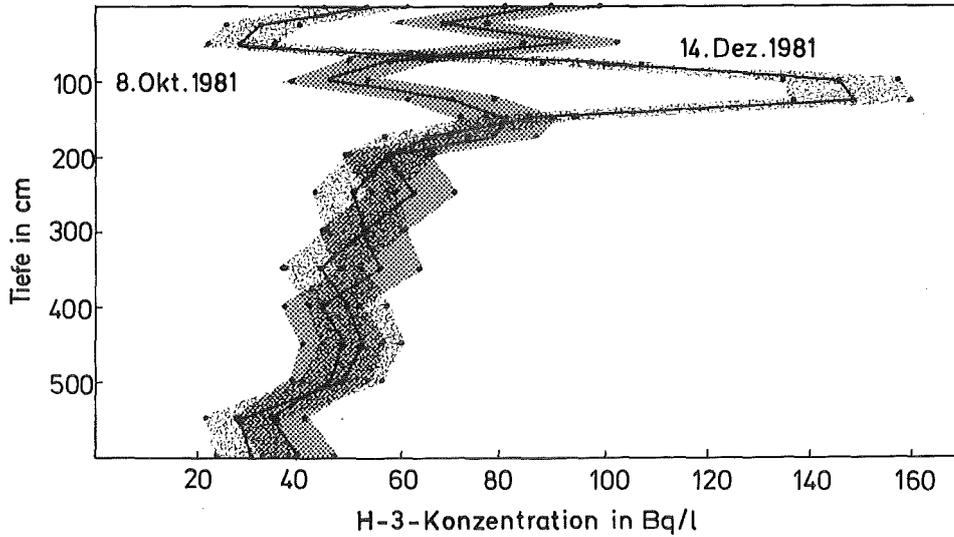


Abb. 3/7: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B1b. Um die im Abstand von rund 70 Tagen an der gleichen Stelle durchgeführten Bohrungen unmittelbar miteinander vergleichen zu können, wurde das Tiefenprofil der ersten Bohrung nochmals miteingezeichnet. Vertikale Migrationsgeschwindigkeit: $v_m = 2,2 - 3,1 \text{ m a}^{-1}$ /KÖN 83c/

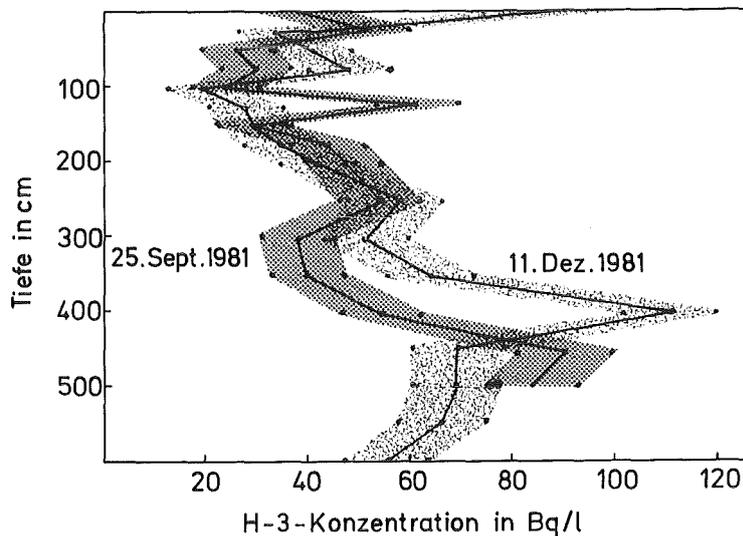


Abb. 3/8: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B3b. Um die im Abstand von rund 70 Tagen an der gleichen Stelle durchgeführten Bohrungen unmittelbar miteinander vergleichen zu können, wurde das Tiefenprofil der ersten Bohrung nochmals miteingezeichnet. Vertikale Migrationsgeschwindigkeit: $v_m = 2,1 - 2,4 \text{ m a}^{-1}$ /KÖN 83c/

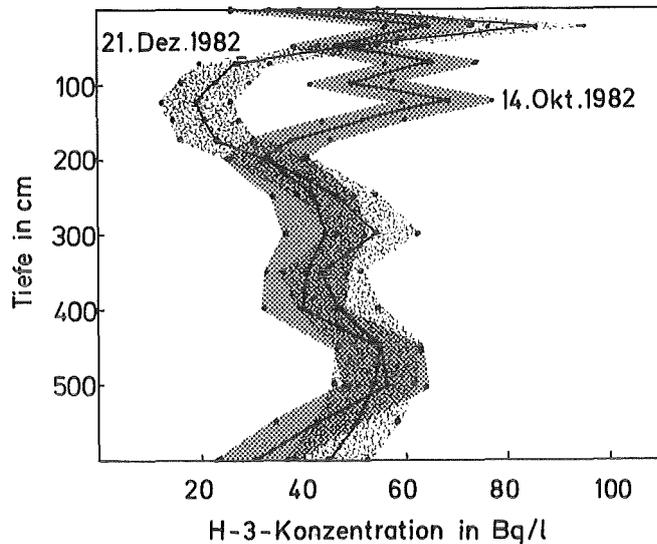


Abb. 3/9: Tiefenprofil der Tritiumkonzentration der Erdfeuchte für die Bohrung B3c. Um die im Abstand von rund 70 Tagen an der gleichen Stelle durchgeführten Bohrungen unmittelbar miteinander vergleichen zu können, wurde das Tiefenprofil der ersten Bohrung nochmals miteingezeichnet. Vertikale Migrationsgeschwindigkeit: $v_m = 2,7 - 4,7 \text{ m a}^{-1}$ /KÖN 83c/

In Tab. 3/8 sind Werte der Tritiumkonzentration im Grund- und Trinkwasser aus der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe zusammengestellt. Die gemessenen Tritiumkonzentrationen sind ausschließlich auf den Tritiumgehalt der Niederschläge zurückzuführen, wobei die Absolutwerte auch von der Bohrtiefe und im Fall des Wasserwerks "Tiefgestade" von der Beimengung von uferfiltriertem Rheinwasser abhängen.

Jahr/ Quartal	Schluckbrunnen 1 des KfK (Grundwasser- haltung der WAK, 500 m westl. der WAK)	Schluckbrunnen 2 des KfK (Grundwasser- haltung der WAK, ca. 900 m nordw. der WAK)	Wasserwerk Süd des KfK Standort: Betriebsge- lände	Wasserwerk Tiefgestade des KfK Standort: Leopoldshafen
1980/1.	24 _± 7	21 _± 6	11 _± 6	17 _± 6
1980/2.	24 _± 6	23 _± 7	<6	14 _± 6
1980/3.	30 _± 7	24 _± 7	7 _± 6	14 _± 6
1980/4.	21 _± 7	26 _± 7	13 _± 6	14 _± 6
1981/1.	25 _± 6	26 _± 6	13 _± 6	14 _± 6
1981/2.	21 _± 6	25 _± 7	10 _± 6	9 _± 6
1981/3.	17 _± 6	23 _± 7	7 _± 6	9 _± 6
1981/4.	12 _± 6	21 _± 6	10 _± 6	<6
1982/1.	16 _± 6	17 _± 6	<6	7 _± 6
1982/2.	20 _± 6	26 _± 6	<6	9 _± 6
1982/3.	19 _± 6	18 _± 6	<6	<6
1982/4.	18 _± 6	22 _± 6	12 _± 7	10 _± 6
1983/1.	15 _± 7	21 _± 7	9 _± 6	<6
1983/2.	15 _± 5	21 _± 6	<5	<5
	Wasserwerk Eggenstein Leopoldshafen Ortsteil: Leopoldshafen	Wasserwerk Linkenheim- Hochstetten Ortsteil: Hochstetten	Beobachtungs- brunnen P zwischen KfK u. Wasserwerk Linkenheim	Wasserwerk Karlsruhe- Hardtwald (bei Eggen- stein)
1980/1.	13 _± 6	9 _± 6	21 _± 6	-
1980/2.	12 _± 6	13 _± 6	17 _± 6	11 _± 6
1980/3.	8 _± 6	9 _± 7	24 _± 6	-
1980/4.	12 _± 6	8 _± 6	19 _± 6	7 _± 6
1981/1.	14 _± 6	17 _± 6	23 _± 7	-
1981/2.	9 _± 6	10 _± 6	22 _± 7	9 _± 6
1981/3.	8 _± 6	8 _± 6	20 _± 7	-
1981/4.	7 _± 6	9 _± 6	13 _± 6	9 _± 6
1982/1.	11 _± 5	9 _± 6	10 _± 6	-
1982/2.	<6	<6	17 _± 6	8 _± 6
1982/3.	<6	8 _± 6	16 _± 6	-
1982/4.	14 _± 7	11 _± 7	15 _± 7	8 _± 6
1983/1.	8 _± 6	17 _± 7	16 _± 7	-
1983/2.	8 _± 5	10 _± 5	14 _± 5	<5

Tab. 3/8: Tritiumkonzentration im Grund- und Trinkwasser in den Jahren 1980 - 1983 in Bq l⁻¹ (Quartalswerte)

3.8 Tritiumkonzentration in Pflanzen

Zur Bestimmung des Tritiumgehaltes von Pflanzen wurde zu Beginn der Forschungsarbeiten eine Methode erarbeitet, die es erlaubt, Tritium nicht nur im Gewebewasser als HTO zu bestimmen, sondern auch das organisch gebundene Tritium (organically bound tritium, OBT). Das OBT zeigt gegenüber dem HTO ein völlig anderes radioökologisches Verhalten und ist deshalb für entsprechende Untersuchungen von besonderem Interesse.

3.8.1 Methoden

3.8.1.1 Gefriertrocknung und Tritiummessung

Alle Proben werden zunächst gefriergetrocknet. Anschließend wird in dem auf diese Weise erhaltenen Gewebewasser der Proben die Tritiumkonzentration bestimmt. Dafür werden abhängig vom Wassergehalt der Proben etwa 150 g bis 600 g Frischmaterial in Edelstahlschalen bei ca. $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$ eingefroren. Die Schalen werden dabei in Plastikfolie eingeschweißt, um eine Kontamination der Proben durch Tritium aus der Luftfeuchtigkeit zu vermeiden. Die Folie wird erst kurz vor dem Einführen in die Gefriertrocknungsanlage wieder entfernt. Für die Trocknung wird ein spezielles System verwendet (Secfruid AG, Lausanne, Schweiz), das es erlaubt, das Gewebewasser vollständig zurückzugewinnen. Dieses Wasser wird dabei an einem Kondensator ($-80\text{ }^{\circ}\text{C}$) ausgefroren, der sich oben in der Vakuumkammer befindet. Es kann leicht entfernt werden, indem die Kühllösung in dem Edelstahlkondensator durch heißes Wasser ausgetauscht wird. Der Eisblock zerspringt in diesem Falle in einzelne Stücke und kann in einer Alufolie gesammelt werden, ebenfalls geschützt vor der Luftfeuchtigkeit. Für die Messung der Tritiumaktivität ohne elektrolytische Anreicherung, wie in allen Proben, wird das Probenwasser destilliert und anschließend davon 10 ml mit 12 ml Instagel in einem Plastikfläschchen zu einem Cocktail vermischt. Vor der Messung werden die Proben ca. eine Stunde bei $60\text{ }^{\circ}\text{C}$ temperiert, um eventuelle Chemolumineszenzen zum Abklingen zu bringen und dann wieder auf Meßtemperatur von $+10\text{ }^{\circ}\text{C}$ abgekühlt. Für die Messung im Flüssigszintillationsszähler wird ein stark verengtes Meßfenster im Energiebereich von $0,82\text{ keV} - 4,26\text{ keV}$ verwendet. Mit einer

Meßzeit von 100 min, die noch einen akzeptablen Probendurchsatz in einem Gerät erlaubt, wird eine Nachweisgrenze von $4,8 \text{ mBq ml}^{-1}$ erreicht, was größtenteils unterhalb der Tritiumkonzentration liegt, die in der Umgebung zu finden ist.

3.8.1.2 Plasmaoxidation

Für die Bestimmung des organisch gebundenen Tritiums wird ein kommerziell erhältlicher Plasmaprozessor (500 E, Fa. Technics, München, Bundesrepublik Deutschland) verwendet. Die Tieftemperatur-Plasmaoxidationstechnik ist eine Methode, die bereits erfolgreich in den verschiedensten Bereichen zur chemischen und physikalischen Analyse verwendet wird. Mit einem geeigneten System zur Rückgewinnung des Oxidationswassers, das während des Oxidationsprozesses entsteht, ist ein solcher Prozessor aber auch hervorragend für die Tritiumuntersuchung geeignet. Abb. 3/10 zeigt eine schematische Darstellung dieses Systems. Für die Oxidation wird die von der Gefriertrocknung verbleibende Trockensubstanz möglichst fein pulverisiert und in dünner Schicht auf Petrischalen in die Prozeßkammer eingebracht. Sämtliche Luftfeuchtigkeit und die Restfeuchtigkeit in den getrockneten Proben werden danach praktisch aus dem System entfernt, in dem die Anlage bis zu einem Enddruck von 1 Pa evakuiert wird. Anschließend wird ein konstanter Sauerstoffstrom von etwa 40 ml/min eingestellt, der die Kammer unter einen Betriebsdruck von etwa 100 Pa setzt. Danach wird das Plasma durch Anlegen eines Hochfrequenzfeldes gezündet und bei einer Frequenz von 27,12 MHz wird eine Leistung von etwa 600 W aufrechterhalten. Die Oxidation verläuft dann je nach Intensität bei Temperaturen von maximal 200 °C. Beim Veraschen unserer Proben liegen die Betriebstemperaturen im Bereich von 80 °C - 120 °C.

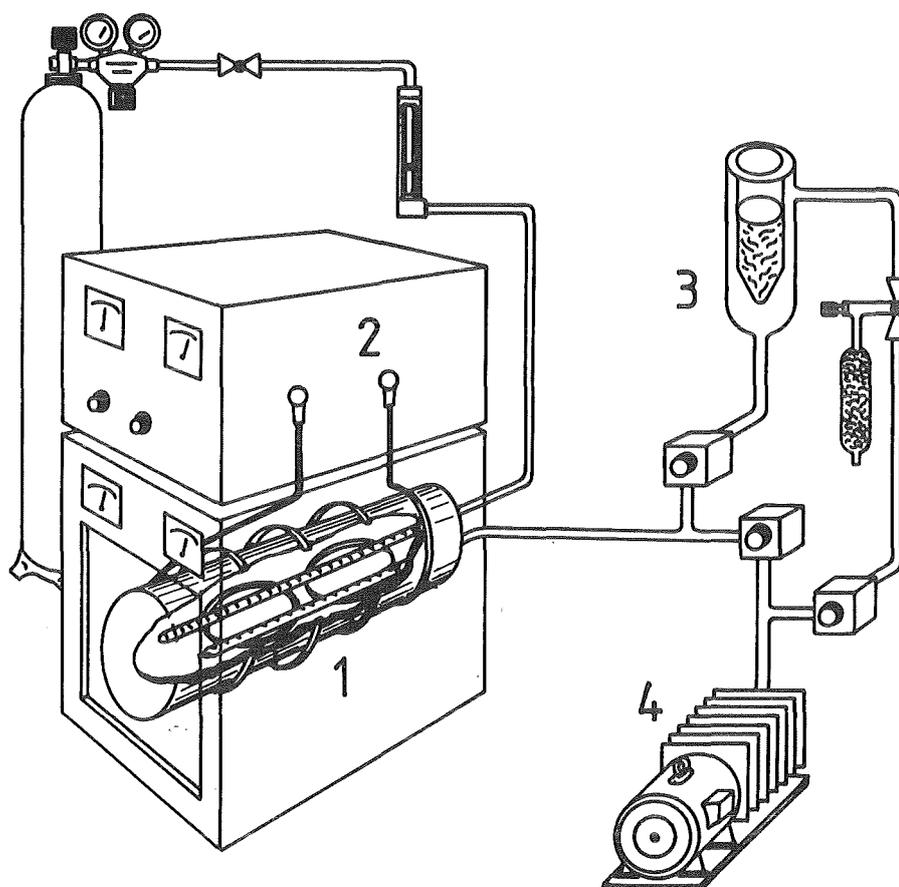


Abb. 3/10: Apparatur zur Plasma-Veraschung der gefriergetrockneten Proben und Rückgewinnung des Oxidationswassers für die Bestimmung von organisch gebundenem Tritium (1 Reaktionskammer, 2 Hochfrequenzgenerator, 3 Kühlfalle, 4 Feinvakuumpumpe, 5 Sauerstoffversorgung) /STR 81a, STR 82b/

Das Wasser, das bei der Oxidation der Proben entsteht, wird in einer Kühlfalle aufgefangen, die mit Alkohol gekühlt wird. Dieser wird seinerseits mit einem elektrischen Tauchkühler auf -80°C gekühlt. Dadurch läßt sich eine solche Oxidation auch problemlos über Nacht durchführen. Die Kühlfalle ist in einem Bypass zur Vakuumleitung zwischen Prozeßkammer und Vakuumpumpe untergebracht und kann bei Unterbrechung der Oxidation mit zwei Federbalgventilen gasdicht abgeschlossen werden. Für die Oxidation einer Probe wird jeweils so viel Trockensubstanz eingesetzt, daß ca. 12 ml Oxidationswasser aufgefangen werden können, d. h. 20 g - 40 g Trockensubstanz.

Die Dauer der Plasmaveraschung einer Probe beträgt etwa acht Stunden. Der Verlauf der Veraschung ist allerdings sehr stark von der Zusammensetzung und der Oberflächenstruktur der Proben abhängig. Ein hoher Anteil an nicht brennbaren Mineralstoffen führt bereits nach kurzer Oxidationsdauer zu einem starken "Abschirmeffekt". Die Oxidationsraten können dann exponentiell abnehmen, da die an der Oberfläche der Probe verbleibenden Aschebestandteile die Rekombination der angeregten Sauerstoffatome katalysieren und so die Oxidation der darunterliegenden Stoffpartikel behindern. Durch mehrmaliges "Umrühren" der Proben im Verlauf der Oxidation kann deshalb die Dauer der Veraschung mitunter erheblich verkürzt werden.

In Abb. 3/11 ist der Verlauf einer Oxidation von Stärkepulver wiedergegeben. Abb. 3/12 zeigt den Verlauf der Plasmaoxidation von Milchpulver. An der Optimierung dieser Methode wird allerdings z. Z. noch gearbeitet.

Im Vergleich zu früher betriebenen Verfahren der Totalveraschung von großen Probenmengen für die Bestimmung des organisch gebundenen Tritiums hat die Methode den Vorteil, daß hier ein kommerziell erhältliches Gerät direkt eingesetzt werden kann, wobei nur eine zusätzliche Apparatur zur Wasserrückgewinnung erforderlich ist. Das so gewonnene Oxidationswasser ist frei von quenchenden Rauchgasbestandteilen und kann nach einer einfachen Destillation direkt zur Messung verwendet werden. Außerdem birgt der Prozeß nicht in dem Maße die Gefahr einer Explosion, wie dies bei den herkömmlichen Verfahren der Fall ist. Ein entscheidender Vorteil der Methode liegt darin, daß beim Arbeiten unter Vakuum Kontaminationseffekte durch atmosphärisches Tritium leicht auf ein Minimum beschränkt werden können.

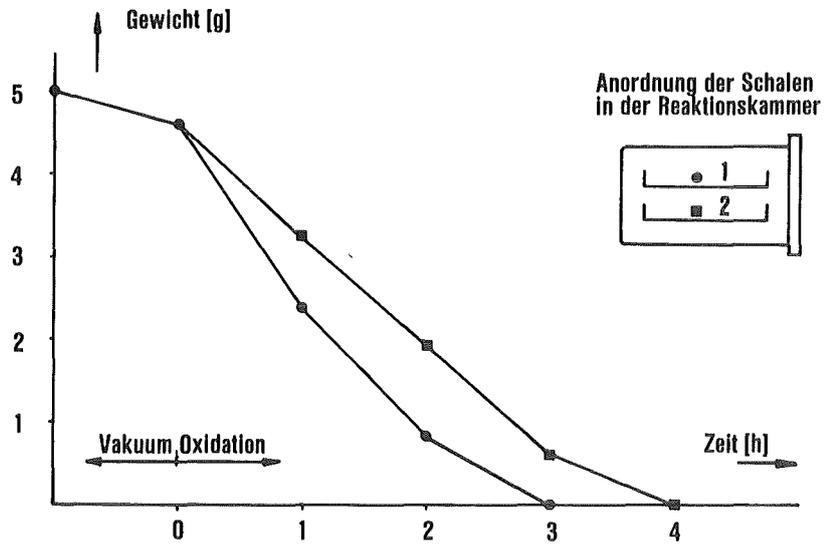


Abb. 3/11: Verlauf der Oxidation von Stärke

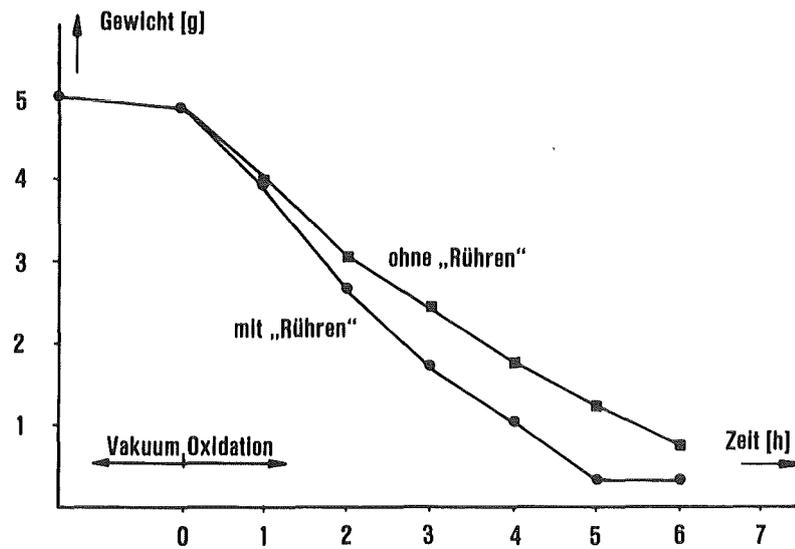


Abb. 3/12: Verlauf der Oxidation von Milchpulver

3.8.2 Ergebnisse

3.8.2.1 Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus den Hauptausbreitungssektoren

1981 bis 1983 wurden Messungen der Tritiumkonzentrationen im eßbaren Anteil von pflanzlichen Nahrungsmitteln aus den beiden Hauptausbreitungssektoren in der Umgebung des Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführt, wobei sowohl das OBT als auch das HTO bestimmt wurde.

In Tabn. 3/9 bis 3/11 sind die Ergebnisse aus den Jahren 1981 bis 1983 zusammengestellt. Der Medianwert der HTO-Konzentrationen aller Proben aus dem Raum Friedrichstal 1981 lag bei 19 mBq ml^{-1} , aus dem Raum Eggenstein/Leopoldshafen bei 10 mBq ml^{-1} . 1982 lag der Medianwert aller Proben aus dem Raum Friedrichstal bei $8_{\pm 5} \text{ mBq ml}^{-1}$, aus dem Raum Eggenstein-Leopoldshafen bei $7_{\pm 5} \text{ mBq ml}^{-1}$. Bei dem Verfahren dieser Low-level-Tritiummessungen wird in der Regel eine Nachweisgrenze von $4,8 \text{ mBq ml}^{-1}$ erreicht. Bei nur geringfügig oberhalb dieser Nachweisgrenze liegenden Meßwerten ergibt sich ein relativ großer Fehler.

Das organisch gebundene Tritium (OBT) lag 1981 bis auf eine Ausnahme (Weizen aus dem Raum Friedrichstal) in allen Proben über der Konzentration für HTO. Die Medianwerte betragen 1981 im ersten und zweiten Ausbreitungssektor 37 bzw. 32 mBq ml^{-1} . 1982 lag es ebenfalls bis auf wenige Ausnahmen in den Proben über der Konzentration für HTO. Die Medianwerte für OBT betragen 1982 im 1. und 2. Hauptausbreitungssektor $20_{\pm 5}$ bzw. $14_{\pm 5} \text{ mBq ml}^{-1}$.

Die Berechnung der Verhältnisse $R = \text{OBT/HTO}$ ergab entsprechend in fast allen Fällen R-Werte, die größer oder nur wenig kleiner als 1 sind. Zwei signifikante Ausnahmen stellen 1982 der Rosenkohl aus dem Raum Friedrichstal ($R = 0,6_{\pm 0,1}$), bei dem z. Z. der Probenahme eine verhältnismäßig hohe HTO-Konzentration gefunden wurde, und der Roggen aus Raum Eggenstein-Leopoldshafen ($R = 0,7_{\pm 0,6}$). Der größte R-Wert wurde 1981 im Blumenkohl aus dem Raum Eggenstein-Leopoldshafen mit $11_{\pm 8}$ ermittelt. 1982 lag er im Weißkohl aus dem Raum Friedrichstal bei $7_{\pm 6}$.

In den Abbn. 3/13 bis 3/17 sind die Konzentrationen aus den Jahren 1981 und 1982 nochmals nach der Höhe in den einzelnen Nahrungsmittel geordnet dargestellt.

Pflanzliche Nahrungsmittel	1. Hauptausbreitungssektor (Raum Friedrichstal)				
	Probenahmedatum 1981	Wassergehalt in %	Tritiumkonzentration in mBq ml^{-1}		R-Wert
			HTO	OBT	
Getreide:					
- Weizen (Körner)	18.08.	5	17 \pm 6	15 \pm 6	0,9 \pm 0,5
Blattgemüse:					
- Kopfsalat	02.07.	89	34 \pm 6	97 \pm 9	2,8 \pm 0,6
- Kopfsalat	-	-	-	-	-
- Feldsalat	12.10.	91	29 \pm 8	38 \pm 13	1,3 \pm 0,6
Kohlgemüse:					
- Weißkohl	17.09.	87	15 \pm 7	27 \pm 7	1,8 \pm 1,0
- Weißkohl	-	-	-	-	-
- Wirsingkohl	10.09.	87	12 \pm 6	46 \pm 9	4,0 \pm 2,2
- Rosenkohl (Rosen)	04.12.	83	36 \pm 8	98 \pm 10	2,8 \pm 0,7
- Blumenkohl	17.09.	90	14 \pm 7	37 \pm 12	2,6 \pm 1,5
- Kohlrabi	-	-	-	-	-
- Rotkohl	17.09.	85	19 \pm 6	31 \pm 8	1,7 \pm 0,7
Wurzel- und Knollengemüse:					
- Kartoffeln	10.09.	78	15 \pm 6	33 \pm 8	2,2 \pm 1,1
- Möhren	02.07.	88	30 \pm 6	37 \pm 6	1,2 \pm 0,3
- Rote Rüben	-	-	-	-	-
- Rettich	-	-	-	-	-
Ausdauernde Gemüse:					
- Spargel	20.05.	84	22 \pm 7	-	-
Obst:					
- Erdbeeren	02.07.	90	21 \pm 6	132 \pm 12	6,3 \pm 1,7
- Äpfel	17.09.	78	19 \pm 7	31 \pm 8	1,6 \pm 0,8

Bestimmt wurden: 1. HTO (Tritiumkonzentration im freien Wasser, das durch Gefriertrocknung verfügbar ist) und 2.OBT (organisch gebundenes Tritium, gemessen als Oxidationswasser nach Plasmaveraschung der wasserfreien Trockensubstanz)

Tab. 3/9: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. und 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK 1981 /JAH 82/

Pflanzliche Nahrungsmittel	2. Hauptausbreitungssektor (Raum Eggenstein-Leopoldshafen)				
	Probe- nahme- datum 1981	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzen- tration in mBq ml ⁻¹		R-Wert
			HTO	OBT	
Getreide:					
- Weizen (Körner)	17.08.	7	8 _± 7	11 _± 6	1,4 _± 1,4
Blattgemüse:					
- Kopfsalat	23.06.	92	15 _± 6	19 _± 14	1,2 _± 1,1
- Kopfsalat	10.07.	95	10 _± 5	59 _± 12	5,9 _± 3,2
- Feldsalat	10.11.	90	15 _± 7	27 _± 8	1,8 _± 1,0
Kohlgemüse:					
- Weißkohl	23.06.	90	14 _± 6	19 _± 15	1,4 _± 1,2
- Weißkohl	10.07.	93	12 _± 5	87 _± 10	7,3 _± 3,4
- Wirsingkohl	07.10.	92	18 _± 7	63 _± 10	3,5 _± 1,6
- Rosenkohl (Rosen)	02.12.	85	7 _± 7	36 _± 8	4,9 _± 4,7
- Blumenkohl	10.07.	89	7 _± 5	80 _± 18	11 _± 8
- Kohlrabi	07.10.	91	< NWG	32 _± 8	-
- Rotkohl	10.07.	92	7 _± 5	68 _± 10	9 _± 6
Wurzel- und Knollengemüse:					
- Kartoffeln	24.09.	79	12 _± 8	26 _± 8	2,1 _± 1,4
- Möhren	23.06.	89	7 _± 5	28 _± 9	3,8 _± 2,9
- Rote Rüben	07.10.	86	< NWG	-	-
- Rettich	07.10.	95	< NWG	24 _± 9	-
Ausdauernde Gemüse:					
- Spargel	23.05.	80	12 _± 6	89 _± 9	7,7 _± 4,3
Obst:					
- Erdbeeren	23.06.	89	10 _± 6	31 _± 6	3,0 _± 1,9
- Äpfel	-	-	-	-	-

Tab. 3/9: Fortsetzung

Pflanzliche Nahrungsmittel	1. Hauptausbreitungssektor (Raum Friedrichstal)				
	Probenahme- datum 1982	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹		R-Wert
			HTO	OBT	
Getreide:					
- Roggen (Körner)	13.08.	6	< NWG	11 ₊₅	-
- Weizen (Körner)	13.08.	6	< NWG	11 ₊₅	-
Blattgemüse:					
- Kopfsalat	05.07.	95	< NWG	9 ₊₇	-
- Kopfsalat	13.08.	95	6 ₊₅	16 ₊₅	2,5 _{+2,4}
- Feldsalat	27.10.	85	81 ₊₈	81 ₊₈	1,0 _{+0,1}
Kohlgemüse:					
- Weißkohl	05.07.	93	5,2 _{+4,7}	34 ₊₇	6,6 _{+6,1}
- Wirsingkohl	02.09.	91	8 ₊₅	20 ₊₆	2,6 _{+1,8}
- Rotkohl	02.09.	90	9 ₊₅	24 ₊₇	2,6 _{+1,5}
- Kohlrabi	27.10.	89	31 ₊₆	40 ₊₆	1,3 _{+0,3}
- Rosenkohl (Rosen)	27.10.	85	67 ₊₇	40 ₊₆	0,6 _{+0,1}
Wurzel- und Knollengemüse:					
- Möhren	05.07.	89	< NWG	7 ₊₅	-
- Kartoffeln	23.09.	82	< NWG	30 ₊₆	-
- Rettiche	27.10.	95	22 ₊₅	69 ₊₇	3,1 _{+0,8}
- Rote Rüben	27.10.*	83	14 ₊₅	16 ₊₅	1,1 _{+0,5}
Ausdauernde Gemüse:					
- Spargel	02.06.	93	7 ₊₅	20 ₊₅	2,7 _{+1,9}
Obst:					
- Erdbeeren	-	-	-	-	-
- Äpfel	13.09.	82	10 ₊₅	14 ₊₆	1,4 _{+1,0}

*Probe wurde bereits einige Tage vorher geerntet

Tab. 3/10: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. und 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK 1982 /JAH 83/

Pflanzliche Nahrungsmittel	2. Hauptausbreitungssektor (Raum Eggenstein-Leopoldshafen)				
	Probe- nahme- datum 1982	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzen- tration in mBq ml ⁻¹		R-Wert
			HTO	OBT	
Getreide:					
- Roggen (Körner)	22.07.	6	11 ₊₅	8 ₊₅	0,7 _{+0,6}
- Weizen (Körner)	22.07.	7	< NWG	-	-
Blattgemüse:					
- Kopfsalat	05.07.	92	6 ₊₅	31 ₊₈	4,9 _{+4,0}
- Kopfsalat	-	-	-	-	-
- Feldsalat	29.10.	79	25 ₊₆	56 ₊₇	2,2 _{+0,6}
Kohlgemüse:					
- Weißkohl	05.07.	92	6 ₊₅	< NWG	-
- Wirsingkohl	09.07.	91	7 ₊₅	8 ₊₅	1,2 _{+1,2}
- Rotkohl	05.07.	93	6 ₊₅	9 ₊₅	1,7 _{+1,7}
- Kohlrabi	29.10.	88	16 ₊₅	34 ₊₆	2,1 _{+0,8}
- Rosenkohl (Rosen)	29.10.	86	41 ₊₆	37 ₊₆	0,9 _{+0,2}
Wurzel- und Knollengemüse:					
- Möhren	05.07.	88	6 ₊₅	< NWG	-
- Kartoffeln	24.09.	77	7 ₊₅	14 ₊₅	2,0 _{+1,6}
- Rettiche	29.10.	95	16 ₊₅	26 ₊₇	1,6 _{+0,7}
- Rote Rüben	29.10.	87	7 ₊₅	16 ₊₅	2,3 _{+1,8}
Ausdauernde Gemüse:					
- Spargel	15.06.	93	8 ₊₅	16 ₊₅	2,0 _{+1,5}
Obst:					
- Erdbeeren	05.07.	90	6 ₊₅	7 ₊₅	1,3 _{+1,3}
- Äpfel	09.09.	84	11 ₊₅	10 ₊₅	0,9 _{+0,7}

Tab. 3/10: Fortsetzung

Pflanzliche Nahrungsmittel	1. Hauptausbreitungssektor (Raum Friedrichstal)				
	Probe- nahme- datum 1983	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹		R-Wert
			HTO	OBT	
Getreide:					
- Roggen (Körner)	21.07.	7	< NWG	14 ₊₅	-
- Weizen (Körner)	21.07.	7	7 ₊₅	14 ₊₅	2 _{+1,7}
Blattgemüse:					
- Kopfsalat	27.06.	93	7 ₊₅	12 ₊₅	1,7 _{+1,4}
Kohlgemüse:					
- Weißkohl	-	-	-	-	-
- Wirsingkohl	-	-	-	-	-
- Rotkohl	-	-	-	-	-
- Kohlrabi	-	-	-	-	-
Wurzel- und Knollengemüse:					
- Möhren	12.08.	85	6 ₊₅	21 ₊₅	3,5 _{+3,0}
- Rettiche	27.06.	94	8 ₊₅	9 ₊₅	1,1 _{+0,9}
Ausdauernde Gemüse:					
- Spargel	08.06.*	92	< NWG	180 ₊₁₁	-
Obst:					
- Erdbeeren	27.06.	89	10 ₊₅	9 ₊₅	0,9 _{+0,7}

*Probe wurde bereits vorher geerntet und in einem Gefäß mit Wasser aufbewahrt

Tab. 3/11: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. und 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK 1983 bis einschließlich August

Pflanzliche Nahrungsmittel	2. Hauptausbreitungssektor (Raum Eggenstein-Leopoldshafen)				
	Probe- nahme- datum 1983	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzen- tration in mBq ml ⁻¹		R-Wert
			HTO	OBT	
Getreide:					
- Roggen (Körner)	21.07.	8	9 _{±5}	13 _{±5}	1,5 _{±1,0}
- Weizen (Körner)	21.07.	8	14 _{±5}	11 _{±5}	0,8 _{±0,5}
Blattgemüse:					
- Kopfsalat	27.06.	93	7 _{±5}	11 _{±5}	1,8 _{±1,7}
Kohlgemüse:					
- Weißkohl	01.07.	93	8 _{±5}	8 _{±5}	1,0 _{±0,9}
- Wirsingkohl	21.07.	93	8 _{±5}	13 _{±5}	1,6 _{±1,2}
- Rotkohl	01.07.	92	< NWG	6 _{±5}	-
- Kohlrabi	27.06.	93	7 _{±5}	13 _{±5}	1,9 _{±1,5}
Wurzel- und Knollengemüse:					
- Möhren	27.06.	88	6 _{±5}	12 _{±5}	2,0 _{±1,9}
- Rettiche	-	-	-	-	-
Ausdauernde Gemüse:					
- Spargel	09.06.	92	9 _{±5}	18 _{±6}	2,0 _{±1,7}
Obst:					
- Erdbeeren	27.06.	87	6 _{±5}	12 _{±5}	2,0 _{±1,7}

Tab. 3/11: Fortsetzung

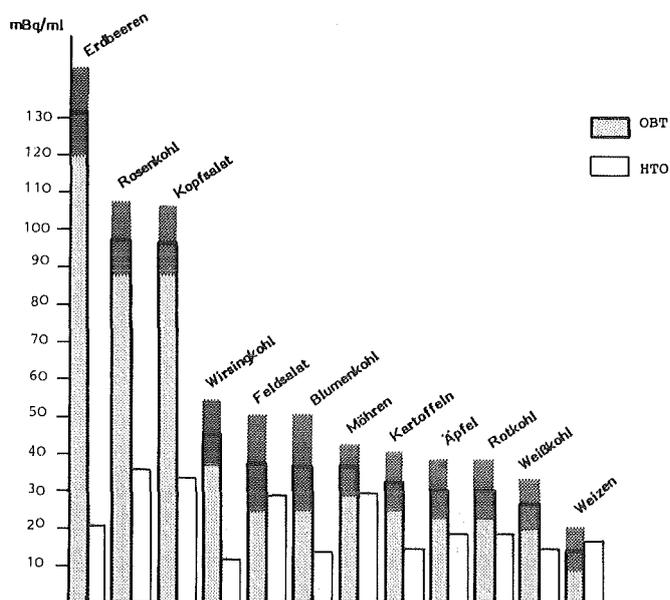


Abb. 3/13: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Friedrichstal) 1981

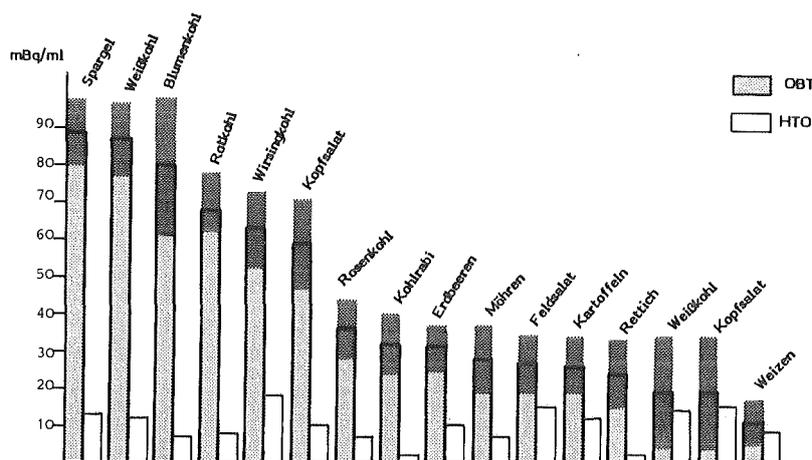


Abb. 3/14: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Eggenstein-Leopoldshafen) 1981

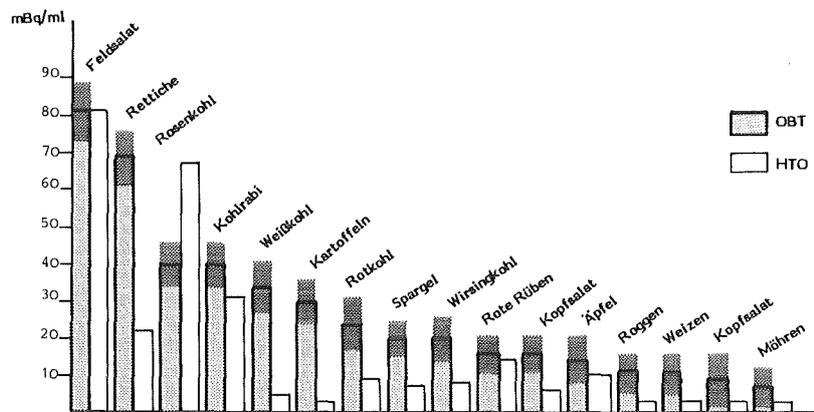


Abb. 3/15: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 1. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Friedrichstal) 1982

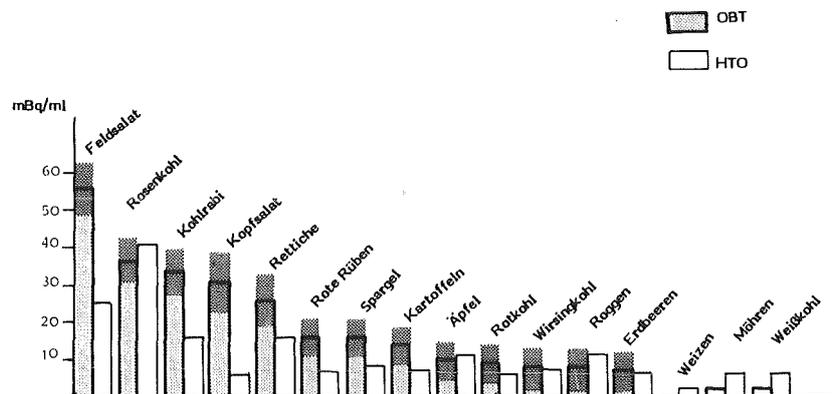


Abb. 3/16: Tritiumkonzentrationen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus dem 2. Hauptausbreitungssektor in der Umgebung des KfK (Raum Eggenstein-Leopoldshafen) 1982

Die gemessenen HTO-Konzentrationen sind im Vergleich zu der nach der Strahlenschutzverordnung zulässigen Tritiumkonzentration für Trinkwasser von $7\,400\text{ Bq l}^{-1}$ niedrig. Bis auf eine Ausnahme liegen sie unterhalb von 1 % dieses Wertes (74 Bq l^{-1}) und sind somit unter dem Aspekt des Strahlenschutzes ohne Relevanz. Der Einfluß des Kernforschungszentrums Karlsruhe ist jedoch deutlich erkennbar. Im September 1982 kommt dies in

einigen relativ hohen HTO-Konzentrationen in den oberirdischen Pflanzenteilen zum Ausdruck. Zur gleichen Zeit fanden im Kernforschungszentrum Karlsruhe erhöhte Tritiumemissionen statt. Die gleiche Tendenz zeigte sich auch bei einer vergleichenden Messung in Rosenkohlpflanzen im Jahr 1981 und 1982 (s. Tabn. 3/12 und 3/13), bei der Pflanzen- und Bodenproben aus den beiden Hauptausbreitungssektoren und von einer Referenzstelle entnommen wurden.

In Abb. 3/17, in der die Werte noch einmal graphisch dargestellt wurden, kommt dies zumindest 1981 deutlich zum Ausdruck. 1982 unterscheiden sich die Werte der Referenzstelle Thomashof kaum von den Werten der 2. Hauptausbreitungsrichtung Leopoldshafen/Eggenstein.

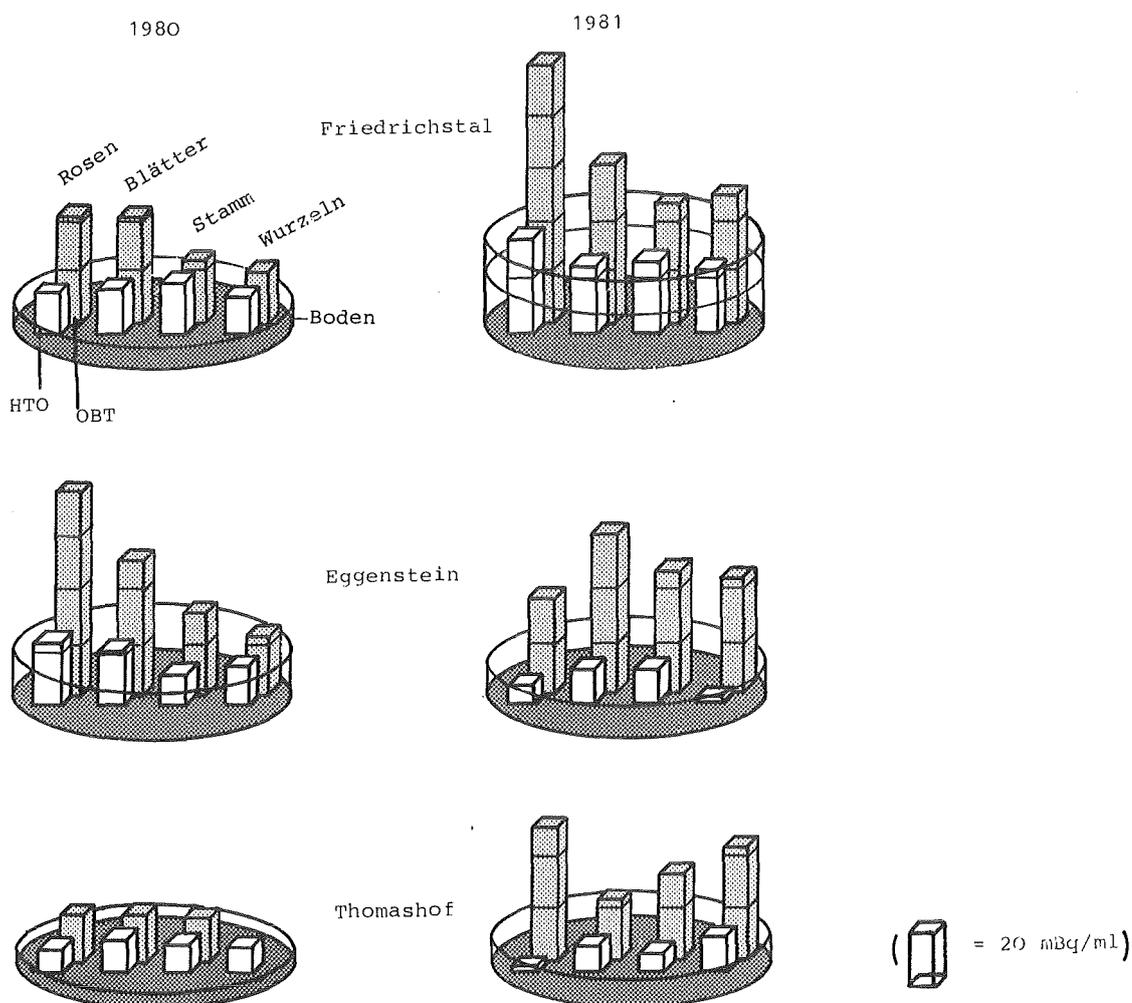


Abb. 3/17: Tritiumkonzentrationen in Rosenkohlpflanzen und Bodenproben (1980/81) in verschiedenen Ortschaften

Probenahme		Probenart	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹	
Datum 1980	Ort		HTO	OBT
09.12.	Friedrichstal	Rosenkohl-Rosen	17 ± 7	41 ± 7
11.12.	Eggenstein	Rosenkohl-Rosen	24 ± 7	78 ± 10
12.12.	Thomashof	Rosenkohl-Rosen	9 ± 6	18 ± 6
09.12.	Friedrichstal	Rosenkohlblätter	18 ± 6	41 ± 10
11.12.	Eggenstein	Rosenkohlblätter	21 ± 7	51 ± 12
12.12.	Thomashof	Rosenkohlblätter	13 ± 6	18 ± 7
09.12.	Friedrichstal	Rosenkohl-Stamm	20 ± 7	23 ± 16
11.12.	Eggenstein	Rosenkohl-Stamm	12 ± 6	31 ± 7
12.12.	Thomashof	Rosenkohl-Stamm	11 ± 6	17 ± 6
09.12.	Friedrichstal	Rosenkohlwurzeln	15 ± 7	20 ± 7
11.12.	Eggenstein	Rosenkohlwurzeln	15 ± 7	22 ± 8
12.12.	Thomashof	Rosenkohlwurzeln	10 ± 6	-
09.12.	Friedrichstal	Rosenkohl-Boden	9 ± 6	-
11.12.	Eggenstein	Rosenkohl-Boden	18 ± 7	-
12.12.	Thomashof	Rosenkohl-Boden	6 ± 6	-

Tab. 3/12: Tritiumkonzentrationen in Rosenkohlpflanzen und Bodenproben aus der Umgebung des KfK und von einer Referenzstelle (Thomashof) 1980 /KÖN 81a/

Probenahme		Probenart	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹	
Datum 1981	Ort		HTO	OBT
04.12.	Friedrichstal	Rosenkohl-Rosen	36 ± 8	98 ± 10
02.12.	Eggenstein	Rosenkohl-Rosen	7 ± 7	36 ± 8
09.12.	Thomashof	Rosenkohl-Rosen	< NWG	50 ± 8
04.12.	Friedrichstal	Rosenkohlblätter	26 ± 7	60 ± 9
02.12.	Eggenstein	Rosenkohlblätter	13 ± 7	60 ± 12
09.12.	Thomashof	Rosenkohlblätter	10 ± 7	23 ± 8
04.12.	Friedrichstal	Rosenkohl-Stamm	28 ± 8	45 ± 9
02.12.	Eggenstein	Rosenkohl-Stamm	13 ± 7	46 ± 9
09.12.	Thomashof	Rosenkohl-Stamm	7 ± 7	33 ± 8
04.12.	Friedrichstal	Rosenkohlwurzeln	24 ± 7	48 ± 12
02.12.	Eggenstein	Rosenkohlwurzeln	< NWG	43 ± 9
09.12.	Thomashof	Rosenkohlwurzeln	13 ± 7	43 ± 9
04.12.	Friedrichstal	Rosenkohl-Boden	34 ± 8	-
02.12.	Eggenstein	Rosenkohl-Boden	13 ± 7	-
09.12.	Thomashof	Rosenkohl-Boden	10 ± 7	-

Tab. 3/13: Tritiumkonzentrationen in Rosenkohlpflanzen und Bodenproben aus der Umgebung des KfK und von einer Referenzstelle (Thomashof) 1981 /JAH 82/

3.8.3 Tritium in Kiefernnadeln

Im Rahmen des geförderten Forschungsvorhabens wurde 1981 die radioökologische Untersuchung über Tritium in Bäumen fortgesetzt und zunächst eine Meßreihe über Tritium in Kiefernnadeln auf dem Gelände des KfK abgeschlossen. An verschiedenen Stellen auf dem KfK-Gelände wurden Proben von Kiefernnadeln genommen, wobei nach den Jahren 1978, 1979 und 1980, in denen die Nadeln gewachsen waren, unterschieden wurde. Nach Gefrier-trocknung und Plasmaveraschung mit Rückgewinnung des Oxidationswassers wurde anschließend der Tritiumgehalt im freien Wasser (HTO) und im Oxidationswasser (organisch gebundenes Tritium: OBT) bestimmt. Zur Zeit der Entnahme der Proben wurde jeweils noch Luftfeuchtigkeit zur Bestimmung des Tritiumgehaltes gesammelt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3/18 dargestellt. Der Einfluß der Entfernung und der Richtung zu den Emittenten ist deutlich zu erkennen. Die höchsten Tritiumkonzentrationen wurden unmittelbar neben dem MZFR gemessen, dem Hauptemittenten von atmosphärischem Tritium im Kernforschungszentrum. Zur Zeit der Entnahme der Proben war die Tritiumkonzentration in der Luftfeuchtigkeit stark erhöht, woraus eine höhere spezifische Tritiumkonzentration in der Luftfeuchtigkeit als im freien Gewebewasser der Nadeln resultierte. In allen anderen Fällen wurde das Gegenteil beobachtet. Daraus läßt sich schließen, daß die Tritiumkonzentration in den Nadeln durch einen Ausgleich mit der Luftfeuchtigkeit beeinflußt wird. Offensichtlich spielt auch die Bodenfeuchtigkeit eine Rolle.

Das Verhältnis zwischen OBT und HTO war in fast allen Fällen größer als 1. In zwei Fällen war es gleich 1 und nur in einer Probe wurde ein Verhältnis $0,54 \pm 0,23$ gefunden, jedoch kann nicht ausgeschlossen werden, daß es sich in diesem Falle um ein Artefakt handelt. Betrachtet man die OBT-Werte in den Nadeln in Abhängigkeit vom Alter, so ist eine Tendenz erkennbar, daß der Tritiumgehalt mit dem Alter der Nadeln ansteigt.

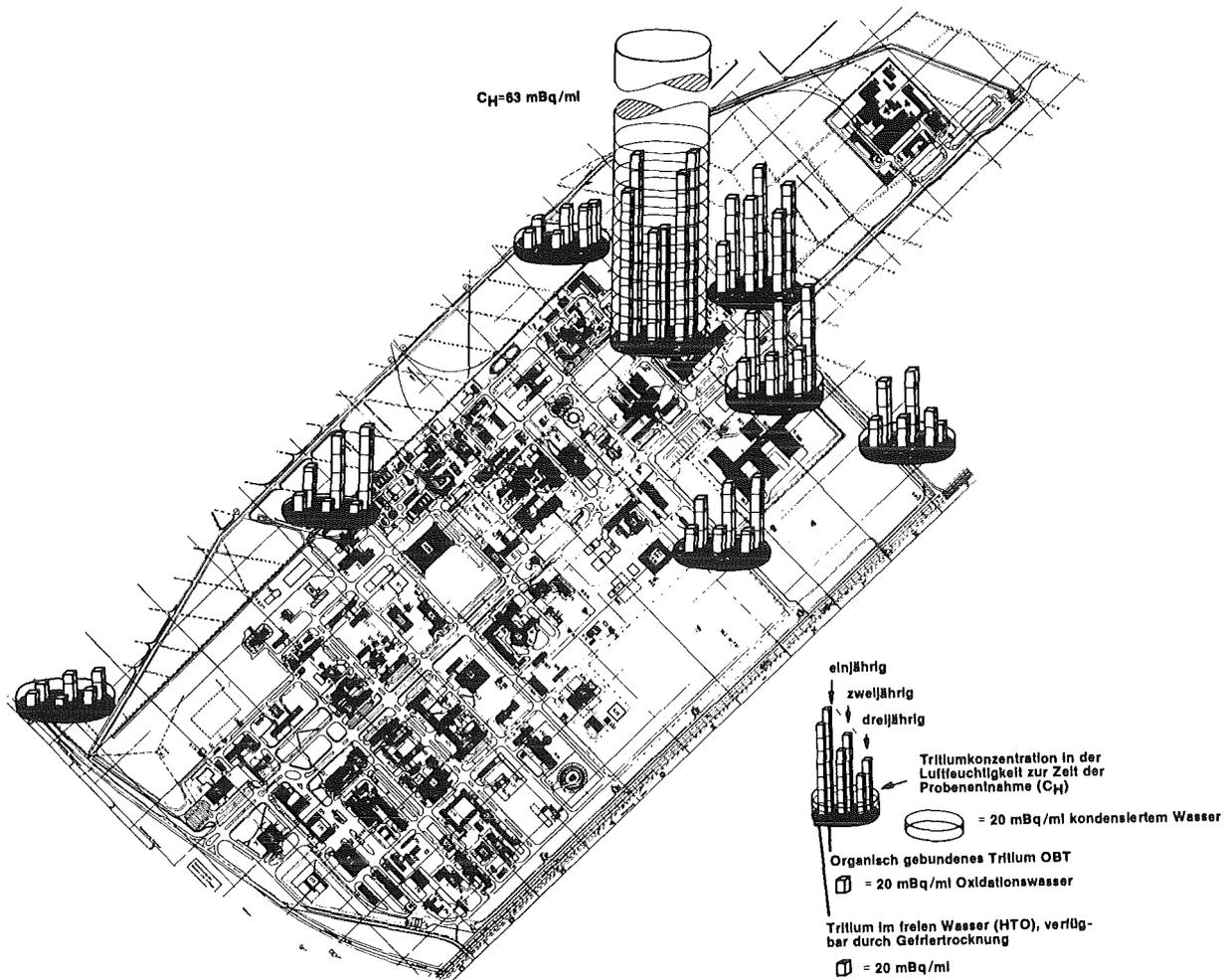


Abb. 3/18: Tritiumkonzentrationen in Kiefernadeln von verschiedenen Standorten auf dem Gelände des KfK (gewachsen 1978 bis 1980) /STR 81b, STR 82a/

3.8.4 Tritium in Pilzen

In einer einmaligen Aktion wurden am 25.09.1982 in einer kleinen Bewaldung auf dem KfK-Gelände (nahe der alten Nordwache) die Fruchtkörper verschiedener Arten von Pilzen gesammelt und auf HTO und OBT hin untersucht. Die Meßwerte und die berechneten R-Werte sind in Tab. 3/14 zusammengestellt. Die HTO-Konzentrationen von drei Arten lagen in dem Bereich der HTO-Konzentrationen des Bodenwassers, z. Z. der Probenahme in der Schicht von 0 bis 30 cm. Lediglich bei der "Krausen Glucke" fand sich ein Wert, der sich deutlich von den übrigen abhebt und dabei über der HTO-Konzentration des Bodenwassers liegt. Dies könnte seine Ursache

darin haben, daß es sich bei der Probe um ein relativ altes Exemplar gehandelt hatte, das fast ganz von der Humusschicht des Bodens bedeckt war. Hier könnte sich eine erhöhte HTO-Konzentration des Bodenwassers erhalten haben, die etwa zwei Wochen vor der Probenahme beobachtet worden war.

Probenahme- datum	Probenart	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹		
			HTO	OBT	R-Wert
15.09.82	Täublinge (Russula)	85	64 _± 7	103 _± 9	1,6 _± 0,2
15.09.82	Kartoffelboviste (Scleroderma vulgare)	76	69 _± 9	122 _± 9	1,8 _± 0,3
15.09.82	Knollenblätterpilze (Amanita)	91	47 _± 7	92 _± 25	2,0 _± 0,6
15.09.82	Krause Glucke (Sparassis crispa)	81	95 _± 9	99 _± 8	1,04 _± 0,13

Tab. 3/14: Tritiumkonzentrationen in Pilzen vom Gelände des KfK (nahe alter Nordwache) /JAH 83/

Die OBT-Werte, die mit einer Ausnahme deutlich über den HTO-Werten liegen, fallen in den Bereich, in dem auch die OBT-Werte der organischen Bestandteile in den Humusschichten liegen.

3.8.5 Systematische Langzeituntersuchung der Tritiumkonzentrationen in einer Buche

Ein kritischer Punkt bei der Interpretation solcher Meßreihen ist, daß die Ergebnisse jeweils immer nur eine "Momentaufnahme" der Situation zeigen und nicht die Entwicklung in den Kompartimenten unter dynamischen Bedingungen, wie sie in natürlichen Ökosystemen vorkommen. Deshalb wurde mit Beginn der Vegetationsperiode 1981 eine systematische Langzeituntersuchung über das Verhalten von Tritium in einer Rotbuche auf dem Gelände des KfK begonnen. Für zunächst eine ganze Vegetationsperiode wurde die Entwicklung der HTO- und OBT-Konzentrationen in den Blättern verfolgt.

Außerdem wurden sämtliche Tritiumkonzentrationen in der Umgebung bestimmt, wie in der Luftfeuchtigkeit, im Niederschlag, im Boden- und Grundwasser. Zur Bestimmung des Tritiumgehaltes in der Luftfeuchtigkeit, der von allen Tritiumexpositionen die größte Variabilität zeigt, wurde eine Einrichtung installiert, die es erlaubte, kontinuierlich im 1- bis 3-Stunden-Takt Proben zu sammeln. Alle diese Meßwerte wurden zusammen mit zahlreichen meteorologischen Daten, wie Lufttemperatur, Luftfeuchtigkeit, Sonnenstrahlung usw. in einem Großrechner gespeichert. Von dort können sie sowohl geplottet als auch für Modellrechnungen verwendet werden. Ausgewählt wurde für die Untersuchung eine etwa fünfzigjährige Rotbuche auf dem KfK-Gelände mit einer für die regelmäßigen Entnahmen von Blattproben (100 g Frischgewicht für eine Messung) ausreichenden Belaubung (s. Abb. 3/19).



Abb. 3/19: Fünfzigjährige Rotbuche (*Fagus silvatica*) /STR 82b, STR 82c/

Ihre Krone trägt etwa 200 000 Blätter (ca. 45 kg) mit einer für Photosynthese, Transpiration und Gasaustausch verfügbaren Fläche von 455 m² (s. Abb. 3/20).

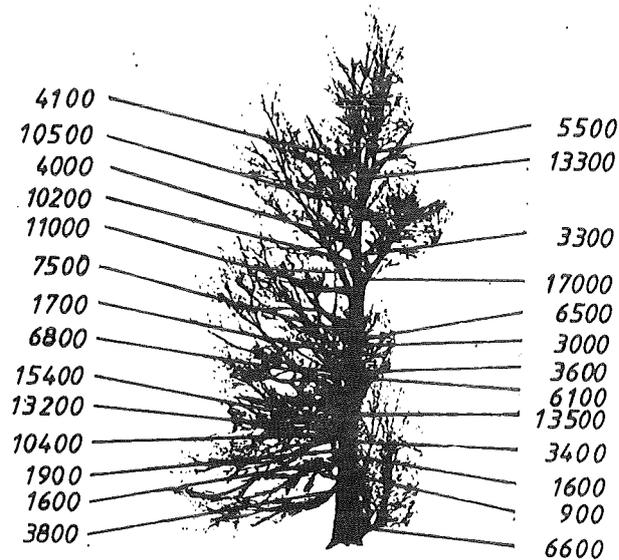


Abb. 3/20: Verteilung der Blätter an der Rotbuche /JAH 82/

3.8.5.1 Verlauf der Tritiumkonzentration in der Vegetationsperiode 1981

Die erste Probe wurde z. Z. des Knospenschwellens dem Baum am 9. Mai 1981 in Form von Knospen entnommen, die unmittelbar vor der Blattentfaltung standen. In der folgenden Wachstumsperiode, in der die Blätter sich bis zu ihrer vollen Größe entwickelten, wurde jeweils eine Probe pro Woche entnommen. Anschließend erfolgte die Probenahme zweimal pro Woche, bis Ende Oktober das Laubvergilben und anschließend der Laubfall eintraten. Die Proben wurden jeweils bei Sonnenaufgang genommen, zu einem Zeitpunkt also, zu dem hinsichtlich des freien Gewebewassers in den Blättern ein relativ ausgeglichener Zustand herrscht (geschlossene Stomata, keine Transpiration während der ca. 10 Stunden der vorherigen Nacht). Hinsichtlich des organisch gebundenen Tritiums ist zu diesem Zeitpunkt die Stärke, die am Vortage assimiliert wurde, aus dem Blatt weitgehend abtransportiert, und das Blatt ist frei von vorübergehend gespeicherten Kohlenhydraten, die nicht zum Strukturmaterial gehören. In

der Zeit vom 8. bis 13. September wurden zusätzlich während des Tages Blattproben entnommen, um eine Information über den Tagesgang zu bekommen. In Abb. 3/21 sind die Tritiumkonzentrationen in der Luftfeuchtigkeit sowie in den Blättern der Buche dargestellt.

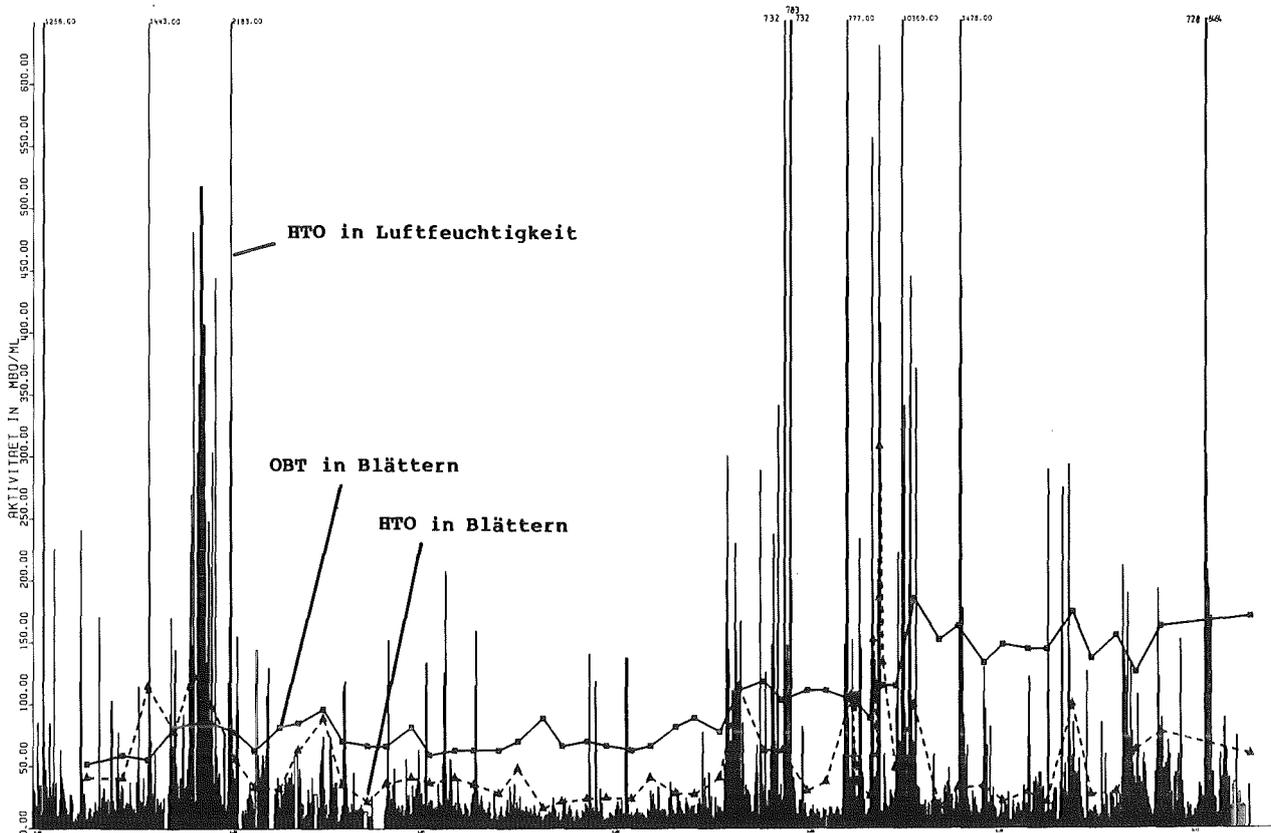


Abb. 3/21: Verlauf der Tritiumkonzentrationen während der Vegetationsperiode 1981 /STR 82b, STR 82c/

Nach Ablauf der Vegetationsperiode 1981 zeigte sich folgendes Bild: Die HTO-Werte zeigen über die ganze Vegetationsperiode eine ausgeprägte Dynamik, indem sie einerseits von den stark schwankenden Tritiumkonzentrationen der Luftfeuchtigkeit beeinflusst werden. Insbesondere wird dies bei stark erhöhten Konzentrationen deutlich. In Zeiten geringer HTO-Konzentration in der Luftfeuchtigkeit folgen sie andererseits aber nicht den Luftfeuchtigkeitskonzentrationen, sondern bleiben deutlich darüber und repräsentieren somit offensichtlich die Tritiumkonzentration der Bodenfeuchtigkeit. Die OBT-Werte zeigen über die ganze Versuchsdauer

ebenfalls eine Dynamik, d. h. die Konzentrationen steigen und fallen, allerdings in wesentlich geringerem Maße als die HTO-Werte. Der Anfangswert für OBT in den Knospen von 52 ± 8 mBq ml⁻¹ Oxidationswasser wird während des ganzen Versuchs nicht mehr unterschritten. Vielmehr baut sich bis zum Ende der Vegetationsperiode eine Konzentration an organisch gebundenem Tritium von 170 ± 13 mBq ml⁻¹ auf. Die signifikantesten Konzentrationserhöhungen zeigen sich hierbei nach den Perioden, in denen die Tritiumaktivität in der Luftfeuchtigkeit am stärksten erhöht ist.

Daraus ergibt sich, daß die Werte für OBT bis auf wenige Ausnahmen in allen Proben über denen vom HTO liegen. Berechnet man die R-Werte der Proben, d. h. die Verhältnisse der Konzentrationen von OBT zu HTO, so liegt der R-Wert für die Knospen zu Beginn des Jahres bei $R = 1,27$. Er liegt danach bei einigen Proben unter 1 und beträgt beim Laubfall am Ende des Versuches $R = 2,91$. Der größte R-Wert wurde am 22. September mit $R = 8,72$ ermittelt. Diese erhöhten Konzentrationen in dem organischen Wasserstoffkompartiment der Blätter kann nicht durch einen Anreicherungsmechanismus aufgrund von Isotopeneffekten erklärt werden. Es muß im Gegenteil eine Diskriminierung von Tritium gegenüber Protium beim photosynthetischen Einbau in die organische Substanz einkalkuliert werden, wie es aus Versuchen mit Grünalgen bekannt ist /STR 78/. Durch die Langzeituntersuchung mit der kontinuierlichen Erfassung möglichst aller Tritiumexpositionen des Baumes für die ganze Vegetationsperiode deutet sich auch bereits ohne ein vollständiges Modell an, daß sich hier unter dynamischen Verhältnissen im organischen Wasserstoffpool erhöhte Tritiumkonzentrationen aufbauen, in denen die starken Expositionen durch atmosphärisches Tritium gewissermaßen wie in einem Dosimeter "registriert" wurden.

Zur Ermittlung des Tritiuminventars im Boden am Standort der Rotbuche wurden 1981 im Frühjahr und im Herbst je eine Bohrung bis ins Grundwasser vorgenommen. Der Bohrkern wurde dabei in Abschnitte von 30 cm unterteilt und in wasserabgedichteten Kunststoffgefäßen zur Aufbewahrung ins Labor gebracht. Anschließend wurde von einem Aliquot der Bodenproben mittels azeotroper Destillation mit Xylol das Wasser extrahiert und zur Tritiumbestimmung vorbereitet. Außerdem wurde unter der Buche jeweils

noch Material von den Streu- und den Humusschichten entnommen und nach Gefriertrocknung (HTO) und Plasmaveraschung (OBT) die Tritiumkonzentrationen bestimmt.

In Abb. 3/22 sind die HTO- und OBT-Werte der oberen Schichten und das Profil der HTO-Werte von den Bodenschichten bis zum Grundwasser dargestellt. Auffällig sind zunächst die relativ hohen OBT-Werte der Streu- und Humusschichten. Dieses organische Material hat seinen Ursprung in erster Linie in den Buchenblättern, die an dieser Stelle an den Bäumen in den letzten Jahren gewachsen sind. Nur in der H- und A_h -Schicht besteht ein Großteil der organischen Substanz aus lebenden und abgestorbenen Bodenorganismen. Das OBT dieser Schichten stellt ein relativ langfristiges Reservoir an Tritium innerhalb des Gesamtinventars dar. Das Profil der HTO-Werte in den Bodenschichten zeigt ansonsten einen signifikanten Sprung in der spezifischen Aktivität von der Schicht

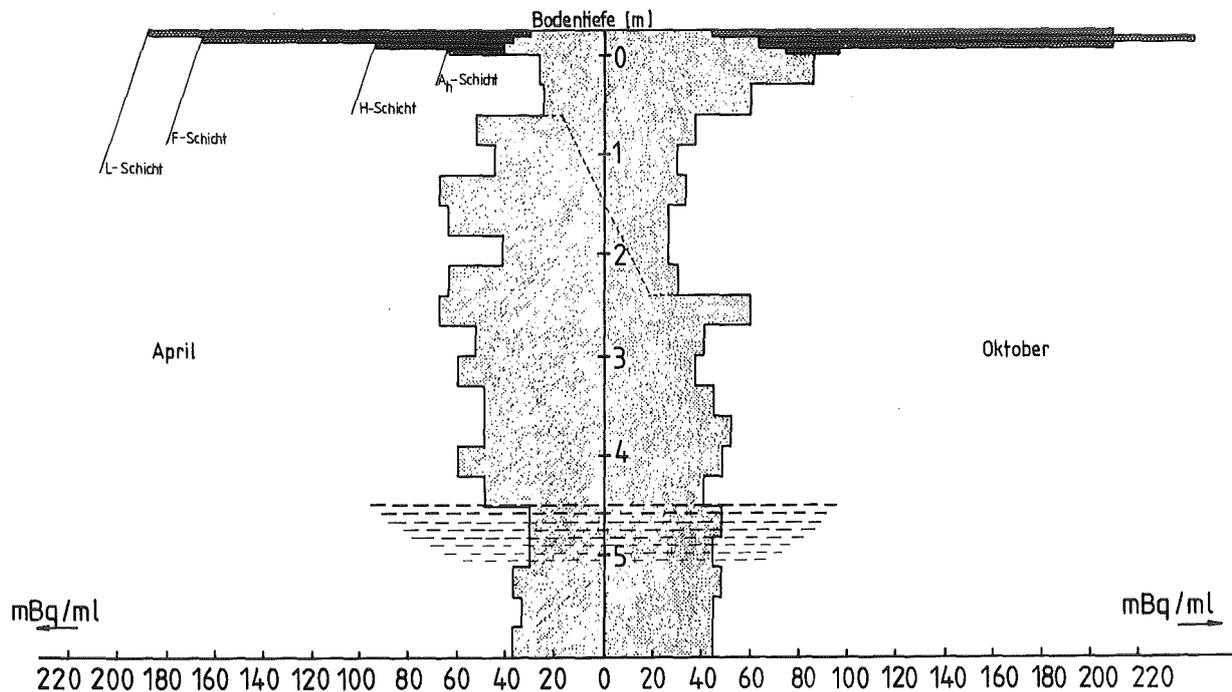


Abb. 3/22: Profil der Tritiumkonzentrationen in den Streu- und Humusschichten (HTO und OBT) sowie der HTO-Werte in 30 cm dicken Bodenschichten von zwei Bohrungen am Standort der Buche (09.04. und 20.10.1981) / JAH 82/

30 - 60 cm bis zur Schicht 60 - 90 cm in der Bohrung vom 9. April 1981. Bis zur Bohrung am 20. Oktober 1981 scheint diese "Aktivitätsgrenze" bis in eine Tiefe von 2,40 m gewandert zu sein. Das entspräche einer Migrationsgeschwindigkeit von 1,80 m innerhalb von 194 Tagen (ca. 6,5 Monate).

3.8.5.2 Verlauf der Tritiumkonzentration in der Vegetationsperiode 1982

Zur Erlangung von zusätzlichen Daten als Basis für eine modellmäßige Beschreibung der dynamischen, d. h. zeitabhängigen Vorgänge bei der Aufnahme, des Einbaus und der Abgabe von Tritium in einem pflanzlichen Organismus wurde die Untersuchung im folgenden Jahr fortgeführt.

1982 wurden die meteorologischen Messungen wie Licht, Menge an Niederschlag, Lufttemperatur und Luftfeuchtigkeit direkt in unmittelbarer Nähe des untersuchten Baumes vorgenommen, um die mikroklimatischen Bedingungen erfassen zu können. Zusätzlich wurden in diesem Jahr die Bodentemperatur und die Bodensaugspannung in unterschiedlichen Bodentiefen erfaßt. Weiterhin wurde eine ständige Messung des Saftflusses im Stamm des Baumes im 30-min-Takt durchgeführt. Alle anfallenden Meßwerte wurden mittels eines Daten-Loggers aufgezeichnet und anschließend in die Großrechenanlage des Zentrums übertragen. Die Tritiumbestimmungen wurden durch eine häufigere Messung des Bodenwassers erweitert. Durch eine in den Boden eingebrachte Filterkerze war es möglich, alle zwei bis drei Tage eine ausreichende Probenmenge an Bodenwasser zu gewinnen. Nur bei starker Trockenheit des Bodens mußte weiterhin zur Bestimmung der Tritiumkonzentration Bodenmaterial mit Hilfe eines Schlagstockes entnommen werden. Eine Übersicht über die neben den Blattmessungen durchgeführten Messungen gibt Abb. 3/23.

Während der Vegetationsperiode 1982 wurden an 20 Tagen Spitzenwerte der Tritiumkonzentration in der kondensierten Luftfeuchtigkeit oberhalb von 200 mBq ml^{-1} gemessen, bei einer jeweiligen Sammelzeit von drei Stunden. An den Tagen, an denen das Auftreten eines solchen Spitzenwertes mit der

Entnahme von mehreren Blattproben zusammenfiel, konnte ein sehr rascher Anstieg und ein ebenso rascher Abfall auf den Ausgangswert beobachtet werden. Für diesen exponentiell verlaufenden Konzentrationsausgleich über die Stomata der Blätter konnte für den schnellsten Fall eine Austauschrate von mindestens $k = 0,26 \text{ h}^{-1}$ entsprechend einer maximalen Halbwertszeit von $T_{1/2} = 2,7 \text{ h}$ berechnet werden. Angaben aus der Literatur legen jedoch als oberen Wert einen schnelleren Verlauf des Austauschs nahe, der allerdings z. B. während der Nacht gegen Null zurückgeht.

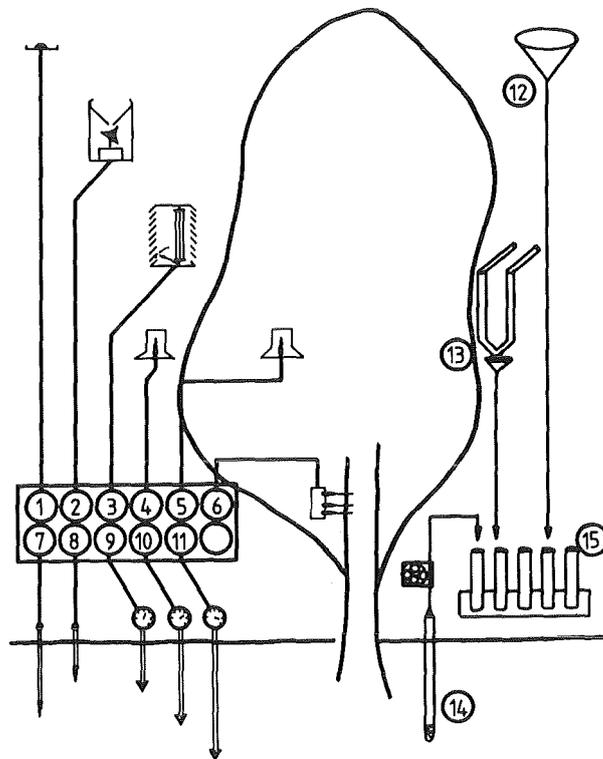


Abb. 3/23: Zur Erfassung der mikro-klimatischen Bedingungen werden am Baum kontinuierlich gemessen und automatisch registriert: Licht (1), Niederschlag (2), Luftfeuchtigkeit (3), Lufttemperatur (4, 5), Bodentemperatur (7, 8), Bodensaugspannung (9, 10, 11) und außerdem der Saftfluß im Stamm. Die Niederschläge (12), das Luftkondensat (13) und das Bodenwasser (14) werden im Fraktionssammler (15) aufgefangen. /STR 82b, STR 82c, STR 83a/

Die Tritiumkonzentrationen der organischen Substanz der Blätter zeigen im Verlauf der Vegetationsperiode 1982 wiederum eine wesentlich gedämpftere Dynamik, mit einem stufenweisen Aufbau bis hin zu einer Konzentration von 420 mBq ml^{-1} beim Laubfall (s. Abb. 3/24).

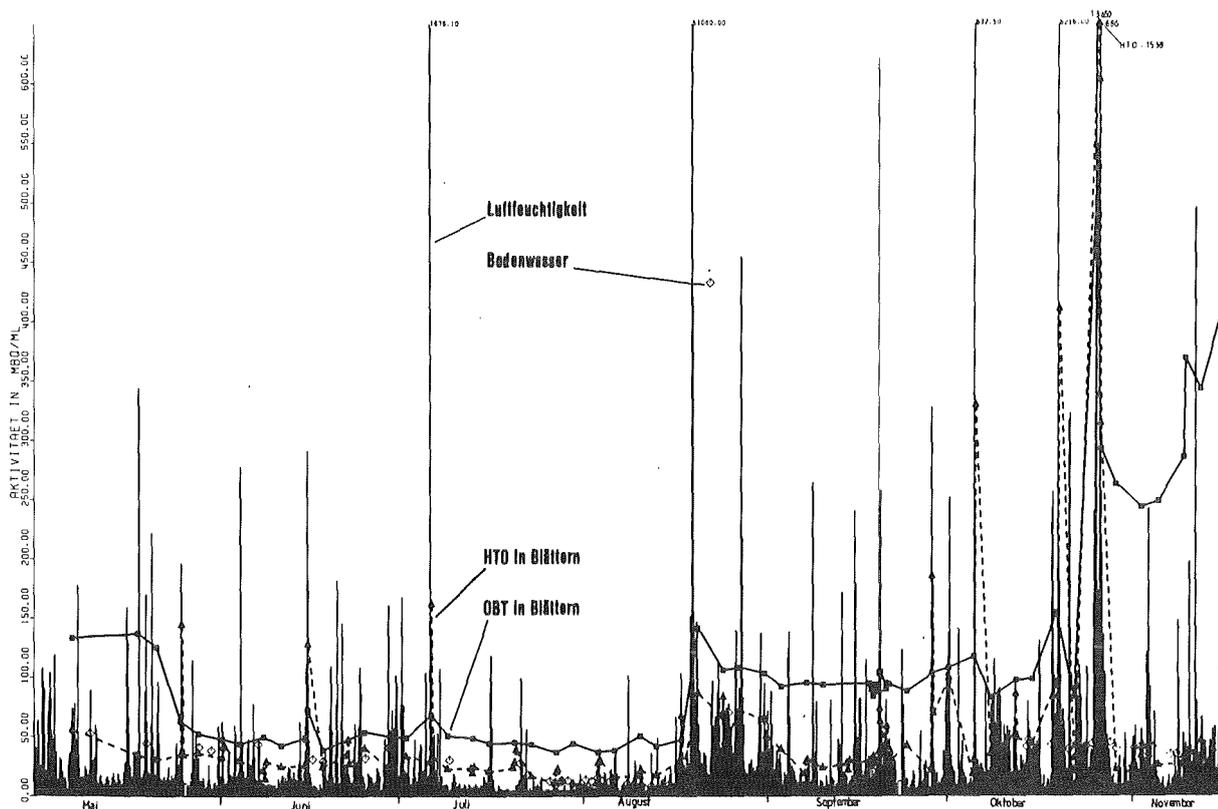


Abb. 3/24: Verlauf der Tritiumkonzentrationen während der Vegetationsperiode 1982 /STR 83a/

Im Frühjahr war jedoch auch ein drastischer Abfall der OBT-Konzentrationen zu beobachten gewesen. Zur Zeit der Blattbildung fiel der OBT-Wert der Knospen von 130 mBq ml^{-1} auf eine Konzentration von 42 mBq ml^{-1} in den ausgewachsenen Blättern ab, bedingt durch einen "Verdünnungseffekt" bei der Zunahme der organischen Blattsubstanz. Eine erhöhte Tritiumfreisetzung auf dem KfK-Gelände im August, die zu einer gemessenen HTO-Konzentration in der Luftfeuchte von 47 Bq ml^{-1} für drei Stunden und im

Bodenwasser von $0,43 \text{ Bq ml}^{-1}$ führte, hatte kurzfristig eine Verdreifachung der OBT-Konzentration in den Blättern zur Folge, die in den folgenden Wochen wieder zurückging, und sich auf etwa den doppelten Wert, der vorher gemessenen OBT-Konzentration einpendelte.

Im November kam es mit dem Vergilben der Blätter zu einem drastischen Anstieg der OBT-Konzentrationen, ohne daß sich dies durch eine entsprechende Exposition durch Tritium in der Atmosphäre erklären ließe. Dieses Verhalten der OBT-Konzentrationen ist nur so zu deuten, daß dies eine Folge der biochemischen Umsetzungen in den Blättern kurz vor dem Laubfall ist. In dieser Zeit werden vor allem die Proteine in transportable Stoffe umgebaut und aus den Blättern in das Holz abtransportiert. In diesem Konzentrationsanstieg könnte z. B. eine heterogene Tritiumverteilung in den organischen Substanzen zum Ausdruck kommen, indem hier eine höhere Tritiumkonzentration im Strukturmaterial der Blätter zum Tragen kommt. Soweit sich dieses Ergebnis auf Lebensmittel übertragen läßt, ist eine solche inhomogene Verteilung auf die Zellbestandteile sicherlich interessant, da sie ernährungsphysiologisch eine unterschiedliche Bedeutung haben. Abb. 3/25 zeigt einen Ausschnitt des Rechner-Plots der Tritiumaktivitäten, in der Luftfeuchte, den Blättern und den Niederschlägen sowie den registrierten Werten des Saftflusses, der Strahlungsintensität, der relativen Luftfeuchte sowie der Bodensaugspannungen in 30, 60 und 100 cm Tiefe.

3.8.5.3 Modellmäßige Beschreibung des Verhaltens von Tritium im Baum

Zur Interpretation der experimentellen Daten wurde ein mathematisches Modell entwickelt, das dazu benutzt werden kann, die Tritiumkonzentration in Pflanzen unter anderen Bedingungen vorauszusagen. In Abb. 3/26 ist ein Grundmodell des Systems mit den wichtigsten Kompartimenten und allen relevanten Tritium-Flüssen dargestellt. Zunächst sollen allerdings die Beziehungen des Blattkompartiments betrachtet werden. Abb. 3/27 zeigt ein entsprechendes Beziehungsdiagramm, in dem neben den Stoffflüssen auch die Informationsflüsse dargestellt sind, um das Prozeßgeschehen zu verdeutlichen. Das Diagramm beruht auf folgenden Annahmen: Die

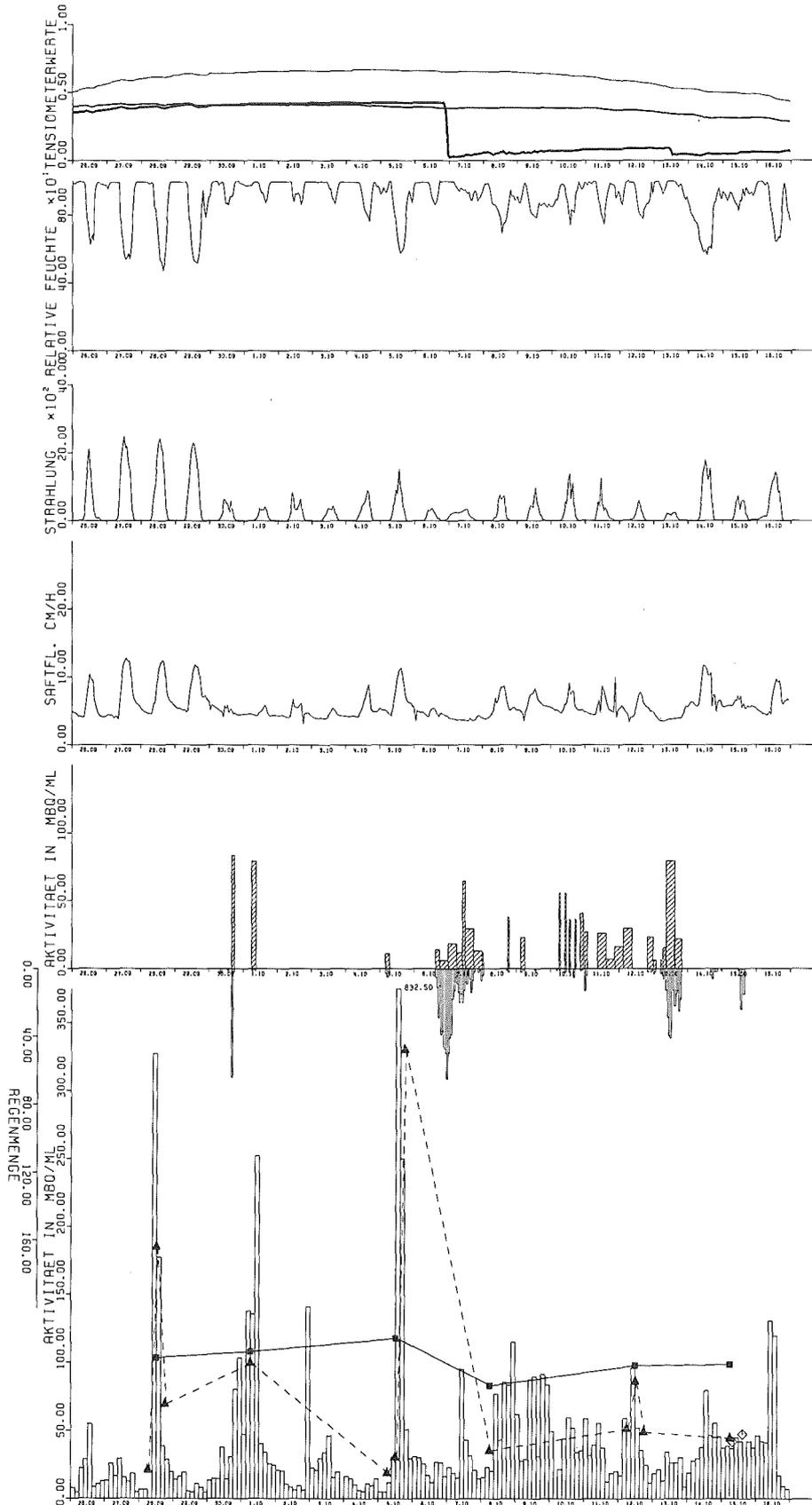


Abb. 3/25: Ausschnitt des Rechner-Plots der Tritiumaktivitäten und meteorologischen Daten des Langzeitversuches (vom 26.09. bis 16.10.) 1982 /JAH 83/

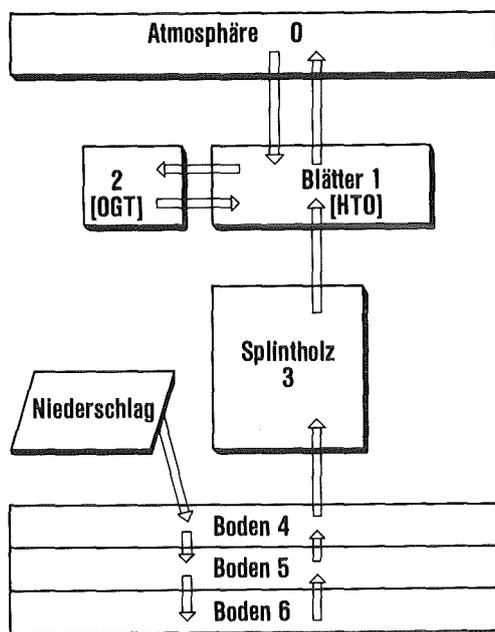


Abb. 3/26: Blockdiagramm des Grundmodells mit den wichtigsten Kompartimenten und Tritium-Flüssen /STR 82b, STR 82c/

Konzentration von HTO in den Blättern (1) wird zum einen durch Austausch von dampfförmigem Wasser mit der Atmosphäre bestimmt (0). Treibende Kraft für diesen Austausch ist ein Tritiumkonzentrationsgradient. Die Austauschraten werden von der Blattleitfähigkeit reguliert, d. h. dem Öffnen und Schließen der Stomata. Diese sehr wichtige Hilfsvariable bei der Modellierung ist eine Funktion des Lichtes, der Lufttemperatur und des Wasserstresses der Pflanze. Steigt der Wasserstreß der Pflanze an, während der Baum das Bodenwasser extrahiert, schließen sich die Blattoffnungen allmählich, bis eine vollständige Schließung erreicht und die Leitfähigkeit so gering ist, daß sie nur noch der Diffusion des Wasserdampfs durch die wachshaltige Oberfläche (Kutikula) der Blätter entspricht /STR 82b/. Da die Diffusion in beiden Richtungen gleichermaßen reguliert wird, sind die Austauschkoeffizienten gleich ($k_{10}^E = k_{01}^E = k_E$).

Saftfluß. Die Saftflußrate k_{31}^T ist gleich der Transpirationsrate, wenn der Wassergehalt der Blätter als konstant angenommen wird ($k_{10}^T = k_{31}^T = k_T$). Bei der Modellierung des organisch gebundenen Tritiums in den Blättern kann man davon ausgehen, daß dieses durch Photosynthese, d. h. aus Kohlendioxid und Wasser, aus den jeweils aktuellen HTO-Konzentrationen der Blätter aufgebaut wird. Gleichzeitig aber wird ein Teil des OBT ständig veratmet oder als Assimilat in andere Organe der Pflanze transportiert.

Zunächst wurde eine grobe Abschätzung der resultierenden HTO-Konzentrationen in den Blättern aufgrund der Beobachtungen und der theoretischen Überlegungen durchgeführt. Der Tritiumfluß von der wäßrigen Phase in die organische Substanz kann dabei in den Blättern zunächst vernachlässigt werden, weil dieser sehr klein im Vergleich zu den anderen Tritiumflüssen ist. In diesem Falle kann das Verhalten von HTO im Blattkompartiment durch die folgende Differentialgleichung beschrieben werden, worin k_E und k_T die Koeffizienten der Flußraten darstellen und A die spezifischen Aktivitäten /STR 82b, STR 82c/:

$$\frac{dA_1}{dt} = -(k_E + k_T)A_1 + k_E A_0 + k_T A_3 \quad (3)$$

Berücksichtigt man, daß k_E und k_T Funktionen der Blattleitfähigkeit und des Feuchtigkeitsdefizits sind, so läßt sich diese Gleichung direkt für eine numerische Lösung verwenden. Um eine Vorstellung davon zu bekommen, in welche Richtung die Lösung tendiert, wurde unter zahlreichen Vereinfachungen zunächst eine analytische Lösung versucht. Darin deutete sich an, daß das Blattkompartiment in der Tat von Gasaustausch und Transpiration in der gleichen Größenordnung beeinflusst wird.

3.8.5.4 Mathematische Berechnung und Simulation

Zur mathematischen modellmäßigen Beschreibung des dynamischen Verhaltens des Tritiums in der Pflanze wurde zunächst von einem Grundmodell für die Blattkompartimente ausgegangen (Abb. 3/28) und zwar mit je einem Kompartiment für das Blattwasser (1), das temporär vorhandene OBT (2) und für das dauerhaft organisch gebundene Tritium (3). Die Konzentrationen in der Atmosphäre und im Boden sollen für die beobachteten Zeitintervalle jeweils als konstant angesehen werden, d. h. sie werden durch die Wechselwirkungen mit der Pflanze nicht beeinflusst und haben somit den Charakter einer "Quelle" bzw. einer "Senke". Die Differentialgleichungen würden dann folgendermaßen lauten /KÖN 83b/:

$$\frac{dA_1}{dt} = k_{01} \cdot A_0 + k_{21} \cdot A_2 + k_{41} \cdot A_4 - k_{10} \cdot A_1 - k_{12} \cdot A_1 - k_{14} \cdot A_1 \quad (4)$$

$$\frac{dA_2}{dt} = k_{12} \cdot A_1 - k_{21} \cdot A_2 - k_{23} \cdot A_2 \quad (5)$$

$$\frac{dA_3}{dt} = k_{23} \cdot A_2 \quad (6)$$

wobei die Zustandsvariablen A_i die Tritiumkonzentrationen in den Kompartimenten bezeichnen und k_{ij} die Veränderungsrate mit der Dimension $(\text{Zeit})^{-1}$. Zur Vereinfachung der Schreibweise bei der Lösung der Differentialgleichungen (4) bis (6) werden folgende Abkürzungen eingeführt:

$$K_1 = k_{10} + k_{12} + k_{14} \quad (7)$$

$$K_2 = k_{21} + k_{23} \quad (8)$$

$$Z = k_{01} A_0 + k_{41} A_4 \quad (9)$$

$$G = K_1 K_2 - k_{12} k_{21} \quad (10)$$

$$H = K_1 + K_2 \quad (11)$$

$$\gamma = \frac{H}{2} + \sqrt{\frac{H^2}{4} - G} \quad (12)$$

$$\delta = \frac{H}{2} - \sqrt{\frac{H^2}{4} - G} \quad (13)$$

Damit erhält man als Lösungen

$$A_1(t) = B_1 + C_1 e^{-\gamma t} + D_1 e^{-\delta t} \quad (14)$$

$$A_2(t) = B_2 + C_2 e^{-\gamma t} + D_2 e^{-\delta t} \quad (15)$$

$$A_3(t) = k_{23} \left\{ B_2 t + \frac{C_2}{\gamma} (1 - e^{-\gamma t}) + \frac{D_2}{\delta} (1 - e^{-\delta t}) \right\} + A_3^0 \quad (16)$$

mit

$$B_1 = \frac{K_2 Z}{G} \quad (17)$$

$$B_2 = \frac{k_{12} Z}{G} \quad (18)$$

$$C_1 = \frac{1}{\gamma - \delta} \left\{ (K_1 - \gamma) A_1^0 - k_{21} A_2^0 - \frac{Z}{\gamma} (\gamma - K_2) \right\} \quad (19)$$

$$C_2 = \frac{1}{\gamma - \delta} \left\{ -k_{12} A_1^0 + (\gamma - K_1) A_2^0 + k_{12} \frac{Z}{\gamma} \right\} \quad (20)$$

$$D_1 = \frac{1}{\gamma - \delta} \left\{ (\gamma - K_1) A_1^0 + k_{21} A_2^0 + \frac{Z}{\gamma} (\delta - K_2) \right\} \quad (21)$$

$$D_2 = \frac{1}{\gamma - \delta} \left\{ k_{12} A_1^0 + (K_1 - \delta) A_2^0 - \frac{Z}{\delta} k_{12} \right\} \quad (22)$$

A_i^0 bezeichnet die Anfangswerte von $A_i(t)$.

Die Lösung läßt sich dann verwerten, wenn die Verteilungsvolumina ihrem Umfang nach gleich groß bleiben würden, oder ihre Veränderung so klein ist, daß sie vernachlässigt werden kann, d. h., wenn z. B. der Wassergehalt in den Blättern als konstant angesehen werden kann /KÖN 83b/. Es hat sich zwar bei der Rechnung sehr bald herausgestellt, daß diese Bedingung nicht gilt und daß sie auch nicht vernachlässigt werden kann, um eine befriedigende Beschreibung der Vorgänge zu erhalten. Trotzdem soll dieser Weg hier aufgezeigt werden, weil sich an ihm bereits sehr viele Vorgänge im Prozeßgeschehen verdeutlichen lassen. (Die Gln. (4) bis (6) gelten ohne die Einschränkung bezüglich der Konstanz der Verteilungsvolumina, wenn die Größen A_i als Gesamtinventare angesehen werden. Dann müssen allerdings die Größen $k_{01}A_0$ und $k_{41}A_4$ als Zufuhren Z_0 aus der Atmosphäre (0) und Z_4 aus dem Boden (4) gedeutet werden, und die Größen k_{ij} erhalten zumindest zum Teil andere Bedeutungen.) Für eine erste Simulation der Tritiumkonzentrationen in den Blättern mit Hilfe dieses Modells wurden folgende Annahmen gemacht: Das OBT-Kompartiment wird zunächst als Einheit von temporärem und permanentem OBT betrachtet, weil bei der Messung ebenfalls nicht unterschieden werden konnte. Die Transpirationsrate k_T ist linear abhängig vom relativen Luftfeuchtigkeitsdefizit RH_{Def} . und ist gleich der Saftflußrate k_S bei einer maximalen Transpirationsrate von $k_{Tmax} = 1,75 \text{ h}^{-1}$, entsprechend einer Abschätzung anhand von eigenen Messungen und Daten aus der Literatur /POL 50/.

Die Austauschrate k_E wurde als Funktion der Sonneneinstrahlung L betrachtet, weil sie zumindest ein wesentlicher Parameter bei der Steuerung der Stomataöffnung ist,

$$k_E = \frac{L}{L_{\max}} k_{E\max} \quad (23)$$

mit einem $k_{E\max}$ von $1,75 \text{ h}^{-1}$.

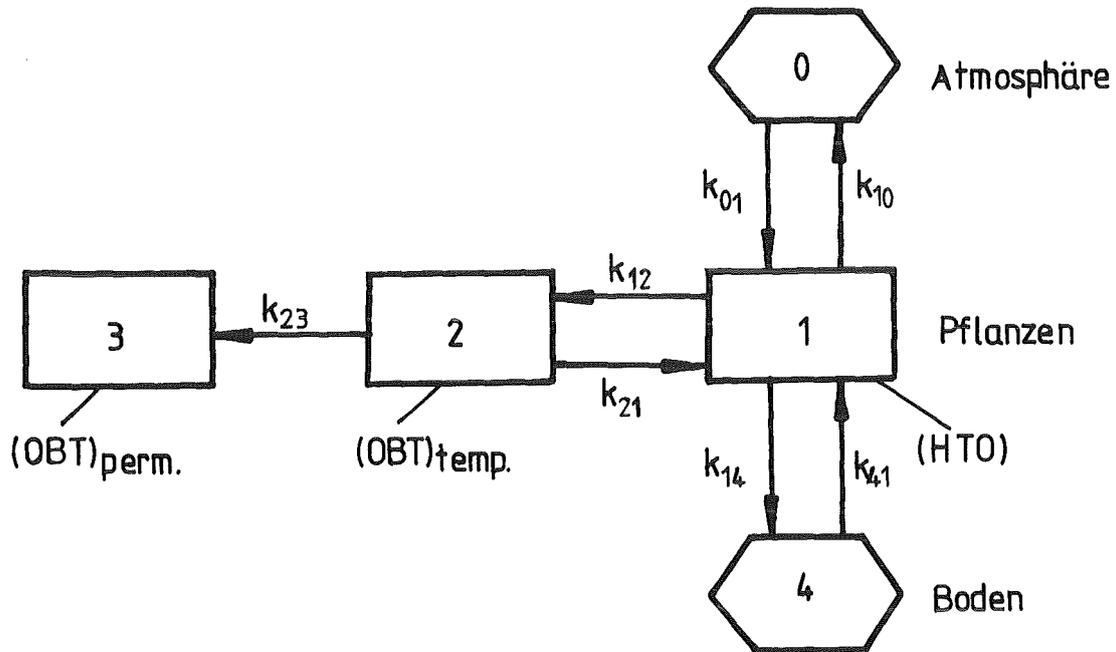


Abb. 3/28: Grundmodell zur Beschreibung des dynamischen Verhaltens von Tritium in Pflanzen /KÖN 83b/

In der Nacht wurde jedoch ein Mindestaustausch angenommen, entsprechend einer Diffusion von Wassermolekülen durch die Kutikula der Blätter

$$k_{E\min} = k_{E\text{kut}} = 0,035 \text{ h}^{-1}$$

Die Assimilationsrate k_A wurde ebenfalls am Tagesgang des Lichtes orientiert:

$$k_A = \frac{L}{L_{\max}} k_{A\max} \quad (24)$$

mit einem $k_{A\max}$ von $0,0128 \text{ h}^{-1}$.

Für die Respirationsrate k_R wurde angenommen, daß sie bei Tag 21 % der Assimilationsrate beträgt und in der Nacht (nach /POL 50/ bei einer Buche) den Mindestwert von $k_{Rmin} = 0,00027 \text{ h}^{-1}$ erreicht.

In Abb. 3/29 ist eine Berechnung nach dem Modell für den 18.09. bis 20.09.1982 den gemessenen Werten gegenübergestellt. Dabei zeigt sich teilweise schon eine verhältnismäßig gute Übereinstimmung. Als Ergebnis kam bei dieser Simulation aber u. a. heraus, daß an einem der beiden Tage, die ausgesprochene Schönwettertage waren, die Beeinflussung der HTO-Konzentration im Blatt von der Atmosphäre über die Mittagszeit überschätzt wird. Es scheint sich in dieser Zeit die Blattkonzentration sehr stark der Bodenwasserkonzentration annähern zu wollen. Als Erklärung hierfür kommt sehr wahrscheinlich das Schließen der Stomata wegen des Turgorverlustes in Frage. Dadurch wird sowohl die Transpiration als auch der Austausch mit der Atmosphäre verhindert oder zumindest stark eingeschränkt. Andererseits kann Wasser aus dem Boden über die Gefäße im Holz so lange nachfließen, bis das Blatt nicht mehr unter Wasserstreß steht und sich die Spaltöffnungen bei wieder angestiegenem Turgor öffnen können. Die Bestimmung des Blattwassergehaltes bei jeder Probenentnahme am 18.09.1982 zeigte auch, daß das Blattwasser einen ausgeprägten Tagesgang mit einem Minimum gegen 13.00 Uhr durchmachte. Ein solches Verhalten kann allerdings durch das verwendete Modell nicht beschrieben werden, da bei der Betrachtung von Konzentrationen und deren Veränderungen die Zu- und Abflüsse des Wassers mengenmäßig ausgeglichen sein müssen. In diesem Falle müssen die Veränderungen als Flüsse der Aktivitäten A_i , einem Produkt aus Konzentration C_i und Volumen V_i bilanziert werden, z. B. /STR 83a, STR 83b/

$$\frac{dA_1}{dt} = \frac{d}{dt} (C_1 V_1) = F_S v_S C_S - F_B v_T C_1 - F_B v_E (C_1 - C_A) \quad (25)$$

mit den wirksamen Flächen F_S und F_B für den Saftstrom und der Blätter, den Fließgeschwindigkeiten v_S , v_T und v_E für den Saft, die Transpiration und den Gasaustausch und den Tritiumkonzentrationen C_S und C_A im Saft und in der Atmosphäre. Außerdem muß aber noch eine Bilanzierung des Blattwasservolumens durchgeführt werden:

$$\frac{dV}{dt} = F_S v_S - F_B v_T \quad (26)$$

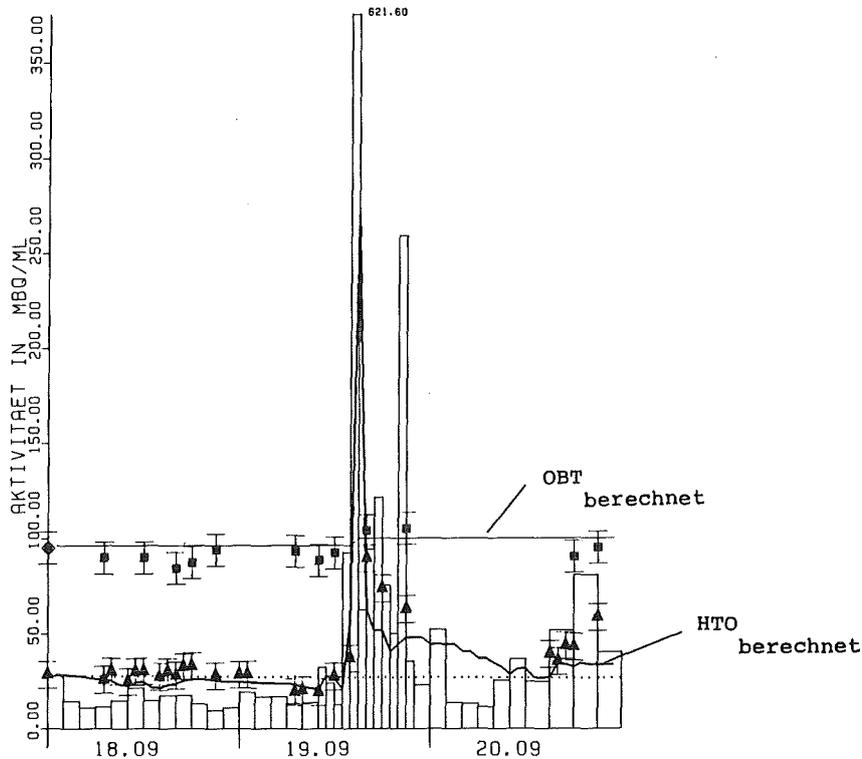


Abb. 3/29: Simulation der HTO- und OBT-Werte in den Blättern. Gemessene Tritiumkonzentrationen: HTO (▲), OBT (■), Luftfeuchtigkeit (Balken), Bodenwasser (gepunktete Linie) /STR 83b/

In Abb. 3/30 ist noch eine weitere Simulation für einen Zeitraum von 13 Tagen im August 1982 wiedergegeben, wobei für $k_{E_{max}}$ ($2,10 \text{ h}^{-1}$) und $k_{A_{max}}$ ($0,10 \text{ h}^{-1}$) geänderte Werte eingesetzt wurden. In dieser Zeit wurde eine extreme HTO-Konzentration in der Luftfeuchtigkeit gemessen (51 Bq ml^{-1}). Leider wurden an diesem Tag selbst keine Proben entnommen, es läßt sich aber erkennen, daß das Modell den starken Anstieg des OBT beschreibt, der nach der Exposition beobachtet wurde.

3.8.5.5 Statistische Auswertung

Um die beobachteten Vorgänge auf andere Verhältnisse, wie z. B. andere Pflanzen, andere klimatische sowie andere Expositionsverhältnisse übertragen zu können, ist eine detaillierte modellmäßige Beschreibung des Verhaltens von Tritium unentbehrlich.

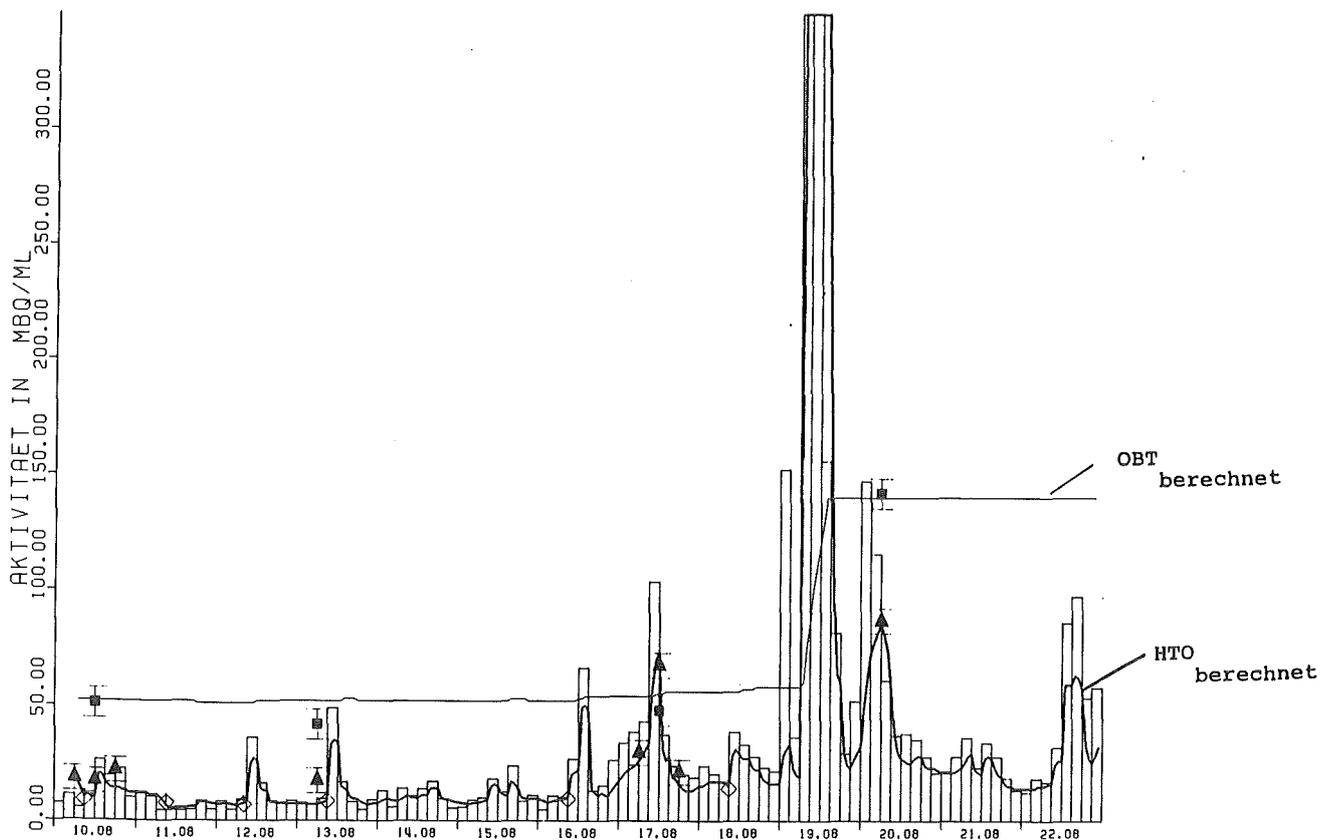


Abb. 3/30: Simulation der HTO- und OBT-Werte in den Blättern für die Zeit vom 10.08.1982 bis 22.08.1982. Gemessene Konzentrationen: HTO (\blacktriangle), OBT (\blacksquare), Luftfeuchtigkeit (Balken), Bodenwasser (\diamond) /STR 83b/

Im Hinblick auf die beabsichtigte Überprüfung der Berechnungsgrundlagen für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer (Richtlinie zu § 45 StrlSchV) mit Hilfe dieser unter realistischen Bedingungen gemessenen Daten wurde zunächst einmal ein Vergleich vorgenommen, und zwar zwischen den Tritiumkonzentrationen in den Blättern und den mit der Expositionszeit gewichteten mittleren Tritiumkonzentrationen in der Umgebung des Baumes. Abb. 3/31 zeigt die HTO-Konzentrationen in den einmal wöchentlich entnommenen Blättern und dazu die für jede Stunde berechnete mittlere Tritiumkonzentration, die durch Ausfrieren im 3-Stunden-Takt direkt am Baum gemessen wurde. Die Berechnung erfolgte von Mai bis November nach der Formel:

$$\bar{C}_t = \Sigma (\text{HTO}_{\text{Luftfeuchte}} \cdot t_{\text{Sammelzeit}}) \cdot (t_{\text{gesamt}})^{-1}.$$

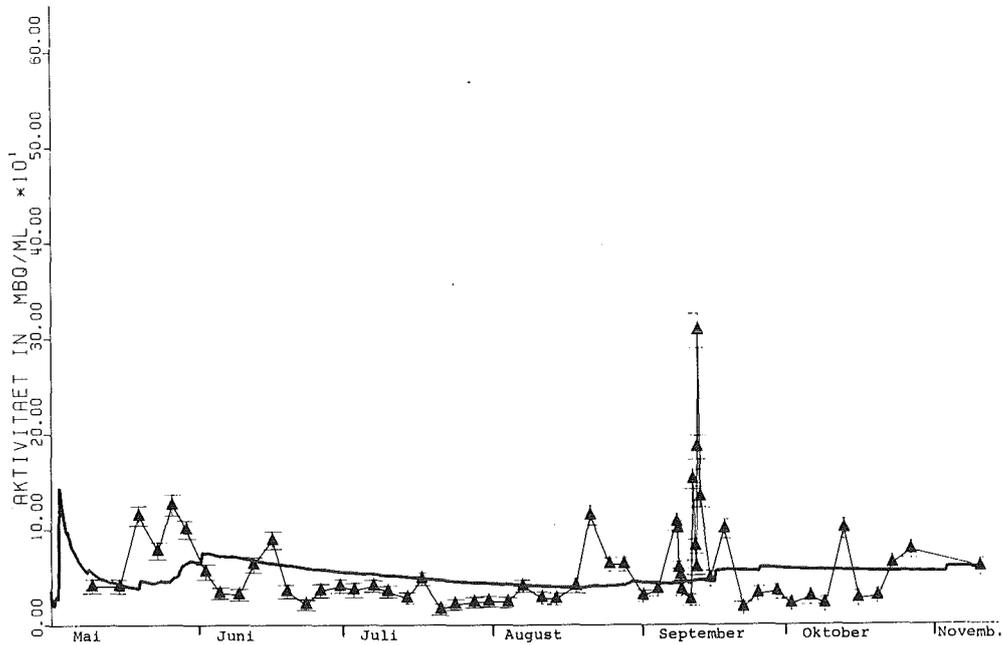


Abb. 3/31: Verlauf der HTO-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1981 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte (s. Text)

Abb. 3/32 zeigt die entsprechenden Werte für das Jahr 1982, nur wurden hier in der Regel zweimal die Woche Blattproben entnommen. Der Vergleich zeigt, daß die berechnete mittlere Konzentration C_t zwar grob in dem Bereich liegt, in dem auch die meisten Blattwerte liegen. Den tatsächlich vorliegenden dynamischen Verhältnissen trägt die Kurve allerdings in keiner Weise Rechnung. Weder die Spitzenwerte, die in Einzelproben gemessen wurden, noch die Tiefstwerte über längere Perioden hinweg lassen sich damit interpretieren. Der Vergleich mit den OBT-Werten fällt dagegen schon etwas günstiger aus, weil diese Werte insgesamt eine wesentlich gedämpftere Dynamik zeigen.

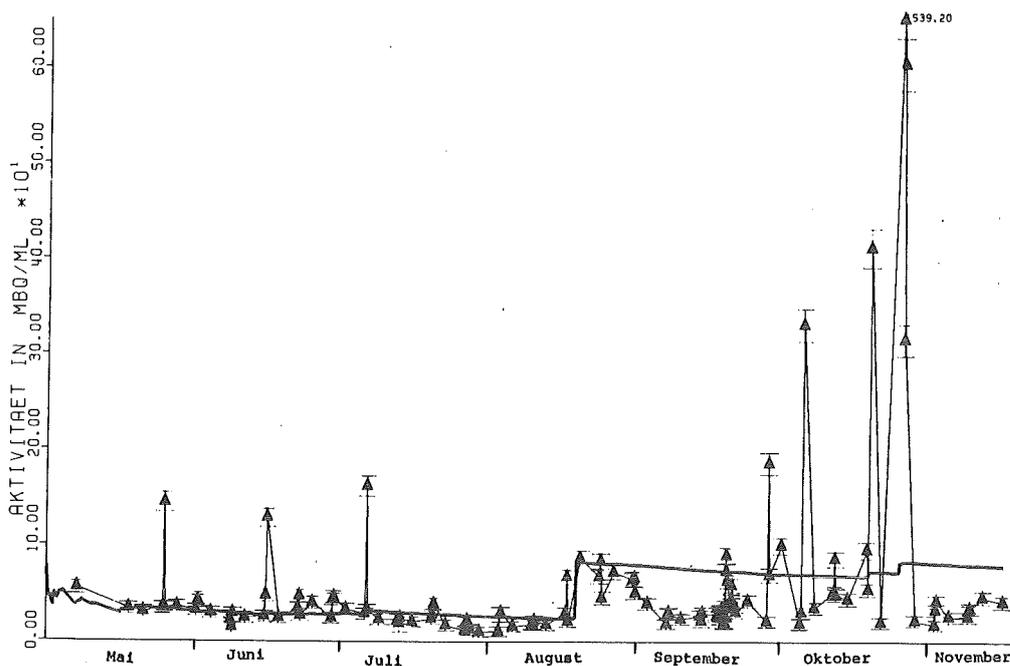


Abb. 3/32: Verlauf der HTO-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte (s. Text)

In Abbn. 3/33 und 3/34 sind die OBT-Werte von 1981 und 1982 wiedergegeben. Durch Multiplikation von \bar{C}_t mit Faktoren f von 1,5 bis 3,0 läßt sich die Kurve soweit verschieben, daß sie in den Bereich fällt, in dem für längere Perioden die meisten Blattwerte liegen. Der Unterschied der Bilder, die sich jeweils aus den Werten der Jahre 1981 und 1982 ergeben, macht allerdings deutlich, daß sich Schlußfolgerungen daraus nur mit größter Vorsicht auf andere Expositionsverhältnisse übertragen lassen.

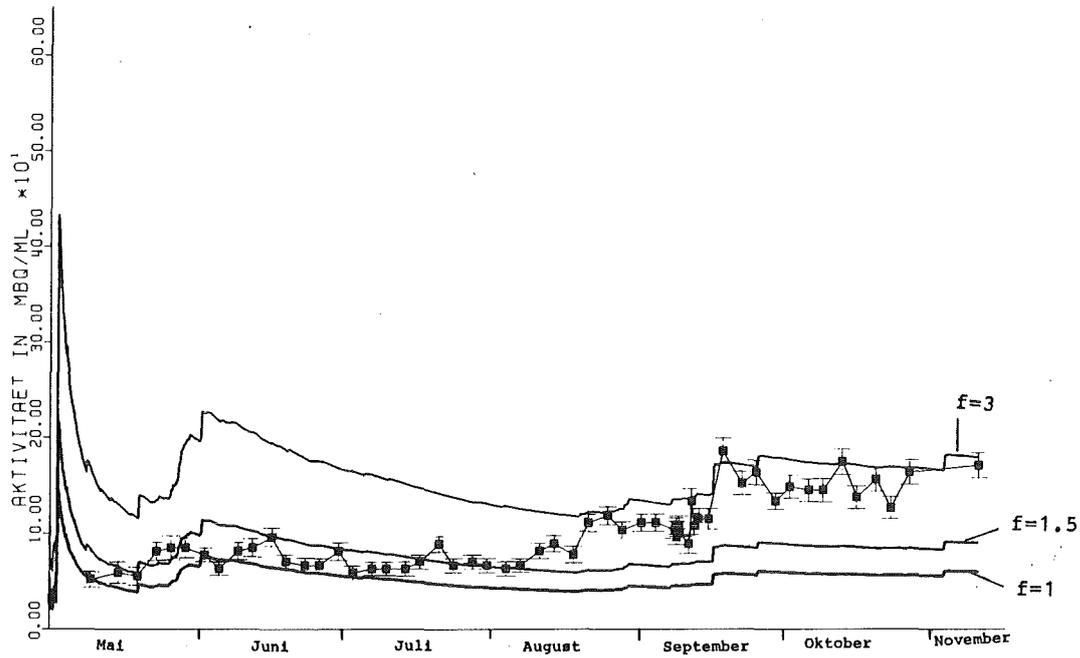


Abb. 3/33: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1981 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte (s. Text)

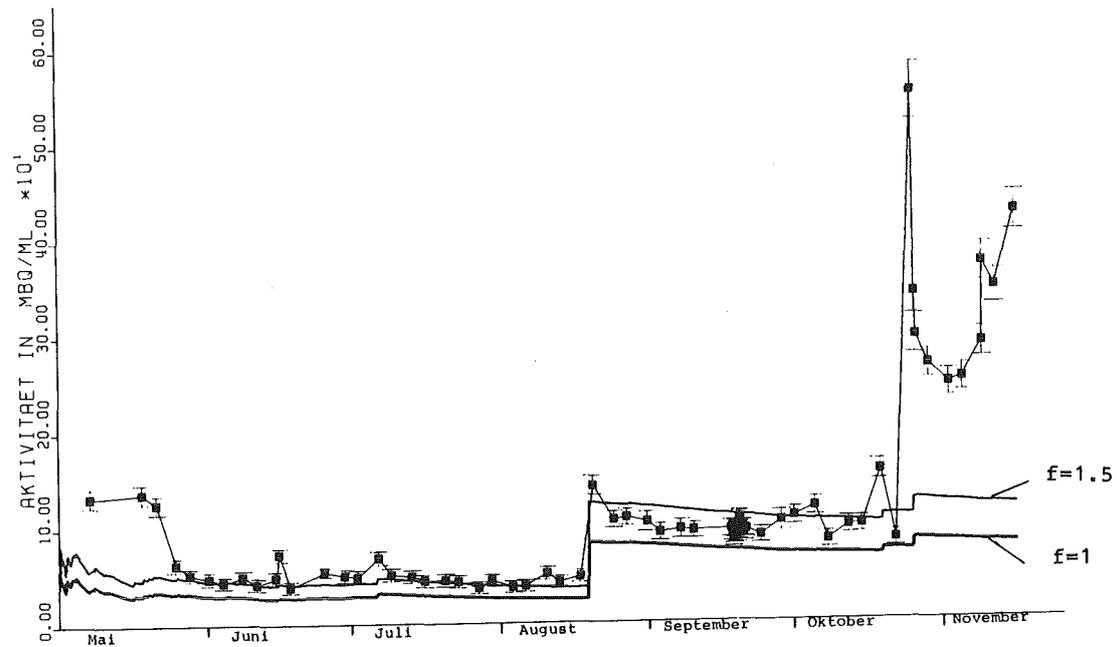


Abb. 3/34: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte (s. Text)

In den Abbn. 3/35 bis 3/37 sind mit den HTO- bzw. OBT-Werten von 1982 noch weitere Berechnungen von \bar{C}_t dargestellt, und zwar derart, daß auch der Einfluß des Bodenwassers (zu 50 %) sowie die Tag-/Nachtunterschiede berücksichtigt werden. Das Bild ändert sich dadurch allerdings nur unwesentlich.

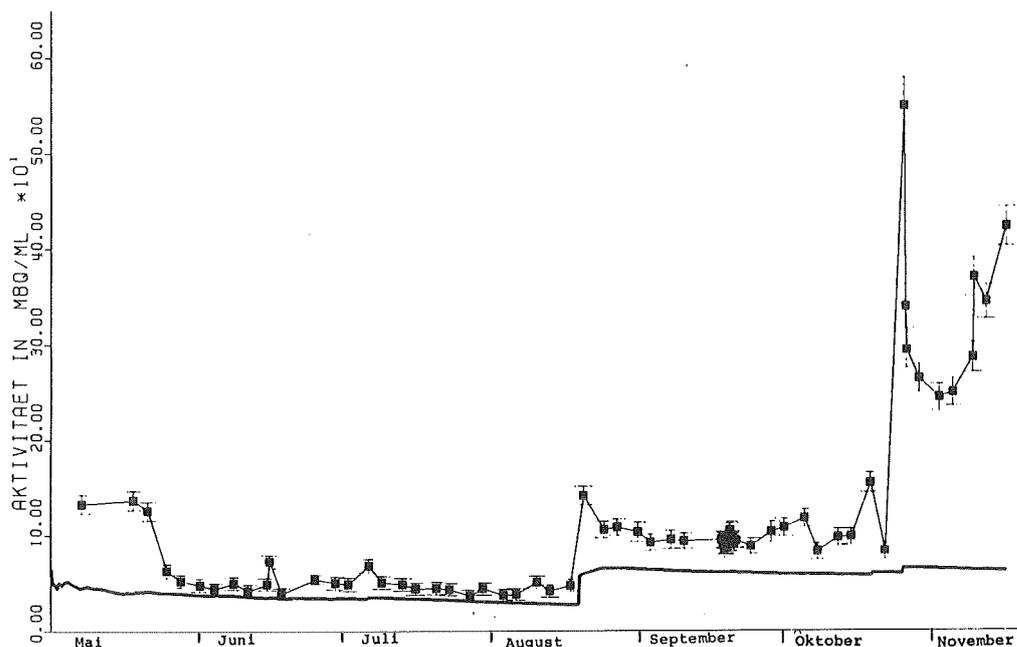


Abb. 3/35: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte und der Bodenfeuchte berechnet nach der Formel:

$$\left(\frac{\Sigma \text{HTO}_{\text{Luftfeuchte}} + \text{HTO}_{\text{Boden}}}{2} \cdot t_{\text{Sammelzeit}} \right) \cdot t_{\text{ges.}}^{-1}$$

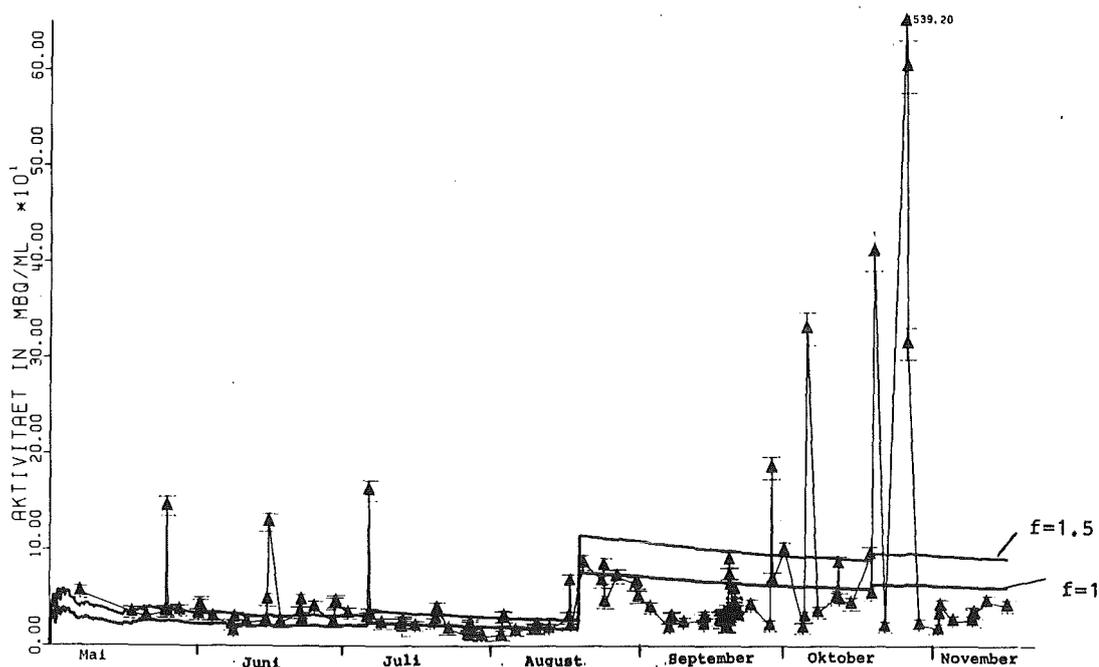


Abb. 3/36: Verlauf der HTO-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte, die jedoch nachts konstant bleibt und gleich dem zuletzt berechneten Wert vom Tage ist.

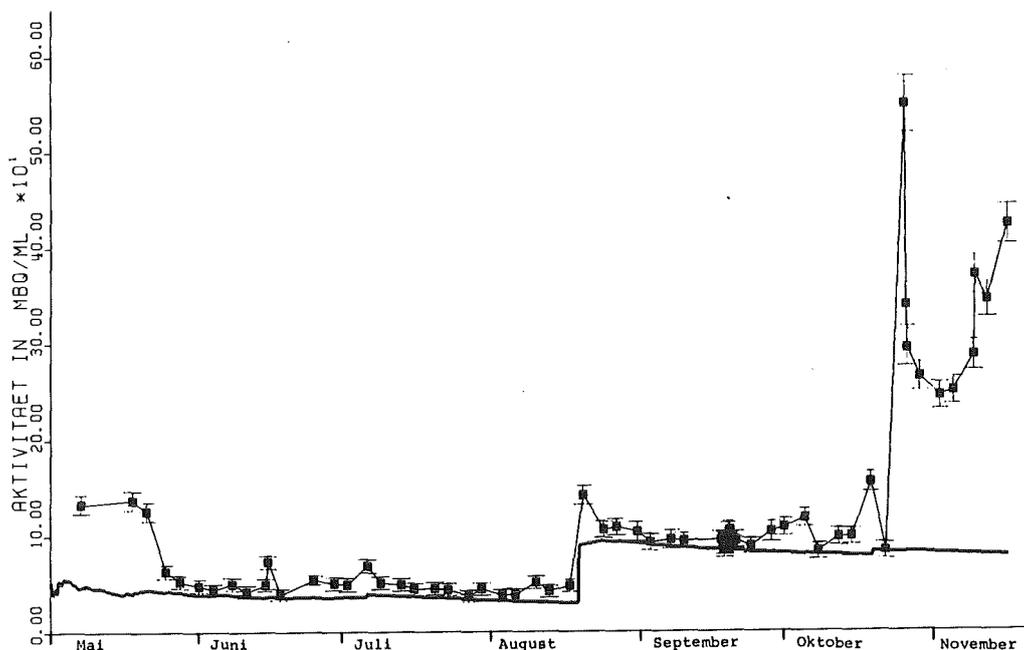


Abb. 3/37: Verlauf der OBT-Konzentrationen in den Blattproben während der Vegetationsperiode 1982 im Vergleich zu den mittleren HTO-Konzentrationen in der Luftfeuchte unter Berücksichtigung der mittleren HTO-Konzentrationen in der Bodenfeuchte während der Nacht.

4. Beaufschlagung der Umgebung über den Wasserpfad

Durch die Tritiumableitungen mit dem Abwasser des KfK gelangt Tritium in den Vorfluter (s. 4.1), was zu einer Beaufschlagung von Fischen und Wasserpflanzen (s. 4.2), des Grundwassers (s. 4.3) und damit von benachbarten Oberflächengewässern und Eigenwasserversorgungen (s. 4.4) führt. Eine erhöhte Tritiumkonzentration ist auch noch unmittelbar hinter der Einleitungsstelle in den Rhein nachzuweisen (s. 4.5). Über die Abluft abgegebenes Tritium ist in Niederschlägen nachzuweisen und gelangt mit dem Regenwasser (ca. $2 \cdot 10^5 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ /KÖN 83c/in den Hirschgraben an der Ostgrenze des KfK (s. Abb. 4/2 oder 4/3), in den auch nicht-radioaktives Kühlwasser (einige $10^6 \text{ m}^3 \text{ a}^{-1}$) eingeleitet wird (s. 4.8).

4.1 Beaufschlagung des Vorfluters

Wie bereits in Kap. 2 erwähnt wurde, wird der Inhalt eines Chemiewasserendbeckens innerhalb drei Stunden abgepumpt. Dies entspricht einer Abwasserableitung von 56 l s^{-1} . Nach in /PIM 80/ angegebenen Daten beträgt an der Einleitungsstelle der Abwässer der Wasserdurchsatz des Vorfluters im Jahresmittel 280 l s^{-1} . Unter der an sich nicht erfüllten Voraussetzung einer unendlich schnellen Durchmischung mit dem Wasser des Vorfluters ist also bestenfalls eine momentane Verdünnung um den Faktor 1/5 zu erwarten. Mittelt man über die Zeit, d. h., berücksichtigt man die Zeit, in der kein Abwasser abgegeben wird, so erhält man einen weiteren "Verdünnungsfaktor" 1/4, was im Endergebnis zu einer Verdünnung um den Faktor 1/20 führt. Wie in /PIM 80/ gezeigt wurde, erfolgt entlang des Vorfluters in Fließrichtung eine weitere Verdünnung, die nach 175 km den Faktor 1/125 erreicht. In Abb. 4/1 sind die Tritiumkonzentrationen kontinuierlich genommener Proben dargestellt.

Die abgeleiteten Abwässer erreichen spätestens 23,6 km nach der Einleitung den Rhein. Querverbindungen entsprechend dem jeweiligen Wasserstand sind möglich, jedoch wegen des hierfür notwendigen Aufwandes nicht im einzelnen zu verfolgen. Der Fließweg des Abwassers ist in den Abbn. 4/2 und 4/3 eingetragen.

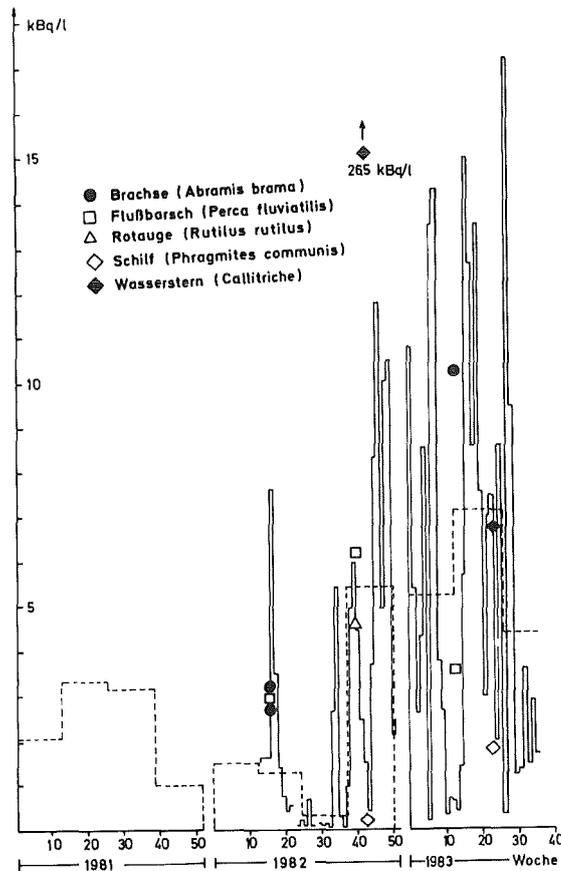


Abb. 4/1: Tritiumkonzentration im Vorfluter und in organischem Material aus dem Vorfluter

Die Tritiumkontamination des Vorfluters führt zu einer Tritiumaufnahme durch im Vorfluter lebende Fische und Wasserpflanzen und des Grundwassers, über die nachstehend im einzelnen berichtet wird.

Entsprechend der zeitlichen Verteilung der Abpumpvorgänge und der Strömungsverhältnisse ist im Vorfluter eine räumlich und zeitlich veränderliche Tritiumkonzentration zu erwarten. Daher sind Schwankungen der Tritiumkonzentration in Umweltproben zu erwarten, wobei eine gewisse Dämpfung dieser Schwankungen durch Austauschvorgänge mit verschiedenen Wasservolumina (z. B. Grundwasser, Körperwasser) bewirkt wird.

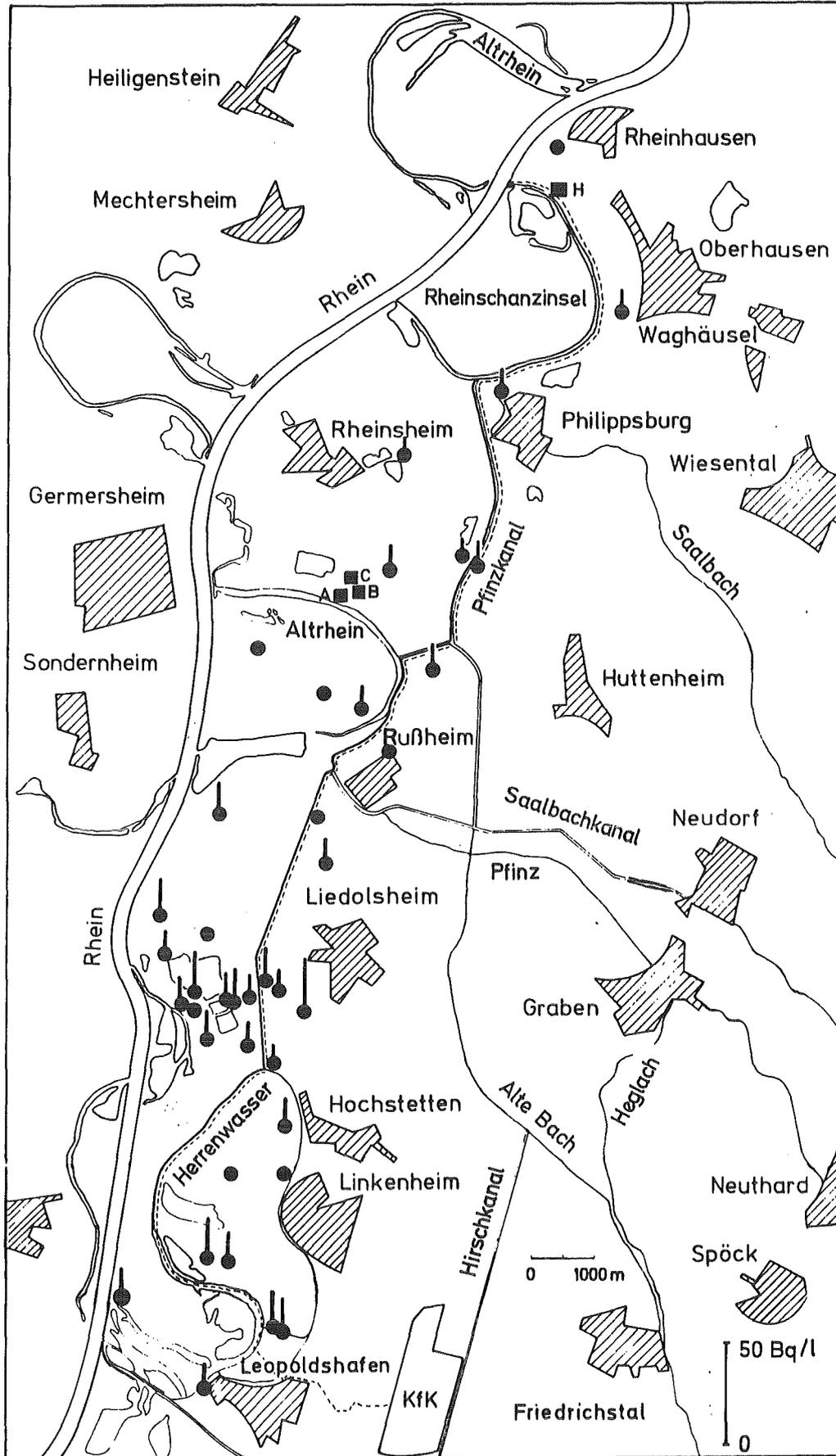


Abb. 4/2: Tritiumkonzentration im Grundwasser (März 1983)
 --- Fließweg des Abwassers

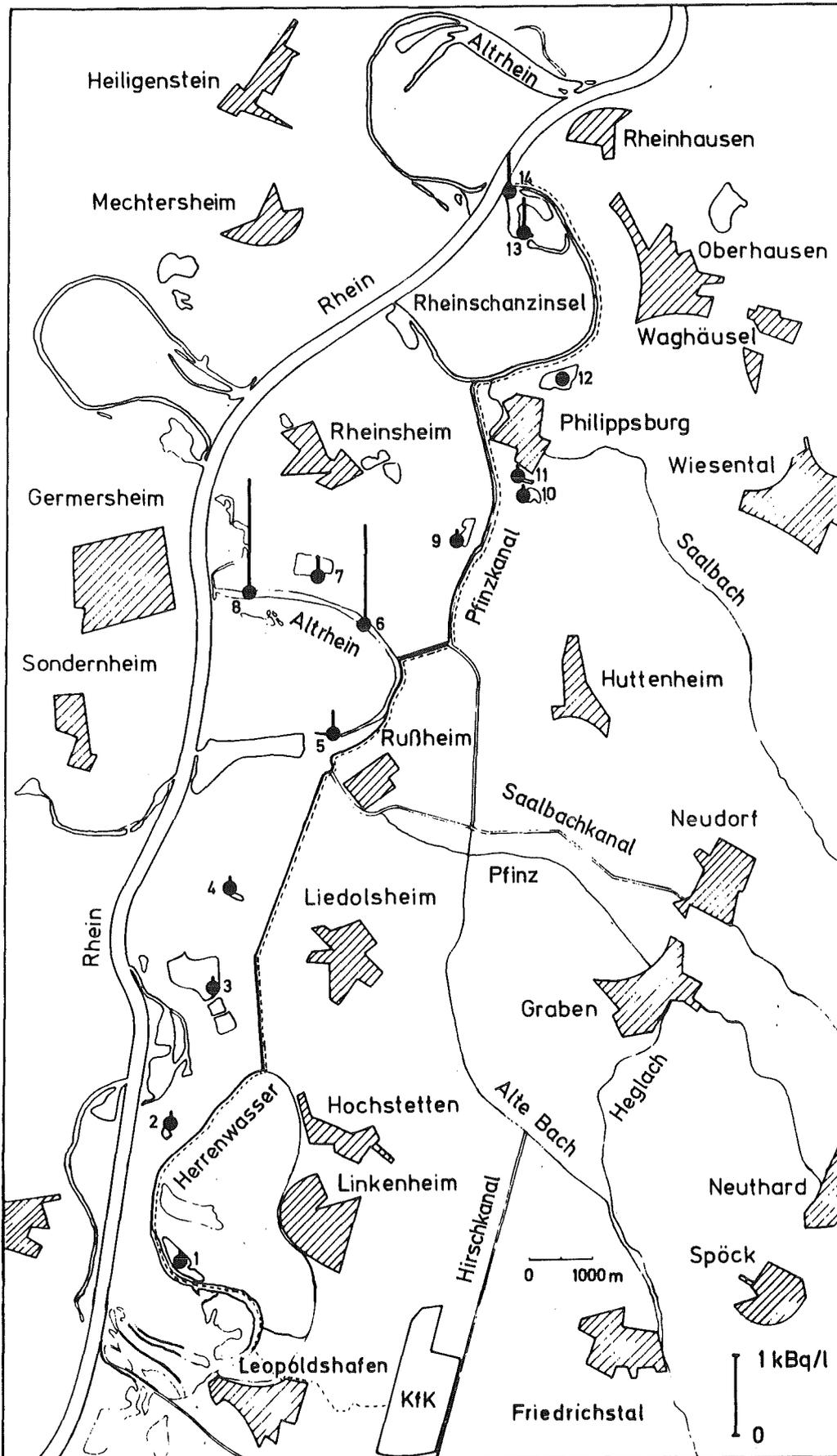


Abb. 4/3: Tritiumkonzentration im Oberflächenwasser (Juli 1982)
 --- Fließweg des Abwassers

4.2 Wasserpflanzen und Fische

In Tab. 4/1 sind eine Reihe von Tritiumkonzentrationen zusammengestellt, wie sie in Fischen und Wasserpflanzen gemessen wurden, die aus dem Vorfluter für das KfK-Abwasser (Altrhein) unterhalb der Einleitungsstelle entnommen wurden. Die HTO-Konzentrationen der Fische sind im Vergleich zu den durchschnittlichen Tritiumkonzentrationen im Altrheinwasser von einigen Bq ml^{-1} recht niedrig. An der Fangstelle schwanken die Tritiumkonzentrationen allerdings extrem, und die gemessene HTO-Konzentration hängt somit sehr stark vom Zeitpunkt der Probenentnahme und der dann gerade vorhandenen aktuellen HTO-Konzentration ab. Außerdem ist durch Austauschvorgänge zwischen Probe und Umgebung ein rascher Rückgang der HTO-Konzentration in der Probe möglich. Z. B. ist es üblich, daß Angler gefangene Fische zur Geschmacksverbesserung einige Zeit in Gefäßen schwimmen lassen, die mit Leitungswasser gefüllt sind. Auch Waschen und Zubereitung wirken sich verringernd auf die Aufnahme von Tritium in Form von HTO aus.

An den OBT-Werten läßt es sich dann auch sehr gut erkennen, daß die Tritiumbelastung der Fische höher ist, als dies durch die HTO-Werte zum Ausdruck kommt. Die OBT-Konzentrationen des Wassersterns zeigt, daß zumindest die pflanzenfressenden Friedfische wie Brachse und Rotauge sehr viel OBT bereits mit der Nahrung aufnehmen. Für die Bewertung dieser doch relativ hohen OBT-Werte sei hier eine einfache Abschätzung angeführt: Legt man die Medianwerte der Tritiumkonzentrationen bei den Fischproben zugrunde ($\text{HTO} = 55 \text{ mBq ml}^{-1}$, $\text{OBT} = 3\ 170 \text{ mBq ml}^{-1}$), so entspräche der Verzehr von 100 g Fisch (Frischgewicht) einer Aufnahme von 4,1 Bq Tritium in Form von Wasser und 33,3 Bq in organisch gebundener Form. Für die Maximalwerte der gefundenen Tritiumkonzentrationen entspräche das einer Aufnahme von 15 bzw. 64 Bq. Demgegenüber liegt der Grenzwert für die jährliche Tritiumzufuhr durch Ingestion aus der Strahlenschutzverordnung bei $5,8 \cdot 10^6$ Bq. Dies gilt, wie es in der Strahlenschutzverordnung /STV 76/ Anlage IV heißt, nur für Wasser und alle Tritiumverbindungen, die unspezifisch in den intermediären Stoffwechsel eingehen und deren Umsatzrate nicht größer als die von Wasser ist.

Probenahme- datum 1982	Probenart	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹	
			HTO*	OBT**
24.04.	Brachse (Abramis brama)	75	48 ± 6	3170 ± 130
24.04.	Brachse (ohne Kopf und Innereien)	74	55 ± 7	2690 ± 110
24.04.	Flußbarsch (Perca fluviatilis)	76	73 ± 7	3030 ± 120
08.11.	Rotaugen (Rutilus rutilus)	75	207 ± 12	4560 ± 180
08.11.	Flußbarsch (Perca fluviatilis)	73	48 ± 6	6140 ± 240
22.11.	Schilf (Phragmites communis)	78	91 ± 8	216 ± 13
22.11.	Wasserstern (Callitriche)	92	6970 ± 270	26500 ± 1000

*freies Wasser, **Oxidationswasser aus Trockensubstanz

Tab. 4/1: Tritiumkonzentrationen in Fischen und Wasserpflanzen aus dem Vorfluter des KfK 1982

4.3 Tritiumausbreitung über das Grundwasser

In der Nachbarschaft des Vorfluters ist wegen dessen Kontaktes mit dem Grundwasser eine gegenüber dem fallout-bedingten Grundpegel erhöhte Tritiumkonzentration nachweisbar. In Abb. 4/2 sind die Ergebnisse einer Probenahmeaktion im März 1983 dargestellt. Die Höhe der Tritiumkonzentration ist durch die Höhe der senkrechten Balken an den durch Kreise markierten Probenahmestellen angegeben. Die Maßstäbe für die Konzentrationsangaben und die Entfernung sind in der Abbildung angegeben. Bei Meßwerten unter der Nachweisgrenze von ca. 6 Bq l⁻¹ sind keine Balken eingezeichnet. In der Abbildung sind durch Quadrate mit A, B, C und H gekennzeichnete Eigenwasserversorgungen angegeben, für die die Meßergebnisse an monatlich genommenen Proben in Abb. 4/4 zusammengestellt sind. In größerem zeitlichen Abstand durchgeführte Probenahmeaktionen analog der in Abb. 4/2 und 4/3 berichteten ergaben qualitativ das gleiche Bild, so daß hier auf eine Wiedergabe der Ergebnisse verzichtet wird /KÖN 82a, KÖN 82b/. Der starke Abfall der Tritiumkonzentration an der Probenahmestelle C (s. Abbn. 4/1 und 4/2) im Sommer 1982 ist das Ergebnis der

Bohrung eines neuen Brunnens durch den Eigentümer, da sich der alte zugesetzt hatte. Über das Grundwasser gelangt Tritium auch in dem Vorfluter benachbarte Oberflächengewässer. Typische Werte sind in Abb. 4/3 zusammengestellt. In der gleichen Abbildung werden auch Konzentrationswerte für Oberflächengewässer angegeben, die direkte Verbindungen zum Vorfluter haben. Dort traten deutlich höhere Konzentrationswerte auf (s. Maßstabsangabe!).

Genauere Angaben über die tatsächliche Bohrtiefe lagen nicht vor. Meßergebnisse aus einer einmaligen Probenahmeaktion zeigen, daß die Tritiumkonzentration im Grundwasser mit größerer Entnahmetiefe stark abnimmt (s. Tab. 4/2).

Probenahme		Bohrtiefe in m	Tritiumkonzentration in Bq l ⁻¹
Ort	Datum		
D	24.04.1981	nicht bekannt	5,6
	24.04.1981	nicht bekannt	7,4 ± 5,9
E	24.04.1981	35	5,9
F	24.04.1981	15,60	5,6
G	24.04.1981	15,70	5,6
I	31.07.1981	nicht bekannt	1 073 ± 48
	10.08.1981	nicht bekannt	999 ± 44
J	31.07.1981	nicht bekannt	352 ± 19
	10.08.1981	nicht bekannt	433 ± 22

Tab. 4/2: Tritiumkonzentration in Grundwasserproben aus Brunnen des Vorfluterbereiches (Probenahmeorte s. Abb. 4/1)

Aus dem überwachten Gebiet wurden von dem Zweckverband Bodensee-Wasserversorgung drei Grundwasserproben aus einer Tiefe von 175 m zur Messung zur Verfügung gestellt. In diesen Proben wurde kein Tritium oberhalb der Nachweisgrenze von 1,9 Bq l⁻¹ (1000-min-Messung) gefunden.

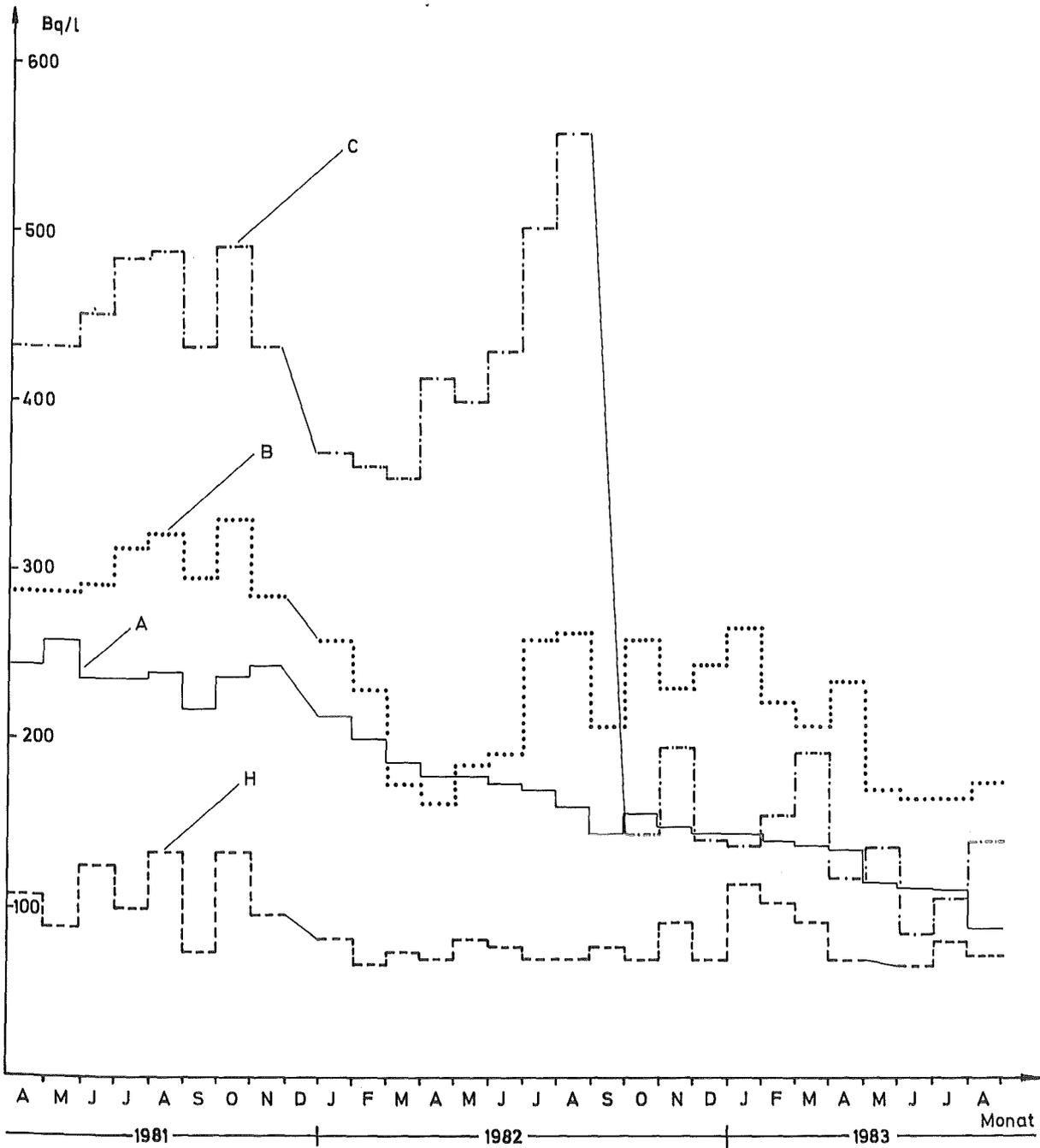


Abb. 4/4: Tritiumkonzentration im Trinkwasser (Probenahmestellen s. Abb. 4/2)

4.4 Tritiumkonzentrationen in Proben aus landwirtschaftlichen Betrieben im Gebiet um den Rheinniederungskanal

Im Zusammenhang mit Tritiummessungen an verschiedenen Eigenwasserversorgungsbrunnen im Gebiet um den Rheinniederungskanal bei Hochstetten wurden in drei landwirtschaftlichen Betrieben verschiedene Proben entnommen und auf die Konzentrationen an HTO und OBT hin untersucht. Die Ergebnisse für verschiedene Gemüsesorten, wie sie in den Betrieben zur Eigenversorgung mehr gartenmäßig angebaut werden, sind in Tab. 4/3 zusammengestellt. Die HTO-Werte unterschieden sich nicht signifikant von jenen in pflanzlichen Nahrungsmitteln aus der Umgebung des KfK. Nur jeweils drei HTO-Konzentrationswerte in Proben vom Betrieb B setzen sich sowohl 1981 wie 1982 mit Werten von 47 bis 51 bzw. 40 bis 150 mBq ml^{-1} deutlich ab. Dies könnte sich durch die besonders intensive Nutzung des zum Betrieb gehörigen Gartens mit häufiger Beregnung vom Eigenversorgungsbrunnen erklären. Der Medianwert aller Proben liegt 1981 bei 25 mBq ml^{-1} bzw. 1982 bei 26 mBq ml^{-1} .

Die Werte für OBT streuen 1981 über einen weiten Bereich von 23 bis 134 mBq ml^{-1} bzw. 1982 von 10 bis 104 mBq ml^{-1} , ohne daß sich aus diesen Meßwerten eine besondere Tendenz hinsichtlich der verschiedenen Gemüsesorten erkennen läßt. Die OBT-Werte von Betrieb B liegen 1981 bei allen, 1982 bei zwei Proben (55 und 104 mBq ml^{-1}) signifikant über dem Medianwert für die gesamten OBT-Werte von 41 bzw. 31 mBq ml^{-1} , woraus ebenfalls auf die intensivste Tritiumexposition dieser Pflanzen von allen Betrieben geschlossen werden kann.

In den Tab. 4/4 sind für eine Reihe von Proben Meßergebnisse zusammengestellt, die teils monatlich, teils stichprobenartig entnommen wurden. Da das Wasser in allen diesen Proben nicht ausschließlich aus dem Brunnenwasser stammt, ist zu erwarten, daß die Konzentrationen jeweils unter den entsprechenden Tritiumkonzentrationen des Brunnenwassers liegen.

Probenahme		Pflanzliche Nahrungsmittel	Wasser- gehalt in %	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹	
Datum	Ort			HTO*	OBT**
1981					
12.08.	A	Kartoffeln, Knollen	77	9 ± 6	23 ± 6
12.08.	A	Kartoffeln, Kraut	90	8 ± 5	113 ± 12
12.08.	A	Möhren, Wurzeln	85	27 ± 6	41 ± 6
12.08.	A	Möhren, Kraut	82	24 ± 6	35 ± 12
12.08.	A	Wirsingkohl	86	12 ± 5	24 ± 6
14.09.	A	Wirsingkohl	86	17 ± 7	41 ± 8
14.09.	A	Rotkohl	89	14 ± 7	25 ± 7
12.08.	B	Tomaten	90	47 ± 8	134 ± 14
12.08.	B	Möhren, Wurzeln	90	49 ± 7	51 ± 7
12.08.	B	Möhren, Kraut	82	51 ± 8	45 ± 6
12.08.	B	Bohnen, Früchte	87	26 ± 7	70 ± 12
12.08.	C	Gurken	92	25 ± 7	28 ± 6
1982					
30.07.	A	Kartoffeln, Kraut	85	< NWG	20 ± 6
30.07.	A	Kartoffeln, Knollen	80	6 ± 5	10 ± 5
30.07.	A	Rotkohl	89	8 ± 5	11 ± 5
30.07.	B	Gurken	96	60 ± 7	55 ± 8
30.07.	B	Bohnen	87	150 ± 10	104 ± 9
30.07.	B	Zwiebeln	83	43 ± 6	32 ± 6
30.07.	C	Karotten, Kraut	84	14 ± 5	17 ± 5
30.07.	C	Karotten, Wurzeln	88	17 ± 5	29 ± 6
30.07.	C	Gurken	95	34 ± 6	41 ± 7
30.07.	C	Tomaten	94	40 ± 6	33 ± 6

*freies Wasser, **Oxidationswasser aus Trockensubstanz

Tab. 4/3: Tritiumkonzentrationen pflanzlicher Nahrungsmittel von verschiedenen landwirtschaftlichen Betrieben in der Nähe des Rheinniederungskanaals 1981 und 1982

Probenahme		Probenart	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹	
Datum	Ort		HTO*	OBT**
1981				
12.08.	A	Grünfutter	18 ± 6	50 ± 8
12.08.	A	Milch	128 ± 10	99 ± 10
14.09.	A	Grünfutter	12 ± 6	19 ± 7
14.09.	A	Milch	158 ± 12	114 ± 10
14.09.	A	Urin von Kühen	146 ± 10	-
09.10.	A	Grünfutter	24 ± 7	32 ± 8
09.10.	A	Urin von Kühen	103 ± 10	-
09.10.	A	Milch	105 ± 10	88 ± 10
12.08.	B	Schweinegülle	256 ± 14	-
14.09.	B	Urin von Schweinen	224 ± 13	-
09.10.	B	Urin von Schweinen	315 ± 19	-
14.09.	C	Urin von Schweinen	251 ± 14	-
09.10.	C	Urin von Schweinen	155 ± 12	-
1982				
27.01.	A	Milch	118 ± 10	95 ± 9
25.02.	A	Milch	119 ± 9	107 ± 9
24.03.	A	Milch	117 ± 9	105 ± 9
16.04.	A	Milch	124 ± 9	124 ± 9
18.05.	A	Grünfutter	14 ± 5	22 ± 6
24.06.	A	Milch	97 ± 8	76 ± 8
24.06.	A	Grünfutter	9 ± 5	8 ± 5
30.07.	A	Grünfutter	7 ± 5	7 ± 5
30.07.	A	Milch	93 ± 8	69 ± 7
30.07.	A	Urin von Kühen	88 ± 8	-
30.07.	A	Tränkenwasser der Kühe	166 ± 11	-
25.08.	A	Milch	104 ± 8	89 ± 8
25.08.	A	Grünfutter	9 ± 5	17 ± 6
24.09.	A	Milch	94 ± 8	75 ± 7
24.09.	A	Grünfutter	7 ± 5	33 ± 6
20.10.	A	Milch	70 ± 7	59 ± 7
20.10.	A	Grünfutter	40 ± 6	27 ± 6
24.11.	A	Grünfutter	21 ± 6	35 ± 6
24.11.	A	Milch	41 ± 6	43 ± 7
29.12.	A	Milch	83 ± 8	75 ± 8
30.07.	C	Grünfutter	7 ± 5	16 ± 6
30.07.	C	Urin von Schweinen	333 ± 17	-
30.07.	C	Tränkenwasser der Schweine	532 ± 25	-
30.07.	D	menschlicher Urin	23 ± 5	-

*freies Wasser, **Oxidationswasser aus Trockensubstanz

Tab. 4/4: Tritiumkonzentrationen in sonstigen Proben von verschiedenen landwirtschaftlichen Betrieben in der Nähe des Rheinniederungs-kanales 1981, 1982 und 1983

Probenahme		Probenart	Tritiumkonzentration in mBq ml ⁻¹	
Datum	Ort		HTO*	OBT**
1983				
26.01.	A	Milch	95 ± 8	71 ± 8
28.01.	A	Heu	29 ± 6	17 ± 6
28.01.	A	Tränkenwasser der Kühe	153 ± 10	-
28.01.	A	Silofutter	20 ± 6	26 ± 6
23.02.	A	Milch	90 ± 8	74 ± 8
23.03.	A	Heu	26 ± 6	18 ± 6
23.02.	A	Silofutter	9 ± 5	12 ± 6
23.02.	A	Tränkenwasser der Kühe	145 ± 10	-
24.03.	A	Milch	93 ± 8	71 ± 8
24.03.	A	Heu	28 ± 6	17 ± 5
24.03.	A	Silofutter	17 ± 5	12 ± 5
24.03.	A	Tränkenwasser der Kühe	135 ± 10	-
22.04.	A	Milch	94 ± 8	71 ± 8
22.04.	A	Grünfutter	8 ± 5	10 ± 5
22.04.	A	Tränkenwasser der Kühe	129 ± 10	-
31.05.	A	Milch	43 ± 6	-
31.05.	A	Grünfutter	26 ± 6	28 ± 6
31.05.	A	Tränkenwasser der Kühe	120 ± 9	-
22.06.	A	Milch	64 ± 7	50 ± 6
22.06.	A	Grünfutter	9 ± 5	13 ± 6
22.06.	A	Tränkenwasser der Kühe	121 ± 9	-
14.07.	A	Milch	70 ± 7	49 ± 6
14.07.	A	Grünfutter	5 ± 5	15 ± 5
14.07.	A	Tränkenwasser der Kühe	101 ± 8	-
19.08.	A	Milch	74 ± 7	59 ± 7
19.08.	A	Grünfutter	5 ± 5	16 ± 5
19.08.	A	Tränkenwasser der Kühe	93 ± 8	-

*freies Wasser, **Oxidationswasser aus Trockensubstanz

Tab. 4/4: Fortsetzung

In Tab. 4/5 sind die Verhältnisse

$$R_1 = \frac{\text{Tritiumkonzentration im freien Wasser (HTO)}}{\text{Tritiumkonzentration im Brunnenwasser}}$$

$$R_2 = \frac{\text{Tritiumkonzentration im Verbrennungswasser der organischen Substanz}}{\text{Tritiumkonzentration im Brunnenwasser}}$$

wiedergegeben (als Medianwerte mit Streubreite).

Probenart	Probenort	Anzahl der Werte	R ₁			R ₂		
			Min	Median	Max	Min	Median	Max
Milch	A	18	0,28	0,62	0,72	0,29	0,53	0,70
Futter:		18						
Grünfutter	A	12	0,04	0,07	0,26	0,04	0,16	0,25
Silage	A	3	0,06	0,12	0,14	0,09	0,09	0,12
Heu	A	3	0,18	0,20	0,20	0,12	0,12	0,13
Kartoffeln:		4						
Blätter	A	2	-	0,03	-	0,12	-	0,47
Knollen	A	2	0,04	-	0,05	0,06	-	0,10
Karotten:		6						
Blätter	A,B,C	3	0,03	0,10	0,16	0,04	0,14	0,15
Wurzeln	A,B,C	3	0,04	0,13	0,15	0,06	0,16	0,17
Wirsingkohl	A	2	0,05	-	0,08	0,12	-	0,19
Rotkohl	A	2	0,05	-	0,06	0,06	-	0,12
Bohnen	B	2	0,08	-	0,58	0,22	-	0,40
Tomaten	B, C	2	0,08	-	0,15	0,07	-	0,42
Gurken	B, C	3	0,05	0,07	0,23	0,06	0,08	0,21
Zwiebeln	B	1	-	0,17	-	-	0,12	
Gülle	B	1	-	0,80	-	-	-	-
Urin:								
Kühe	A	3	0,43	0,51	0,67	-	-	-
Schweine	B, C	4	0,31	0,67	0,96	-	-	-

Tab. 4/5: Relative Tritiumkonzentrationen R₁ und R₂ in Proben von landwirtschaftlichen Betrieben, bezogen auf die Tritiumkonzentration im Trinkwasser

Der größte R₁-Wert wurde mit 0,96 im Urin der Schweine gefunden. Die spezifische Aktivität des Wassers in der Milch lag im Mittel bei 62 % der des Brunnenwassers. Selbst im Winter bei Heu-Fütterung erreicht R₁

nur einen Wert von 0,72. Das läßt sich dadurch erklären, daß die Kühe während der Wintermonate neben dem Heu auch Silage als Futter bekommen. Der niedrigste R_1 -Wert in Nahrungsmitteln wurde mit 0,03 in Kartoffeln gefunden. Die R_2 -Werte der Milch liegen unter 0,4, aber höher als jene pflanzlicher Produkte, auch wenn die Kühe mit dem Futter organisch gebundenes Tritium nur in sehr geringer Konzentration zugeführt bekommen. Darin zeigt sich, daß die organischen Bestandteile, wie sie in der Milch vorliegen, in vielen Stoffwechselschritten auf dem Wege vom Magen über das Blut zu den Milchdrüsen stark verändert bzw. neu synthetisiert werden, wobei der organisch gebundene Wasserstoff weitgehend durch den Wasserstoff des umgebenden Wassers ersetzt wird.

In Abb. 4/5 sind noch einmal die monatlich gemessenen Tritiumkonzentrationen im Kuhstall des Hofes A für 1982 und 1983 zusammengestellt.

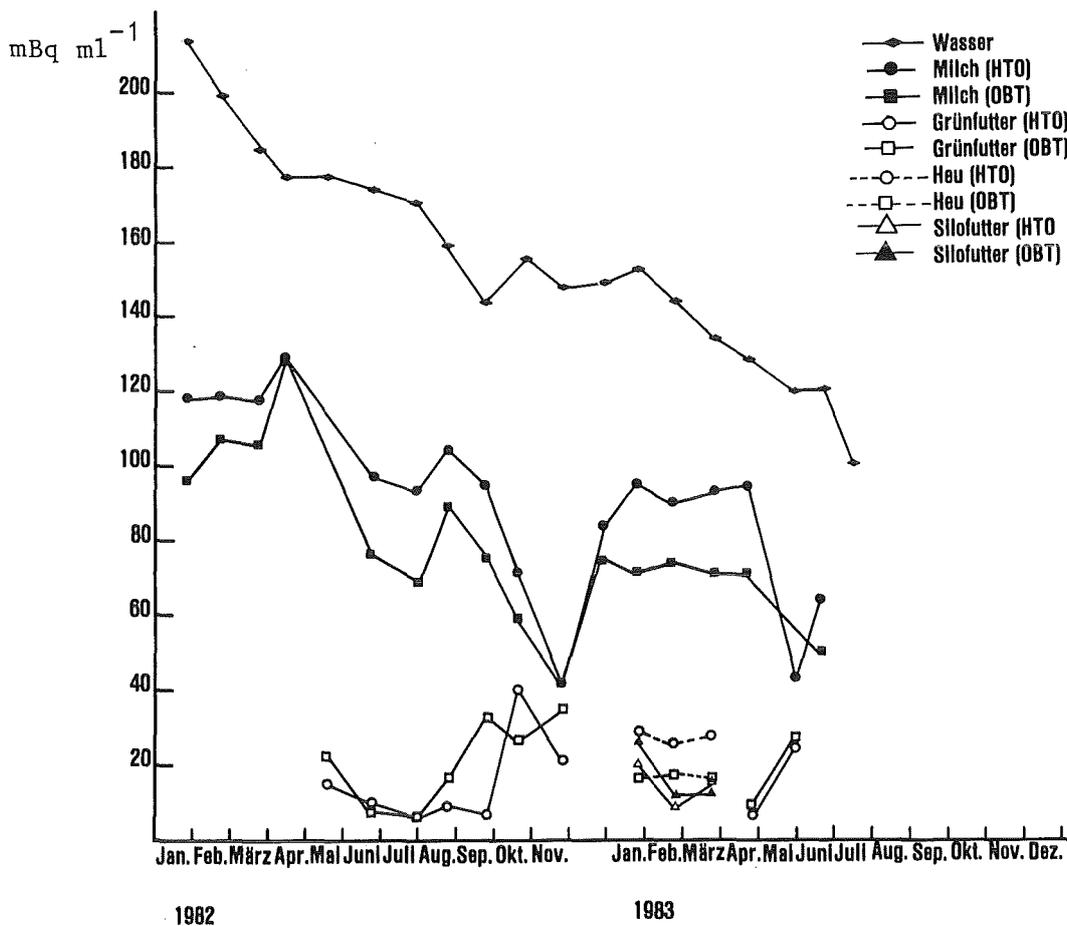


Abb. 4/5: Tritiumkonzentrationen in verschiedenen Proben von einem landwirtschaftlichen Betrieb in der Nähe des Rheinniederungskanaals

4.5 Beaufschlagung des Hirschkanals

Niederschlags- und Kühlwasser aus dem Kernforschungszentrum werden in sechs getrennten Entwässerungssystemen dem Hirschkanal, einem Wassergraben am Ostzaun des Kernforschungszentrums, über Sandfänge zugeführt. Mit dem Niederschlagswasser gelangen radioaktive Stoffe infolge von Fallout und Washout von den entwässerten Flächen in den Hirschkanal. Diese radioaktiven Stoffe stammen teils von Kernwaffenversuchen, teils auch von den genehmigten radioaktiven Ableitungen des Kernforschungszentrums in die Atmosphäre. Um die mit Niederschlägen dem Hirschkanal zugeführte Aktivität abschätzen zu können, wurden die entwässerten Flächen des Kernforschungszentrums erfaßt. In Tab. 4/6 wird eine Übersicht über die entwässerten Gebäudeflächen, die entwässerten Gesamtflächen sowie über die durchschnittlichen Niederschlagsmengen, aufgeschlüsselt nach den sechs Sandfängen, gegeben. Die Bestimmung der Flächen wurde dadurch erschwert, daß die Entwässerung sowohl von Straßenflächen als auch von Dächern teilweise nur unvollständig ist.

Sandfang Nr.	Entwässerte Gebäudefläche in ha	Entwässerte Gesamtfläche in ha	Durchschnittliche Niederschlagsmenge in m ³ /a
I	2,57	5,91	44 900
II	3,72	5,91	44 900
III	3,37	3,53	26 100
IV	1,12	1,42	10 800
V	4,32	4,32	32 900
VI	3,25	4,04	30 700
Summe	18,35	25,13	191 300

Tab. 4/6: Den einzelnen Sandfängen zugeordnete entwässerte Flächen sowie durchschnittliche Niederschlagsmengen

Im Rahmen der Routineumgebungsüberwachung wird dem Hirschgraben kontinuierlich Wasser entnommen und wöchentlich auf Radioaktivität ausgemessen. Hierbei werden i. allg. Tritiumkonzentrationen bis zu ca. 20 Bq l⁻¹ gemessen. Diese Werte sind vergleichbar mit der Tritiumkonzentration des Grundwassers in der Umgebung des KfK.

4.6 Beaufschlagung des Rheines

Der Vollständigkeit halber sind hier noch Meßergebnisse von Rheinwasserproben zitiert, die außerhalb dieses Forschungsprogramms ermittelt wurden. In Abb. 4/6 ist der Verlauf der Tritiumkonzentration entlang des Oberrheines vom Bodensee bis Mannheim zusammengestellt. Der Einfluß der Einleitungen am rechten Rheinufer bei Flußkilometer 390 ist unmittelbar flußabwärts hinter der Einleitung deutlich zu erkennen, während am linken Rheinufer keine Abweichungen vom vorgegebenen Untergrund, der durch Fallout und andere Tritiumeinleitungen bedingt, festzustellen ist.

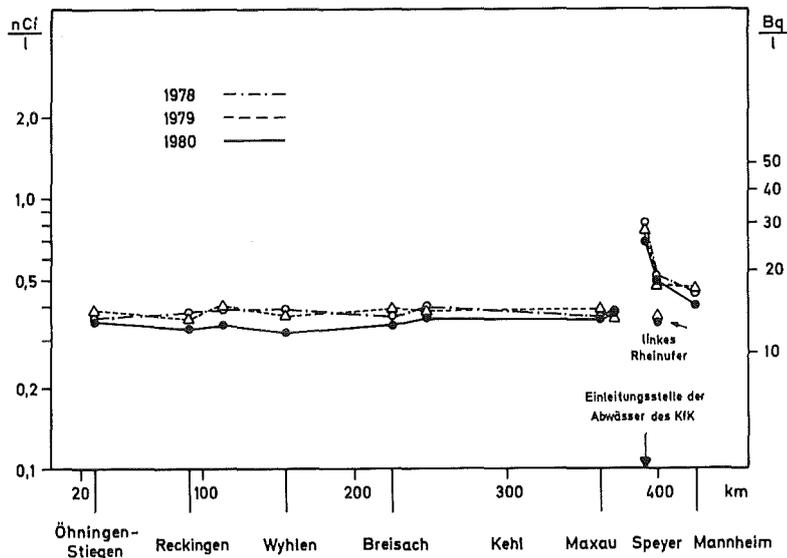


Abb. 4/6: Jahresmittelwerte der Tritiumkonzentration im Rhein zwischen Öhningen-Stiegen und Mannheim /KÖN 81b/

5. Schlußfolgerungen

Aus den bisher durchgeführten Messungen lassen sich folgende Schlußfolgerungen ableiten:

- In der Umgebung findet eine Anreicherung von Tritium nicht statt, jedoch ist eine im Vergleich zum Gewebewasser längere Retention von Tritium in organischen Materialien zu finden. Dies führt bei zeitlich schwankender Tritiumexposition dazu, daß das T/H-Verhältnis in organischer Bindung höher sein kann als im Gewebewasser.
- Die direkte Tritiumaufnahme der Pflanzen aus der Luftfeuchte muß beachtet werden.
- Angesichts der vielfältigen Ableitungen von Tritium und der Mobilität dieses Radionuklids in der Umwelt ist eine Überwachung der Nahrungsmittel auf dieses Radionuklid von Interesse.
- Bei der Planung von Tritiumableitungen über die Abluft muß der Einfluß dieser Ableitungen auf das Grundwasser mitberücksichtigt werden.
- Die in der Umgebung des KfK gewonnenen Ergebnisse an Trinkwasser- und Nahrungsmittelproben zeigen, daß die Strahlenbelastung durch dieses Nuklid unter $10 \mu\text{Sv a}^{-1}$ bleibt.

Viele unter realistischen Bedingungen ablaufende Vorgänge sind oder werden durch Zufälligkeiten, insbesondere Emissionen und Wetter beeinflusst. Daher müssen Untersuchungen der hier berichteten Art über mehrere Jahre ausgedehnt werden, damit sehr langsam verlaufende sowie überlagerte jahreszeitlich bedingte Änderungen erkannt und voreilige Schlußfolgerungen vermieden werden können.

6. Schlußbemerkungen

Neben den hier berichteten Ergebnissen liegt noch eine Reihe von Daten vor, deren Analyse ziemlich arbeitsintensiv ist. Über die bei ihrer Auswertung anfallenden Ergebnisse wird zu einem späteren Zeitpunkt berichtet werden.

Allen, die bei der Durchführung des Meßprogramms, der Auswertung der Ergebnisse und der Erstellung dieses Berichtes mitgewirkt haben, sei an dieser Stelle aufrichtig gedankt.

7. Literatur

- /BMI 79/ Der Bundesminister des Innern, Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer, BMBI. Nr. 21 (1979), S. 369-436
- /BRE 76/ H.D. Brenk, K.J. Vogt, Konzeption für eine praxisnahe Berechnung der Ablagerung radioaktiver Stoffe aus der Abluft kerntechnischer Anlagen durch Niederschlag, Jül-1328 (1976)
- /HÜB 78/ W. Hübschmann, D. Nagel, ISOLA-III - Ein FORTRAN-IV-Programm zur Berechnung der langfristigen Dosisverteilung in der Umgebung kerntechnischer Anlagen, KfK-2698 (1978)
- /JAH 70/ Jahresbericht 1969 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-1158, März 1970
- /JAH 71/ Jahresbericht 1970 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-1365, Februar 1971
- /JAH 72/ Jahresbericht 1971 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-1565, März 1972
- /JAH 73/ Jahresbericht 1972 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-1818, Mai 1973
- /JAH 74/ Jahresbericht 1973 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-1973, April 1974
- /JAH 75/ Jahresbericht 1974 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-2155, Mai 1975
- /JAH 76/ Jahresbericht 1975 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-2266, Mai 1976
- /JAH 77/ Jahresbericht 1976 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-2433, Mai 1977
- /JAH 78/ Jahresbericht 1977 der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-2620, März 1978
- /JAH 79/ Jahresbericht 1978 der Abteilung Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, KfK-2775, April 1979
- /JAH 80/ Jahresbericht 1979 der Hauptabteilung Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König, KfK-2939, April 1980
- /JAH 81/ Jahresbericht 1980 der Hauptabteilung Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König, KfK-3113, April 1981
- /JAH 82/ Jahresbericht 1981 der Hauptabteilung Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König, KfK-3272, März 1982

- /JAH 83/ Jahresbericht 1982 der Hauptabteilung Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König, KfK-3535, April 1983
- /JAH 84/ Jahresbericht 1983 der Hauptabteilung Sicherheit, Hrsg.: H. Kiefer, W. Koelzer, L.A. König, KfK-3663, April 1984
- /KÖN 81a/ L.A. König, K.-G. Langguth, S. Schulte, S. Strack, M. Winter, Beitrag zu /JAH 81/, KfK-3113, S. 151-153
- /KÖN 81b/ L.A. König, K.-G. Langguth, M. Winter, Beitrag zu /JAH 81/, KfK-3113, S. 145-150
- /KÖN 82a/ L.A. König, K.-G. Langguth, D. Papadopoulos, Annales de l'Association Belge de Radioprotection, 7, n° 3-9, 199 (1982)
- /KÖN 82b/ L.A. König, K.-G. Langguth, D. Papadopoulos, S. Strack, Tritium in Nahrungsmitteln und Trinkwasser, Beitrag zu "Schadstoffe in Nahrungsketten", AGF-Tagung, 4. und 5. November 1982, Bonn
- /KÖN 83a/ L.A. König, K.-G. Langguth, D. Papadopoulos, S. Strack, Aquatic Transfer of Tritium, Seminar on the Environmental Transfer to Man of Radionuclides released from Nuclear Installations, IAEA-SR-85/16, 17.-21. Oktober 1983, Brüssel
- /KÖN 83b/ L.A. König, Beitrag zu /JAH 83/, KfK-3535, S. 159-161
- /KÖN 83c/ L.A. König, H. Fessler, K.-G. Langguth, D. Papadopoulos, A. Radziwill, Radioökologische Auswirkungen des langjährigen Betriebs der kerntechnischen Anlagen des Kernforschungszentrums Karlsruhe auf dessen nähere Umgebung -Befristete Einzeluntersuchungen in Erweiterung und Ergänzung des routinemäßigen Überwachungsprogramms
KfK-3459 (Februar 1983)
- /PAP 82/ D. Papadopoulos, L.A. König, K.-G. Langguth, Annales de l'Association Belge de Radioprotection, 7, n° 3-4 (1982)
- /PIM 80/ M. Pimpl, H. Schüttelkopf, Die Messung der Abwasserverdünnung im Altrhein mit der Tritiumemission des Kernforschungszentrums Karlsruhe, KfK-3073 (1980)
- /POL 50/ H. Polster, Die physikalischen Grundlagen der Stoffherzeugung im Walde, Bayerischer Landwirtschaftsverlag, München (1950)
- /STR 78/ S. Strack, Biokinetische Untersuchungen über organisch gebundenes Tritium in Algenkulturen, Reimer, Berlin (1978)
- /STR 81a/ S. Strack, L.A. König, Determination of Organically Bound Tritium in Environmental Samples by Application of the Oxidizing Plasma Technique, KfK-3249, November 1981,
- /STR 81b/ S. Strack, S. Schulte, Beitrag zu /JAH 81/, KfK-3113, S. 151-153

- /STR 82a/ S. Strack, Beitrag zu /JAH 82/, KfK-3272, S. 159-169
- /STR 82b/ S. Strack, Behaviour of Tritium in the Water Pool and Organic Pool of the Leaves of a Beech Tree, Annales de l'Association Belge de Radioprotection, 7, n° 3-9, (1982) S. 213-227
- /STR 82c/ S. Strack, Radioökologische Untersuchungen über organisch gebundenes Tritium, KfK-Nachrichten, 14 (1982) S. 278-281
- /STR 83a/ S. Strack, S. Schulte, G. Pagliosa, Beitrag zu /JAH 83/, KfK-3535, S. 142-155
- /STR 83b/ S. Strack, L.A. König, Investigation of the Dynamic Behaviour of Tritium in Plants Following Instantaneous Releases of Tritiated Water Vapour Into the Atmosphere, EG-Seminar über die Übertragung von radioaktiven Stoffen in der terrestrischen Umwelt nach einer unfallbedingten atmosphärischen Aktivitätsfreisetzung, Dublin, 11.-15. April 1983, Tagungsbericht in Druck
- /STV 76/ Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen vom 13. Oktober 1976, BGBI. I, S. 2905; Berichtigungen vom 21. Januar 1977, BGBI. I, S. 184 und vom 1. Februar 1977, BGBI. I, S. 269
- /VOG 80/ S. Vogt, Vierparametrische Ausbreitungsstatistik als Berechnungsgrundlage der langzeitigen Schadstoffbelastung in der Umgebung eines Emittenten, KfK-2990 (1980)