KfK 4311 Dezember 1987

Radioaktivität im Wald und in Einzelbäumen als Folge des Reaktorunfalls von Tschernobyl

L. A. König, H. Fessler, S. Hempelmann, F. Milbich-Münzer Hauptabteilung Sicherheit

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE Hauptabteilung Sicherheit

KfK 4311

Radioaktivität im Wald und in Einzelbäumen als Folge des Reaktorunfalls von Tschernobyl

L.A. König, H. Fessler, S. Hempelmann, F. Milbich-Münzer

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Es wird über nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl durchgeführte Radioaktivitätsmessungen im Raum Karlsruhe berichtet. Die pro km² abgelagerte Aktivität ist vergleichbar mit der Summe der Aerosolableitungen sämtlicher Kernkraftwerke in der Bundesrepublik Deutschland. Es werden die Ergebnisse von Aktivitätsmessungen an Blatt- und Nadelproben aus dem Jahr 1986 jenen aus dem Jahr 1987 gegenübergestellt. Das Verhalten der Cäsiumaktivität in Bäumen wird diskutiert. Ferner werden Meßergebnisse an Bewuchsproben (einschließlich Pilzen) aus dem Jahr 1987 mitgeteilt. Die im Fleisch von Rehen aus dem gleichen Raum zu erwartende Cs-Aktivität wird abgeschätzt.

Radioactivity in Forests and Single Trees Caused by the Chernobyl Reactor Accident

Abstract

A report is presented about radioactivity measurements carried out in the Karlsruhe region following the Chernobyl reactor accident. The activity deposited per km² is comparable with the sum of aerosols released from all nuclear power plants in the Federal Republic of Germany. Results of measurements performed in 1986 on leaf and needle samples are compared to the corresponding results obtained in 1987. The behavior of cesium activity in trees is discussed. In addition the results of measurements made in 1987 on small vegetation, especially fungi, are indicated. The Cs-activity expected to be found in the meat of deer of the same region is estimated.

Inhaltsverzeichnis

Seite

1	Einleitung 1
2	Die natürliche Strahlenexposition von Blättern und Nadeln $\ldots 2$
3	Strahlenexposition von Blättern und Nadeln durch den
	Reaktorunfall von Tschernobyl 3
3.1	Kontamination mit Cs-134 und Cs-137 5
3.2	Sonstige Spaltprodukte außer Edelgase 6
3.3	Radioaktive Edelgase 8
3.4	Die Strahlenexposition von Blättern und Nadeln durch den
	Reaktorunfall von Tschernobyl 9
4	Radioaktivität im Boden 12
5	Radioaktivität in sonstigem Bewuchs 14
6	Radioaktivität in Wild 16
7	Folgerungen und Schlußbemerkungen 17
8	Literatur 19

Liste der Tabellen

Tab. 1:	Natürliche Aktivität in Blättern und Nadeln
Tab. 2:	Natürliche Strahlenexposition von Blättern und Nadeln
Tab. 3:	Meßergebnisse von Blatt-, Frucht-, Holz- und Nadelproben
Tab. 4:	Verhältnisse der Aktivitätskonzentrationen von 1986 und 1987 in Blatt- und Nadelproben
Tab. 5:	Meßergebnisse für weitere Radionuklide an Blatt-, Frucht- und Nadelproben im Jahr 1986
Tab. 6:	Grobe Dosisabschätzung
Tab. 7:	y-Dosisfaktoren für kontaminierten Boden
Tab. 8:	Aktivitätskonzentration in Streu, Auflagehumus und Boden bei der Probenahmestelle 3/8
Tab. 9:	Waldböden, Probenahmetiefe 5 cm
Tab. 10:	Aktivitätskonzentration in Bewuchs
Tab. 11:	Aktivitätskonzentration in Pilzen aus dem Hardtwald

1 Einleitung

Im Zusammenhang mit dem Reaktorunfall von Tschernobyl wurden von der Abteilung Radioökologie (HS/R) der Hauptabteilung Sicherheit (HS) des Kernforschungszentrums Karlsruhe zahlreiche Proben auf Radioaktivität ausgemessen. Es lag nahe, solche Messungen nicht nur an den Erfordernissen des Strahlenschutzes des Menschen zu orientieren, sondern zugleich auch eine optimale Ausbeute an radioökologischen Erkenntnissen anzustreben. Dabei wurde neben anderem auch das Okosystem Wald ins Auge gefaßt, wobei auch frei stehende Bäume erfaßt wurden. Für diese Untersuchungen sprachen verschiedene Gründe: In den Jahresberichten "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" der jeweils zuständigen Bonner Ministerien wurden immer wieder auffallende Cs-137-Meßwerte in Wild sowie in Pilzen aufgeführt, die auf den Kernwaffenfallout zurückzuführen waren und die zeigten, daß in Nahrungsmitteln aus dem Okosystem Wald auch nach mehreren Jahren - verglichen mit landwirtschaftlichen Produkten - mit deutlich erhöhten Aktivitätswerten zu rechnen war. Außerdem war die Diskussion über den behaupteten Zusammenhang zwischen Umweltradioaktivität und Waldschäden (vgl. z. B. [1, 2]) vorausgegangen.

Von dem Tschernobyl-Unfall herstammende Aktivität wurde in beträchtlichem Umfang auf Blättern bzw. Nadeln von Bäumen abgelagert, von wo sie zum Teil in die Nahrungskette zum Menschen gelangt und somit zur Strahlenexposition beiträgt. In einem Vortrag bei dem Forum "Einfluß radioaktiver Stoffe auf das Schadstoffpotential der Atmosphäre und auf die Aktivitätsbelastung von Pflanzen" war die Strahlenexposition von Bäumen durch den Reaktorunfall von Tschernobyl behandelt worden [3].

Um die Strahlenexposition durch den Tschernobyl-Unfall richtig bewerten zu können, ist es notwendig, die natürliche Strahlenexposition zu kennen.

Feinwurzeln von Bäumen werden hier nicht betrachtet, da diese bei Bäumen zum überwiegenden Teil nicht von dem radioaktiven Fallout nach dem Reaktorunfall betroffen sind. Die vertikale Migrationsgeschwindigkeit der in Frage kommenden Radionuklide beträgt im langfristigen Mittel nur einige mm/a. (Unmittelbar nach der Deposition mit Niederschlägen kann die Aktivität wenige cm in den Boden eindringen.) Im folgenden werden die in dem Vortrag berichteten Ergebnisse wiederholt und durch Meßwerte aus dem laufenden Jahr ergänzt. Dabei wird auch auf den Aktivitätseintrag im Boden sowie auf die Aktivität in Bewuchs und Wild eingegangen.

2 Die natürliche Strahlenexposition von Blättern und Nadeln

Pflanzen sind wie alle Organismen der Strahlung natürlicher Strahlenquellen ausgesetzt. In Tab. 1 sind einige Angaben über die in Blatt- und Nadelproben zu findende Aktivität prokg zusammengestellt [2].

Nuklid	Bq/kg Frischmasse
H-3 (Blätter)	0,3 - 0,7
H-3 (Nadeln)	0,2 - 0,5
Be-7	~ 70
C-14	45 - 70
K-40	30 - 150
U-238, U-234	0,003 - 0,03
Th-232, Th-230	≤ 0,003
Ra-226, Ra-228	0,01 - 0,15
Pb-210 (Blätter)	3 - 20
Pb-210 (Nadeln)	2 - 115
Verhältnis Po-210/Pb-210	0,5 - 1

 Tab. 1:
 Natürliche Aktivität in Blättern und Nadeln (siehe z. B. [2])

Aus den angegebenen Daten ergeben sich die in Tab. 2 angegebenen Dosisleistungen [2].

Ohne Berücksichtigung der Lebensdauer (bei Blättern ca. 0,5 a) erhält man für die Energiedosis pro Jahr für a-Strahlung (0,04 - 0,44) mGy/a und für β -, γ -Strahlung (0,44 - 1,75) mGy/a.

Bestrahlur Strahlenq	ngsart uelle	a	ß, _Y
		Dosisleistung i	n nGy/h
Externe Bestrahlung	Kosmische Strahlung Bodenstrahlung Atmosphärische	-	40 (32 - 45) 60 (20 - 150)
	Strahlung	-	ca. 5 - 10
Interne Bestrahlung	H-3 (nat.) C-14 (nat.) K-40	- -	0,0015 1,6 (1,2 - 2) 3 (1 - 6)
	U-238 - Ra-226 Th-232 - Ra-224	0,3 (0,1 - 1)	0,006
	Rn-222, Rn-220 + kurzleb. Zer- fallsprodukte	0,1 (0,04 - 0,4)	0,0012
	Pb-210 - Po-210	20 (5 - 50)	0,4 (0,1 - 1)
	Summe	20 (5 - 50)	110 (50 - 200)

 Tab. 2:
 Natürliche Strahlenexposition von Blättern und Nadeln [2]

3 Strahlenexposition von Blättern und Nadeln durch den Reaktorunfall von Tschernobyl

Bei der Mitteilung der Kontaminationen wird zwischen den radioaktiven Cäsiumisotopen 134 und 137 (Tab. 3) und sonstigen Nukliden (Tab. 5) unterschieden, da nur die ersteren 1986 und 1987 nachweisbar waren. Eine präzisere botanische Bestimmung der Bäume war nicht möglich, da hierfür bei der Probenahme kein geschultes Personal zur Verfügung stand.

Verschiedene Gebiete in Süddeutschland waren erheblich höher durch den Tschernobyl-Fallout belastet worden. Die in den Tabn. 3 und 5 genannten Werte müßten demnach dort erheblich überschritten worden sein. Neben Meßwerten sind im folgenden stets 30-Fehler angegeben.

Probe- Dro		1986			1987		
nah- meort	benart	Datum	Cs-134 Bq/kg FS	Cs-137 Bq/kg FS	Datum	Cs-134 Bq/kg FS	Cs-137 Bq/kg FS
			На	inbuche			
1 2 3 3	B B B B	05.05. 20.08. - -	250 ± 50 124 ± 22 -	460 ± 60 291±24 -	24.09. 10.06. 25.06. 18.08.	12 ± 1 14 ± 10 $9,2\pm 2,8$ 20 ± 2 $8,7\pm 1,4$	40 ± 2 34 ± 12 29 ± 4 59 ± 5 24 ± 2
3	п	-	-	-	10.00.	0,1 ± 1,4	24 I 2
			Ro	thucho*			
4-1 4-2 4-3	B B B	19.09. 19.09. 19.09.	27±9 57±15 45±20	46 ± 18 157 ± 29 115 ± 19	03.09. 03.09. 03.09.	$3,7\pm1,0\7,5\pm1,6\6,2\pm1,2$	$21\pm 2 \\ 42\pm 6 \\ 26\pm 3$
			,	Richo			
5 6	B B	10.06. 09.07.	$56 \pm 16 \\ 24 \pm 6$	110 ± 24 52 ± 11	08.09. -	$5,6\pm 1,2$	27 ± 3
7 7 7	B B F	20.08. 18.09. 18.09.	12 ± 8 12 ± 3 16 ± 2	30 ± 11 33 ± 3 38 ± 2	10.06. - -	3,4±2,8 - -	10±3 - -
7 8 8 8	B B B H	27.10. - - -	23±5 - - -	63±7 - -	- 25.06. 18.08. 18.08.	$-9,9\pm2,1$ $9,6\pm1,2$ $5,5\pm0,8$	-27 ± 3 30 ± 3 18 ± 2
			* 7 •				
9 9 10	F B B	$25.06. \\ 08.08. \\ 06.11.$	$\begin{array}{c} \text{Kirs} \\ 9,0\pm1,6 \\ 26\pm8 \\ 21\pm4 \end{array}$	schbaum 17±2 60±14 36±5	12.06.	- 1,9±0,5 -	$\frac{1}{4,9\pm0,7}$
			Zwote	haanhauu	m		
11	В	23.09.	35 ± 8	74±9	04.09.	4,3±1,0	13 ± 2
12	В	18.09.	$4,2\pm 2,1$	horn 9,3±2,1	09.09.	1,7±0,5	4,3±0,6
l i			Kirs	chlorbeer			
13 13	B H	-	-	-	13.08. 13.08.	5,7±2,8 37±5	$16 \pm 3 \\ 103 \pm 8$
14 15	N N	06.05. 21.08.	120±30 37±5	≾iefer 240±30 70±6	10.09. 25.08.	2,7±1,4 2,3±0,4	9,5±2,0 9,1±0,7
16	N	20.08.	51±16	Tanne 115±16	25.08.	3,3±1,0	11±1

Tab. 3: Meßergebnisse von Blatt-, Frucht-, Holz- und Nadelproben

Legende: B: Blätter; F: Früchte; N: Nadeln; H: Äste; FS: Frischsubstanz.

1	K fK, Meßhütte Nordost	5	Mörsch	11	Linkenheim
2	K fK, Westzaun	6	Leopoldshafen	12	KfK-Westzaun
3	Hardtwald	7	KfK-Westzaun	13	Karlsruhe
4-1	K fK, Versuchsbaum, 1 - 1,5 m	8	Hardtwald	14	Hardtwald
4-2	K fK, Versuchsbaum, 4 m	9	Leopoldshafen	15	KfK-Nordtor
4-3	K fK, Versuchsbaum, 8 m	10	Karlsruhe	16	KfK-Nordtor

*Immissionen aus KfK beteiligt

3.1 Kontamination mit Cs-134 und Cs-137

In Tab. 3 sind Meßergebnisse an Blättern (in Einzelfällen auch an Früchten) und Nadeln aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe und seiner Umgebung zusammengestellt. Die Genauigkeit solcher Meßergebnisse ist eine Frage des möglichen Aufwandes für Probenvorbereitung und an Meßzeit. Hier wurde die y-Spektrometrie in der Regel unter Standardbedingungen (Direktmessung in 1-l-Ringschale ohne Probenvorbereitung; Meßzeit mindestens 1 Stunde) durchgeführt. 1987 wurden durchweg 1000 Minuten Meßzeit aufgewendet.

Da nicht erwartet werden kann, daß die Aktivität in der Baumkrone gleichmäßig verteilt ist, wurden von einer zu Versuchszwecken eingerüsteten Rotbuche Proben aus verschiedenen Höhen gemessen. In der Tat bestätigt das Ergebnis, daß eine Einzelprobe für die mittlere Aktivität pro kg auf einem Baum nicht repräsentativ ist (Proben 4-1, 2, 3).

Die in Tab. 3 zusammengestellten Werte erlauben es, die Aktivität in Blättern bzw. Nadeln in zwei aufeinanderfolgenden Jahren zu vergleichen. Dieser Vergleich ist für beide Cäsiumisotope möglich. Hierbei ist jedoch eine Zeitkorrektur erforderlich: Während bei Cs-137 wegen der Halbwertszeit von 30,17 Jahren der radioaktive Zerfall keine Rolle spielt, gilt dies nicht für Cs-134 mit 2,06 Jahren Halbwertszeit. Die Rechenergebnisse sind in Tab. 4 zusammengestellt. Im allgemeinen stimmen die Verhältniswerte für die beiden Cäsiumisotope innerhalb einer Zeile unter Berücksichtigung der abgeschätzten 3σ-Fehlerintervalle überein. Es ist zu beachten, daß die Blatt- bzw. Nadelproben in verschiedenen Monaten genommen worden waren. Ein sicher vorhandener zeitlicher Gang der Aktivität pro kg Probe wirkt sich daher auf die Verhältniswerte in Tab. 4 aus. Das Ergebnis hängt offensichtlich von der Baumart ab. Insgesamt liegen aber zu wenige Daten vor, um eine weitergehende Interpretation zu erlauben.

Vor dem Reaktorunfall lag die Cs-137-Kontamination von Bäumen im allgemeinen unter 8 Bq/kg.

Probenah-	nah- rt Probenart Verhältnis der Aktivitätskonzentr 1986:1987			itätskonzentrationen :1987
meort		Cs-134 (zeitkorri	giert)	Cs-137
1 2	B B	Hainbucl 13,1±2 6,6±4	ne 2,8 4,9	$11,5\pm1,6\ 8,6\pm3,1$
4-1 4-2 4-3	B B B	Rotbuch 5,1±2 5,4±2 5,1±2	e 2,2 1,8 2,5	$2,2\pm 0,93,7\pm 0,94,4\pm 0,9$
5 7	B B	Eiche 6,5±2 (2,6±2	2,3 2,8)*	$4,1\pm1,0\ 3,0\pm1,4$
9	в	Kirschbau 10,3±4	ım 4,2	$12,2\pm 3,4$
11	В	Zwetschgenbaum $5,8\pm1,9$ $5,7\pm1,$		$5,7 \pm 1,1$
12	в	Ahorn 1,7±1	1,0	$2,2\pm 0,6$
14 15	N N	Kiefer 28±16 11,4±2	2,5	25 ± 6 7,7 $\pm 0,9$
16	N	Tanne 10,9±4	1,7	$10,5 \pm 1,7$
Legende: B: Bla KfK, Meßl KfK, West 4-1 KfK, Vers 4-2 KfK, Vers 4-3 KfK, Vers	hütte Nordost tzaun uchsbaum, 1 - 1,5 uchsbaum, 4 m uchsbaum, 8 m	5 Mörsch 7 KfK, W m 9 Leopole 11 Linken 12 KfK, W	estzaun Ishafen heim estzaun	14 KfK 15 KfK-Nordtor 16 KfK-Nordtor

Tab. 4:Verhältnisse der Aktivitätskonzentrationen von 1986 und 1987 in
Blatt- und Nadelproben

*Berechneter Wert wegen der Größe des Fehlers unbrauchbar

3.2 Sonstige Spaltprodukte außer Edelgase

In Tab. 5 sind die Meßergebnisse aus dem Jahr 1986 für sonstige Radionuklide zusammengefaßt. Auf die nicht nachweisbaren radioaktiven Edelgase wird im Kap. 3.3 eingegangen.

Probe-	Due	1986				
nah- meort	benart	Datum	Nb-95 in Bq/kg	Ru-103 in Bq/kg	Ru-106 in Bq/kg	Sb-125 in Bq/kg
	***************************************		Hainb	uche		
$1 \\ 2$	B B	05.05. 20.08.	${}^{<23}_{18\pm10}$	$790 \pm 100 \\ 84 \pm 13$	$< 360 \\ 135 \pm 67$	< 110 46±33
			Rotbu	iche		
4-1*	В	19.09.	< 7,1	< 6,0	< 57	< 18
4-2*	B	19.09.	< 12	34 ± 13	< 120	< 28
4-0	Б	19.09.	< 10	41 ± 10	112±90	< 20
			Eicl	he		
5	B	10.06.	< 11	180 ± 25	< 28	< 24
7	B B	09.07.	< 4,4 < 6	9±6 7±6	< 38	< 11 < 17
7	B	18.09.	< 1.8	2.2 ± 1.9	< 15	< 4.5
7	\mathbf{F}	18.09.	< 1,0	< 1,0	< 7,2	< 2,2
1	В	27.10.	< 2,2	$4,8 \pm 4,3$	< 22	< 10
			Kirschl	baum		
9	\mathbf{F}	25.06.	< 0,7	< 0,7	< 8	< 1,8
9	B	08.08.	< 3.8	46 ± 9	< 56	<14 0±5
10	В	06.11.	9,3±2,9	10,6±2,9	02 I 32	910
			Zwetschg	enbaum		
11	В	23.09.	< 3,1	17 ± 5	43 ± 35	< 8,8
			Aho	rn		
12	В	18.09.	< 1,5	< 1,3	< 14	< 3,4
			Kief	er		
14***	Ν	06.05.	67 ± 19	285 ± 37	< 140	< 47
15	Ν	21.08.	< 2,6	34 ± 5	67 ± 26	8,4±7,5
			Tan	ne		
16	N	20.08.	< 7,4	60 ± 12	92 ± 78	< 23

Meßergebnisse für weitere Radionuklide an Blatt-, Frucht- und Nadelproben im Jahr 1986 Tab. 5:

Legende: B: Blätter; F: Früchte; N: Nadeln.

1	KfK, Meßhütte Nordost	5	Mörsch	11	Linkenheim
2	KfK, Westzaun	6	Leopoldshafen	12	KfK, Westzaun
4-1	KfK, Versuchsbaum, 1 - 1,5 m	7	KfK, Westzaun	14	KfK
4-2	KfK, Versuchsbaum, 4 m	9	Leopoldshafen	15	KfK-Nordtor
4-3	KfK, Versuchsbaum, 8 m	10	Karlsruhe	16	KfK-Nordtor

* **

Versuchsbuche im Norden des Kernforschungszentrums Karlsruhe (KfK) Weitere nachgewiesene Nuklide: Zr-95: $5,3\pm4,0$, Ce-144: 17 ± 9 Weitere nachgewiesene Nuklide: Te-132: 470 ± 30 Bq/kg, I-131: 2100 ± 60 Bq/kg, Zr-95, Tc-99m, Sb-127, Cs-136, Ba-140, La-140 ***

3.3 Radioaktive Edelgase

Bei dem Reaktorunfall von Tschernobyl wurden die im Reaktorcore vorhandenen radioaktiven Edelgase vollständig freigesetzt. In Freiburg wurden ca. 100 Bq/m³ Xe-133 gemessen. Es lag daher nahe, in Blatt- und Nadelproben nach Xe-133 zu suchen.

Xe-133 kann y-spektrometrisch über die 81-keV-Linie (Intensität 37,4 %) nachgewiesen werden [2]. Nun besitzt aber I-131 eine 80,1-keV-Linie (Intensität 2,62 %) [2], die von der 81-keV-Linie nicht getrennt werden kann. Da in der Kiefernnadelprobe vom 6. Mai 1986 (s. Tab. 3) neben der angegebenen Nukliden noch (2100±60) Bq I-131 pro kg Frischmasse enthalten waren, ergab sich hieraus für Xe-133 eine Nachweisgrenze von 60 Bq/kg.

Eine Abschätzung der zu erwartenden Xe-133-Konzentration nach der Beziehung

$$C_M = L_M \cdot C_L$$

mit

C _M :	Volumenkonzentration im Pflanzenmaterial
CL:	Volumenkonzentration in der Luft
L _M :	auf Luft bezogener Löslichkeitskoeffizient

ergibt mit L = 0,5* für das Pflanzenmaterial $C_M = 50$ Bq/m³ bzw. bei einer Dichte von ca. 800 kg/m³ etwa eine Xe-133-Konzentration von 0,06 Bq/kg. Der abgeschätzte Wert liegt also um drei Größenordnungen unter der Nachweisgrenze. Hieraus folgt eine Dosisleistung von ca. 0,007 nSv/h [2].

Die in Tschernobyl emittierte Kr-85-Aktivität betrug nur 2 % der Xe-133-Emission und ist somit erst recht ohne Bedeutung. Gelöste radioaktive Edelgase haben also sicher nicht zur Strahlenexposition von Nadeln beigetragen. (Übrigens war auch der Beitrag der Direktstrahlung aus der kontaminierten Luft vernachlässigbar klein.)

^{*}Dieser Wert gilt für Xe bei 0 °C Temperatur. Für 10 °C hat man nur noch L = 0.32 [2].

3.4 Die Strahlenexposition von Blättern und Nadeln durch den Reaktorunfall von Tschernobyl

Neben der Aktivität interessiert die Strahlenexposition der Blätter und Nadeln. Eine einfache, radikale Abschätzung nach oben wird in Tab. 6 angegeben. Hier wurde völlig unrealistisch angenommen, daß in dichter Packung so viele Blätter aufeinander geschichtet sind, daß in jeder Masseneinheit der Blätter gleich viel Energie emittiert wie absorbiert wird. Dann gilt für die obere Grenze der Dosisleistung (DL)

$$(DL) < f \cdot E_{eff} \cdot C.$$

Hierin ist $f = 5,767 \cdot 10^{-10}$ (Gy·kg)/(h·Bq·MeV), E_{eff} die effektive Zerfallsenergie (d. h., die Mittelung der ß-Energie über das ß-Spektrum ist berücksichtigt.) und C die Aktivitätskonzentration. Die Abschätzung ergibt eine Dosisleistung unter 0,33 µGy/h (< 33 µrad/h). Dieser Schätzwert ist viel zu hoch, da in einem realen Baum der überwiegende Teil der y-Strahlung und ein erheblicher Teil der ß-Strahlung nicht absorbiert wird, insbesondere da pro m² Waldfläche nur ca. 1 kg Blätter bzw. Nadeln vorhanden sind. Dies wird auch durch die Direktmessung der Dosisleistung bestätigt. Eine genaue Berechnung müßte unter Berücksichtigung der ß- und y-Spektren für jedes einzelne Nuklid unter Berücksichtigung der geometrischen Verhältnisse im Baum durchgeführt werden. Angesichts vorstehender Ergebnisse lohnt sich dieser große Aufwand nicht.

Nuklid	E _{eff} [McV]	C [Bq/kg FS]	D[nGy/h]
Nb-95	0,51	18	< 5,3
Ru-103	0,44	84	< 21,3
Ru-106	1,4	135	< 109,0
Sb-125	0,36	46	< 9,6
Cs-134	1,1	124	< 78,7
Cs-137	0,59	291	< 99,0
Summe			< 322,9

Tab. 6: Grobe Dosisabschätzung [3]

FS: Frischsubstanz

 $1 \text{ MeV} = 1,602 \cdot 10^{-13} \text{ J}; 1 \text{ MeV/s} = 5,767 \cdot 10^{-10} \text{ J/h}$

Zumindest die y-Strahlenexposition läßt sich an Hand nachfolgender Überlegung genauer berechnen:

Aus den Daten in Tabn. 3 und 5 kann die Gesamtaktivität pro Flächeneinheit Wald durch Multiplikation der Aktivitäten in Bq/kg mit einer Blatt- bzw. Nadelmasse von ca. 1 kg Nadeln bzw. Blättern pro m² Waldfläche abgeschätzt werden. Die Größenordnung der Strahlenexposition dürfte man erhalten, wenn man annimmt, daß 1 kg Blätter bzw. Nadeln pro m² Waldfläche vorhanden sind, wobei man zu berücksichtigen hat, daß die am Boden abgelagerte langlebige Aktivität z. Z. ca. 100mal größer ist als die in den Blättern enthaltene. Der entsprechende Faktor lag anfangs bei ca. 10. Die Dosisfaktoren werden aus Anhang 3 der Allgemeinen Berechnungsgrundlage [4] übernommen, wobei die dort vorgenommene Multiplikation mit dem Faktor 0,5 rückgängig gemacht wird. Es werden also die in Tab. 7 wiedergegebenen Dosisfaktoren verwendet. Die Strahlenexposition der Blätter bzw. Nadeln war bzw. ist durch die am Boden abgelagerte Aktivität bestimmt. Rechnet man mit einer zusätzlichen Flächenbelastung durch Cs-134 von 1000 Bq/m² und durch Cs-137 von 3300 Bq/m² (Tab. 8), so folgt ein Beitrag an der Dosisleistung von 1,7·10-8 Sv/h (nach Tab. 6: $< 3,2\cdot10$ -7 Gy/h). Dies läßt sich mit den Meßwerten für die Dosisleistung vergleichen. Mit Festkörperdosimetern mißt man eine zusätzliche Halbjahresdosis von 40 - 70 µSv bzw. (0,9 - 1,6)·10-8 Sv/h; was mit obiger Abschätzung des Anteils von Cs-137 verträglich ist.

Nuklid	Sv/s Bq/m ²
Nb-95	1,1.10-16
Ru-103	8,2.10-16
Ru-106/Rh-106	2,8.10-16
Sb-125	7,6.10-16
Cs-134	2,2.10-15
Cs-137	7,6.10-16

Tab. 7: y-Dosisfaktoren für kontaminierten Boden

Durch den Reaktorunfall von Tschernobyl wurde der Beitrag zur Strahlenexposition durch auf bzw. in den Bäumen vorhandene Radionuklide deutlich erhöht. Die Erhöhung des Cs-137-Anteils der in Blättern bzw. Nadeln enthaltenen Aktivität kann - verglichen mit der Zeit vor dem Unfall - den Faktor 100 überschreiten. Allerdings bleibt die Gesamtstrahlenexposition im Bereich der Schwankungsbreite der natürlichen Strahlenexposition, so daß Strahlenschäden an Bäumen auf dem Gebiet der Bundesrepublik Deutschland unvorstellbar sind.

Die Erhöhung der künstlichen Aktivität bezogen auf die Fläche des Bundesgebietes durch den Reaktorunfall ist groß gegen den Beitrag kerntechnischer Anlagen. Nach dem Jahresbericht 1983 des BMI [5] wurden von den 1983 in der Bundesrepublik Deutschland betriebenen Kernkraftwerken insgesamt 4,2·10⁹ Bq aerosolförmige β -Aktivität abgeleitet; der entsprechende Wert für 1984 beträgt 1,2·10⁹ Bq [6]. Die Flächenbelastung durch den Reaktorunfall von Tschernobyl lag im Raum Karlsruhe Anfang Mai 1986 bei einigen 10³ Bq/m² = 10⁹ Bq/km² [7]. Dies bedeutet, daß die durchschnittliche Flächenbelastung des Waldes durch den Reaktorunfall von Tschernobyl für β -Aerosole um mehr als fünf Zehnerpotenzen größer war als jene durch Kernkraftwerke.

In diesem Zusammenhang ist zu erwähnen, daß in Lit. [8] über die Deposition auf und die Inkorporation in Fichtennadeln aus dem Raum Wintherthur von Cs-134, Cs-137 und Ru-103 berichtet wird. Hierbei wurden die Nadeljahrgänge 1985 und 1986 unterschieden, da der Jahrgang 1986 zur Zeit des Unfalls noch nicht ausgetrieben war und somit also nicht der Hauptdeposition ausgesetzt war. Die dort zu findende Aktivität muß durch spätere Vorgänge (Einfang von resuspendierter Bodenaktivität, Translokation der Aktivität von oben nach unten?) bedingt sein. Ebenfalls wurde von den Autoren an Nadeln des Jahrgangs 1985 am 3. Juli 1986 die Löslichkeit in H₂O (pH 5,5, mit CO₂ gesättigt) sowie in CH₃Cl untersucht, wobei die Kontaktzeit jeweils fünf Minuten betrug. Bei Cs wurden 100 %, bei Ru 90 % unlösliche Aktivität gefunden. Nicht ausgeschlossen wurde von den Autoren die praktisch vollständige Auswaschung der löslichen Anteile durch vorausgegangene Niederschläge. Die Gesamtdeposition im Raum Winterthur betrug für die drei genannten Nuklide 8000 Bq/m², von den ca. 1000 Bq/m² auf den Nadeln hafteten.

4 Radioaktivität im Boden

Zum Verständnis des Radionuklidtransfers im Wald ist die Kenntnis der Aktivität im Waldboden erforderlich. Wegen der Schichtung des Waldbodens ergeben sich bei der Probenahme erhebliche Schwierigkeiten, zumal die verschiedenen Schichten nicht scharf gegeneinander abgegrenzt sind. In Tab. 8 sind die Ergebnisse eines Versuchs der Unterscheidung zwischen Streu, Auflagehumus und Boden berichtet. Hierbei ist insbesondere das Aktivitätsverhältnis Cs-137/Cs-134 von Interesse. In der mit "Streu" bezeichneten Schicht ist das nach der Zusammensetzung des Fallouts bei dem Reaktorunfall zu erwartende Cs-137/Cs-134-Verhältnis zu finden. Bemerkenswert ist die relativ hohe spezifische Aktivität, wobei aber wegen der geringen Dichte dieser Schicht ihre Cs-137-Aktivität pro m² etwa 38 % der Gesamt-Cs-137-Aktivität pro m² beträgt. In der mit "Boden" benannten Schicht ist ein beträchtlicher Anteil (59 %) am "alten" Cs-137 zu erkennen, zugleich ist aber auch Cs-134 nachweisbar. Die spezifische Aktivität ist für beide Cs-Isotope geringer (Cs-134 ca. 6 %, Cs-137 ca. 13 % der in der "Streu" gemessenen Werte). Da bei unvorsichtiger Bodenprobenahme ein erheblicher Teil der Streu verloren geht, ist daher keine Bewertung der Meßergebnisse ohne Kenntnis des Probenahmeverfahrens möglich.

Probenahme datum	Probenart	Aktivitätskonzentration Bq/kg FS		Aktivitätskonzentration Bq/m ²	
		Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
23.09.1987	Streu*	100±3	320 ± 6	570 ± 17	1820 ± 34
	Humus**	40±3	160 ± 13	110 ± 8	440 ± 36
	Boden***	6.0 ± 0.6	43 ± 3	350 ± 36	2560 ± 180

Tab. 8:Aktivitätskonzentration in Streu, Auflagehumus und Boden bei der
Probenahmestelle 3 bzw. 8

FS: Frischsubstanz

Weitere Nuklide: *Ru-106, Ag-110m, Sb-125, Ce-144; **Ru-106, Sb-125; ***Ru-106

In Tab. 9 werden weitere Meßwerte an Waldbodenproben mitgeteilt, wobei bei diesen Werten ein Verlust der verrottenden Blätter angenommen werden muß, so daß aus diesen Werten keine zuverlässige Aussage über den gesamten Aktivitätseintrag pro m² erwartet werden darf.

Probe- nahmeort	Probe- nahme- datum	Aktivitätskonzentration Bq/kg FS		Aktivitätskonzentration Bq/m ²	
		Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
3 bzw. 8	18.08.1987	$7,2\pm0,8$	60 ± 7	301 ± 33	2510 ± 210
4*	03.09.1987	$4,8\pm 0,5$	39 ± 3	437 ± 45	3550 ± 270
5**	10.06.1986	$0,79 \pm 0,21$	49±4	44 ± 12	2730 ± 220
5	08.09.1987	$2,6 \pm 0,4$	30 ± 2	60 ± 22	1720 ± 110
14***	10.09.1987	11±1	55 ± 4	610 ± 55	3040 ± 220

Tab. 9: Waldböden, Probenahmetiefe 5 cm

FS: Frischsubstanz Weitere Nuklide: *Ru-106, Sb-125; **Ru-103, I-131; ***Ru-106, Sb-125

Die Bodenproben waren nahe Bäumen genommen worden, von denen Blattproben gemessen worden waren. Vergleicht man diese Werte mit den zugehörigen Blattwerten und berücksichtigt man die Tiefenverteilung der Wurzeln im Boden, so sieht man ebenfalls, daß die Blattkontamination nicht mit dem Boden-Pflanzen-Transfer erklärt werden kann.

5 Radioaktivität in sonstigem Bewuchs

In Tab. 10 sind die Ergebnisse von drei Bewuchsproben aus dem Wald zusammengestellt. Die zweite Probe wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe genommen. Obgleich sie die niedrigsten Meßergebnisse lieferte, muß sie wegen des Nuklidspektrums als möglicherweise vom Kernforschungszentrum beeinflußt angesehen werden. Die beiden anderen Proben liegen erheblich oberhalb des für die Aktivitätsabschätzung für Wildfleisch (s. Pkt. 6) angenommenen Wertes.

Tab. 10: A	Aktivitätskonzentratio	n in	Bewuchs
------------	------------------------	------	---------

Probenahmeort	Probenahme- datum	Aktivitätskonzentration Bq/kg FS		
		Cs-134	Cs-137	
3 bzw. 8	16.09.1987	74±7	210 ± 17	
4*	16.09.1987	$3,6\pm 0,8$	16 ± 2	
14**	16.09.1987	39 ± 4	122 ± 10	

FS: Frischsubstanz Weitere Nuklide: *Ru-106: 7,4±4,8 Bq/kg; Ag-110m: 0,7±0,6 Bq/kg; **Ru-106: 7,0±5,2 Bq/kg

In Tab. 11 sind die Ergebnisse von 1987 durchgeführten Pilzmessungen zusammengestellt. Herausragende Meßwerte weisen demnach Maronenröhrlinge und Semmelstoppelpilze auf.

Probenahme- datum 1987	Pilzsorte	Aktivitätskonzentration Bq/kg FS		
		Cs-134	Cs-137	
01.07.	Steinpilze	$1,2\pm 0,7$	$9,5 \pm 1,4$	
20.07.	Steinpilze	0,88±0,21	8,3±0,4	
04.08.*	Steinpilze	$1,0\pm 0,2$	12 ± 1	
10.08.	Steinpilze	$1,1\pm 0,3$	9,9±0,5	
10.08.**	Maronenröhrlinge	59 ± 1	230 ± 2	
04.09.	Frauentäublinge	$1,5\pm 0,5$	12±1	
15.09.	Perlpilze	8,5±1,9	42 ± 4	
15.09.	Krause Glucke	< 5,5	17 ± 7	
15.09.	Semmelstoppelpilze	120 ± 10	630 ± 20	
15.09.	Steinpilze	$5,1\pm 2,0$	33 ± 5	
19.10.	Flaschenboviste	< 1,0	4,0±1,2	
03.11.	Birkenpilze	$3,3 \pm 1,9$	11±3	
03.11	Maronenröhrlinge	64 ± 7	283 ± 14	
03.11	Parasole	$0,52 \pm 0,32$	$2,1\pm 0,3$	
03.11	Rotfußröhrling	9,9±3,1	42 ± 5	
03.11	Butterpilze	17±4	68 ± 6	
03.11	Flaschenboviste	0,29±0,26	$1,4\pm 0,3$	
03.11	Schopftintling	< 0,34	0,77±0,37	
09.11.	Frauentäubling, Grünfeldriger Täubling, Birkentäubling	9,5±2,1	44±4	
09.11.	Rotfußröhrling	15 ± 2	55 ± 3	
09.11.	Hallimasch	$4,6\pm 1,7$	12 ± 4	

Tab. 11: Aktivitätskonzentration in Pilzen aus dem Hardtwald

FS: Frischsubstanz Weitere Nuklide: *Ag-110m = $0,26\pm0,18$ B/kg FS; **Ag-110m = $0,30\pm0,24$ Bq/kg FS

6 Radioaktivität in Wild

Die in Tabn. 3 und 5 berichteten Meßwerte bieten eine Möglichkeit, die Aktivität in Wild grob abzuschätzen. Im Gleichgewicht gilt die Beziehung

$$\frac{A}{W} = \frac{Z}{W} \cdot \frac{T_b}{\ln 2} . \tag{1}$$

(Die Annahme des Gleichgewichts erscheint wegen der Größe der biologischen Halbwertszeit vertretbar.) Hierin bedeuten A die Gesamtaktivität im Körper, W das Körpergewicht in Gramm, Z die Aktivitätszufuhr pro Tag und T_b die biologische Halbwertszeit in Tagen. Für die Berechnung fehlen die Größen Z bzw. Z/W sowie T_b. Um dennoch eine Abschätzung vornehmen zu können, wird die in [9] zitierte empirische Beziehung

$$T_{b} = 3.5 \cdot W^{0,24}$$
 (2)

übernommen, in die W in
g einzusetzen ist und aus der $T_{\rm b}$ in der Einheit "Tage" folgt. Da

$$Z = C \cdot I \tag{3}$$

ist, wobei C die Aktivitätskonzentration ist und I die aufgenommene Futtermenge. Durch Zusammenfassen der vorstehenden Gleichungen folgt

$$\frac{A}{W} = 5,05 \cdot C \cdot \frac{I}{W} \cdot W^{0,24}.$$
(4)

Entscheidend für den Aktivitätsgehalt des Fleisches ist die tägliche Aktivitätszufuhr, d. h. das Produkt C·I (Gl. (3)). Unter diesem Gesichtspunkt sollten die nachstehend genannten Annahmen gesehen werden, d. h. die Fixierung der Diskussion auf einen Faktor allein wäre nicht sachdienlich, womit nicht angezweifelt werden soll, daß eine genauere Bestimmung von I wünschenswert ist.

Für ein Reh wird W = $2,5\cdot10^4$ g angenommen. Mangels eines besseren Wertes wird I/W = $0,1 d^{-1}$ angesetzt. (Dies entspricht etwa dem Wert für Rinder.) Mit C = 100 Bq/kg erhält man A/W = 574 Bq/kg Cs-137. Hierbei wurde unterstellt, daß das Reh Bewuchs mit einer Cs-137-Aktivitätskonzentration von 100 Bq/kg Feuchtmasse verzehrt. Da die Proben in Tab. 3 bzw. 5 fast ausnahmslos ohne Zuhilfenahme von Leitern genommen worden waren, können diese Werte wohl für die in Reichweite von Rehen befindlichen Blätter angenommen werden. Auch widersprechen die wenigen gemessenen Bewuchswerte der Tab. 10 dieser Annahme nicht. An Hand der Meßwerte läßt sich also die Größenordnung der im Fleisch von Wild gemessenen Cäsiumwerte erklären, auch wenn der angegebene Rechenwert ungenau ist.

Es sei angemerkt, daß aus Gl. (2) eine biologische Halbwertszeit für Rehe von ca. 40 Tagen folgt.

7 Folgerungen und Schlußbemerkungen

Die vorliegenden Meßergebnisse deuten darauf hin, daß in Bäumen in erheblichem Umfang radioaktives Cäsium gespeichert ist. In Laubbäumen wird offensichtlich insbesondere auch vor dem Laubfall aus den Blättern Cäsium z. T. in die Aste transportiert und erscheint im folgenden Frühjahr in den neu getriebenen Blättern. Daß dies möglich ist, zeigt folgende Überlegung: Der Aktivität von 1 Bq Cs-134 entspricht eine Masse von 2,08.10-14 g, die entsprechende Zahl für Cs-137 ist 3,11.10-13 g. Bei den gemessenen Aktivitäten handelt es sich daher - in Masseneinheiten ausgedrückt - um sehr kleine Mengen, insbesondere wenn man sie mit dem Maßstab von biochemischen Vorgängen in Bäumen bewertet. In einer 80jährigen Buche mit einem Kronendurchmesser von 15 m werden zum Beispiel 1600 g Traubenzucker im Stundenmittel erzeugt. Ein Cäsiumtransport aus Blättern in andere Pflanzenteile wird auch in [10] berichtet, wobei allerdings die Ubertragbarkeit auf Holzgewächse nicht bewiesen ist. (Inzwischen wurden weitere Literaturzitate, die auf einen Rücktransport von Cäsium aus Blättern in verholzte Pflanzenteile hinweisen, gefunden [11 - 13].) Ob auch ein äußerlicher Aktivitätstransport mit abfließendem Niederschlagswasser eine Rolle spielt, kann an Hand der vorliegenden Ergebnisse nicht endgültig verneint werden, auch wenn dies im Augenblick als recht unwahrscheinlich erscheint.

Die Strahlenexposition von Blättern und Nadeln ist so niedrig, daß nach allen vorliegenden Erfahrungen eine Strahlenschädigung völlig ausgeschlossen werden kann. Das mit den abgefallenen Blättern auf den Boden gelangte Cäsium bleibt zusammen mit dem dort direkt abgelagerten Cäsium für flachwurzelnde Pflanzen verfügbar. Im Gegensatz zur Landwirtschaft wird die im Wald abgelagerte Aktivität nur relativ langsam aus Pflanzen und dem Wild verschwinden. Die Meßwerte aus Tab. 3 bzw. die Verhältniswerte aus Tab. 4 weisen auf einen zeitlichen Gang der Aktivität in Blättern bzw. Nadeln hin. Ein Vergleich ist bei den hier berichteten Meßwerten nur für Hainbuche, Eiche und Kiefer möglich: Je kleiner der zeitliche Abstand zwischen den beiden Probenahmen ist, desto kleiner scheint das Aktivitätsverhältnis zu sein. Wegen der geringen Probenanzahl und der Nichtrepräsentativität der Einzelprobe für den gesamten Baum (s. Pkt. 3.1) ist jedoch Vorsicht bei der Interpretation geboten.

Der Bestimmung der Flächenbelastung in Aktivitätseinheiten pro Flächeneinheit muß mehr Aufmerksamkeit gewidmet werden, zumal einige relevante Radionuklide nicht direkt gemessen werden können. Die Flächenbelastung setzt sich aus Boden- und Bewuchskontamination zusammen, wobei im Wald vorhandene Streu die Probenahme nicht gerade erleichtert. Dabei ist zu bedenken, daß nach einem größeren Zwischenfall auch ungeübtes Personal zur Probenentnahme eingesetzt werden muß.

Die hier berichteten, mit dem geringen möglichen Aufwand erzielten Ergebnisse reichen sicherlich nicht aus, die komplexen Vorgänge befriedigend zu erklären. Auch war keine gründliche Sichtung der vorhandenen Literatur möglich. Der vorliegende Bericht möchte daher in erster Linie auf die Problematik aufmerksam machen, um zu gründlicheren Untersuchungen anzuregen.

Dank

Wir danken den bei Probenahme und Messung beteiligten Mitarbeitern für die geleistete zusätzliche Arbeit.

8 Literatur

- L.A. König, Gibt es einen Zusammenhang zwischen Umweltradioaktivität und Waldschäden?, GIT-Fachzeitschrift für das Laboratorium, 29 (1985), S. 1123 - 1131, S. 1256 - 1265
- [2] W. Jacobi, H.G. Paretzke, GSF-Berichte 43/85 bzw. 5/86
- [3] L.A. König, H. Fessler, Strahlenexposition von Bäumen durch den Tschernobyl-Unfall, BULBW-Bericht 1, 1986, S. 21-30
- [4] Der Bundesminister des Innern, Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer, GMBl. Nr. <u>21</u> (1979, S. 369 - 436
- [5] Der Bundesminister des Innern, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 1983
- [6] Der Bundesminister für Umwelt, Natur und Reaktorsicherheit, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 1984
- [7] L.A. König, H. Schüttelkopf, S. Erat, H. Fessler, S. Hempelmann,
 K. Maurer, M. Pimpl, A. Radziwill, Der Reaktorunfall von Tschernobyl Meßergebnisse des Kernforschungszentrums Karlsruhe -, KfK 4115
 (August 1986)
- [8] A. Wyttenbach, L. Tobler, S. Bajo, Radioaktivitätsmessungen in der Schweiz nach Tschernobyl und ihre wissenschaftliche Interpretation, Tagungsbericht, SVA-Informationstagung "Strahlung im Lichte von Tschernobyl", Bern, 20. - 22. Oktober 1986, S. 495 - 504
- [9] F.W. Whicker, V. Schultz, Radioecology: Nuclear Energy and the Environment, CRC Press Inc., Boca Raton, Florida, Volume II, S. 57
- P. Kopp, O. Oestling, W. Burkart, Transfer of Radionuclides to Food Plants: Root - versus Foliar Uptake, C.E.C.-Workshop: Methods for Assessing the Reliability of Environmental Transfer Models Predictions, Athen, 5. - 9. Oktober 1987, Proceedings im Druck

- [11] S.I. Auerbach, J.S. Olson, H.D. Waller, Landscape Investigations Using Caesium-137, Nature, <u>201</u>, 761 - 764 (1964)
- [12] J.P. Witherspoon, Cycling of Cesium-134 in White Oak Trees, Ecol. Monogr., <u>34</u>, 403 - 420 (1964)
- [13] C.T. Garten, jr., L.A. Briese, R.R. Sharitz, J.B. Gentry, Seasonal Variation in Radiocesium Concentrations in Three Tree Species, Mineral Cycling in Southeastern Ecosystems, U.S. Energy Research and Development Administration, CONF-740513