Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland

Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz

Stand 2014

Daten und Bewertung

bfg Bundesanstalt für Gewässerkunde

PTB Physikalisch-Technische Bundesanstalt Braunschweig und Berlin

MRI Max Rubner-Institut

Bundesamt für Strahlenschutz

THÜNEN

BSH BUNDESAMT FÜR SEESCHIFFFAHRT UND HYDROGRAPHIE

DWD Deutscher Wetterdienst

Impressum

Herausgeber: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau- und Reaktorsicherheit (BMUB)
Postfach 12 06 29
53048 Bonn

Redaktion: Bundesamt für Strahlenschutz
Postfach 10 01 49
38201 Salzgitter

Josef Peter
Angela Trugenberger-Schnabel
Claudia Hachenberger
Angelika Löbke-Reinl

Stand: April 2015

ISSN 1864-2810

VORWORT

Die Notwendigkeit zur Überwachung der Umweltradioaktivität ergab sich ursprünglich als Folge des radioaktiven Fallouts der Kernwaffenversuche in den 50er und 60er Jahren. Zur Umsetzung der Verpflichtungen des Euratom-Vertrags von 1957 und im Zuge der großtechnischen friedlichen Nutzung der Kernenergie wurde die Überwachung ausgeweitet und zunehmend gesetzlich geregelt, insbesondere durch die Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) von 1979 und das 1986 verabschiedete Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG). Zusätzlich wurde ab 1990 - nach der Wiedervereinigung - die Überwachung der bergbaulichen Altlasten in den neuen Bundesländer mit berücksichtigt.

Parallel zur Erarbeitung einer gesetzlichen Regelung zur Überwachung der Umweltradioaktivität wurden 1961 die Leitstellen eingerichtet, die seither einen integralen Bestandteil der Gesamtorganisation der Überwachung der Umweltradioaktivität darstellen. Ihre Aufgaben sind im Strahlenschutzvorsorgegesetz und in der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) festgelegt. Sie sind jeweils verantwortlich für die Überwachung der Umweltradioaktivität in bestimmten Umweltbereichen, z. B. Luft, Gewässer, Lebensmittel bzw. für bestimmte Überwachungsaufgaben bei kerntechnischen Anlagen, z. B. Abluft und Abwasser. Die Leitstellen sind jeweils in den Einrichtungen des Bundes angesiedelt, deren Aufgaben ohnehin in diesen Umweltbereichen liegen.

Der vorliegende Bericht enthält die Beiträge der Leitstellen für die Jahre 2011 bis 2013. Für diesen Berichtszeitraum liegt der Schwerpunkt, wie auch in den Vorjahren, auf der Darstellung aktueller Untersuchungen und Entwicklungen sowie auf der Betrachtung übergreifender radioökologischer Zusammenhänge.

Messwerte, die im Jahr 2011 nach der Reaktorkatastrophe im japanischen Fukushima ermittelt wurden, sind ebenfalls im vorliegenden Bericht enthalten. Durch die große Entfernung zum Quellort und die damit verbundene Verdünnung war die nach Deutschland verfrachtete Menge radioaktiven Materials gesundheitlich unbedenklich und nur mit empfindlichen Methoden messbar. Eine detaillierte Darstellung und Diskussion dieser Messwerte wurde in den vorangegangenen Bericht aufgenommen.

Nicht nur die Ermittlung von Messwerten selbst sondern auch deren Qualitätssicherung sind im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität von großer Bedeutung, um belastbares Datenmaterial zu erhalten. Hierzu organisieren die Leitstellen Ringversuche bzw. Vergleichsmessungen, in der Regel unter Verwendung von Referenzmaterialien. Die Teilnahme an diesen Ringversuchen bzw. Vergleichsmessungen dient den teilnehmenden Laboren bzw. Institutionen zur Überprüfung bzw. Validierung der jeweils angewandten Verfahren. Die Ergebnisse dieser Ringversuche bzw. Vergleichsmessungen spiegeln die hohe Qualität der Analysen und Messungen wider. Auch beim Austausch von Messergebnissen im internationalen Rahmen ist diese Art der Qualitätssicherung wichtig, um eine direkte Vergleichbarkeit der Daten sicher zu stellen.

In einer Notfallsituation ist nicht nur die Qualität der Daten ein wichtiges Kriterium sondern auch der Zeitrahmen, in dem sie zur Verfügung gestellt werden können. Radiochemische Verfahren, die für die Analyse einiger Radionuklide erforderlich sind, sind in der Regel sehr zeitaufwändig. Die Leitstellen entwickeln hierfür sogenannte „Schnellmethoden“ um in einem Ereignisfall die zeitnahe Verfügbarkeit der entsprechenden Messergebnisse zu ermöglichen.

INHALTSVERZEICHNIS

Vorwort 3
Inhaltsverzeichnis 4
Zusammenfassung 5
1 Aktivitätsnormale und Spurenstoffe 12
2 Bestimmung der Ortsdosisleistung (ODL) in Bereichen natürlicher Radioaktivität - 20 Jahre Vergleichsmessungen unter internationaler Beteiligung 16
3 Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kernkraftwerken, Auswirkung der bisherigen Stilllegungen . 20
4 Messnetz für Luft und Niederschlag 27
5 Spurenmessung in der bodennahen Luft 32
6 Radioaktive Stoffe in Binnengewässern 37
7 Radioaktive Stoffe in Trink- und Grundwasser 43
8 Ringversuche Trinkwasser 45
9 Radioaktive Stoffe in Nord- und Ostsee 50
10 Radioaktive Stoffe in Fischen 55
11 Die Reaktorkatastrophe von Fukushima und ihre Auswirkungen auf die Meeresumwelt 61
12 Boden, Pflanzen, Futtermittel, Milch und Gesamtnahrung 66
13 Ringversuch Radionuklide in Rohmilch 2014 72
14 Schnelle Bestimmung der Strontium-Ausbeute sowie der ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten beim Aktivitätsverhältnis 25 durch eine LSC-Messung und Auswertung mit UncertRadio 77
15 Untersuchung zum Transferverhalten der störfallrelevanten Radionuklide Cäsium und Strontium bei der Herstellung von Bioethanol 83
16 Radioaktive Stoffe in Abwasser, Klärschlamm und Abfällen 89
17 Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände 93

Anhang

Literatur 96
Verwendete Abkürzungen 100
Eigenschaften der im Text erwähnten Radionuklide 101
Glossar 104
Sachverzeichnis 106

ZUSAMMENFASSUNG

Im vorliegenden Bericht werden Daten zur Radioaktivität in der Umwelt und in der Umgebung kerntechnischer Anlagen aus den Jahren 2011 bis 2013 zusammengestellt und bewertet. Die mittlere Strahlenexposition der Bevölkerung betrug im Jahr 2013 etwa 4,0 mSv. Davon entfielen ca. 2,1 mSv auf die **natürliche** Strahlenexposition sowie etwa 1,9 mSv auf die **zivilisatorische** Strahlenexposition [1].

Aktivitätsnormale und Spurenstoffe (Kapitel 1)

Im Rahmen des Mutual Recognition Arrangements (MRA) beteiligt sich die PTB regelmäßig an internationalen Vergleichsmessungen. In einer internationalen Arbeitsgruppe werden Qualitätsstandards für Radonmessungen erarbeitet. Diese bilden auch die Basis für die Umsetzung der entsprechenden Regelungen der neuen EURATOM-Grundnormen.

In der kontaminierten Zone bei Fukushima angebauter Reis wurde als Referenzmaterial für die Lebensmittelüberwachung zertifiziert. Die Spurenmessstelle für radioaktive Stoffe in der Luft hat im Berichtszeitraum einige auffällige Messergebnisse erhalten. Auch künstliche Radionuklide aus dem Reaktorunfall in Fukushima waren nachweisbar.

Bestimmung der Ortsdosisleistung (ODL) in Bereichen natürlicher Radioaktivität - 20 Jahre Vergleichsmessungen unter internationaler Beteiligung (Kapitel 2)

Die Bestimmung des anthropogen verursachten Strahlenpegels erfordert auch die sorgfältige Messung „natürlicher“ Strahlungskomponenten. Für Kalibriervergleiche werden drei unterschiedliche Messflächen als Modelle herangezogen. Die Kalibriervergleiche der letzten 20 Jahre zeigen einen Trend zur Angleichung der Kalibrierfaktoren.

Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kernkraftwerken, Auswirkung der bisherigen Stilllegungen (Kapitel 3)

Die Genehmigungswerte für die Ableitung radioaktiver Stoffe mit Fortluft und Abwasser aus Kernkraftwerken wurden 2011 bis 2013 nur zu einem geringen Teil ausgeschöpft. Seit 1975 zeigt sich ein Trend zurückgehender Ableitungen. Die zum Ende des Berichtszeitraums noch in Betrieb befindlichen 9 Kernkraftwerksblöcke mit insgesamt 12,7 GW Leistung trugen noch 15 Prozent zur Stromerzeugung bei.

Messnetz für Luft und Niederschlag und Spurenmessung in der bodennahen Luft (Kapitel 4, 5)

Die Messung der Gesamt-β-Aktivität der **Luft** im Messnetz des Deutschen Wetterdienstes (DWD) ergab im Berichtszeitraum Jahresmittelwerte von 0,6 mBq/m^3, 0,7 mBq/m^3 und 0,7 mBq/m^3 (2011, 2012 und 2013). Mit dem **Niederschlag** wurden entsprechend 58 Bq/m^2, 38 Bq/m^2 und 27 Bq/m^2 deponiert. Die höhere Jahressumme 2011 ist auf die Freisetzung in Fukushima zurückzuführen.

Die durch das BfS in Feiburg gemessene Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr lag im Berichtszeitraum weiterhin bei ca. 1,5 Bq/m^3. Die Messwerte der Aktivitätskonzentration von ^{133}Xe lagen außer nach der Fukushima-Katastrophe zwischen 1 und 100 mBq/m^3. Die Spurenmessstellen in Freiburg, Potsdam, Offenbach und Braunschweig konnten 2011 ^{137}Cs und ^{134}Cs aus diesem Reaktorunfall nachweisen. Daneben wurden im November 2011 erhöhte ^{131}I-Werte und im April 2013 in Nordeuropa erhöhte ^{137}Cs-Aktivitäten gefunden.

Radioaktive Stoffe in Binnengewässern (Kapitel 6)

Zur Radioaktivität in **Binnengewässern** tragen natürliche und künstliche Radionuklide bei. Von den künstlichen Radionukliden ist heutzutage ^{137}Cs von Bedeutung. Die Aktivitäten reichen in Schwebstoff und Schlamm bis über 200 Bq/kg, liegen aber meist unter 100 Bq/kg.

Radioaktive Stoffe in Trink- und Grundwasser / Ringversuche Trinkwasser (Kapitel 7, 8)

Nahezu alle Messwerte für ^{137}Cs in **Trink- und Grundwasser** liegen unterhalb der Nachweisgrenze. Eine Dosisabschätzung auf Grundlage der 2013 gemessenen Maximalwerte von ^{137}Cs und ^{90}Sr ergibt bei einem Trinkwasserverzehr von 700 Litern Ingestionsdosen von 0,055 und 0,25 µSv pro Jahr.

Vom BfS wurden in Zusammenarbeit mit der PTB 2012 und 2014 Ringversuche zur Bestimmung natürlicher Radionuklide in Trinkwasser durchgeführt. Etwa 90 % aller im Leistungstest beurteilten Messwerte lagen im zulässigen Bereich der Streuungsbreite.

Radioaktive Stoffe in Nord- und Ostsee sowie in Fischen (Kapitel 9, 10)

Die Probenentnahme in der **Nordsee** erfolgte 2011 bis 2013 jeweils auf Fahrten im August. Die Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs lag im Berichtszeitraum zwischen 1,3 Bq/m^3 an der Elbemündung und 3,0 Bq/m^3 in der äußeren Deutschen Bucht. Als Folge des Reaktorunfalls in Tschernobyl weist die **Ostsee** eine höhere Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs auf. Diese lag 2011 bis 2013 zwischen 20 Bq/m^3 im westlichen und 34 Bq/m^3 im östlichen Teil des überwachten Gebietes.

In der Ostsee liegen deshalb auch die gemessenen ^{137}Cs-Aktivitätswerte in **Fischen** höher als in der Nordsee; im Berichtszeitraum waren das bis zu 11 Bq/kg. Bei Fischen in Binnengewässern werden vor allem in Seen noch erhöhte Aktivitätskonzentrationen gemessen. In Süddeutschland sind diese von über 200 Bq/kg Feuchtmasse 1986 inzwischen auf 2,3 Bq/kg zurückgegangen.

Die Reaktorkatastrophe von Fukushima und ihre Auswirkungen auf die Meeresumwelt (Kapitel 11)

Bei der Reaktorkatastrophe in Fukushima sind jeweils über 10 PBq (1 PBq = 10^{15}Bq) ^{134}Cs und ^{137}Cs in den pazifischen Ozean gelangt. Während vor den japanischen Präfekturen Fukushima, Myagi und Ibaraki gefangene Fische im Oktober 2014 im Mittel noch 10 Bq/kg Radiocäsium enthielten, liegen die Messwerte im Rahmen des Deutschen Messprogramms alle weit unterhalb von 1 Bq/kg ^{137}Cs. Die Wirkung auf die Meeresorganismen wird nach allem, was bislang wissenschaftlich bekannt ist, als gering eingeschätzt.

Radioaktive Stoffe in Boden, Pflanzen, Futtermitteln, Gesamtnahrung sowie Milch- und Milchprodukten (Kapitel 12)

Während die Kontamination des **Bodens** mit ^{137}Cs auf den Tschernobyl-Unfall zurückgeht, stammt das deponierte ^{90}Sr zum überwiegenden Teil noch aus der Zeit der oberirdischen Kernwaffenversuche. Bei **Futtermitteln** wurden Mittelwerte von <0,1 Bq/kg bis 0,8 Bq/kg für ^{137}Cs gemessen und 0,1 Bq/kg bis 2,3 Bq/kg für ^{90}Sr. Die Kontamination von **Milch** bleibt konstant auf einem niedrigen Niveau. Mit der **Gesamtnahrung** wurden 2013 im Mittel 73 Bq ^{137}Cs pro Jahr und Person aufgenommen, die ^{90}Sr-Zufuhr betrug 29 Bq.

Ringversuch Radionuklide in Rohmilch 2014 (Kapitel 13)

Bei einem Ringversuch mit 72 Institutionen aus Deutschland und den Nachbarländern wurden die Nuklide ^{40}K, ^{89}Sr, ^{90}Sr, ^{131}I, ^{133}Ba, ^{134}Cs und ^{137}Cs in Rohmilch bestimmt. Bei allen Nukliden lagen jeweils mehr als 94 % der Messergebnisse im zulässigen Bereich der Streuungsbreite.

Schnelle Bestimmung der Strontiumausbeute sowie die ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten beim Aktivitätsverhältnis 25 durch eine LSC-Messung und Auswertung mit UncertRadio (Kapitel 14)

Wegen der stark unterschiedlichen Dosiskoeffizienten der Radionuklide ^{89}Sr und ^{90}Sr ist es bei kerntechnischen Unfällen erforderlich, die Aktivitätswerte beider Einzelnuklide in den zu überwachenden Medien zu bestimmen. Gegenüber den bisher etablierten Methoden mit langen Bearbeitungszeiten zeigt eine Kombination der Auswertung mit dem Programm UncertRadio mit der Bestimmung der ^{90}Sr-Aktivität aus dem nachwachsenden ^{90}Y eine schnellere Verfügbarkeit der Ergebnisse bei vergleichbarer Ergebnisqualität.

Untersuchung zum Transferverhalten der störfallrelevanten Radionuklide Cäsium und Strontium bei der Herstellung von Bioethanol (Kapitel 15)

Nach einem Ereignisfall, bei dem Getreide radioaktiv kontaminiert wird, erwägt man eine Wertschöpfung des kontaminierten Materials durch Umsetzung in Bioethanol. Die Untersuchung ergab Transferfaktoren von 0,1 - 1 Prozent bei ^{137}Cs und 0,04 - 1,5 Prozent bei Strontium.

Radioaktive Stoffe in Abwasser und Klärschlamm und Abfällen (Kapitel 16)

Abgesehen von ^{131}I, das in zahlreichen Proben von Flugasche/Filterstaub nachgewiesen werden konnte und das vermutlich aus nuklearmedizinischen Anwendungen stammt, war nach wie vor ^{137}Cs aus dem Tschernobylunfall nachweisbar. In Südbayern werden im **Klärschlamm** im Mittel 14 Bq/kg TM gemessen. Kurzzeitig war 2011 auch ^{134}Cs aus dem Fukushima-Unfall nachweisbar.

Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände (Kapitel 17)

Als Konsequenz des Tschernobylunfalls waren auch 2013 noch erhöhte ^{137}Cs-Aktivitäten in Pflanzenproben nachweisbar, die für **Arzneimittel** oder Tees verwendet werden. Bei Bitterkleeblättern aus Polen waren das im Mittel 35 Bq/kg TM, bei Islandmoos aus Russland 15 Bq/kg TM.

SUMMARY

This report is a compilation and evaluation of data on radioactivity in the environment and in the vicinity of nuclear facilities in Germany from 2011 to 2013. The mean radiation exposure of the public in Germany was about 4.0 mSv in 2013, of which **natural** radiation exposure accounted for about 2.1 mSv and **man-made** radiation exposure for 1.9 mSv [1].

Activity standards and trace substances (Chapter 1)

Within the scope of the Mutual Recognition Arrangements (MRA), the PTB regularly participates in international comparative measurements. An international work group is in charge of the preparation of quality standards for radon measurements. These latter also serve as a basis to implement the regulations of the new EURATOM Basic Safety Standards Directive.

Rice grown within the contaminated zone around Fukushima has been certified as reference material for food monitoring. The trace analysis laboratory for airborne radioactive substances obtained severalstriking results of measurements performed during the reporting period. Man-made radionuclides from the Fukushima nuclear accident were detectable, too.

Assessment of ambient dose rate (ODL) in areas of natural radioactivity - 20 years' comparative measurements with international participation (Chapter 2)

Assessment of anthropogenic radioactivity also requires thorough measurement of „natural“ radiation components. Three different measurement areas are used as a reference for calibration. The calibration references of the last 20 years show a tendency of convergence of calibration factors.

Discharges of radioactive substances from nuclear power plants, effects of previous shutdowns (Chapter 3)

Discharges of radioactive substances into the exit air and wastewaters from nuclear power plants remained far below the authorised limit from 2011 to 2013. There has been a trend of decreasing discharges since 1975. The nine nuclear power plant units in operation at the end of the reporting period had a total capacity of 12.7 GW and accounted for 15 per cent of power generation.

Measuring network for air and precipitation, trace measurement in ground-level air (Chapters 4, 5)

The annual mean values provided by the measuring network of the Deutscher Wetterdienst (DWD; German Meteorological Service) amounted to 0.6 mBq/m^3, 0.7 mBq/m^3 and 0.7 mBq/m^3 for the total -activity in the air and 58 Bq/m^2, 38 Bq/m^2, and 27 Bq/m^2 for the total -activity deposited by precipitation in 2011, 2012 and 2013, respectively. The higher annual value for 2011 is due to the Fukushima releases.

The activity concentrations of ^{85}Kr measured by the BfS in Freiburg remained at about 1.5 Bq/m^3. The measured activity concentrations of ^{133}Xe ranged from one to 100 mBq/m^3, except for the time after the Fukushima disaster. The trace analysis laboratories in Freiburg, Potsdam, Offenbach and Braunschweig were able to detect ^{137}Cs and ^{134}Cs from the Fukushima reactor accident in 2011. In addition, increased ^{131}I levels were found in November 2011 and increased ^{137}Cs levels in Northern Europe in April 2013.

Radioactive substances in inland waters (Chapter 6)

Radioactivity in inland waters is due to both natural and man-made radionuclides. ^{137}Cs is the man-made radionuclide of importance at present. The activity levels range up to more than 200 Bq/kg in aerosols and sludge, but are mostly below 100 Bq/kg.

Radioactive substances in drinking water and groundwater / interlaboratory comparisons of drinking water (Chapters 7, 8)

Almost all measured values of ^{137}Cs concentrations in drinking water and groundwater are below the detection limit. A dose estimate based on the maximum values of ^{137}Cs and ^{90}Sr measured in 2013 has shown ingestion doses of 0.055 to 0.25 µSv per year, assuming a drinking water consumption of 700 litres.

The BfS, in cooperation with the PTB, carried out interlaboratory comparisons to determine natural radionuclides in drinking water in 2012 and 2014. About 90 per cent of all measured values evaluated in the performance tests are within the allowed range of dispersion.

Radioactive substances in the North Sea and the Baltic Sea and in fish (Chapters 9, 10)

In the North Sea sampling was performed every August. The ^{137}Cs activity concentration ranged from 1.3 Bq/m^3 in the Elbe estuary up to 3.0 Bq/m^3 in the outer German Bight. Compared to this, the ^{137}Cs activity concentration in the Baltic Sea is higher, ranging from 20 Bq/m^3 in the western part, to 34 Bq/m^3 in the eastern part of the region under study, as a result of the Chernobyl reactor accident.

Consequently, the measured ^{137}Cs activity concentrations in fish are also higher in the Baltic Sea than in the North Sea, reaching up to 11 Bq/kg during the reporting period. Increased activity concentrations are still being measured in fish from inland waters, especially from lakes. In Southern Germany, these have declined from more than 200 Bq/kg moist mass in 1986 down to 2.3 Bq/kg up to now.

The Fukushima nuclear disaster and its impacts on the marine environment (Chapter 11)

As a result of the Fukushima nuclear disaster, more than 10 PBq of ^{134}Cs and ^{137}Cs (1 PBq = 1015Bq) entered the Pacific Ocean every. While the radiocaesium levels in fish caught off the Japanese coast of Fukushima, Miyagi and Ibaraki prefectures reached 10 Bq/kg on the average in October 2014, the comparative ^{137}Cs values measured within the scope of the German Measuring Programme were far below one Bq/kg. The effects on sea organisms is negligible according to current scientific knowledge.

Radioactive substances in soil, plants, feedstuffs, diet, milk and dairy products (Chapter 12)

While soil contamination with ^{137}Cs is due to the Chernobyl accident, most of the ^{90}Sr deposits go back to the time of the atmospheric nuclear weapons tests. In feedstuffs, mean values ranging from < 0.1 Bq/kg up to 0.8 Bq/kg were measured for ^{137}Cs and from 0.1 Bq/kg up to 2.3 Bq/kg for ^{90}Sr. Contamination of milk constantly remains at a low level. Dietary intake of ^{137}Cs and ^{90}Sr was 73 Bq and 29 Bq, respectively, on average in 2013.

Interlaboratory comparisons for radionuclides in raw milk in 2014 (Chapter 13)

An interlaboratory comparison involving 72 institutions from Germany and neighbouring countries was carried out to determine the levels of ^{40}K, ^{89}Sr, ^{90}Sr, ^{131}I, Ba-133, ^{134}Cs, and ^{137}Cs in raw milk. More than 94 per cent of the measurement results obtained for all nuclides were within the allowed range of dispersion.

Rapid assessment of the strontium yield and the Sr-89 and Sr-90 activities at a activity ratio of 25 by LSC-measurement and evaluation using UncertRadio (Chapter 14)

Since the dose coefficients of ^{89}Sr and ^{90}Sr differ considerably, separate assessments of ^{89}Sr and ^{90}Sr activity concentrations in the media of interest are required in the case of a nuclear accident. Compared to the currently established methods, which are associated with long processing times, a combined procedure involving both evaluation using the programme UncertRadio and assessment of ^{90}Sr activity from its progeny ^{90}Y makes results of comparable quality more rapidly available.

Analysis of the transfer behaviour of the incident-related radionuclides caesium and strontium during bioethanol production (Chapter 15)

For the case of an incident involving radioactive contamination of grain, conversion to bioethanol is being considered for the purpose of recovery of the contaminated material. The analysis yielded transfer factors of 0.1 - 1 per cent for ^{137}Cs- and 0.04 - 1.5 per cent for strontium.

Radioactive substances in wastewater, clearing sludge and waste (Chapter 16)

Apart from ^{131}I, which was detected in many samples of fly ash/filter dust and is assumed to originate from nuclear medicine applications, ^{137}Cs from the Chernobyl accident was still detectable. Mean values of 14 Bq/kg of dry matter were measured in clearing sludge in Southern Bavaria. ^{134}Cs from the Fukushima accident was also detectable temporarily in 2011.

Pharmaceuticals and their precursors, food contact materials (Chapter 17)

As a consequence of the Chernobyl accident, the ^{137}Cs activity concentration was found to be enhanced in samples of plants used to make pharmaceuticals or tea still in 2013. Buckbean leaves from Poland had 35 Bq/kg of dry matter, and Iceland moss from Russia 15 Bq/kg of dry matter.

RÉSUMÉ

Le présent rapport rassemble des données collectées entre les années 2011 et 2013 au sujet de la radioactivité dans l'environnement et aux abords des installations nucléaires et fournit une analyse de ces données. En 2013, l'irradiation moyenne de la population allemande s'élevait à environ 4,0 mSv. L'irradiation **naturelle** contribuait environ 2,1 mSv tandis que l'irradiation **artificielle** était d'environ 1,9 mSv [1].

Les normales d'activité et les éléments traces (chapitre 1)

Dans le cadre d'un Arrangement de reconnaissance mutuelle (MRA) le service fédéral physico-technique allemand PTB participe régulièrement aux mesures de comparaison à l'échelle internationale. Un groupe de travail international est en train d'élaborer des standards de qualité pour les mesures du radon. Ces standards constituent aussi la base pour la mise en œuvre des règlements correspondants contenus dans les nouvelles normes fondamentales de l'EURATOM.

Du riz cultivé dans la zone contaminée près de Fukushima a été certifié comme matériel de référence aux contrôles alimentaires. Le module de mesure pour les traces des substances radioactives dans l'air a obtenu des résultats frappants au cours de la période couverte par le présent rapport. Des radionucléides artificiels provenant de l'accident nucléaire de Fukushima étaient détectables, entre autres.

Détermination du débit de dose local dans les régions présentant de la radioactivité naturelle – 20 ans de mesures de comparaison à l'échelle internationale (chapitre 2)

Pour déterminer le niveau de radiation anthropique il est aussi nécessaire de mesurer soigneusement les composantes « naturelles » de radiation. Trois différentes surfaces de mesures sont utilisées comme modèles pour comparer la calibration. Les comparaisons des calibrations effectuées dans les 20 dernières années montrent que les facteurs de calibration ont tendance de s'approcher.

Rejet d'effluents radioactifs par les centrales nucléaires, effets des fermetures d'installations nucléaires effectuées jusqu'à présent (chapitre 3)

Le pourcentage de matières radioactives contenues dans l'air d'échappement et dans les effluents des centrales nucléaires ne représentait entre 2011 et 2013 qu'une très petite partie des valeurs autorisées. Les effluents sont généralement en diminution depuis 1975. Les 9 unités de production qui étaient encore en opération à la fin de la période sous revue, dont la puissance s'élève à 12,7 GW, contribuaient 15 pour cent à la production totale d'électricité en Allemagne.

Réseau de surveillance de l'air et des précipitations, mesures de traces dans l'air près du sol (chapitres 4, 5)

Le service météorologique allemand DWD mesure l'activité β totale dans **l'air** à travers son réseau de mesure; pour les années 2011, 2012 et 2013 les valeurs moyennes annuelles s'élevaient à 0,6 mBq/m^3, 0,7 mBq/m^3 et 0,7 mBq/m^3, respectivement. Au cours de la même période, les **précipitations** ont déposé une activité à hauteur de 58 Bq/m^2, 38 Bq/m^2 et 27 Bq/m^2, respectivement. Le niveau élevé de la valeur pour 2011 est à attribuer aux rejets radioactifs de Fukushima.

La concentration d'activité du ^{85}Kr mesurée par le BfS à Fribourg (Allemagne) continuait de s'élever à environ 1,5 Bq/m^3 au cours de la période couverte par ce rapport. Les valeurs mesurées pour la concentration d'ac-

tivité du ^{133}Xe se montaient à entre 1 et 100 mBq/m^3, sauf après le désastre de Fukushima. Les modules de mesures pour les traces de radioactivité situés à Fribourg, Potsdam, Offenbach et Braunschweig ont détecté en 2011 le ^{137}Cs et le ^{134}Cs provenant de cet accident nucléaire. En plus, des valeurs élevées pour le ^{131}I ont été observées en Novembre 2011, et des activités élevées pour le ^{137}Cs ont été constatées en avril 2013 dans l'Europe du Nord.

Les matières radioactives contenues dans les eaux intérieures (chapitre 6)

La radioactivité dans les **eaux intérieures** est due aux radionucléides naturels et aux radionucléides artificiels. Le seul radionucléide artificiel qui est d'intérêt à présent est le ^{137}Cs. Les activités observées dans les matières en suspension et dans la boue peuvent dépasser les 200 Bq/kg, mais pour la plupart elles sont inférieures à 100 Bq/kg.

Les matières radioactives contenues dans l'eau potable et la nappe phréatique / Intercomparaisons au sujet de l'eau potable (chapitres 7, 8)

Les valeurs mesurées pour le ^{137}Cs dans **l'eau potable et la nappe phréatique** sont presque toujours en-dessous du seuil de détection. Prenant les valeurs maximales mesurées en 2013 pour le ^{137}Cs et le ^{90}Sr comme base d'estimation, les doses d'ingestion s'élèveraient à 0,055 et 0,25 µSv par an pour 700 litres d'eau potable consommée.

En 2012 et 2014 le BfS a effectué des intercomparaisons, en coopération avec le PTB, afin de déterminer les radionucléides naturels dans l'eau potable. Environ 90 % des valeurs mesurées qui faisaient objet du test de performance ont se situent dans la zone de dispersion admissible.

Les matières radioactives contenues dans la mer du Nord et la mer Baltique ainsi que dans les poissons (chapitres 9, 10)

Les échantillonnages dans la **mer du Nord** ont été réalisés pendant le mois d'août des années 2011, 2012 et 2013. Au cours de la période sous revue, la concentration d'activité du ^{137}Cs s'élevait à entre 1,3 Bq/m^3 dans l'embouchure de l'Elbe et 3,0 Bq/m^3 à la périphérie de la Baie allemande. La **mer Baltique** fait preuve d'une concentration d'activité plus élevée du ^{137}Cs du fait de l'accident nucléaire de Tchernobyl. Entre 2011 et 2013, celle-ci était de 20 Bq/m^3 dans la partie ouest et 34 Bq/m^3 dans la partie est de la zone observée.

Ainsi, les valeurs d'activité du ^{137}Cs mesurées dans les **poissons** à provenance de la mer Baltique sont aussi plus élevées que dans la mer du Nord. Au cours de la période couverte par ce rapport, l'activité se montait jusqu'à 11 Bq/kg. En ce qui concerne les poissons à provenance des eaux intérieures, des concentrations d'activité élevées se montrent surtout dans les lacs. Dans l'Allemagne de Sud, ces valeurs s'élevaient à 200 Bq/kg de matière humide en 1986 mais se sont réduites à 2,3 Bq/kg dans les années sous revue.

L'accident nucléaire de Fukushima et ses conséquences pour le milieu marin (chapitre 11)

Au cours de l'accident nucléaire de Fukushima plus de 10 PBq (1 PBq = 10^{15}Bq) de radioactivité se sont répandus dans l'océan Pacifique. Tandis que les poissons capturés au large des préfectures japonaises de Fukushima, Myagi et Ibaraki contenaient 10 Bq/kg de radiocésium en octobre 2014, les valeurs constatées dans le cadre des programmes de mesure allemands sont nettement inférieures à 1 Bq/kg de ^{137}Cs. L'effet sur les organismes marins est jugé faible, compte tenue des connaissances scientifiques du moment.

Les substances radioactives contenues dans le sol, les plantes, les aliments pour animaux, les denrées alimentaires, le lait et les produits laitiers (chapitre 12)

Alors que la contamination du **sol** en ^{137}Cs est en train de se réduire depuis l'accident de Tchernobyl, le ^{90}Sr déposé parvient pour la plupart du temps des essais nucléaires atmosphériques. En ce qui concerne les **aliments pour animaux**, les valeurs moyennes observées pour le ^{137}Cs se montait à entre <0,1 Bq/kg et 0,8 Bq/kg et pour le ^{90}Sr à entre 0,1 Bq/kg et 2,3 Bq/kg. La contamination du **lait** continue d'afficher un niveau faible. 73 Bq de ^{137}Cs ont été absorbés en 2013 en moyenne par an et par personne avec la consommation des **denrées alimentaires**, l'absorption de ^{90}Sr s'élevait à 29 Bq.

Intercomparaison en 2014 au sujet des radionucléides dans le lait cru (chapitre 13)

Au cours d'une intercomparaison impliquant 72 instituts situés dans l'Allemagne et dans les pays voisins, les nucléides ^{40}K, ^{89}Sr, ^{90}Sr, ^{131}I, ^{133}Ba, ^{134}Cs et ^{137}Cs ont été déterminés dans le lait cru. Pour l'ensemble des nucléides, plus de 94 % des résultats se situent dans la zone de dispersion admissible.

Détermination rapide du niveau de strontium ainsi que des activités du ^{89}Sr et ^{90}Sr pour un ratio d'activité de 25 à travers d'un comptage par scintillation liquide et d'une évaluation à l'aide du logiciel UncertRadio (chapitre 14)

À cause des coefficients de dose très différents des radionucléides ^{89}Sr et ^{90}Sr il est nécessaire, dans le cas d'un accident nucléaire, de déterminer les valeurs d'activité de ces nucléides séparément dans les milieux sous observation. Les méthodes établies jusqu'à présent impliquent de longs délais de traitement. L'évaluation à l'aide du programme UncertRadio combinée à une détermination de l'activité du ^{90}Sr à travers le ^{90}Y généré permet d'obtenir des résultats qui sont plus rapidement disponibles et dont la qualité est comparable.

Examen du comportement de transfert des radionucléides césium et strontium, qui sont pertinents dans le cas d'un accident, au cours de la production de bioéthanol (chapitre 15)

Après un incident au cours duquel du blé a subi une contamination radioactive, il est envisagé de transformer le matériel contaminé en bioéthanol afin de permettre la génération d'une valeur ajoutée. L'examen a montré des facteurs de transfert entre 0,1 et 1 pour cent pour le ^{137}Cs et entre 0,04 et 1,5 pour cent pour le strontium.

Les matières radioactives contenues dans les effluents et les boues d'épuration et les déchets (chapitre 16)

Du ^{137}Cs provenant de l'accident nucléaire de Tchernobyl était toujours détectable. Il s'ajoute au ^{131}I qui pouvait être détecté dans de nombreux échantillons d'escarbille et de la poussière de filtrage qui résulte probablement des procédures de médecine nucléaire. Au sud de la Bavière, les **boues d'épuration** montrent des valeurs moyennes de 14 Bq/kg de matière sèche. En 2011, du ^{134}Cs provenant de l'accident nucléaire de Fukushima était détectable pendant une courte période de temps.

Les médicaments et leurs substances de départ; les produits d'utilisation courante (chapitre 17)

En suite de l'accident de Tchernobyl, les activités élevées du ^{137}Cs étaient toujours détectables dans les échantillons des plantes qui sont utilisés pour les **médicaments** ou les tisanes. Pour les feuilles du trèfle d'eau venant de la Pologne, l'activité s'élevait en moyenne à 35 Bq/kg de matière sèche, pour la mousse d'Islande venant de la Russie les valeurs atteignaient 15 Bq/kg de matière sèche.

1 AKTIVITÄTSNORMALE UND SPURENSTOFFE

H. Wershofen, D. Arnold, K. Kossert, A. Röttger

Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig
Leitstelle für Aktivitätsnormale und Radionukliddaten

Zentrale Aufgabe des Fachbereiches „Radioaktivität" der PTB ist die Darstellung der gesetzlichen Einheit „Becquerel" (Bq) sowie deren Weitergabe an Forschungsinstitute, Kliniken, Industriebetriebe sowie an die Messstellen zur Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt. Auf Grund der stark unterschiedlichen Zerfallseigenschaften erfordert jedes Radionuklid seine eigenen Messverfahren zur Aktivitätsbestimmung, für die in der PTB geeignete Apparaturen zur Verfügung stehen. Die Weitergabe der Aktivitätseinheit erfolgt überwiegend durch die Abgabe von Aktivitätsnormalen [2] und durch Aktivitätsbestimmungen an eingereichten Proben.

Das Mutual Recognition Arrangement (MRA) unter der Schirmherrschaft des Comité International des Poids et Mesures (CIPM) ist eine weltweite Vereinbarung zur länderübergreifenden gegenseitigen Anerkennung von Kalibrierzertifikaten nationaler metrologischer Institute für alle kommerziell oder gesellschaftlich relevanten Messgrößen. Das Abkommen dient dem Abbau von Handelshemmnissen und fordert von den Teilnehmern neben dem Nachweis eines Qualitätsmanagement-Systems auch die Teilnahme an Vergleichsmessungen. Um den Anforderungen des MRA nachzukommen, beteiligt sich die PTB regelmäßig an internationalen Vergleichsmessungen, die von dem in Paris angesiedelten Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) organisiert werden. Einige der nachgewiesenen Kalibrier- und Messfähigkeiten der PTB wurden im Berichtszeitraum in einer sogenannten CMC-Tabelle (Calibration and Measurement Capabilities) zusammengefasst und nach einem mehrstufigen Begutachtungsprozess akzeptiert und veröffentlicht [3].

Eine weitere wichtige Aufgabe des Fachbereichs "Radioaktivität" ist die Bestimmung von Radionukliddaten, insbesondere von Emissionswahrscheinlichkeiten und Halbwertszeiten. Bei vielen Nukliden kann die Halbwertszeit durch die Messung des Abklingverhaltens z.B. mit 4π-γ-Ionisationskammern bestimmt werden. Dazu müssen gewisse Anforderungen wie ein stabiler und gegenüber dem Nettoeffekt möglichst geringer Untergrund, die genaue Kenntnis von evtl. vorhandenen Verunreinigungen durch weitere Radionuklide und ein linearer Zusammenhang zwischen der Aktivität und dem gemessenen Ionisationsstrom gegeben sein. Mit solchen Anordnungen werden in der PTB fortlaufend Halbwertszeiten in einem Bereich von wenigen Stunden (z.B. ^{18}F) bis hin zu einigen Jahrzehnten (z.B. ^{137}Cs) mit relativen Unsicherheiten in der Größenordnung 10^{-4} bestimmt.

Die Bestimmung von langen Halbwertszeiten stellt seit Jahren ein wichtiges Arbeitsgebiet des Fachbereichs dar. In den Jahren 2011 bis 2013 hat die PTB in Kooperation mit der Australian National University und der TU München die Halbwertszeiten der langlebigen Isotope ^{41}Ca und ^{176}Lu gemessen [4,5]. Die dazu notwendigen Aktivitäten wurden mit Hilfe der Flüssigszintillationszählung bestimmt [6]. Messungen an den Isotopen ^{129}I und ^{151}Sm, die bei der Entsorgung radioaktiver Abfälle eine Rolle spielen, wurden 2013 im Rahmen des vom Europäischen Metrologie-Forschungsprogramm (EMRP) geförderten Projekts "Metrology for radioactive waste management" begonnen. Die Ergebnisse, welche in Zusammenarbeit mit anderen europäischen Metrologieinstituten erzielt wurden, werden 2015 publiziert.

Radon / Thoron

Die Weitergabe der Einheit der Aktivitätskonzentration von ^{222}Rn und ^{222}Rn-Folgeprodukten in Luft im Bereich von 10^2 Bq/m^3 bis 10^5 Bq/m^3 erfolgt in der PTB durch die Kalibrierung der ^{222}Rn- und ^{222}Rn-Folgeproduktmessgeräte anderer Staatslaboratorien, eines Laboratoriums der Deutschen Akkreditierungsstelle (DAkkS), einiger Forschungsinstitute und Industrielaboratorien.

Seit 2003 können in der PTB auch Kalibrierungen für die Aktivitätskonzentration von Thoron (^{220}Rn) durchgeführt werden. Dieses Angebot wird seit 2007 durch allgemeine Referenzatmosphären für Gemische von Radon, Thoron und den zugehörigen Folgeprodukten ergänzt. Der Bereich der einstellbaren Aktivitätskonzentrationen liegt zwischen 1 kBq/m^3 und 10 kBq/m^3.

2011 wurde eine neunköpfige internationale Arbeitsgruppe zur Erarbeitung eines ICRU-Reports rund um das Themenfeld Radonmessungen etabliert. Dieser Report wird weltweit einheitliche Qualitätsstandards für Radonmessungen (^{222}Rn und ^{220}Rn und deren zugehörige Folgeprodukte), den Umgang mit Expositionsbestimmungen und einen Vorschlag zur einheitlichen Dosimetrie liefern, der die neuesten Erkenntnisse der Internationalen Strahlenschutzkommission

(International Commission on Radiological Protection, ICRP, Publikation ICRP 115) berücksichtigt. Die Veröffentlichung des Reports wird 2015 erwartet. Mit der europäischen „COUNCIL DIRECTIVE laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation“ (EU BSS) [7] wird Radon-Messung erstmalig zu einer gesetzlichen Aufgabe und somit ist der ICRU-Report eine metrologische Basis für der Umsetzung der EU BSS in nationales Recht. Die Belange der Metrologie werden in der ICRU-Arbeitsgruppe durch die AG „Radon-Messtechnik“ der PTB vertreten.

Die PTB erweitert ihr Leistungsangebot bzgl. ^{222}Rn: Kunden stehen nun auch Kalibrierungen bei Aktivitätskonzentrationen zwischen 100 Bq/m^3 und 1000 Bq/m^3 mit den von der PTB gewohnten kleinen Messunsicherheiten von nur 2 % zur Verfügung. Dieses Angebot resultiert aus den Ergebnissen der 2013 abgeschlossenen Promotion von Frau Dr. D. Linzmaier und wurde um die entsprechenden Qualitätssicherungsmaßnahmen für den Betrieb einer PTB-Kaliriereinrichtung ergänzt.

Dieses Kalibrierangebot der PTB kommt gerade rechtzeitig: Die ICRP hat kürzlich die Bewertung der biologischen Wirksamkeit von Radon nach oben korrigiert. Somit trägt Radon zu einer viel höheren effektiven Dosis bei als bisher angenommen. Das hat Folgen: Europaweit wird erstmals ein einheitlicher Referenzwert für die mittlere Radon-Konzentration in Gebäuden festgelegt. Dieser Referenzwert liegt bei 300 Bq/m^3 und ist damit deutlich niedriger als die bisher unverbindlichen Empfehlungen. In den nächsten Jahren sollen diese Vorgaben in nationales Recht umgesetzt werden.

Referenzmaterialien

Die Weitergabe der Einheit für Aktivitäten kleiner als 100 Bq erfolgt überwiegend durch Aktivitätsbestimmungen an eingereichten Proben. Bei diesen Proben handelt es sich um diverse Umweltmaterialien (z. B. Wasser, Boden, Sediment, Pflanzen, Nahrungsmittel) oder Industrieprodukte (z. B. Haldenmaterial, Baustoffe, Metalle, Rohstoffe), die zumeist ein Gemisch aus natürlichen und künstlichen Radionukliden aufweisen. Darüber hinaus sind die Proben chemisch sehr unterschiedlich zusammengesetzt und besitzen Dichten zwischen 0,3 g/cm^3 und 11 g/cm^3.

Durch die Aktivitätsbestimmung an Ringversuchsmaterialien unterstützt die PTB die Leitstellen bei der Durchführung von Ringvergleichen im Rahmen des Messprogrammes nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz. Hierzu erhält die PTB zufällig entnommene Proben aus der Menge der für die Teilnehmer vorbereiteten Ringversuchsproben. Die Proben werden dann mit den in den Messanleitungen geforderten Verfahren analysiert. Schließlich werden die Ergebnisse der PTB-Analysen mit denen des Ringversuchs verglichen. Dabei auftretende Abweichungen oder Probleme werden in enger Zusammenarbeit mit der Leitstelle diskutiert und geklärt. Diese Verfahrensweise hat sich nach übereinstimmender Meinung aller beteiligten Institute bewährt. Im Berichtszeitraum hat die PTB sieben Ringversuchsmaterialien von Leitstellen untersucht. Als „neue“ Ringversuchsproben sind darunter reale Trinkwasser und Modell-Trinkwasserproben, die von der Leitstelle beim Bundesamt für Strahlenschutz hergestellt wurden, wobei in der PTB charakterisierte Ausgangslösungen verwendet wurden.

Im Rahmen der Mitwirkung der PTB an der Zertifizierung internationaler Referenzmaterialien ist besonders ein internationaler Ringversuch hervorzuheben. Hier wurde in der kontaminierten Zone bei Fukushima angebauter Reis („Brown Rice“) als Referenzmaterial für Zwecke der Lebensmittelüberwachung in Japan zertifiziert. Die in dem Reis enthaltenen spezifischen Aktivitäten der Radionuklide ^{40}K, ^{134}Cs und ^{137}Cs wurden zunächst von 12 Instituten in Japan bestimmt. Dabei wurden sehr enge Homogenitäts-Schwankungen von nur ± 1 % bis ± 3 % festgestellt. Anschließend wurden zur unabhängigen Validierung der japanischen Referenzwerte fünf internationale Institute, darunter vier staatliche Metrologieinstitute, zu einem internationalen Ringvergleich eingeladen. Die in diesem Ringvergleich ermittelten spezifischen Aktivitäten stimmten mit den in Japan ermittelten Werten sehr gut überein. Sogar die Streuung der Messergebnisse des internationalen Ringvergleiches liegt innerhalb der o. g. in Japan ermittelten Homogenitätsgrenzen. Eine derart gute Homogenität ist nur erreichbar, wenn Radionuklide durch die Stoffwechselvorgänge in Pflanzen oder Tieren gleichmäßig im Ringversuchsmaterial eingelagert („verstoffwechselt“) werden. Eine Publikation über den Ringversuch ist beim Organisator (dem „Center for the Promotion of Disarmament and Non-Proliferation, Japan Institute of International Affairs“) in Vorbereitung.

Spurenmessstelle für radioaktive Stoffe in der Luft

Messergebnisse

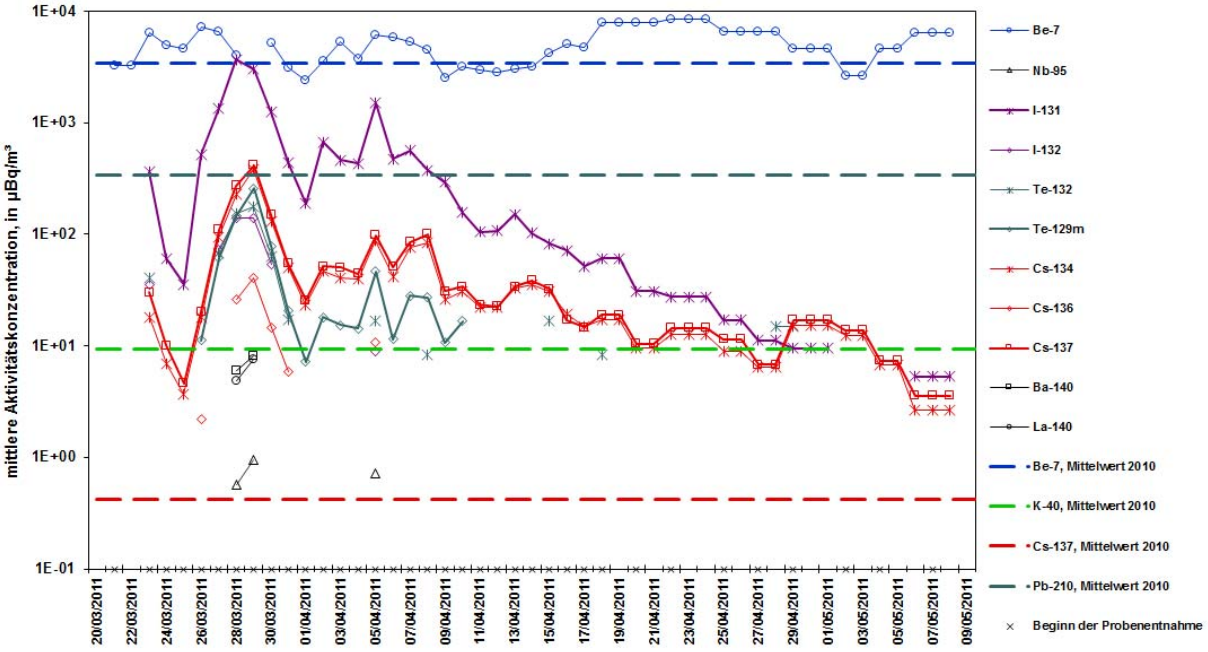
Im Berichtszeitraum gab es einige auffällige Messergebnisse in der Spurenmessung von Radionukliden in der bodennahen Luft in Braunschweig.

Herausragendes Ereignis war 2011 die Messkampagne der vier deutschen Spurenmessstellen, die

auch für das „Sparse Net“ der Europäischen Union berichten, zur Beobachtung der durch den Unfall der Kernreaktoren in Fukushima freigesetzten künstlichen Radionuklide. Die in Deutschland täglich gemessenen Aktivitätskonzentrationen wurden durch die Leitstelle auf der Internetseite des Bundesamtes für Strahlenschutz veröffentlicht [8]. Von dort waren die Internetseiten des DWD und der PTB mit den jeweils eigenen Messergebnissen erreichbar. Im Bericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2011" [12] ist der Einfluss des Reaktorunfalls auf Deutschland zusammenfassend beschrieben. Abildung 1.1 zeigt die Messreihe der PTB mit den Messergebnissen von Braunschweig vom 23. März 2011 bis zum 08. Mai 2011. Zum Vergleich mit einigen natürlich in der Luft enthaltenen Radionukliden werden die in den jeweiligen Proben gemessenen Aktivitätskonzentrationen von ^{7}Be gezeigt sowie die 2010 beobachteten Jahresmittelwerte der Aktivitätskonzentrationen von ^{7}Be, ^{40}K und ^{210}Pb als gestichelte Linien dargestellt.

Anfang November 2011 wurden an den Spurenmessstellen im Nord-Osten Deutschlands Spuren von ^{131}I nachgewiesen. In Braunschweig wurden in Wochenproben der 44. Kalenderwoche (31.10.2011 bis 07.11.2011) Aktivitätskonzentrationen von (9,6 ± 1,3) µBq/m^3 und (9,0 ± 1,1) µBq/m^3 gemessen. In der gleichen Woche wurde an der Station Potsdam des DWD eine ähnlich hohe Aktivitätskonzentration (10,9 ± 2,6) µBq/m^3 gemessen, während an den beiden Spurenmessstellen des BfS auf dem Schauinsland und in Freiburg auf Grund der vorherrschenden Luftströmung keine auffälligen Werte festgestellt wurden. Auch in Schweden, Dänemark, Norwegen, der Tschechischen Republik, Österreich und Frankreich war in diesem Zeitraum ^{131}I nachgewiesen worden, in Polen und in Österreich bereits auch in den beiden vorhergehenden Wochen. Die Quelle des ^{131}I wurde schließlich über die Internationale Atomenergiebehörde (IAEA, International Atomic Energy Agency, www.iaea.org) in einer Firma in Ungarn zur Herstellung von Radioisotopen für medizinische Zwecke in diesem Zeitraum ermittelt [12].

In Nordeuropa (Finnland, Nordschweden und Nordnorwegen) wurde in der Kalenderwoche 3/2012 (2012-01-16 bis 2012-01-23) wieder ^{131}I beobachtet. In der PTB wurde in dieser Woche kein ^{131}I nachgewiesen. Hier trat es in der 5. Kalenderwoche (2012-01-30 bis 2012-02-06) bei trocken-kalter Ostwind-Wetterlage auf. Wegen des hohen Staubgehaltes der Luft mussten am Freitag (2012-02-03) die Filter gewechselt werden, um deren Verstopfung am Wochenende zu vermeiden. Daher stehen für diese Woche Messergebnisse von zwei Staubsammlern („1“ und „2“) für die Zeiträume „Mo. bis Fr.“ und „Fr. bis Mo.“ zur Verfügung, und die Ankunftszeit des



Quelle: Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Abbildung 1.1
Messreihe der Spurenmessstelle mit künstlichen Radionukliden aus den Reaktoren in Fukushima 2011

Jods konnte entsprechend eingegrenzt werden. Neben ^{131}I wurde in einer Teilprobe auch ^{60}Co nachgewiesen, dessen Herkunft unbekannt blieb.

Im Wochenabschnitt „Mo. bis Fr.“, Bezugszeitpunkt = 2012-02-01 07:50 (UTC), wurden folgende Messergebnisse ermittelt:

In Probe 1:
^{131}I (7,4 ± 1,0) µBq/m³ und
^{60}Co (0,14 ± 0,014) µBq/m³

In Probe 2:
^{131}I (7,5 ± 0,9) µBq/m³ (^{60}Co lag unter der Nachweisgrenze von = 0,05 µBq/m³).

Im anschließenden Zeitraum „Fr. bis Mo.“ wurde keines der genannten Radionuklide nachgewiesen.

Atmosphärische Ausbreitungsrechnungen deuteten wieder auf Ungarn hin. Dortige Behörden teilten mit, dass es in Budapest in einer Isotopenproduktionsanlage im Januar Freisetzungen innerhalb des genehmigten Rahmens gegeben hatte, was zumindest teilweise die erhöhten Messwerte erklären könnte. Die Quelle des nachgewiesenen Jods konnte jedoch nicht eindeutig ermittelt werden [13].

Im April 2013 wurden in Skandinavien gegenüber den üblichen Messwerten deutlich erhöhte Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs gemessen, während die Messergebnisse der PTB unter den Nachweisgrenzen lagen. Durch schnellen Informationsaustausch innerhalb des Netzwerkes der Europäischen Spurenmessstellen („Ring of Five“), dessen Funktionsfähigkeit in einer Kooperation zwischen der Spurenmessstelle der PTB und dem Schwedischen Verteidigungs-Forschungsinstitut in Stockholm sichergestellt wird, wurde das Gebiet abgeschätzt, über das die kontaminierte Luftmasse gezogen war und der Ursprungsort der Kontamination eingegrenzt. Schließlich brachte eine Internet-Recherche der Kollegen in Oslo konkretere Hinweise auf eine Freisetzung aus einem Stahlwerk in der Stadt „Elektrostal“ östlich von Moskau.

Während die PTB bereits im März 2012 auf eine 125-jährige Geschichte zurückblickte, konnte die Spurenmessstelle 2013 ein kleines „Jubiläum“ feiern. Ihre Messreihen von Radionukliden in der bodennahen Luft überdeckten im Oktober 2013 einen z. T. nicht unterbrochenen Zeitraum von 50 Jahren, was durch die Herausgabe eines Schwerpunktthemas „Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft“ der PTB-Mitteilungen gewürdigt wurde [9].

2 BESTIMMUNG DER ORTSDOSISLEISTUNG (ODL) IN BEREICHEN NATÜRLICHER RADIOAKTIVITÄT - 20 JAHRE VERGLEICHSMESSUNGEN UNTER INTERNATIONALER BETEILIGUNG

J. Döring

Bundesamt für Strahlenschutz

Leitstelle für Fragen der Radioaktivitätsüberwachung bei erhöhter natürlicher Radioaktivität (ENORM)

Technische Unterstützung und Aufbereitung der Daten: M. Knittel (Wismut GmbH), J. Mielcarek, M. Ebert (BfS)

Die Bestimmung der durch Photonen, Neutronen und Betastrahlung verursachten Strahlenexpositionen ist seit langem ein Kernthema des Strahlenschutzes. Somit gehört die Bearbeitung dosimetrischer Probleme zu den gesetzlich verankerten (StrlSchV, StrVG, RöV) (Routine)-Aufgaben *auch*[1] des BfS.

Aus welchen Gründen wurde darüber hinaus 2002 seitens des BMUB die Leitstelle ENORM als Nachfolger der „Leitstelle Bergbau“ etabliert, zu deren Veranstaltungen seit 1994 die Organisation eines jährlichen Kalibriervergleiches mobiler Gammadosisleistungsmessgeräte gehört? Die Antwort ergibt sich aus einigen der im Folgenden aufgeführten Besonderheiten der *„Strahlenquelle Umwelt“*.

Im praktischen - dies entspricht dem beruflichen Strahlenschutz gemäß StrlSchV und RöV, also beim geplanten Umgang mit radioaktiven Stoffen oder Anlagen zur Erzeugung ionisierender Strahlen, interessiert nur die Dosis, die aus diesem geplanten Umgang resultiert. Geräteanzeigen, die durch ohnehin vorhandene Umgebungsstrahlung (natürlich bedingter Untergrund durch terrestrische Strahlung und Höhenstrahlung) und den Eigennulleffekt des Messgerätes zustande kommen, werden summarisch separat gemessen und schließlich von der Gesamtanzeige subtrahiert. Auf diesem Wege wird die sogenannte *beruflich bedingte Exposition* bestimmt.

Nach (durch Tätigkeiten des Menschen verursachter) radioaktiver Kontamination von Umweltmedien (Boden, Luft, Wasser) und in der Folge auch von Nahrungsmitteln - also der Umwelt im weiteren Sinne - ist oft nicht mehr feststellbar, welcher Beitrag der gemessenen Strahlungsgröße (Dosis, Aktivität, spezifische Aktivität) natürlicherweise vorhanden ist und welcher Beitrag anthropogen verursacht bzw. verstärkt wurde (Bergbau, Fallout nach Kernwaffentests und Kraftwerkshavarien, unsachgemäßer Umgang mit radioaktiven Stoffen). Dies warf und wirft rechtliche Fragen auf, zu deren Beantwortung die *separate Bestimmung des anthropogen verursachten Strahlungspegels* erforderlich ist.

Aber auch die in den Vordergrund rückenden Bemühungen, die Exposition des Menschen und seiner Umwelt gegenüber natürlich vorkommender Radioaktivität (NORM bzw. ENORM) in beispielsweise Baustoffen und Baugrund zu verringern, erfordern eine sorgfältige Messung „natürlicher" Strahlungskomponenten.

Strahlungsmesstechnik, Prüf- und Kalibrierverfahren sowie andere qualitätssichernde Prozeduren einschließlich der einschlägigen Anforderungen der PTB sind traditionell auf Anforderungen ausgerichtet, wie sie sich aus dem geplanten Umgang mit radioaktiven Stoffen oder Anlagen zur Erzeugung ionisierender Strahlen ergeben. Die Möglichkeit, den natürlichen bzw. anthropogen veränderten Untergrund von der beruflich bedingten Exposition zu unterscheiden, wird also vorausgesetzt. Die konventionelle Dosismesstechnik ist nicht in der Lage, auf Grundlage einer Messung zwischen den *Komponenten des Strahlungsfeldes* am Messort zu unterscheiden:

- Weitgehend „richtig" zeigen Dosimeter eine Strahlenart einer Energie an, andernfalls muss der Messwert korrigiert werden. Dies gilt vor allem für Gamma- und Röntgenstrahlung, deutlich weniger für Neutronen- und Betastrahlung.
- Das Ansprechen auf *Höhenstrahlungskomponenten* ist im Allgemeinen ebenso unzureichend bekannt wie die *Eigenanzeige* des Gerätes.

Auch dieses Wissen führte dazu, dass 1993 auf Anregung des BfS mit der Wismut GmbH vereinbart wurde, für die „Radiologische Erfassung, Untersuchung und Bewertung bergbaulicher Altlasten" Maßnahmen zur Qualitätssicherung bei der Messung der ODL einzuführen.

[1] Viele dieser Aufgaben sind vorrangig von Landesbehörden zu erfüllen, was die (auch international erforderliche) Etablierung eines einheitlichen Standes von „Wissenschaft und Technik“ - siehe das Beispiel der Verwendung von Dosisgrößen - erschwert.

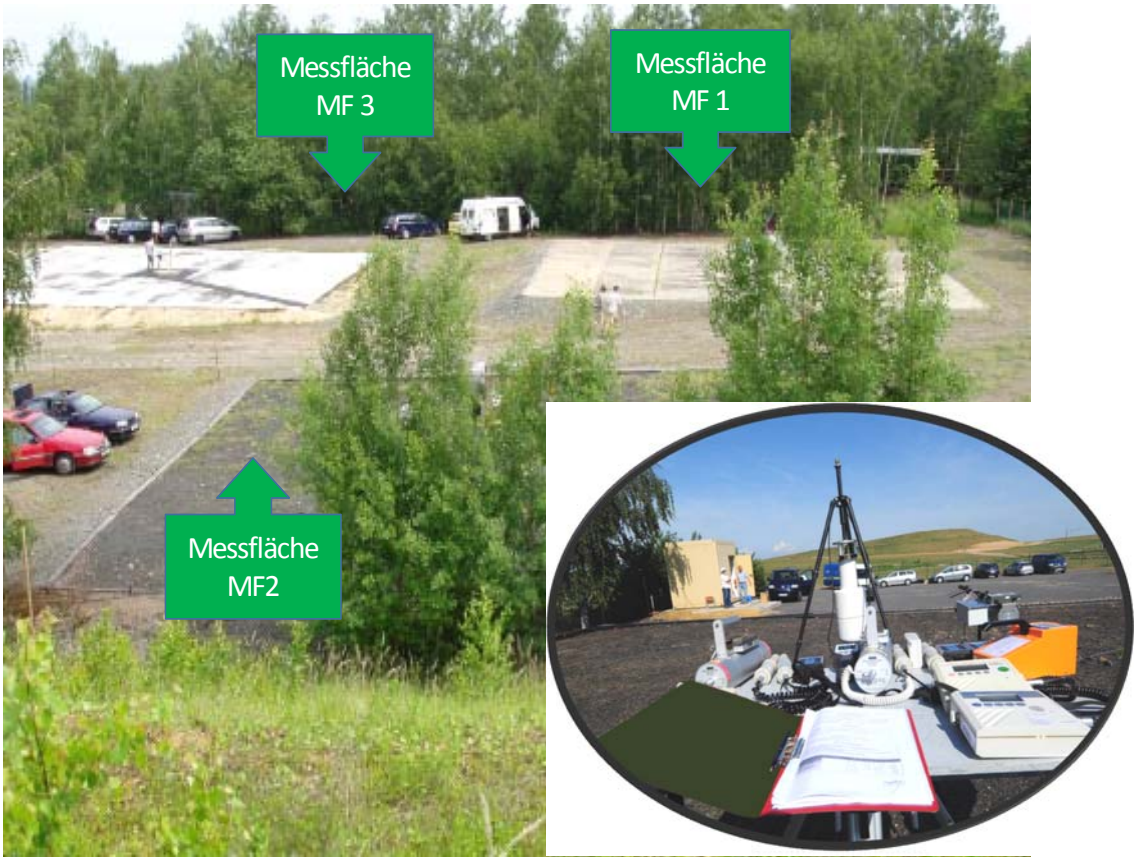


Abbildung 2.1
ODL-Messflächen der Wismut GmbH in Reust / Ronneburg

Quelle: Wismut GmbH

Drei Messflächen (MF) dienen als Modelle für verbreitet anzutreffende Untergründe (siehe Abbildung 2.1).

MF 1:
Beton mit natürlichem Aktivitätsgehalt

MF 2:
Unbearbeitetes Material der Zentralhalde des Sanierungsbetriebes Ronneburg

MF 3:
Aufbereitungsrückstände des Aufbereitungsbetriebes Seelingstädt mit Zementzusatz, versiegelt mit einer Plastiküberdeckung.

Die Gültigkeit der dort vorgenommenen Kalibrierungen konnte auf Messungen in sonstigen *natürlichen terrestrischen Photonenstrahlungsfeldern* erweitert werden, so dass seit 1994 jährlich Kalibriervergleiche für Messstellen der Landesbehörden, Firmen, Sachverständige, Universitäten, das Messnetz (IMIS) des BfS und die Wismut GmbH durchgeführt werden. Die Notwendigkeit dieser speziellen Qualitätssicherungsmaßnahme ergibt sich daraus, dass die Eichämter weder Messungen in natürlichen terrestrischen Feldern noch bei Dosisleistungen < 100 nSv/h anbieten[1].

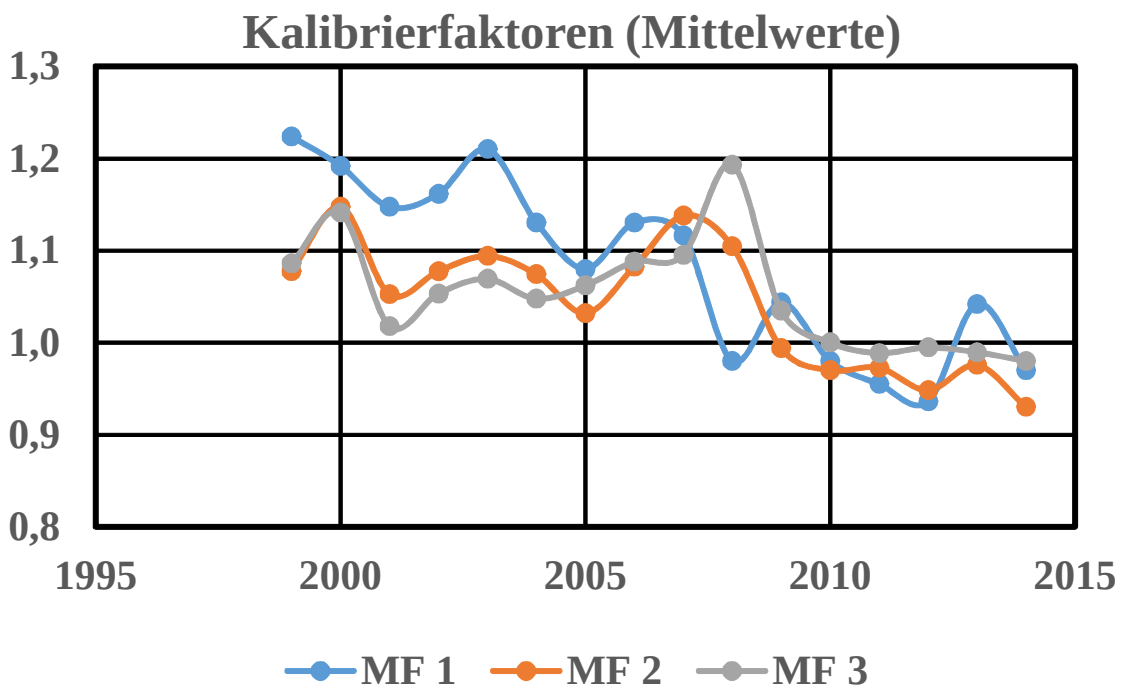
Die Referenzwerte[2] der Umgebungsäquivalentdosisleistung H*(10) und der Photonenäquivalentdosisleistung H_x werden vom BfS am jeweiligen Messtag (bei Wetteränderungen auch mehrfach) mittels einer Mitteldruck-Ionisationskammer bestimmt, die über Normaldruck-Ionisationskammern an das Primärnormal der PTB angeschlossen ist.

Die Gesamtdosisleistungen über der jeweiligen Messfläche variieren in Abhängigkeit von den Wetterbedingungen und vom Radon-Gehalt der Luft für den Zeitraum 1999 - 2014:

MF 1: H*(10) = 59 ….. 102 nSv/h
MF 2: H*(10) = 182 ….. 232 nSv/h
MF 3: H*(10) = 768 ….. 818 nSv/h

[1] Dennoch erweitern diese Kalibriervergleiche nicht den Gültigkeitsbereich der Eichung!

[2] Der Wert für H*(10) darf aus dem Wert für H_x in terrestrischen Strahlungsfeldern durch Multiplikation mit dem Faktor 1 errechnet werde, so dass die in Deutschland noch verbreitete Messung von H_x keine Probleme bezüglich der Angabe des Wertes in der international üblichen Dosisgröße H*(10) bereitet.



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 2.2
Mittelwerte der Kalibrierfaktoren der Anwendergeräte

Regelmäßige Kalibriervergleiche in einem engen zeitlichen Rahmen sind folglich unumgänglich, ebenso eine sorgfältige Interpretation der Anzeigen der Messgeräte.

Abbildung 2.2 zeigt zwei Trends der mittleren Kalibrierfaktoren (KF):

- Nach 2008 liegen die KF für alle drei Messflächen nahe 1.
- Die Dosisleistungs-Ansprechvermögen nähern sich zunehmend an.

Die zunehmende Nutzung hochwertiger Messgeräte (mit Plastikszintillator) ermöglicht es, Messwerte auch ohne Charakterisierung des geologischen Untergrundes mit höherer Zuverlässigkeit als im Zeitraum 1999 - 2004 zu erlangen. Die Kenntnis gerätespezifischer Kalibrierfaktoren ist nicht mehr so zwingend erforderlich wie in der Vergangenheit.

Abbildung 2.3 zeigt einen gegenläufigen Trend - die Abweichungen der Anzeigen der einzelnen Geräte vom mittleren Anzeigewert steigen an.

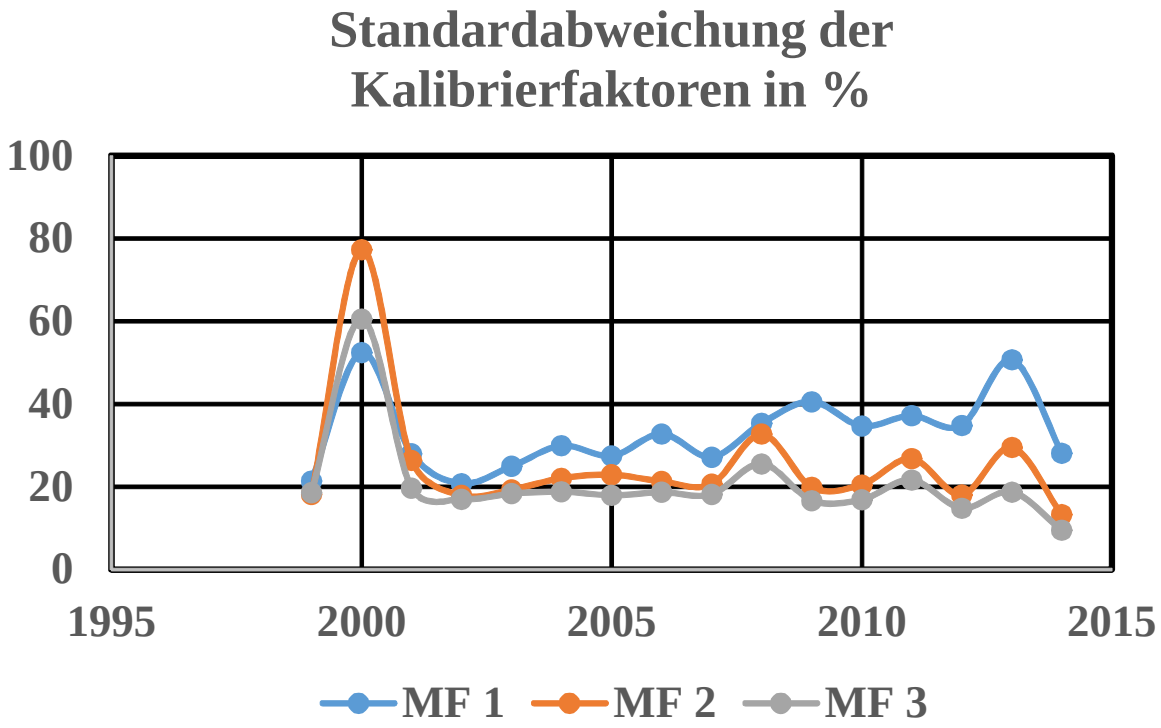
Als Ursachen dieses Trends kommen in Frage:

- Justiermöglichkeiten der Messgeräte. (Dieses „Nachjustieren“ ist bei geeichten Geräten jedoch rechtlich problematisch!).
- Zunehmender „versuchsweiser“ Einsatz von Messtechnik, die für diese Messaufgaben nicht optimiert bzw. für die Messung *kleiner* ODL nicht ausgelegt ist (ein anhaltendes Problem).

Resümee

Neben den vorgenannten Problemen vorwiegend technischer Art bestehen weitere Schwierigkeiten:

- International sind unterschiedliche Messgrößen in Benutzung (allein bei Photonenstrahlung sind Ortsdosimeter und zur Messung der Ortsdosis genutzte Geräte mit sechs „Messgrößen“ anzutreffen), obwohl seit etwa zwei Jahrzehnten bekannt ist, dass *H*(10) als Messgröße für die Ortsdosis vorgesehen bzw. zu verwenden* ist.
- Die deutsche Gesetzgebung sieht die Verwendung dieser Messgröße zwar grundsätzlich ebenfalls vor, § 117 (21) StrlSchV lässt jedoch Interpretationen zu. Dieser Umstand zeigt aus unterschiedlichen Gründen und Interessen nach wie vor Wirkung.
- Trotz der vorgenannten Festlegungen zur Nutzung der aktuell gültigen Dosisgrößen besteht offenbar für Messgerätehersteller kein hinreichender Anreiz, vor allem Referenzsonden, aber auch tragbare Ortsdosimeter für die in der Umwelt (typischerweise) kleinen Dosisleistungen zu entwickeln.



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 2.3
Einfache Standardabweichung der Einzelgerätekalibrierfaktoren vom mittleren Kalibrierfaktor

3 ABLEITUNG RADIOAKTIVER STOFFE AUS KERNKRAFTWERKEN, AUSWIRKUNG DER BISHERIGEN STILLLEGUNGEN

H. Wildermuth[1], I. Krol[2]

Bundesamt für Strahlenschutz
[1]*Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen*
[2]*Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen*

Die mit Fortluft und Abwasser aus Kernkraftwerken abgeleiteten radioaktiven Stoffe tragen zur Strahlenexposition der Bevölkerung bei. Daher sind die Ableitungen zu erfassen und nach Art und Aktivität spezifiziert zu bilanzieren. Im atomrechtlichen Genehmigungsverfahren werden maximale Aktivitätsabgaben mit Fortluft und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen festgelegt. Die Ableitungen werden dabei so begrenzt, dass die Einhaltung der nach § 47 der Strahlenschutzverordnung [55] für die Bevölkerung geltenden Dosisgrenzwerte gewährleistet ist. Um die Einhaltung der Dosisgrenzwerte sicherzustellen, wird die Dosis der Referenzperson so ungünstig wie möglich berechnet.

Ausstieg aus der Stromerzeugung durch Kernenergie

Die Nutzung der Kernenergie zur gewerblichen Erzeugung von Elektrizität ist in Deutschland - zeitlich gestaffelt - bis Ende 2022 befristet.

Das Ende der Laufzeit der einzelnen Kernkraftwerke ist im Atomgesetz festgelegt. Nach endgültiger Abschaltung eines Kernkraftwerks schließt sich die Nachbetriebsphase an, in der Arbeiten zur Vorbereitung der Stilllegung der Anlage durchgeführt werden. Während dieser Zeit und der Stilllegungsphase werden weiterhin die auftretenden Ableitungen erfasst und die daraus resultierende Dosis der Referenzperson berechnet.

Auf Grund des Reaktorunfalls in der Kernkraftwerksanlage Fukushima Daiichi in Japan vom 11.03.2011 beschloss die Bundesregierung in einem Moratorium am 14.03.2011, alle in Deutschland befindlichen Kernkraftwerke, die bis einschließlich 1980 in Betrieb gegangen waren, übergangsweise für einen Zeitraum von drei Monaten vom Netz zu nehmen und herunterzufahren. Davon betroffen waren die Kernkraftwerke Biblis A und Biblis B, Neckarwestheim 1, Brunsbüttel, Isar 1, Unterweser und Philippsburg 1. Die Kernkraftwerke Biblis B und Brunsbüttel waren zu diesem Zeitpunkt nicht am Netz, ebenso das Kernkraftwerk Krümmel. Für diese acht abgeschalteten und die neun noch in Betrieb befindlichen Kernkraftwerke führte die RSK eine Sicherheitsüberprüfung durch. Deren Ergebnisse sowie der gesamtgesellschaftliche Dialog unter Beteiligung der Ethikkommission „Sichere Energieversorgung" führten in Deutschland zu einer Neubewertung der Risiken der Nutzung der Kernenergie. Die Bundesregierung beschloss, die Nutzung der Kernenergie zur gewerblichen Erzeugung von Elektrizität in Deutschland zu beenden.

In Abbildung 3.1 ist neben der Bruttostromerzeugung durch Kernkraft der Verlauf der bilanzierten Ableitungen von Edelgasen, Jod und Schwebstoffen seit 1975 mit der Fortluft aller Kernkraftwerke dargestellt. Neben dem allgemeinen Trend der zurückgehenden Ableitungen ist besonders bei den Schwebstoffen in den letzten Jahren ein verstärkter Rückgang zu beobachten. In Abbildung 3.2 sind die bilanzierten Ableitungen mit dem Abwasser von Tritium, Alphastrahlern und Spalt-Aktivierungsprodukten dargestellt.

Aktueller Stand der Atomgesetzgebung

Mit dem 13. Gesetz zur Änderung des Atomgesetzes vom 31.07.2011 wurde festgelegt, dass Ende 2022 die letzten Kernkraftwerke in Deutschland außer Betrieb genommen werden. Zeitgleich zur atomgesetzlichen Entwicklung wurde auch das untergesetzliche kerntechnische Regelwerk einer Anpassung an den Stand von Wissenschaft und Technik unterzogen. Das Bundesumweltministerium und die Länder haben sich im November 2012 auf neue Sicherheitsanforderungen für den Betrieb der Kernkraftwerke geeinigt (Sicherheitsanforderungen an Kernkraftwerke). Dieses kerntechnische Regelwerk beinhaltet grundlegende Regeln und übergeordnete sicherheitstechnische Anforderungen. Das neue kerntechnische Regelwerk wird ab dem o.g. Zeitpunkt von den zuständigen Aufsichtsbehörden angewendet und im Vollzug der Aufsicht und bei anstehenden Verfahren zu Grunde gelegt. Das BMUB bietet auf seinen Internetseiten weitere Informationen zu diesem Thema an. Diese können unter folgender Internet-Adresse abgerufen werden: www.bmub.bund.de/N49442/.

Abschalttermine

Mit Inkrafttreten des geänderten Atomgesetzes am 06.08.2011 wurde den Kernkraftwerken Biblis A und

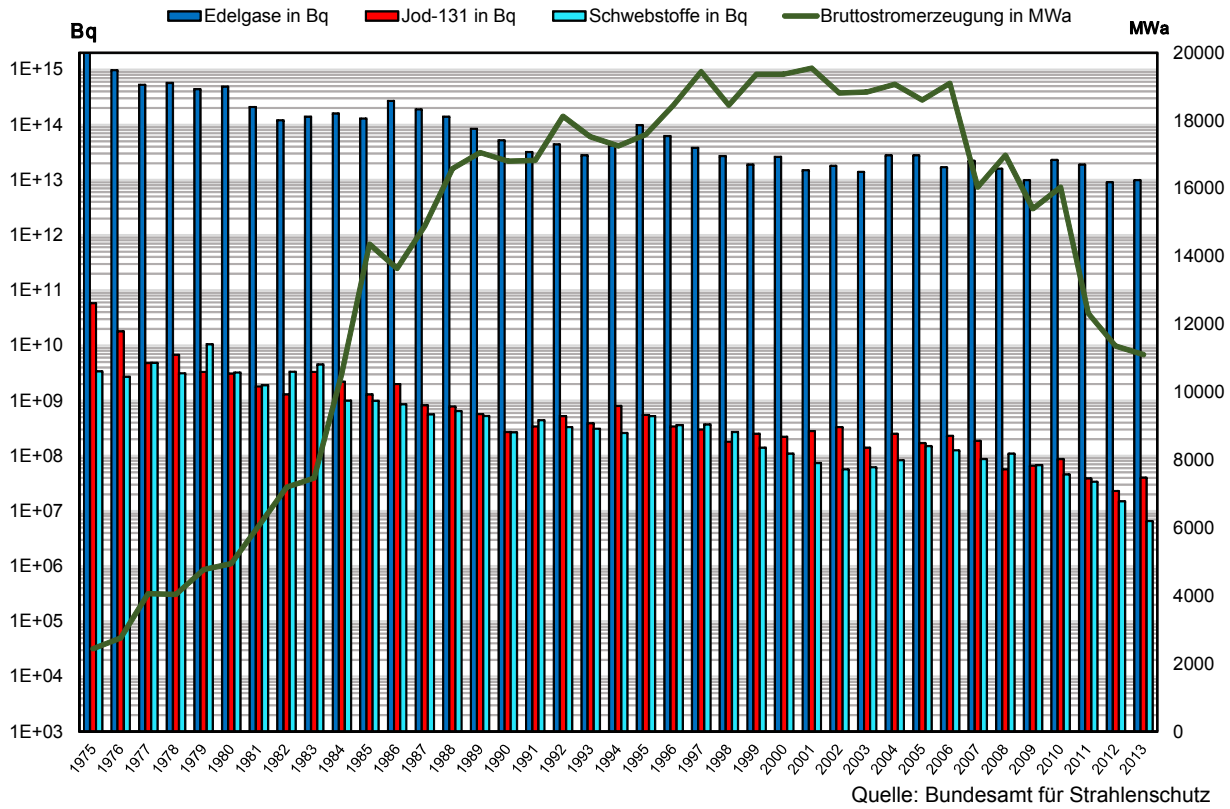


Abbildung 3.1
Ableitungen radioaktiver Stoffe mit der Fortluft aus Kernkraftwerken von 1975 bis 2013 und Bruttostromerzeugung aus Kernkraftwerken

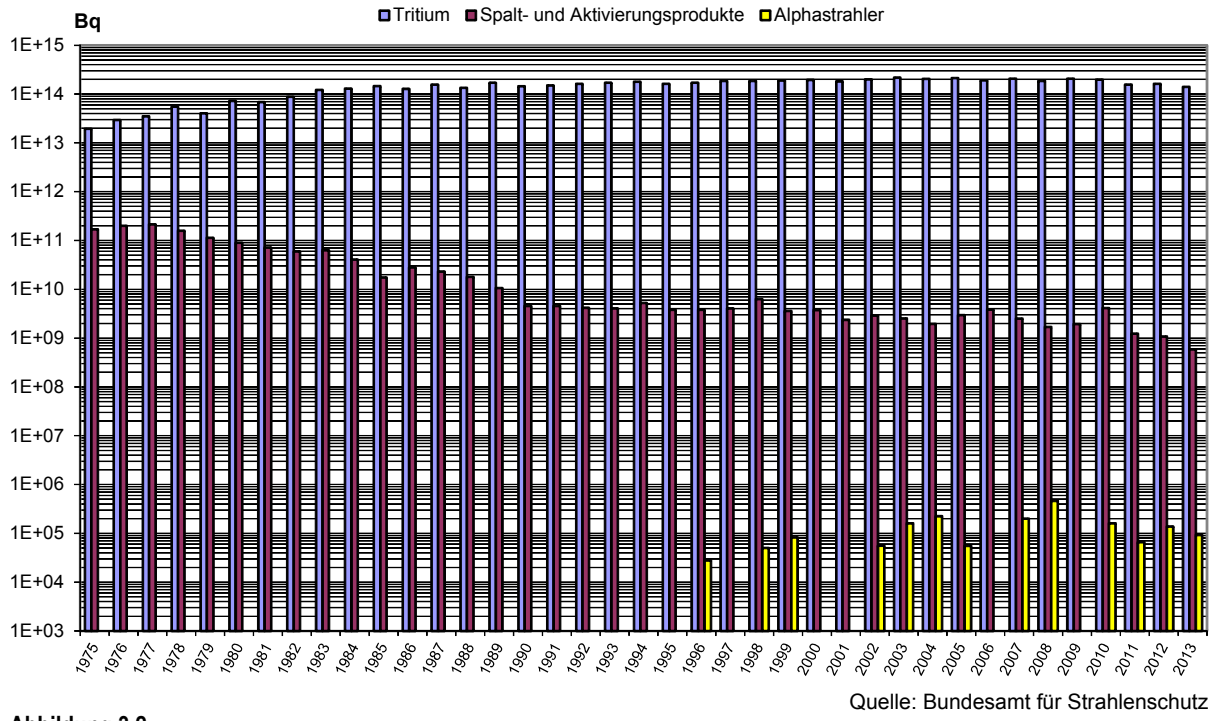


Abbildung 3.2
Ableitungen radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser aus Kernkraftwerken von 1975 bis 2013

B, Neckarwestheim 1, Brunsbüttel, Isar 1, Unterweser, Philippsburg 1 und Krümmel die weitere Berechtigung zum Leistungsbetrieb entzogen. Diese acht Anlagen sind somit endgültig abgeschaltet.

Für die restlichen neun noch in Betrieb befindlichen Kernkraftwerke legt das Atomgesetz folgende Termine für das Laufzeitende beziehungsweise die endgültige Abschaltung fest:

31.12.2015 Kernkraftwerk Grafenrheinfeld

31.12.2017 Kernkraftwerk Gundremmingen B

31.12.2019 Kernkraftwerk Philippsburg 2

31.12.2021 Kernkraftwerke Grohnde, Gundremmingen C und Brokdorf

31.12.2022 Kernkraftwerke Isar 2, Emsland und Neckarwestheim 2.

Ausführliche Angaben zur Nutzung der Kernenergie finden sich im „Statusbericht zur Kernenergienutzung in der Bundesrepublik Deutschland 2013" (http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2014073111441).

Zum Ende des Berichtszeitraums waren in Deutschland 9 Kernkraftwerksblöcke mit einer elektrischen Bruttoleistung von insgesamt 12,7 GW in Betrieb. Sie haben zur Stromerzeugung 15 Prozent beigetragen. Die Standorte der Kernkraftwerke und die Bruttostromerzeugung sind aus Abbildung 3.3 zu ersehen. In den Tabellen 3.1 und 3.2 sind die bilanzierten Werte der Ableitung radioaktiver Stoffe mit Fortluft und Abwasser aus Kernkraftwerken in den Jahren 2011 und 2013 zusammengestellt. Die von den zuständigen Behörden genehmigten jährlichen Aktivitätsabgaben wurden in allen Fällen eingehalten. Die tatsächlichen Jahresableitungen liegen im Allgemeinen weit unter den Genehmigungswerten von beispielsweise ca. 10^{15} Bq für Edelgase und ca. 10^{10} Bq für ^{131}I.

Tabelle 3.1
Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Fortluft aus Kernkraftwerken in den Jahren 2011 bis 2013

Kernkraftwerk	Jahr	Ableitung mit der Fortluft in Bq				
		Edelgase	Schwebstoffe c)	^{131}I	$^{14}CO_2$	^{3}H
Stade[a]	2011	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	$1{,}3 \cdot 10^{10}$
	2012	n.b.	$1{,}3 \cdot 10^{4}$	n.b.	n.n.	$4{,}0 \cdot 10^{9}$
	2013	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	$2{,}6 \cdot 10^{9}$
Biblis Block A b)	2011	$9{,}8 \cdot 10^{9}$	n.n.	$2{,}3 \cdot 10^{4}$	$1{,}4 \cdot 10^{10}$	$3{,}2 \cdot 10^{11}$
	2012	$3{,}4 \cdot 10^{10}$	n.n.	n.n.	$1{,}4 \cdot 10^{10}$	$4{,}7 \cdot 10^{11}$
	2013	$6{,}4 \cdot 10^{10}$	n.n.	n.n.	$2{,}5 \cdot 10^{10}$	$2{,}7 \cdot 10^{11}$
Biblis Block B b)	2011	$1{,}6 \cdot 10^{11}$	$1{,}5 \cdot 10^{5}$	$2{,}3 \cdot 10^{4}$	$3{,}6 \cdot 10^{10}$	$5{,}2 \cdot 10^{11}$
	2012	$2{,}9 \cdot 10^{10}$	n.n.	n.n.	$9{,}7 \cdot 10^{9}$	$3{,}8 \cdot 10^{11}$
	2013	$7{,}6 \cdot 10^{10}$	n.n.	n.n.	$8{,}9 \cdot 10^{9}$	$3{,}0 \cdot 10^{11}$
Neckarwestheim 1 b)	2011	$9{,}7 \cdot 10^{10}$	$3{,}1 \cdot 10^{4}$	$9{,}8 \cdot 10^{4}$	$4{,}0 \cdot 10^{9}$	$8{,}2 \cdot 10^{10}$
	2012	n.n.	$2{,}5 \cdot 10^{4}$	n.n.	$4{,}0 \cdot 10^{9}$	$4{,}3 \cdot 10^{10}$
	2013	n.n.	$1{,}8 \cdot 10^{5}$	n.n.	$1{,}2 \cdot 10^{10}$	$7{,}1 \cdot 10^{10}$
Brunsbüttel b)	2011	n.n.	$4{,}6 \cdot 10^{6}$	n.n.	$1{,}5 \cdot 10^{9}$	$2{,}3 \cdot 10^{9}$
	2012	n.n.	$2{,}5 \cdot 10^{6}$	n.n.	$9{,}6 \cdot 10^{8}$	$2{,}6 \cdot 10^{9}$
	2013	n.n.	$2{,}7 \cdot 10^{6}$	n.n.	$2{,}9 \cdot 10^{9}$	$1{,}2 \cdot 10^{9}$
Isar 1 b)	2011	$2{,}4 \cdot 10^{11}$	n.n.	$2{,}3 \cdot 10^{6}$	$1{,}1 \cdot 10^{11}$	$3{,}6 \cdot 10^{10}$
	2012	n.n.	n.n.	n.n.	$1{,}3 \cdot 10^{9}$	$1{,}9 \cdot 10^{10}$
	2013	n.n.	n.n.	n.n.	$1{,}8 \cdot 10^{9}$	$1{,}1 \cdot 10^{10}$
Unterweser b)	2011	$3{,}8 \cdot 10^{12}$	$1{,}2 \cdot 10^{5}$	$1{,}7 \cdot 10^{5}$	$1{,}8 \cdot 10^{10}$	$2{,}1 \cdot 10^{11}$
	2012	$3{,}2 \cdot 10^{12}$	$4{,}0 \cdot 10^{5}$	n.n.	$1{,}3 \cdot 10^{10}$	$3{,}6 \cdot 10^{11}$
	2013	$2{,}4 \cdot 10^{12}$	$3{,}8 \cdot 10^{5}$	n.n.	$3{,}9 \cdot 10^{9}$	$3{,}8 \cdot 10^{11}$
Philippsburg 1 b)	2011	$8{,}0 \cdot 10^{11}$	$6{,}3 \cdot 10^{6}$	$1{,}8 \cdot 10^{7}$	$1{,}1 \cdot 10^{11}$	$2{,}2 \cdot 10^{10}$
	2012	$6{,}8 \cdot 10^{10}$	$9{,}0 \cdot 10^{5}$	n.n.	$6{,}0 \cdot 10^{9}$	$3{,}5 \cdot 10^{9}$
	2013	$5{,}1 \cdot 10^{9}$	$1{,}1 \cdot 10^{6}$	n.n.	$3{,}7 \cdot 10^{10}$	$2{,}6 \cdot 10^{9}$
Grafenrheinfeld	2011	$1{,}0 \cdot 10^{11}$	$1{,}5 \cdot 10^{7}$	$5{,}4 \cdot 10^{4}$	$7{,}0 \cdot 10^{10}$	$1{,}9 \cdot 10^{11}$
	2012	$8{,}0 \cdot 10^{10}$	$1{,}2 \cdot 10^{6}$	n.n.	$7{,}2 \cdot 10^{10}$	$1{,}5 \cdot 10^{11}$
	2013	$6{,}5 \cdot 10^{10}$	$5{,}7 \cdot 10^{5}$	n.n.	$7{,}7 \cdot 10^{10}$	$1{,}4 \cdot 10^{11}$

Tabelle 3.1
Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Fortluft aus Kernkraftwerken in den Jahren 2011 bis 2013

Kernkraftwerk	Jahr	Ableitung mit der Fortluft in Bq				
		Edelgase	Schweb-stoffe c)	^{131}I	$^{14}CO_2$	^{3}H
Krümmel b)	2011	n.n.	$5{,}4 \cdot 10^{5}$	n.n.	$5{,}4 \cdot 10^{9}$	n.n.
	2012	n.n.	$4{,}3 \cdot 10^{5}$	n.n.	$2{,}5 \cdot 10^{9}$	n.n.
	2013	n.n.	$5{,}5 \cdot 10^{4}$	n.n.	$1{,}0 \cdot 10^{9}$	n.n.
Gundremmingen Block B und C	2011	$1{,}0 \cdot 10^{13}$	$9{,}8 \cdot 10^{4}$	$9{,}5 \cdot 10^{6}$	$1{,}0 \cdot 10^{12}$	$6{,}4 \cdot 10^{11}$
	2012	$2{,}9 \cdot 10^{12}$	$5{,}5 \cdot 10^{4}$	$2{,}2 \cdot 10^{7}$	$9{,}8 \cdot 10^{11}$	$6{,}9 \cdot 10^{11}$
	2013	$3{,}2 \cdot 10^{12}$	$2{,}2 \cdot 10^{5}$	$2{,}9 \cdot 10^{7}$	$1{,}0 \cdot 10^{12}$	$7{,}1 \cdot 10^{11}$
Grohnde	2011	$1{,}5 \cdot 10^{12}$	$1{,}8 \cdot 10^{5}$	$2{,}1 \cdot 10^{6}$	$7{,}2 \cdot 10^{10}$	$3{,}4 \cdot 10^{11}$
	2012	$6{,}3 \cdot 10^{10}$	$1{,}1 \cdot 10^{5}$	n.n.	$7{,}1 \cdot 10^{10}$	$1{,}8 \cdot 10^{11}$
	2013	$2{,}1 \cdot 10^{12}$	n.n.	$7{,}8 \cdot 10^{4}$	$7{,}3 \cdot 10^{10}$	$2{,}2 \cdot 10^{11}$
Philippsburg 2	2011	$3{,}8 \cdot 10^{11}$	$1{,}2 \cdot 10^{5}$	$1{,}6 \cdot 10^{5}$	$4{,}8 \cdot 10^{10}$	$1{,}2 \cdot 10^{12}$
	2012	$3{,}2 \cdot 10^{11}$	$1{,}5 \cdot 10^{5}$	n.n.	$5{,}0 \cdot 10^{10}$	$1{,}3 \cdot 10^{12}$
	2013	$2{,}4 \cdot 10^{11}$	$3{,}2 \cdot 10^{4}$	n.n.	$6{,}6 \cdot 10^{10}$	$1{,}2 \cdot 10^{12}$
Brokdorf	2011	$9{,}7 \cdot 10^{11}$	n.n.	$6{,}1 \cdot 10^{6}$	$2{,}1 \cdot 10^{11}$	$4{,}0 \cdot 10^{11}$
	2012	$1{,}8 \cdot 10^{12}$	n.n.	$6{,}9 \cdot 10^{5}$	$1{,}8 \cdot 10^{11}$	$2{,}8 \cdot 10^{11}$
	2013	$1{,}1 \cdot 10^{12}$	n.n.	$1{,}1 \cdot 10^{7}$	$1{,}7 \cdot 10^{11}$	$1{,}9 \cdot 10^{11}$
Isar 2	2011	$3{,}4 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	$1{,}3 \cdot 10^{11}$	$2{,}3 \cdot 10^{11}$
	2012	$2{,}9 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	$1{,}2 \cdot 10^{11}$	$2{,}1 \cdot 10^{11}$
	2013	$3{,}1 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	$4{,}4 \cdot 10^{11}$	$2{,}0 \cdot 10^{11}$
Emsland	2011	$1{,}5 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	$2{,}1 \cdot 10^{11}$	$9{,}9 \cdot 10^{11}$
	2012	$1{,}5 \cdot 10^{11}$	$1{,}9 \cdot 10^{4}$	n.n.	$1{,}7 \cdot 10^{11}$	$8{,}8 \cdot 10^{11}$
	2013	$1{,}5 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	$1{,}4 \cdot 10^{11}$	$1{,}0 \cdot 10^{12}$
Neckarwestheim 2	2011	$3{,}2 \cdot 10^{11}$	$6{,}0 \cdot 10^{3}$	$6{,}4 \cdot 10^{4}$	$1{,}2 \cdot 10^{11}$	$7{,}7 \cdot 10^{10}$
	2012	$1{,}4 \cdot 10^{11}$	$3{,}8 \cdot 10^{4}$	n.n.	$2{,}5 \cdot 10^{11}$	$1{,}7 \cdot 10^{11}$
	2013	$1{,}8 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	$1{,}1 \cdot 10^{11}$	$1.2 \cdot 10^{11}$

a) Anlage stillgelegt b) Anlage außer Betrieb
c) Halbwertszeit > 8 Tage, ohne ^{131}I, einschließlich Strontium und Alphastrahler
n.n. nicht nachgewiesen (Aktivitätsableitung unter Nachweisgrenze)
n.b. nicht bestimmt

Tabelle 3.2
Ableitung radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser aus Kernkraftwerken in den Jahren 2011 bis 2013

Kernkraftwerk	Jahr	Ableitung mit dem Abwasser in Bq		
		Spalt- und Aktivierungs-produkte (außer Tritium)	^{3}H	Alpha-Strahler
Stade [a)]	2011	$1,8 \cdot 10^{7}$	$2,2 \cdot 10^{9}$	$4,5 \cdot 10^{3}$
	2012	$1,1 \cdot 10^{7}$	$1,2 \cdot 10^{9}$	$1,6 \cdot 10^{4}$
	2013	$2,6 \cdot 10^{6}$	$2,4 \cdot 10^{8}$	$2,2 \cdot 10^{3}$
Biblis Block A [b)]	2011	$1,6 \cdot 10^{7}$	$7,1 \cdot 10^{12}$	n.n.
	2012	$1,2 \cdot 10^{7}$	$8,6 \cdot 10^{11}$	$1,4 \cdot 10^{5}$
	2013	$1,6 \cdot 10^{7}$	$2,2 \cdot 10^{12}$	n.n.
Biblis Block B [b)]	2011	$9,1 \cdot 10^{7}$	$1,2 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	$1,2 \cdot 10^{7}$	$6,0 \cdot 10^{12}$	$6,1 \cdot 10^{4}$
	2013	$3,3 \cdot 10^{6}$	$1,9 \cdot 10^{12}$	n.n.
Neckarwestheim 1 [b)]	2011	n.n.	$6,0 \cdot 10^{12}$	n.n.
	2012	n.n.	$2,0 \cdot 10^{12}$	n.n.
	2013	n.n.	$9,6 \cdot 10^{10}$	n.n.
Brunsbüttel [b)]	2011	$1,3 \cdot 10^{7}$	$3,3 \cdot 10^{9}$	n.n.
	2012	$1,3 \cdot 10^{7}$	$7,3 \cdot 10^{9}$	n.n.
	2013	$1,6 \cdot 10^{7}$	$2,4 \cdot 10^{9}$	n.n.
Isar 1 [b)]	2011	$2,3 \cdot 10^{7}$	$2,5 \cdot 10^{11}$	n.n.
	2012	$2,9 \cdot 10^{7}$	$4,8 \cdot 10^{10}$	n.n.
	2013	$7,7 \cdot 10^{6}$	$8,9 \cdot 10^{9}$	n.n.
Unterweser [b)]	2011	$3,2 \cdot 10^{7}$	$1,3 \cdot 10^{12}$	n.n.
	2012	$1,4 \cdot 10^{8}$	$1,9 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	$3,4 \cdot 10^{7}$	$3,5 \cdot 10^{12}$	n.n.
Philippsburg 1 [b)]	2011	$6,8 \cdot 10^{7}$	$3,6 \cdot 10^{11}$	n.n.
	2012	$3,3 \cdot 10^{7}$	$8,6 \cdot 10^{10}$	n.n.
	2013	$3,3 \cdot 10^{7}$	$7,2 \cdot 10^{9}$	n.n.
Grafenrheinfeld	2011	$6,6 \cdot 10^{7}$	$1,5 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	$2,0 \cdot 10^{7}$	$2,1 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	$1,3 \cdot 10^{7}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	n.n.
Krümmel [b)]	2011	n.n.	$7,3 \cdot 10^{9}$	n.n.
	2012	n.n.	$1,3 \cdot 10^{9}$	n.n.
	2013	n.n.	$3,4 \cdot 10^{8}$	n.n.
Gundremmingen Block B und C	2011	$7,4 \cdot 10^{8}$	$3,6 \cdot 10^{12}$	n.n.
	2012	$4,9 \cdot 10^{8}$	$3,5 \cdot 10^{12}$	n.n.
	2013	$3,5 \cdot 10^{8}$	$3,8 \cdot 10^{12}$	n.n.
Grohnde	2011	$5,3 \cdot 10^{6}$	$1,8 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	$2,7 \cdot 10^{6}$	$1,8 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	$2,1 \cdot 10^{6}$	$1,9 \cdot 10^{13}$	n.n.
Philippsburg 2	2011	$2,9 \cdot 10^{7}$	$1,5 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	$4,0 \cdot 10^{7}$	$1,1 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	$2,4 \cdot 10^{7}$	$1,2 \cdot 10^{13}$	n.n.
Brokdorf	2011	$2,6 \cdot 10^{6}$	$1,4 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	n.n.	$2,3 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	$3,1 \cdot 10^{5}$	$2,3 \cdot 10^{13}$	n.n.
Isar 2	2011	n.n.	$2,4 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	$1,1 \cdot 10^{6}$	$2,3 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	n.n.	$2,2 \cdot 10^{13}$	n.n.
Emsland	2011	$7,9 \cdot 10^{5}$	$1,8 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2012	n.n.	$1,6 \cdot 10^{13}$	n.n.
	2013	n.n.	$1,6 \cdot 10^{13}$	n.n.

Tabelle 3.2
Ableitung radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser aus Kernkraftwerken in den Jahren 2011 bis 2013

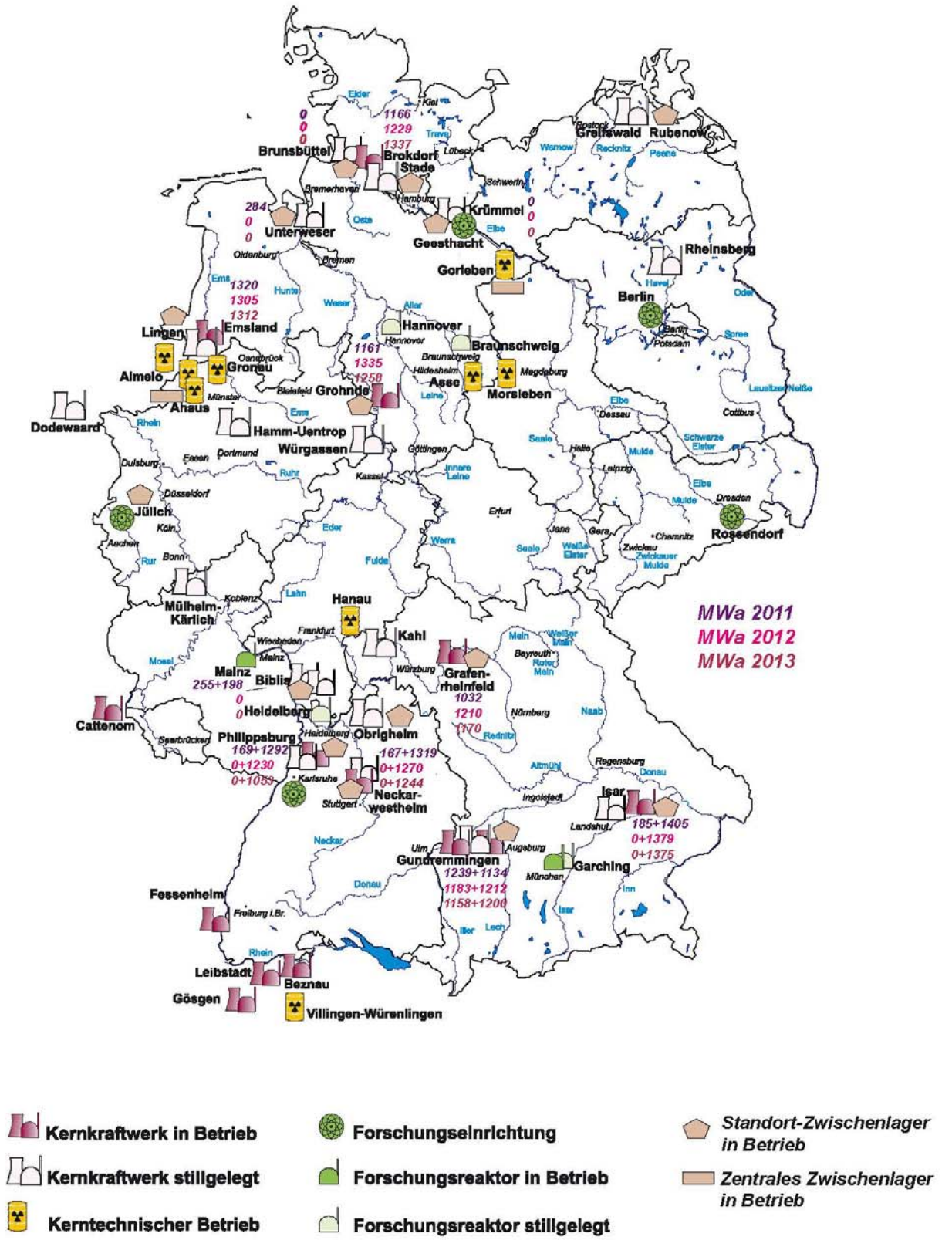
Kernkraftwerk	Jahr	Ableitung mit dem Abwasser in Bq		
		Spalt- und Aktivierungs-produkte (außer Tritium)	^{3}H	Alpha-Strahler
Neckarwestheim 2	2011 2012 2013	$5,6 \cdot 10^{4}$ $3,2 \cdot 10^{6}$ n.n.	$2,3 \cdot 10^{13}$ $2,0 \cdot 10^{13}$ $2,1 \cdot 10^{13}$	n.n. n.n. n.n.
Greifswald Block 1-5 [a)]	2011 2012 2013	$2,2 \cdot 10^{5}$ $8,9 \cdot 10^{4}$ $1,6 \cdot 10^{6}$	$4,2 \cdot 10^{8}$ $9,1 \cdot 10^{8}$ $6,3 \cdot 10^{8}$	n.n. n.n. n.n.
Rheinsberg [a)]	2011 2012 2013	$6,4 \cdot 10^{6}$ $3,8 \cdot 10^{6}$ $3,3 \cdot 10^{6}$	$5,5 \cdot 10^{7}$ $4,9 \cdot 10^{6}$ $9,8 \cdot 10^{6}$	$6,6 \cdot 10^{4}$ $1,4 \cdot 10^{5}$ $9,2 \cdot 10^{4}$
Mülheim-Kärlich [a)]	2011 2012 2013	$2,0 \cdot 10^{6}$ $2,9 \cdot 10^{6}$ $1,3 \cdot 10^{6}$	$3,1 \cdot 10^{7}$ $1,6 \cdot 10^{7}$ $2,1 \cdot 10^{7}$	n.n. n.n. n.n.
Obrigheim [a)]	2011 2012 2013	$1,1 \cdot 10^{8}$ $2,7 \cdot 10^{8}$ $8,0 \cdot 10^{7}$	$3,5 \cdot 10^{9}$ $6,4 \cdot 10^{9}$ $3,9 \cdot 10^{8}$	$1,3 \cdot 10^{4}$ $7,2 \cdot 10^{4}$ $1,6 \cdot 10^{5}$
Lingen [a)]	2011 2012 2013	$7,9 \cdot 10^{5}$ $3,1 \cdot 10^{5}$ $9,5 \cdot 10^{5}$	$2,9 \cdot 10^{6}$ $4,4 \cdot 10^{7}$ $6,3 \cdot 10^{7}$	$6,4 \cdot 10^{3}$ $3,6 \cdot 10^{3}$ $3,5 \cdot 10^{4}$
Würgassen [a)]	2011 2012 2013	$9,6 \cdot 10^{5}$ $5,4 \cdot 10^{5}$ $2,0 \cdot 10^{4}$	$1,3 \cdot 10^{8}$ $9,4 \cdot 10^{7}$ $4,1 \cdot 10^{7}$	n.n. n.n. n.n.

a) Anlage stillgelegtb) Anlage außer Betrieb
n.n.nicht nachgewiesen

Aus den Ergebnissen der Emissionsüberwachung wird die Strahlenexposition in der Umgebung der kerntechnischen Anlagen für die in der Strahlenschutzverordnung definierte Referenzperson ermittelt. Die Daten über die Ableitungen radioaktiver Stoffe mit Fortluft und Abwasser aus Kernkraftwerken und die Werte der daraus resultierenden Strahlenexposition werden in den jährlichen Berichten der Bundesregierung an den Deutschen Bundestag über „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ und ausführlicher in den gleichnamigen Jahresberichten des BMUB [1,11,12,13,14] veröffentlicht.

Bewertung

Die Genehmigungswerte für die Ableitung radioaktiver Stoffe mit Fortluft und Abwasser aus Kernkraftwerken werden in den meisten Fällen nur zu einem geringen Bruchteil ausgeschöpft. Somit unterschreiten auch die aus den Aktivitätsableitungen berechneten Werte der jährlichen Strahlenexposition erheblich die in der Strahlenschutzverordnung festgelegten Dosisgrenzwerte von beispielsweise 0,3 mSv für die effektive Dosis und 0,9 mSv für die Schilddrüsendosis. Die mit den ungünstigen Annahmen, die für die Referenzperson vorgegeben sind, berechneten Expositionswerte in der Umgebung der Kernkraftwerke liegen in der Regel unter 0,01 mSv pro Jahr; mit realistischeren Annahmen ergeben sich deutlich kleinere Dosiswerte. Eine effektive Dosis von 0,01 mSv entspricht weniger als einem Hundertstel der jährlichen effektiven Dosis durch natürliche Strahlenquellen, die in Deutschland im Mittel 2,1 mSv beträgt und je nach örtlichen Gegebenheiten bis zu 10 mSv erreichen kann.



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 3.3
Standorte von Kernkraftwerken in der Bundesrepublik Deutschland mit Bruttostromerzeugung in den Jahren 2011 bis 2013 (in MWa) und im benachbarten Ausland sowie weitere kerntechnische Anlagen

4 MESSNETZ FÜR LUFT UND NIEDERSCHLAG

A. Dalheimer, J. Barth, T. Steinkopff

Deutscher Wetterdienst, Zentrale Offenbach/Main
Leitstelle für Luft und Niederschlag

Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), der Deutsche Wetterdienst (DWD) und die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) sind mit der Überwachung der Radioaktivität in der Atmosphäre gesetzlich beauftragt.

Die Messnetze des BfS und des DWD sowie dessen radiochemisches Zentrallabor in Offenbach sind Bestandteile des Integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Umweltradioaktivität (IMIS). Detaillierte Angaben zu den Messnetzen finden sich im Internet unter www.bfs.de/ion/imis bzw. auf den Folgeseiten von www.dwd.de sowie in den Berichten der vorangegangenen Jahre.

Zusätzlich werden vom BfS, dem DWD, der PTB und dem Helmholtz-Zentrum München Untersuchungen im Rahmen der Spurenanalyse durchgeführt (Kapitel 5).

Die erhobenen Daten werden nicht nur für IMIS verwendet, sondern auch im Rahmen der europaweiten Überwachung der Umweltradioaktivität für den internationalen Datenaustausch und die EU-Berichterstattung bereitgestellt.

Weiterhin ist der DWD durch Messungen von ^{222}Rn und ^{7}Be auf der Zugspitze in ein spezielles Messprogramm (Global Atmospheric Watch Programme, GAW) der Weltorganisation der Meteorologie (World Meteorological Organization, WMO) eingebunden.

Radioaktive Stoffe in der Luft und im Niederschlag

Die Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag wird an 48 Messstellen des synoptisch-klimatologischen Messnetzes des Deutschen Wetterdienstes (DWD) ständig überwacht. Dazu gehört auch die natürliche Radioaktivität in der Luft als Aktivitätskonzentration der aerosolpartikelgebundenen Radonfolgeprodukte ^{214}Pb und ^{214}Bi. Für künstliche Radionuklide wie zum Beispiel ^{131}I und ^{137}Cs liegen im Normalbetrieb die berechneten Nachweisgrenzen der Luftmonitore zwischen 5 mBq/m^3 und 10 mBq/m^3. An allen Messstellen werden über einen Zeitraum

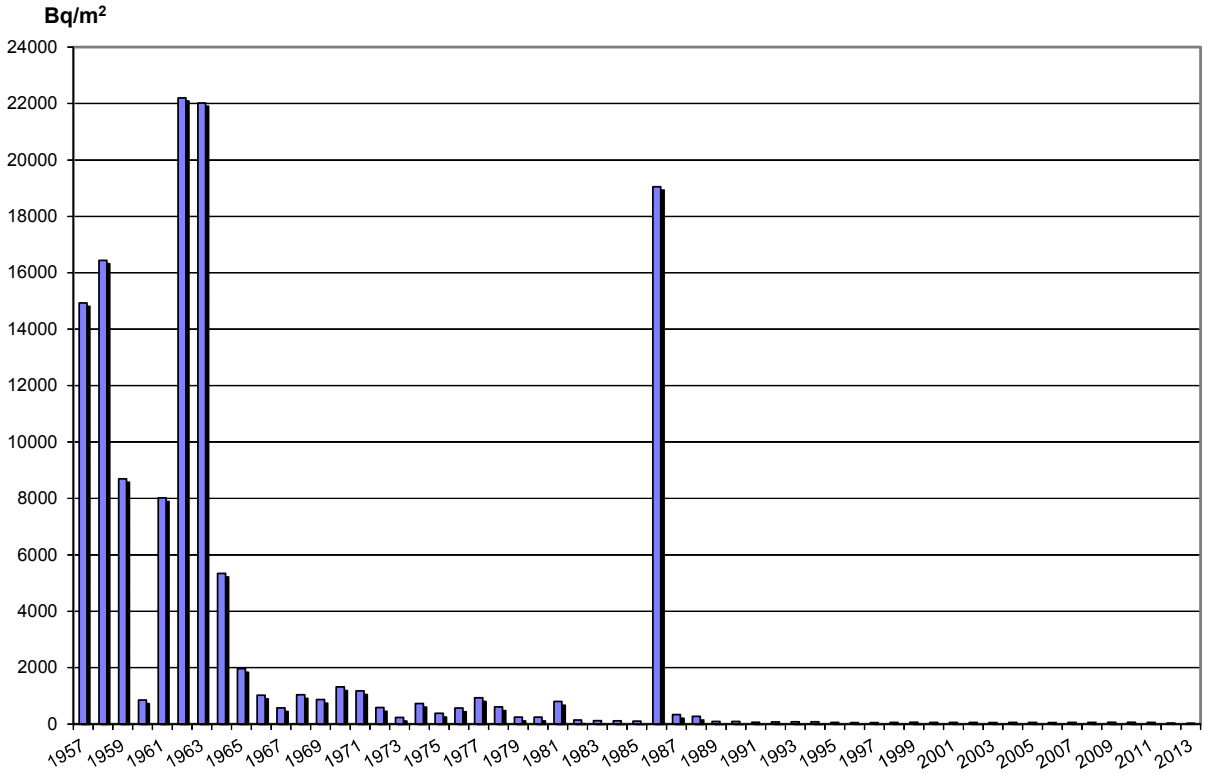
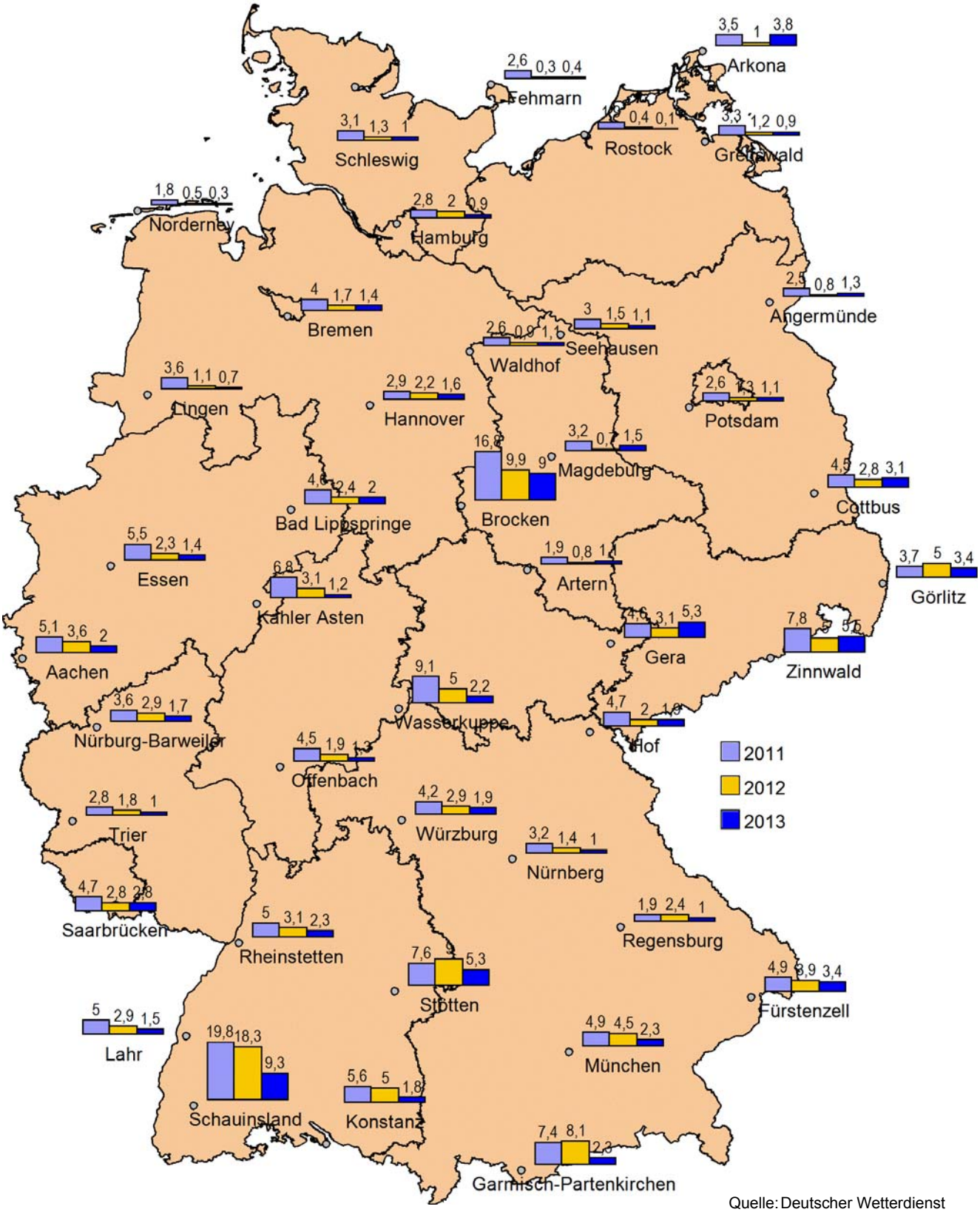


Abbildung 4.1 Quelle: Deutscher Wetterdienst

Langlebige Gesamtbetaaktivität im Niederschlag - Jahresmittelwert der Jahressummen an den DWD-Stationen



Quelle: Deutscher Wetterdienst
Daten aus IMIS

Abbildung 4.2

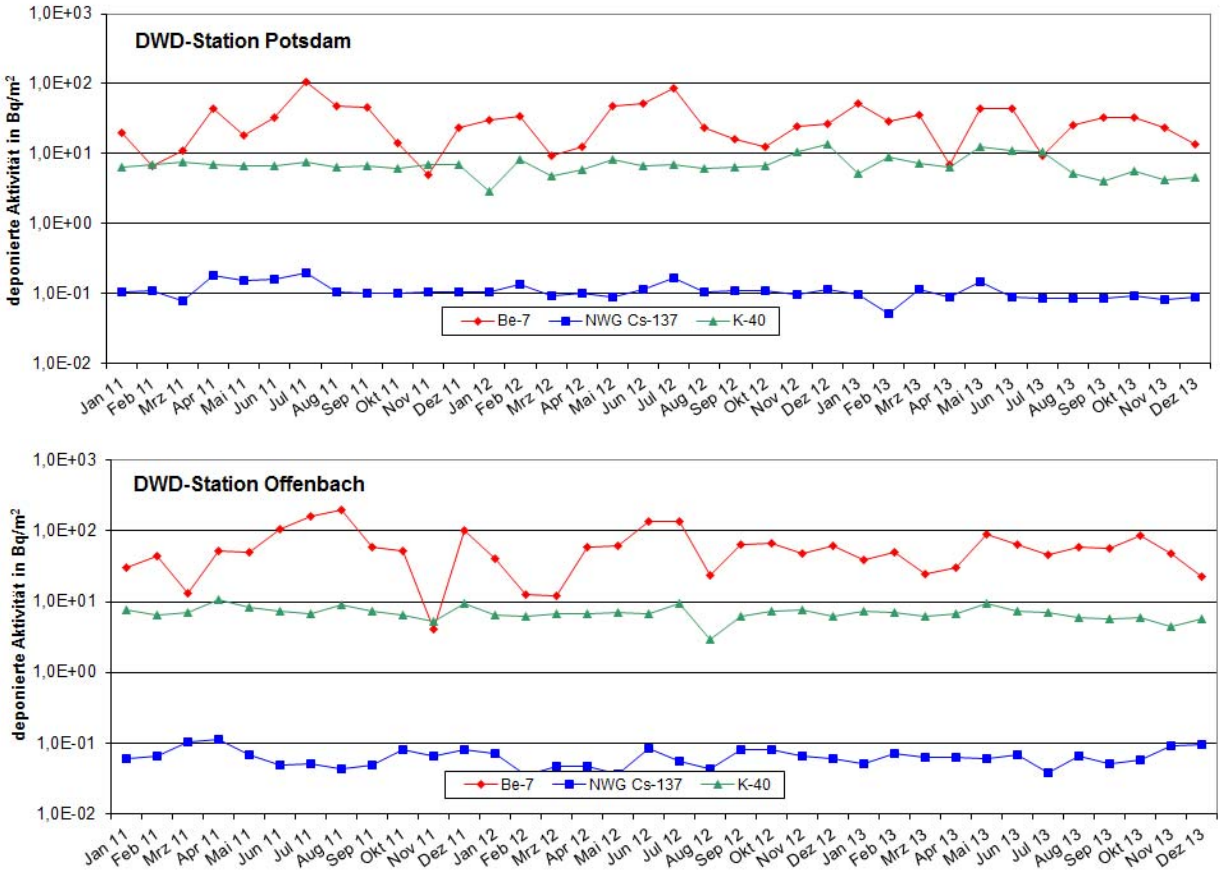
Dem Erdboden im Mittel pro Monat durch Niederschläge in den Jahren 2011 bis 2013 zugeführte Gesamtbetaaktivität in Bq/m^2

von einer Woche zudem Filter mit einem hohen Luftdurchsatz besaugt und diese im Anschluss gammaspektrometrisch untersucht. Die Nachweisgrenzen liegen zwischen 0,2 µBq/m^3 und 1 µBq/m^3 bezogen auf das Radionuklid ^{137}Cs . Weitere Untersuchungen der Luft- und Niederschlagsproben erfolgen im radiochemischen Labor in Offenbach.

Die langjährige Messreihe der langlebigen Gesamt-ß-Aktivität in der Luft wurde fortgesetzt. Der Wert wurde arithmetisch über die Messstationen gemittelt (2011: 17 Stationen, 2012: 12 Stationen, 2013: 9 Stationen). Für das Jahr 2011 wurde ein Mittelwert von 0,6 mBq/m^3, für 2012 ein Mittelwert von 0,7 mBq/m^3 und für 2013 ein Mittelwert von 0,7 mBq/m^3 bestimmt. Die Werte sind vergleichbar mit den Werten vor dem Reaktorunfall von Tschernobyl und spiegeln im Wesentlichen die Aktivität des langlebigen Radionuklids ^{40}K wider.

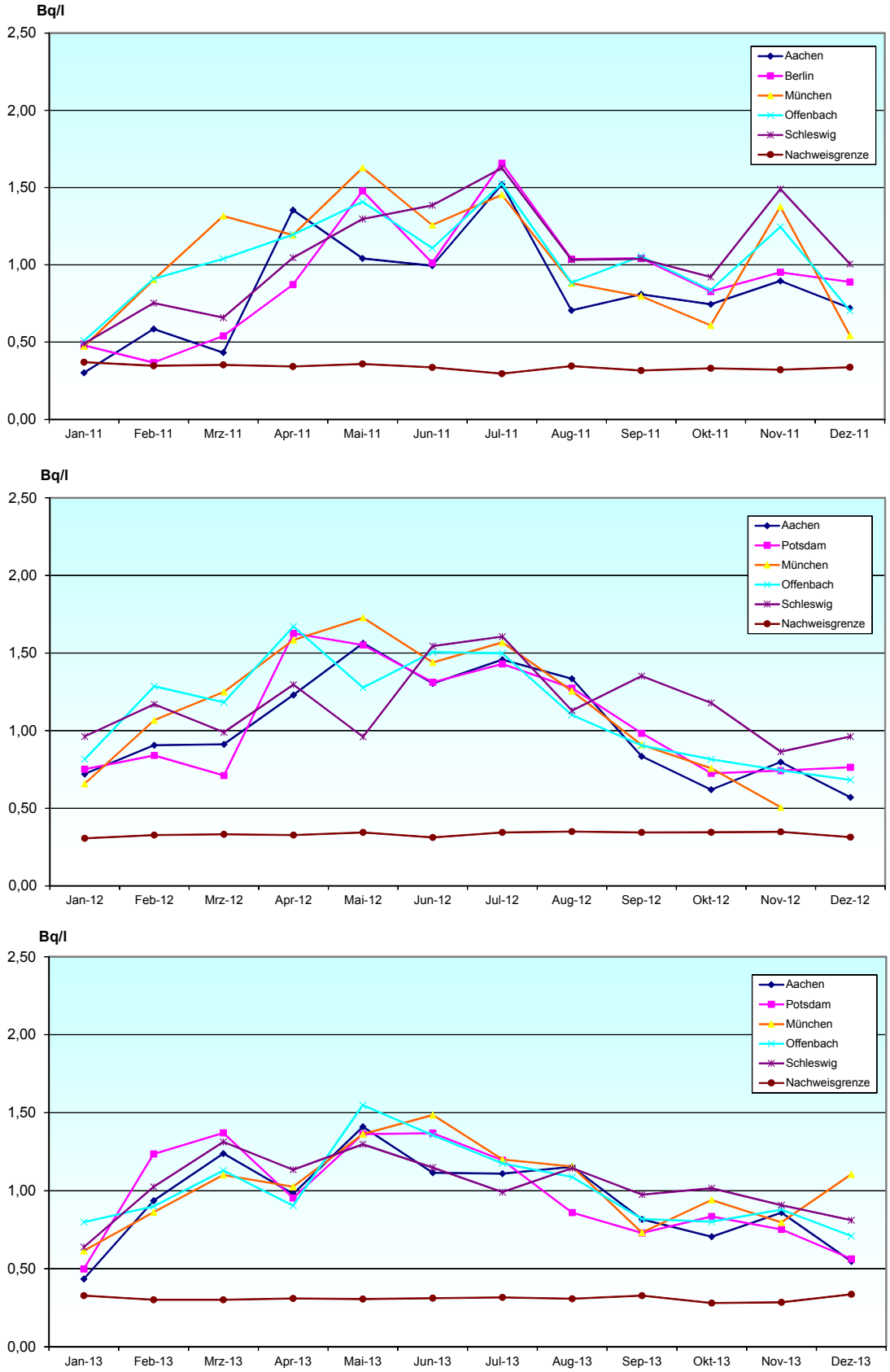
Für den Niederschlag wurde für die Gesamt-β–Aktivität eine bis zum Jahr 1957 zurückgehende Messreihe, gemittelt über alle Messstationen des DWD, fortgesetzt (Abbildung 4.1). Die freigesetzten radioaktiven Stoffe aus der Reaktorkatastrophe in Fukushima/Japan verursachten eine geringfügige Erhöhung der Jahressumme. Die Messungen der langlebigen Gesamt-β-Aktivität im Niederschlag ergaben für die Deposition einen über 48 Messstationen gemittelten Wert aus den stationsspezifischen Jahressummen von 58 Bq/m^2 für das Jahr 2011, 38 Bq/m^2 für das Jahr 2012 und 27 Bq/m^2 für das Jahr 2013. Diese Werte lassen sich durch die Anwesenheit natürlicher Radionuklide und deren langlebiger Betaaktivität erklären. Die stationsspezifischen mittleren Monatssummen der deponierten Gesamt-β-Aktivität zeigt Abbildung 4.2

Die Werte für die auf einzelne Radionuklide bezogene Deposition wurden anhand der vollständig eingedampften Monatsniederschlagsproben gammaspektrometrisch ermittelt. Exemplarisch zeigt Abbildung 4.3 für die Jahre 2011 bis 2013 anhand der Messstationen Potsdam und Offenbach die Messergebnisse für die Deposition von ^{7}Be, ^{40}K und ^{137}Cs. Für ^{137}Cs wurden keine Werte oberhalb der berechneten Nachweisgrenzen zwischen 15 mBq/m^2 und ca. 250 mBq/m^2 je nach Standort, Niederschlagsmenge und Detektor festgestellt. Für ^{90}Sr wurden Nachweisgrenzen zwischen 20 mBq/m^2 und 200 mBq/m^2 er-



Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 4.3
Deposition einzelner Nuklide in den Jahren 2011 bis 2013 (Monatswerte der pro Flächeneinheit deponierten Aktivität)



Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 4.4
Aktivitätskonzentration von Tritium im Niederschlag an den DWD-Stationen Aachen, Potsdam, München, Offenbach und Schleswig in den Jahren 2011 bis 2013

reicht, für $^{(239+240)}Pu$ eine Nachweisgrenze von 3 mBq/m^2, abhängig von der Niederschlagsmenge.

Mittels radiochemischer Trennverfahren wurden im Labor Analysen der Aerosol- und der Niederschlagsproben von den Stationen Potsdam, München, Offenbach und Schleswig bezogen auf ein Sammelintervall von einem Monat zur Bestimmung von ^{90}Sr und einzelner Uran-, Plutonium- und Americium-Isotope sowie für Tritium im Niederschlag durchgeführt. Für die ^{90}Sr-Bestimmung und zur Analyse der Alpha-Strahler wird die Extraktionschromatographie bzw. ein Ionenaustauschverfahren eingesetzt.

Die Nachweisempfindlichkeit für Tritium als HTO im Niederschlag ist durch ein elektrolytisches Anreicherungsverfahren um den Faktor 10 verbessert. Die Ergebnisse für die Stationen Potsdam, München, Offenbach und Schleswig sowie ergänzend Aachen für das Jahr 2013 weisen Messwerte zwischen 0,4 Bq/l und 1,6/l Bq (Abbildung 4.4) aus.

Sowohl in der Luft als auch im Niederschlag wurden im Jahr 2011 geringfügig erhöhte Werte im Spurenbereich registriert, die auf die Freisetzung von radioaktiven Stoffen aus den Kernreaktoren in Fukushima/Japan zurückzuführen waren. Die aufwändigen Messverfahren im Spurenbereich lassen bereits frühzeitig auch nur langsam stattfindende Veränderungen weit unterhalb des aus heutiger Sicht radiologischen Gefährdungspotenzials erkennen.

Daher liegt auch weiterhin ein besonderes Augenmerk auf der fortgesetzten Verbesserung von Probenentnahme- und Messsystemen, die eine schnelle Datenauswertung erlauben.

5 SPURENMESSUNG IN DER BODENNAHEN LUFT

J. Bieringer[1], T. Steinkopff[2], H. Wershofen[3]

[1]Bundesamt für Strahlenschutz
Leitstelle für die Überwachung der atmosphärischen Radioaktivität

[2]Deutscher Wetterdienst, Zentrale Offenbach/Main
Leitstelle für Luft und Niederschlag

[3]Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig
Leitstelle für Aktivitätsnormale und Radionukliddaten

Eine ausführliche Darstellung der Messergebnisse für die Jahre 2011 bis 2013 ist den Berichten des BMUB über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung zu entnehmen [12,13,14].

Spurenmessstelle Freiburg/Schauinsland (BfS)

Edelgase

Bei den im Rahmen der Spurenanalyse durchgeführten Edelgasmessungen werden wöchentliche Luftproben von derzeit 11 Stationen auf ihren Gehalt an radioaktivem Xenon und ^{85}Kr untersucht. Während ^{85}Kr mit einer Halbwertszeit von 10,75 Jahren überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt wird, stellt ^{133}Xe mit einer Halbwertszeit von 5,25 Tagen den Hauptbestandteil im bestimmungsgemäßen Betrieb der Edelgasableitungen von Kernkraftwerken und Isotopenproduktionsanlagen dar. Die Aktivitätskonzentrationen dieser Edelgase werden nach gaschromatographischer Reinstdarstellung mit Hilfe integraler Betamessungen in Proportionalzählrohren bestimmt.

Die beim BfS in Freiburg durchgeführten Messungen des radioaktiven Xenons und Kryptons ergaben im Berichtszeitraum in der Regel keine auffälligen Ergebnisse. Die Messwerte der Aktivitätskonzentrationen von ^{133}Xe lagen - mit Ausnahme der Messwerte nach der Reaktorkatatstrophe von Fukushima - zwischen 1 und 100 mBq/m^3 Luft. Als Beispiel ist in Abbildung 5.1 die Zeitreihe der Aktivitätskonzentration der radioaktiven Xenonisotope an der Messstation Schauinsland dargestellt. Der Medianwert der ^{85}Kr-Aktivitätskonzentration an der Messstation Schauinsland lag in den Jahren 2011 bis 2013 bei ca. 1,5 Bq/m^3. Kurzzeitige Schwankungen im zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen sind auf Emissionen aus den europäischen Wiederaufbereitungsanlagen für Kernbrennstoffe (La Hague/Frankreich und Sellafield/ England) zurückzuführen.

Unabhängig von den Spurenmessungen des BfS wird im Rahmen der Überwachung der Einhaltung des Kernwaffenteststoppabkommens (Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty, CTBT) an der Station Schauinsland des BfS eine Radionuklidmessstation (RN 33) betrieben. Sie beinhaltet automatisch arbeitende Systeme für den nuklidspezifischen Nachweis aerosolpartikelgebundener Radioaktivität sowie für den Nachweis der radioaktiven Xenon-Isotope ^{135}Xe, ^{133m}Xe, ^{133}Xe und ^{131m}Xe. Das für die Edelgasmessungen verwendete System ermöglicht die nuklidspezifische Analyse des in der Luft enthaltenen Radioxenons mit einer Nachweisgrenze von zurzeit ca. 0,3 mBq/m^3 Luft, bezogen auf ^{133}Xe im Tagesmittel. Die Radionuklidmessstation RN 33 ist als Bestandteil des weltweiten Messnetzes der CTBTO und als einzige derartige Station in Mitteleuropa seit 2013 nach den Vorgaben der CTBTO komplett zertifiziert und erfüllt somit deren hohe Anforderungen an Datenqualität und –verfügbarkeit.

Aerosolpartikelgebundene Radionuklide

Für spurenanalytische Messungen der aerosolgebundenen Radioaktivität werden wöchentlich beaufschlagte Staubfilter verwendet, die zunächst gammaspektrometrisch ausgewertet werden. Hierzu werden an der Messstation auf dem Schauinsland und in Freiburg Hochvolumensammler betrieben. Die Nachweisgrenzen für diese Messungen liegen für ^{137}Cs bei etwa 0,1 µBq/m^3, im Jahresmittel liegen die Aktivitätskonzentrationen an der Station Schauinsland bei etwa 0,25 µBq/m^3 und in Freiburg bei 1 µBq/m^3. In Abbildung 5.2 sind die Zeitreihen der Aktivitätskonzentrationen des ^{137}Cs und des kosmogenen ^{7}Be an der Station Schauinsland dargestellt.

Nach Abschluss der gammaspektrometrischen Messungen werden die Filterproben jeweils eines Monats zusammengefasst und einer radiochemischen Aufbereitung unterzogen, um die Aktivitätskonzentrationen von Strontium-, Uran- und Plutonium-Isotopen bestimmen zu können . Die mittleren Aktivitätskonzentrationen für ^{90}Sr liegen derzeit bei 0,07 µBq/m^3, für die Uranisotope bei 0,03 µBq/m^3.

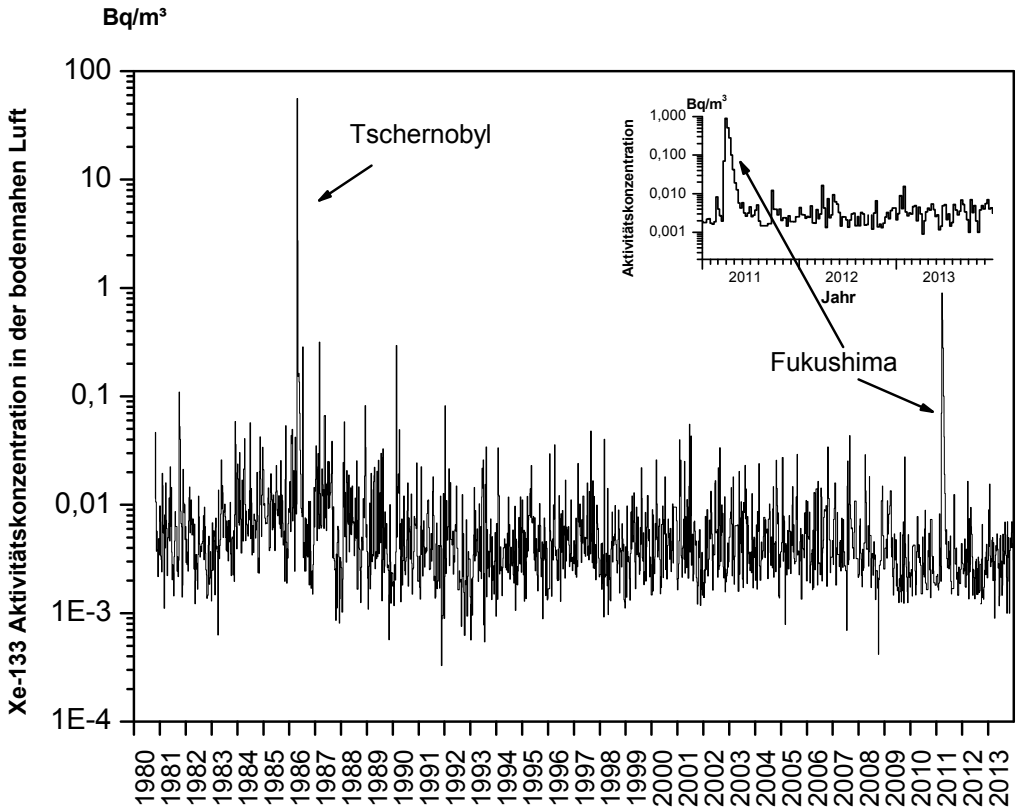


Abbildung 5.1

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentrationen von ^{133}Xe an der Messstation Schauinsland

Spurenmessstellen Potsdam und Offenbach (DWD)

Gammastrahlende künstliche Radionuklide mit Aktivitätskonzentrationen von nur wenigen Mikrobecquerel pro Kubikmeter Luft ließen sich nur anhand von Schwebstofffiltern messen, die mit Luftdurchsätzen von mehreren 100 m^3/h über eine Woche beaufschlagt wurden. An den Spurenmessstellen Berlin (seit 2010 Potsdam) und Offenbach sind (im Rahmen der EU-Berichterstattung) Aerosolsammler mit einem Luftdurchsatz von ca. 1000 m^3/h im Einsatz. Hier reduziert sich die Nachweisgrenze für die gammaspektrometrischen Messungen um den Faktor 10 auf ca. 0,2 µBq/m^3 bezogen auf ^{137}Cs. Die Nachweisgrenze für ^{90}Sr lag bei 0,5 µBq/m^3 und für $^{(239+240)}$Pu bei 0,05 µBq/m^3.

An allen Spurenmessstellen sind tatsächliche Messwerte für ^{137}Cs, ^{234}U und ^{238}U in der Regel auf resuspendierten Feinstaub zurückzuführen, der abhängig von meteorologischen Bedingungen atmosphärisch verfrachtet wird. Für die Spurenmessstellen Potsdam und Offenbach werden exemplarisch für die Jahre 2011, 2012 und 2013 die Ergebnisse der Messungen von ^{7}Be, ^{40}K, ^{137}Cs, ^{234}U, ^{235}U und ^{238}U graphisch dargestellt (Abbildung 5.4). Die normalerweise auftretende typische Erhöhung der ^{7}Be-Aktivitätskonzentration im Frühjahr und Sommer tritt auch in den Jahren 2011, 2012 und 2013 schwach ausgeprägt auf.

Spurenmessstelle Braunschweig (PTB)

Der ^{137}Cs-Gehalt der Luft zeigte im Berichtszeitraum die üblichen jährlichen Schwankungen und die für trockene Ostwind-Wetterlagen typischen Erhöhungen des Aktivitätsverhältnisses A(^{137}Cs)/A(^{40}K). [12,13,14]. Der Einfluss der Emissionen von ^{134}Cs und ^{137}Cs aus Fukushima auf deren mittlere wöchentliche Aktivitätskonzentration in Braunschweig 2011 ist in Abbildung 5.3 dargestellt. ^{134}Cs war nur im Zeitraum von der 12. Kalenderwoche bis zur 19. Kalenderwoche in Aktivitätskonzentrationen über 1 µBq/m^3 messbar. Ab der 20. Kalenderwoche nahmen die Aktivitätskonzentrationen stetig ab und sanken in der 29. Kalenderwoche unter die Nachweisgrenze. Die immer im Verlauf eines Jahres beobachtbaren Einträge von ^{137}Cs aus den vom Tschernobyl-Unfall kontaminierten Gebieten bewirkten seit 1989 Erhöhungen des Aktivitätsverhältnisses A(^{137}Cs)/A(^{40}K) auf Höchstwerte bis 0,46. Durch das ^{137}Cs, das nach der Reaktorkatastrophe von Fukushima mit der Luft nach Deutschland verfrachtet wurde, stieg

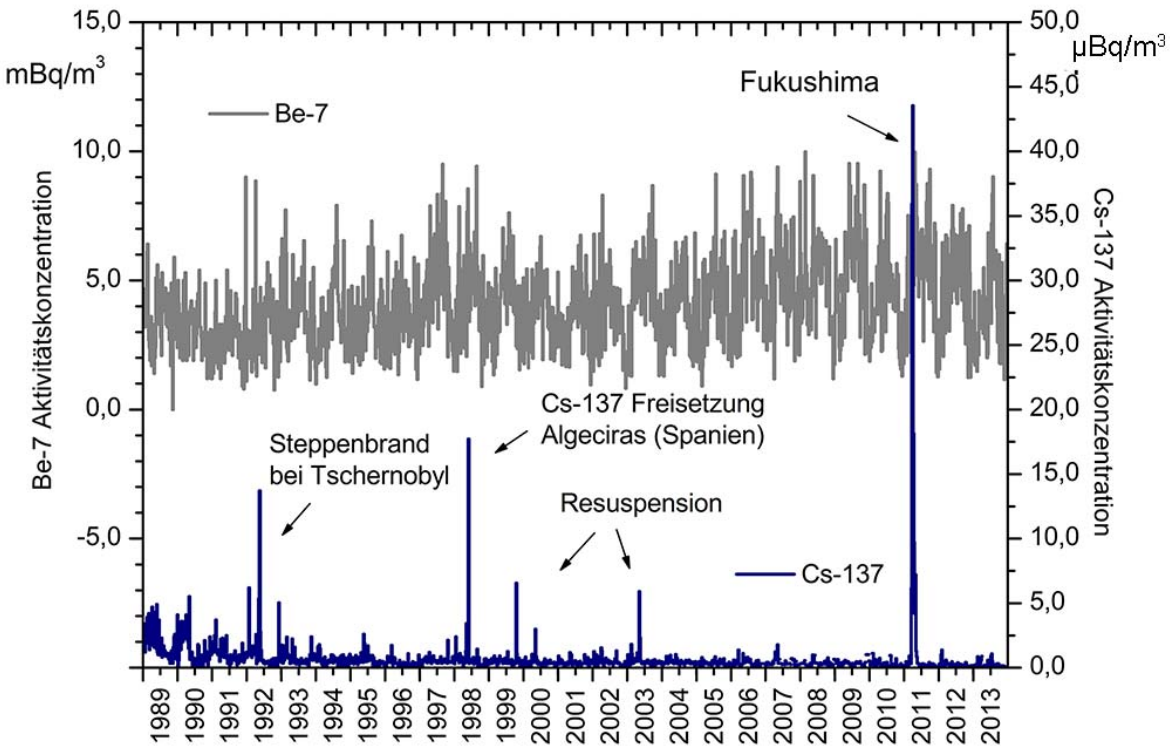
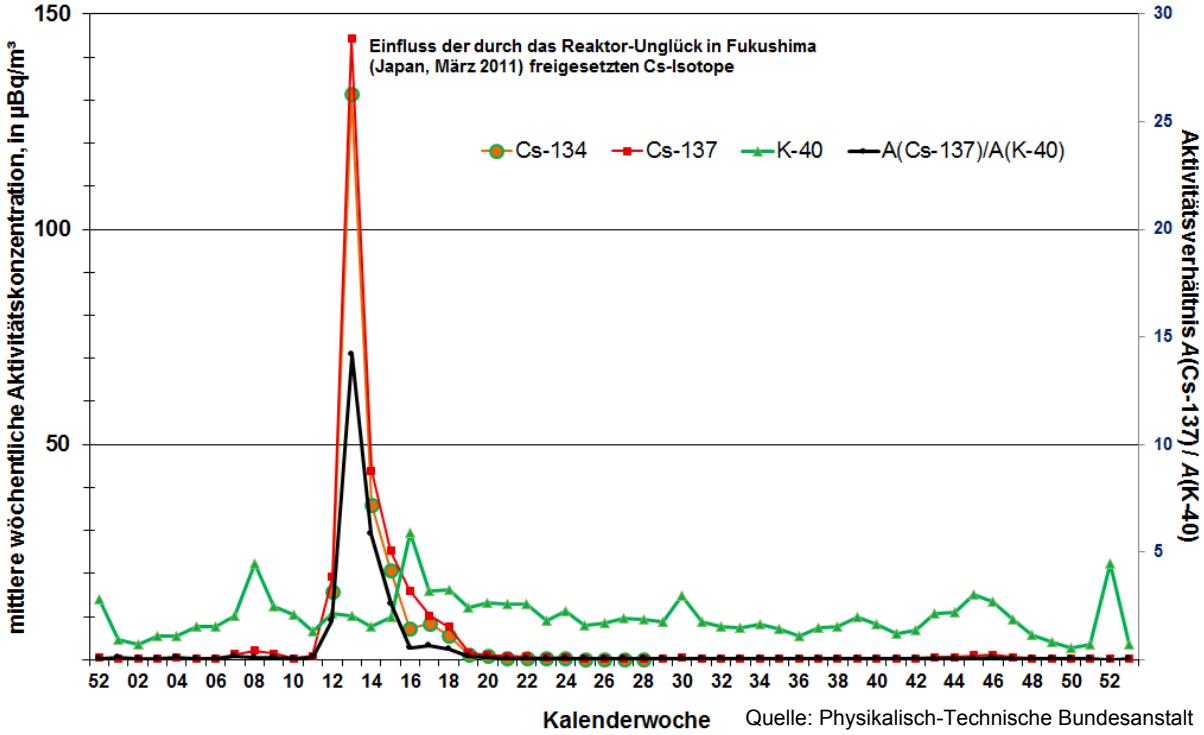


Abbildung 5.2

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

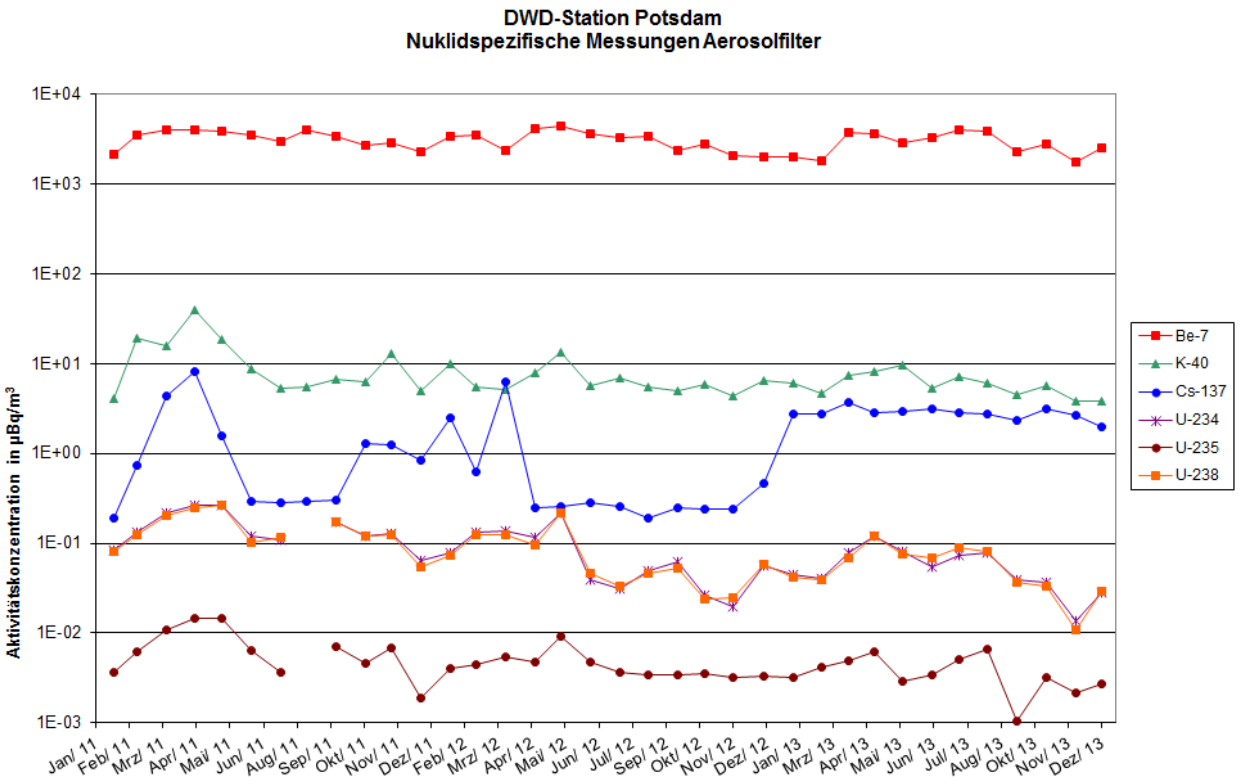
Zeitreihen der Aktivitätskonzentration von ^{7}Be und ^{137}Cs an der Messstation Schauinsland

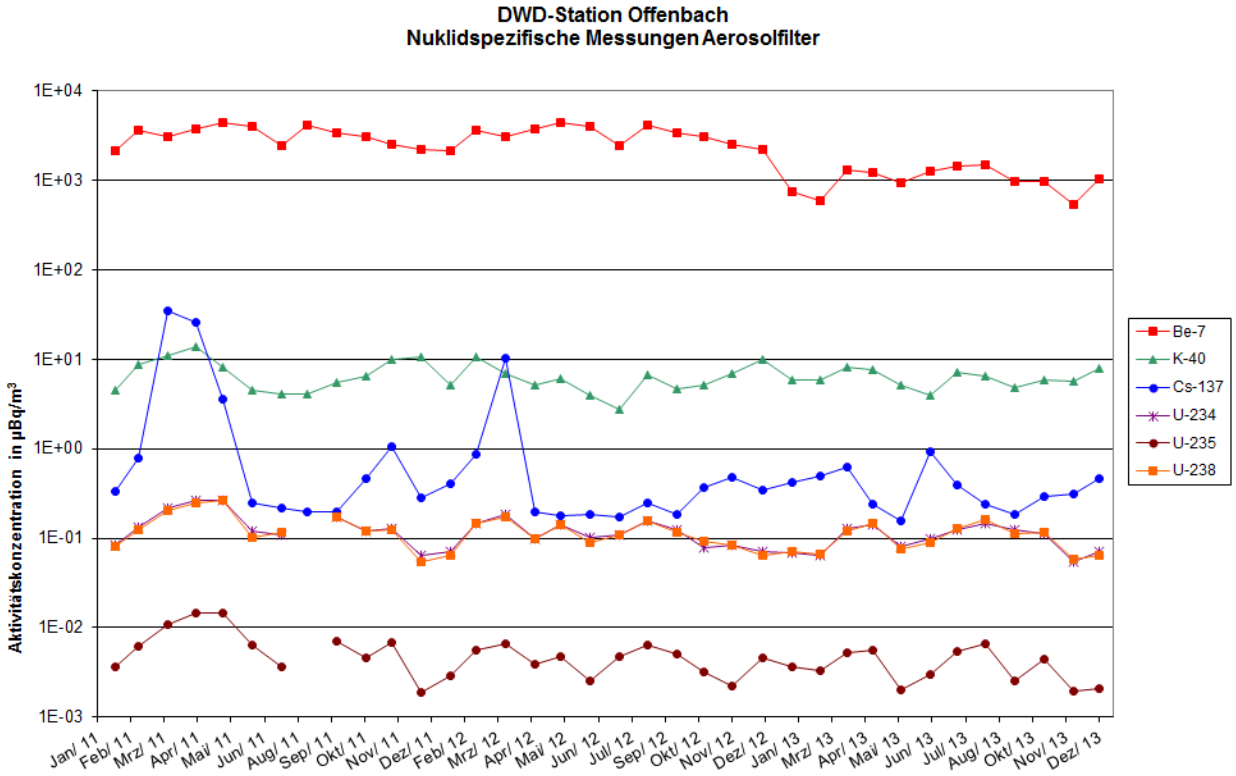


Quelle: Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Abbildung 5.3

Jahresgang 2011 der mittleren wöchentlichen Aktivitätskonzentration von ^{40}K, ^{137}Cs und ^{134}Cs an der Spurenmessstelle der PTB in Braunschweig





Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 5.4

Zeitlicher Verlauf der mittleren wöchentlichen Aktivitätskonzentrationen von ^{7}Be, ^{40}K, ^{137}Cs, ^{234}U, ^{235}U und ^{238}U an den Spurenmessstellen des DWD in Potsdam und Offenbach

dieser Wert im Jahr 2011 auf einen Maximalwert von 14,2 an und sank anschließend wieder in den Bereich der üblichen Schwankungen.

Auffälligkeiten im Berichtszeitraum

Messergebnisse für das Jahr 2011, die in Zusammenhang mit der Reaktorkatastrophe von Fukushima stehen, wurden bereits im vorhergehenden Leitstellenbericht [15] zusammengefasst und diskutiert.

Nachweis von ^{131}I in Europa

In der ersten Novemberwoche 2011 wurde an den Spurenmessstellen im Nord-Osten Deutschlands (Potsdam, Braunschweig) ^{131}I mit Aktivitätskonzentrationen von wenigen Mikrobecquerel pro Kubikmeter Luft nachgewiesen. Andere künstliche Radionuklide wurden nicht detektiert. Europäische Spurenmessstellen berichteten ihre Messergebnisse über den „Ring of 5“ (informeller Zusammenschluss europäischer Spurenmessstellen). Auch in anderen europäischen Ländern wie Schweden, Dänemark, Norwegen, der Tschechischen Republik, Österreich und Frankreich war in diesem Zeitraum ^{131}I nachgewiesen worden, wobei in Österreich die höchsten Werte mit ca. 60 µBq/m³ gemessen wurden. In Polen und in Österreich war auch schon in den beiden vorhergehenden Wochen ^{131}I in Luftproben beobachtet worden. Die geographische Verteilung der Detektionen und die Ergebnisse atmosphärischer Ausbreitungsberechnungen deuteten auf eine Emission in Osteuropa hin. Da die Quelle des ^{131}I zunächst unbekannt war, stellte die Internationale Atomenergiebehörde (IAEA, International Atomic Energy Agency, www.iaea.org) eine entsprechende Anfrage an die Mitgliedstaaten. Diese ergab, dass in Ungarn in einer Firma zur Herstellung von Radioisotopen für medizinische Zwecke im fraglichen Zeitraum ^{131}I freigesetzt worden war.

Nachweis von ^{137}Cs in Europa

Über den „Ring of 5“ wurde berichtet, dass im Zeitraum vom 08.04. bis 15.04.2013 in Norwegen, Schweden und Finnland erhöhte Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs gemessen wurden, andere künstliche Radionuklide wurden nicht nachgewiesen. Die Maximalwerte der Tagesproben lagen bei ca. 50 µBq/m^3. In Dänemark, Polen und Deutschland wurden keine ungewöhnlichen Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs beobachtet. Diese Erhöhungen könnten eventuell mit einem Vorfall in einem russischen Stahlwerk in der Stadt Elektrostal (in der Nähe von Moskau) in Zusammenhang stehen. Dort gelangte, Internetberichten zufolge, in dieser Zeit radioaktives Material in einen Hochofen und wurde teilweise freigesetzt. Trajektorienrechnungen wiesen ebenfalls in diese Richtung, schlossen jedoch auch andere Quellen in dieser Region nicht aus.

Da in der Spurenanalyse im Routinebetrieb die Proben über eine Woche gesammelt werden, müssen im Fall auffälliger Messergebnisse auch die atmosphärischen Ausbreitungen über diesen langen Zeitraum berechnet werden, um die Herkunft der mit der Luft transportierten radioaktiven Stoffe eingrenzen zu können. Dies ist jedoch schwierig, denn mit jedem Wechsel der Windrichtung im Zeitraum der Probenahme vergrößert sich das mögliche Einzugsgebiet der Luftmassen entsprechend und macht eine eindeutige Aussage bzgl. der Herkunft nur sehr schwer oder nicht mehr möglich. Die Tageswerte der Stationen aus dem Messnetz der CTBTO sind hier eine gute Ergänzung zum Spurenmessnetz. Die geringfügigen Auffälligkeiten zeigen, wie wichtig die Zusammenarbeit und der schnelle Austausch qualitätsgesicherter Messergebnisse auch im internationalen Rahmen sind. Nur durch eine Übersicht über die zur Verfügung stehenden Messergebnisse in Europa konnte bereits früh die Art der Quelle und ggf. auch die Herkunftsregion eingegrenzt werden.

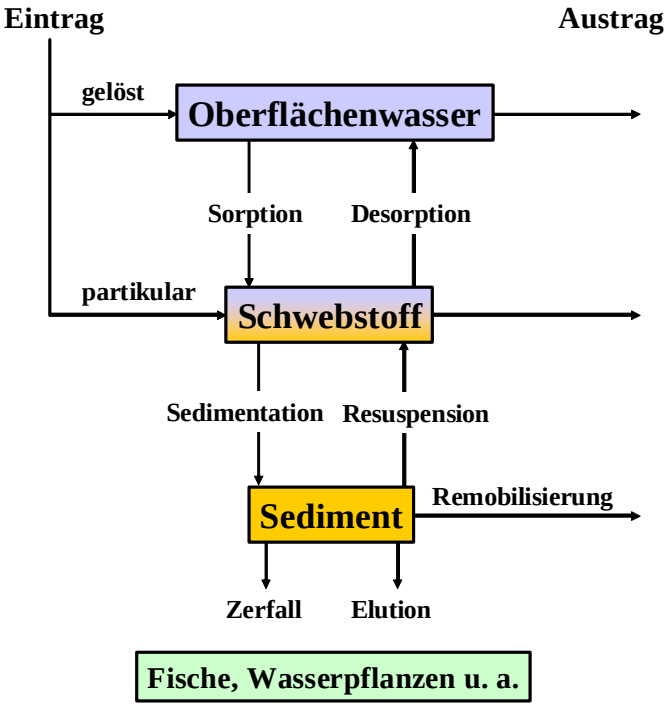
6 RADIOAKTIVE STOFFE IN BINNENGEWÄSSERN

G. Dersch

Bundesanstalt für Gewässerkunde
Leitstelle für Oberflächenwasser, Schwebstoff und Sediment in Binnengewässern

Zur Radioaktivität in Binnengewässern tragen natürliche und künstliche Radionuklide bei. Die natürlichen Radionuklide sind primordialen, radiogenen oder kosmogenen Ursprungs. Bei den künstlichen Radionukliden handelt es sich derzeit im Wesentlichen um ^{3}H, ^{58}Co, ^{60}Co, ^{90}Sr, ^{131}I und ^{137}Cs. ^{3}H stammt, neben einem natürlichen Anteil, aus dem Fallout der Kernwaffenversuche der 50er und 60er Jahre sowie aus den Ableitungen kerntechnischer Anlagen und Isotopen verarbeitender Betriebe. Die langlebigen Spaltprodukte ^{90}Sr und ^{137}Cs wurden hauptsächlich durch die Fallouts der atmosphärischen Kernwaffenversuche und des Reaktorunfalls von Tschernobyl 1986 - hier insbesondere ^{137}Cs - in die Gewässer eingetragen. Signifikante Einträge des Reaktorunfalls von Fukushima waren dagegen nicht aufzuzeigen. In geringem Umfang treten die Aktivierungsprodukte ^{58}Co und ^{60}Co aus dem Normalbetrieb kerntechnischer Anlagen auf. Das vergleichsweise kurzlebige ^{131}I stammt dagegen meist aus nuklearmedizinischen Anwendungen.

In Binnengewässern wird die Radioaktivität in den Kompartimenten Oberflächenwasser, Schwebstoff und Sediment ermittelt (Abbildung 6.1). Mit der Überwachung der dynamischen Kompartimente Oberflächenwasser und Schwebstoff können Einträge und Veränderungen radioaktiver Kontaminationen relativ kurzzeitig und empfindlich erfasst werden. Bei Fließgewässern ist zu beachten, dass Radionuklide - in gelöster Form oder partikular gebunden - mit Wasser bzw. Schwebstoffen über weite Strecken verfrachtet werden können. Schwebstoffe sedimentieren bevorzugt in Stillwasserbereichen, wie sie z. B. Häfen, Buhnenfelder, Altarme, Stauhaltungen und Uferböschungen darstellen, und können dort zu einer Kontamination des Sediments führen. Die Sedimente sind als das eigentliche Langzeitspeichermedium zu betrachten: Hier lassen sich die langfristigen Auswirkungen radioaktiver Kontaminationen aufzeigen. Eine spätere Weiterverfrachtung bereits abgelagerter Radionuklide infolge Resuspension von Sedimenten, beispielsweise bei Hochwasserereignissen, ist möglich und kann dann über Schwebstoffmessungen verfolgt werden.



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.1
Verhalten von Radionukliden in Fließgewässern

Tabelle 6.1
Typische Aktivitätskonzentrationen bzw. spezifische Aktivitäten natürlicher Radionuklide in Binnengewässern (Daten aus dem Routinemessprogramm zum StrVG)

Kompartiment	Radionuklid	Wertebereich
Oberflächenwasser (Bq/l)	^{3}H (kosmogener Anteil)	0,5 bis 1
	^{7}Be	bis 0,5
	^{40}K	0,03 bis 1
	^{232}Th	bis 0,1
	^{235}U	bis 0,05
	^{238}U	bis 0,1
Schwebstoff und Sediment (Bq/kg) TM	^{7}Be	bis 1000
	^{40}K	50 bis 1000
	^{232}Th	bis 100
	^{235}U	bis 10
	^{238}U	bis 100

Die fortlaufende Überwachung der Gewässer auf radioaktive Stoffe gilt insbesondere den künstlichen Radionukliden. Es gilt ihre Veränderungen innerhalb der Gewässer zu erfassen sowie mögliche Auswirkungen auf Mensch und Umwelt abzuschätzen. Die entsprechenden Überwachungsprogramme basieren auf dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) und der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV). Die Gehalte natürlicher Radionuklide unterliegen in begrenztem Ausmaß regionalen und saisonalen Schwankungen und bedürfen daher normalerweise keiner fortlaufenden Überwachung (s. Tabelle 6.1)

Eine repräsentative Darstellung der 2011 bis 2013 ermittelten Messergebnisse nach StrVG (RMP) und StrlSchV (REI) findet man in den Jahresberichten des BMUB „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“. Eine Bewertung des radiologischen Gütezustands der Binnengewässer ergibt für den Berichtszeitraum folgendes Bild:

Oberflächenwasser wies ^{3}H-Konzentrationen im Jahresmittel überwiegend unterhalb der im Routinemessprogramm zum StrVG geforderten Nachweisgrenze von 10 Bq/l auf (Abbildung 6.2). Selbst in Vorflutern, in die ^{3}H aus kerntechnischen Anlagen abgeleitet wurde, wurden in weiter flussabwärts gelegenen Bereichen nur geringfügig höhere Jahresmittelwerte bis ca. 40 Bq/l erhalten. Die mittleren Aktivitätskonzentrationen von ^{90}Sr und ^{137}Cs blieben meist unter 0,01 Bq/l (Abbildungen 6.3 und 6.4). Die von kerntechnischen Anlagen eingeleiteten anlagenspezifischen Spalt- und Aktivierungsprodukte – von ^{3}H abgesehen - waren im Fernbereich der jeweiligen Anlagen im Allgemeinen nicht mehr nachweisbar oder wegen der Vorbelastung aus anderen Quellen (Fallouts, Nuklearmedizin) nicht explizit aufzuzeigen. ^{131}I aus der Nuklearmedizin trat nur sporadisch auf. Die Konzentrationen an Alphastrahlern gehen im Wesentlichen auf die natürlichen Radionuklide zurück.

In den Kompartimenten **Schwebstoff** und **Sediment** ist von der Vielzahl der nach den Fallouts in die Binnengewässer eingetragenen Radionuklide nur noch das langlebige ^{137}Cs von Bedeutung. Die mittleren spezifischen Aktivitäten betrugen hier meist weniger als 100 Bq/kg TM (Abbildungen 6.6 und 6.8). Höhere mittlere ^{137}Cs-Gehalte mit vereinzelt über 200 Bq/kg TM wurden wiederum in einigen Seen gemessen: z.B. Starnberger See, Steinhuder Meer, Schaalsee, Wittensee (beide Schleswig-Holstein) und dem Schollener See (Sachsen-Anhalt). Von den aus kerntechnischen Anlagen eingeleiteten Radionukliden wurden ^{58}Co bzw. ^{60}Co in Schwebstoffen und Sedimenten aus Rhein, Neckar, Main, Mosel, Ems, Jadebusen, Weser und Donau in geringen mittleren spezifischen Aktivitäten überwiegend jeweils von unter 5 Bq/kg TM nachgewiesen (Abbildungen 6.5 und 6.7); damit lagen sie noch unter der geforderten Nachweisgrenze des RMP. Selbst in wenigen, nahe an Ausläufen bzw. Entwässerungskanälen kerntechnischer Anlagen entnommenen Proben, waren hier nur geringfügig höhere Werte zu verzeichnen. ^{131}I

aus der Nuklearmedizin trat sporadisch in Schwebstoffen und Sedimenten verschiedener Vorfluter auf: die Einzelwerte betrugen bis 260 Bq/kg TM.

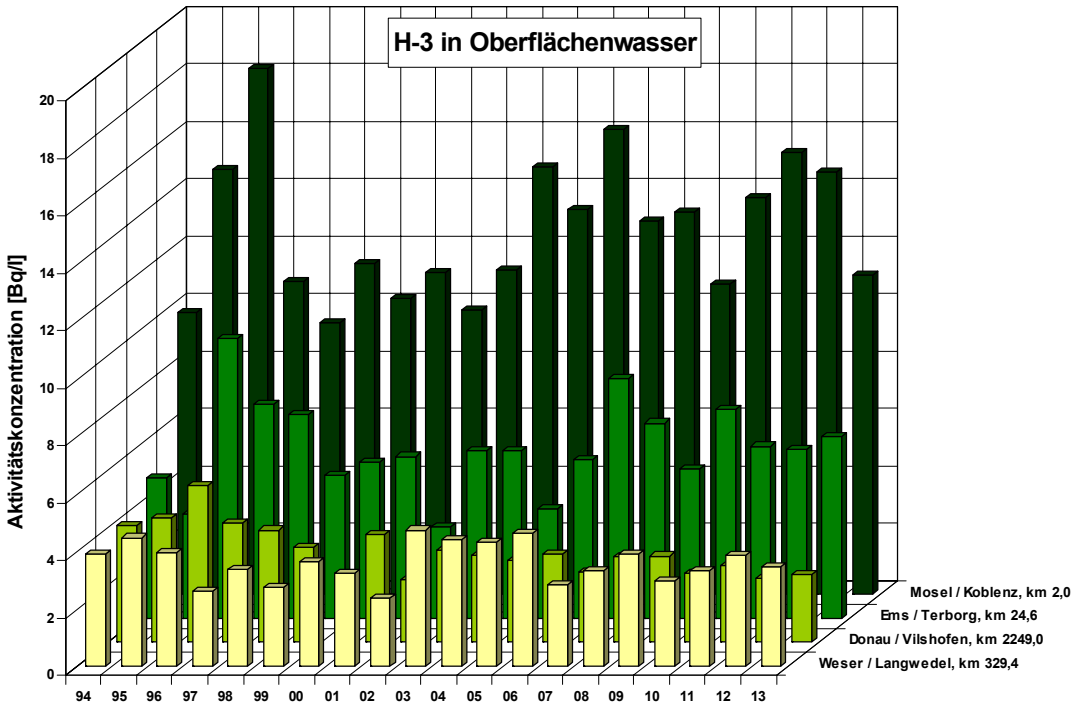
Radioaktive Stoffe bzw. die von ihnen ausgehende ionisierende Strahlung können auf verschiedenste Weise zum Menschen gelangen und eine innere oder äußere **Strahlenexposition** bewirken. Im Folgenden sollen beispielhaft für die im aquatischen Bereich sensitiven Expositionspfade – „Trinkwasser“ und „Aufenthalt auf Spülfeldern (Sediment)“ – effektive Strahlendosen in Anlehnung an § 47 der StrlSchV abgeschätzt werden.

Legt man für zur Trinkwassergewinnung genutzte Flussabschnitte ^{3}H-Gehalte von 10 Bq/l sowie ^{90}Sr- und ^{137}Cs-Gehalte von je 0,01 Bq/l zu Grunde, so kann der auf dem Expositionspfad „Trinkwasser“ hypothetisch zu erwartende Beitrag zur effektiven Dosis für Erwachsene (über 17 Jahre; 350 l Jahreskonsum von unaufbereitetem Wasser) zu ca. 0,21 µSv/a abgeschätzt werden. Für Kleinkinder (unter einem Jahr; 215 l Jahreskonsum) beträgt die Dosis hier ca. 0,68 µSv/a. Allein der auf das natürliche Radionuklid ^{40}K für einen typischen Gehalt von 0,4 Bq/l zu erwartende Dosisbeitrag liegt mit ca. 0,87 bzw. 5,3 µSv/a fast eine Größenordnung höher.

Insbesondere ^{137}Cs war in Sedimenten noch deutlich nachweisbar. Wird Sediment mit einem ^{137}Cs-Gehalt von 100 Bq/kg TM bei Ausbaumaßnahmen für die Schifffahrt gebaggert und an Land gelagert, so kann die auf dem Expositionspfad „Aufenthalt auf Spülfeldern“ für Erwachsene (über 17 Jahre) zu erwartende zusätzliche effektive Dosis zu ca. 11 µSv/a abgeschätzt werden. Der Dosisbeitrag der natürlichen Radionuklide ^{40}K, Th_{nat} und U_{nat} bei typischen Gehalten von 500, 40 und 40 Bq/kg TM liegt für diesen Expositionspfad mit insgesamt ca. 28 µSv/a wesentlich höher.

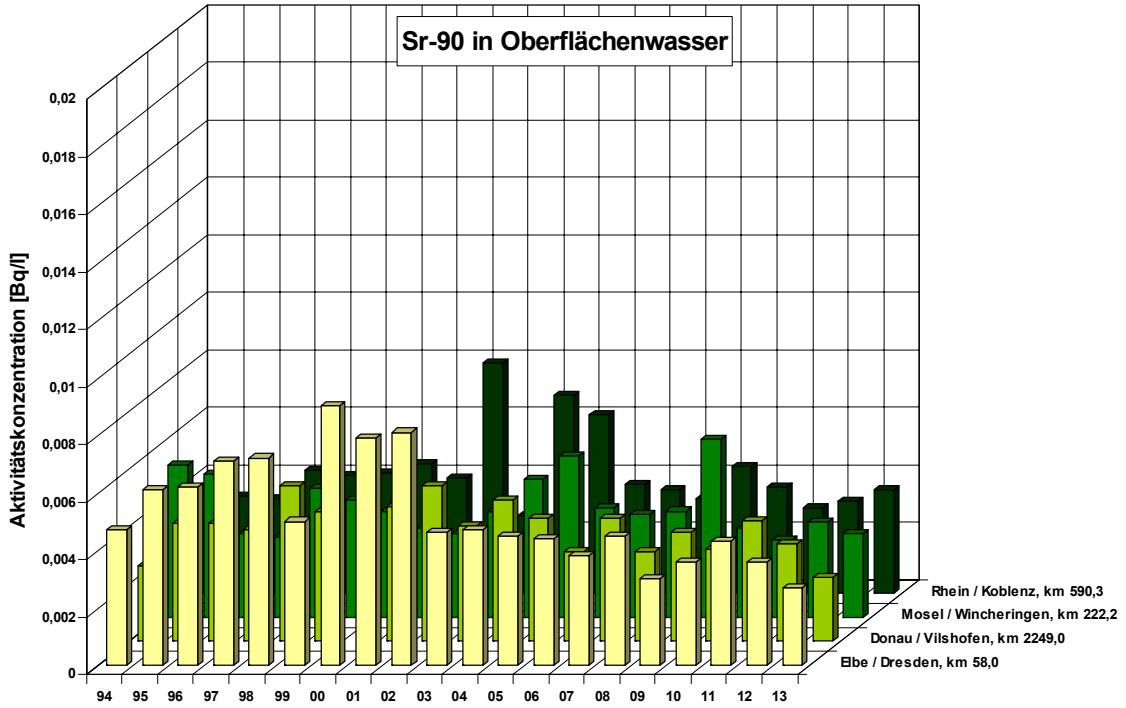
Zum Vergleich: Der Dosisgrenzwert nach § 47 der StrlSchV für Ableitungen aus kerntechnischen Anlagen beträgt 300 µSv/a.

Der radiologische Gütezustand der Binnengewässer unterlag im Berichtszeitraum keinen signifikanten Veränderungen im Vergleich zu den letzten Vorjahren: Bezüglich der radiologischen Auswirkungen zeigt sich - wie in anderen Umweltbereichen auch - , dass derzeit die natürlichen Radionuklide im Vergleich zu den künstlichen Radionukliden den wesentlichen Anteil zur Strahlendosis beitragen. Der Dosisanteil der künstlichen Radionuklide geht heute in erster Linie auf die Radionuklide zurück, die über die Fallouts der Kernwaffenversuche und des Reaktorunfalls von Tschernobyl in die Gewässer gelangten.



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

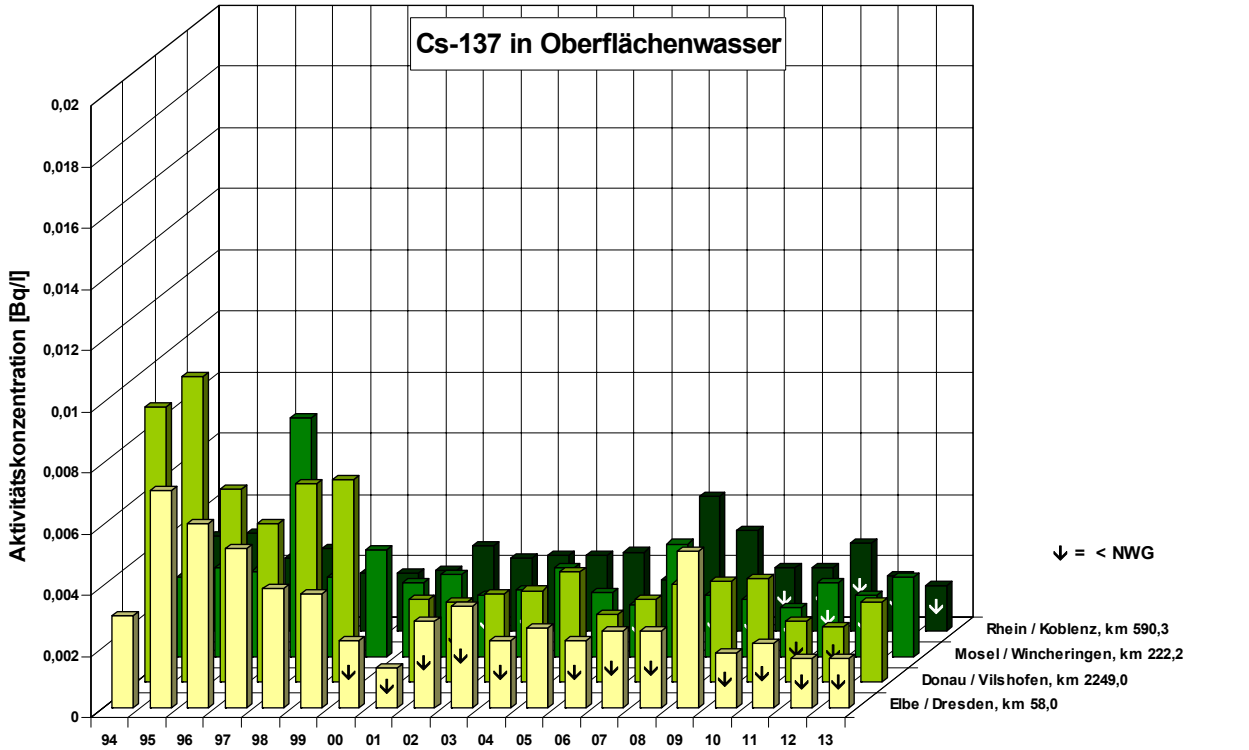
Abbildung 6.2
Aktivitätskonzentration von Tritium in Oberflächenwasser ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.3

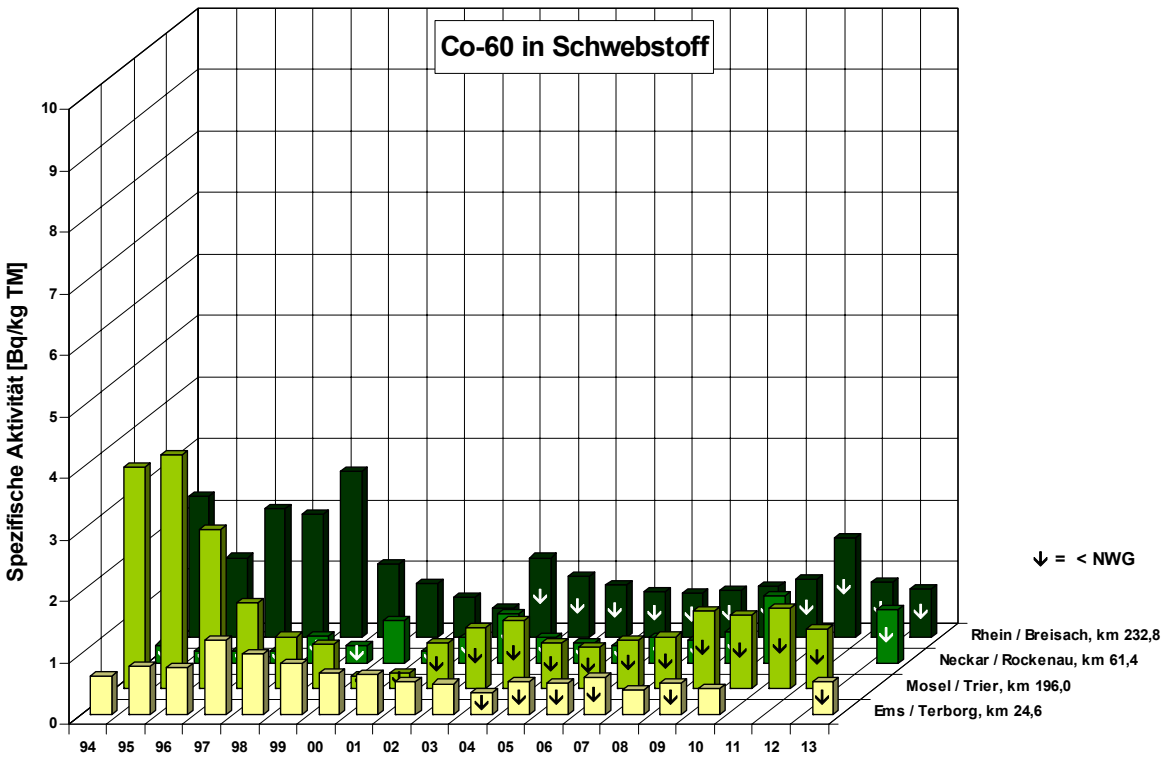
Aktivitätskonzentration von ^{90}Sr in Oberflächenwasser ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.4

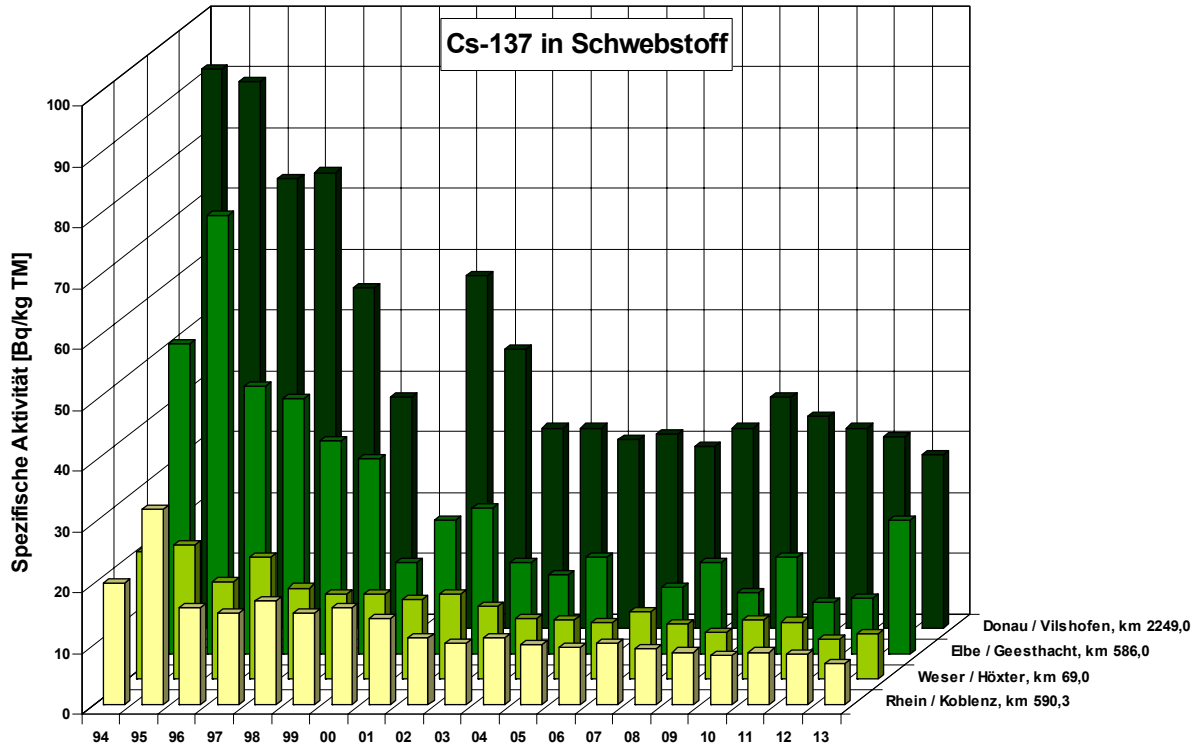
Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs in Oberflächenwasser ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.5

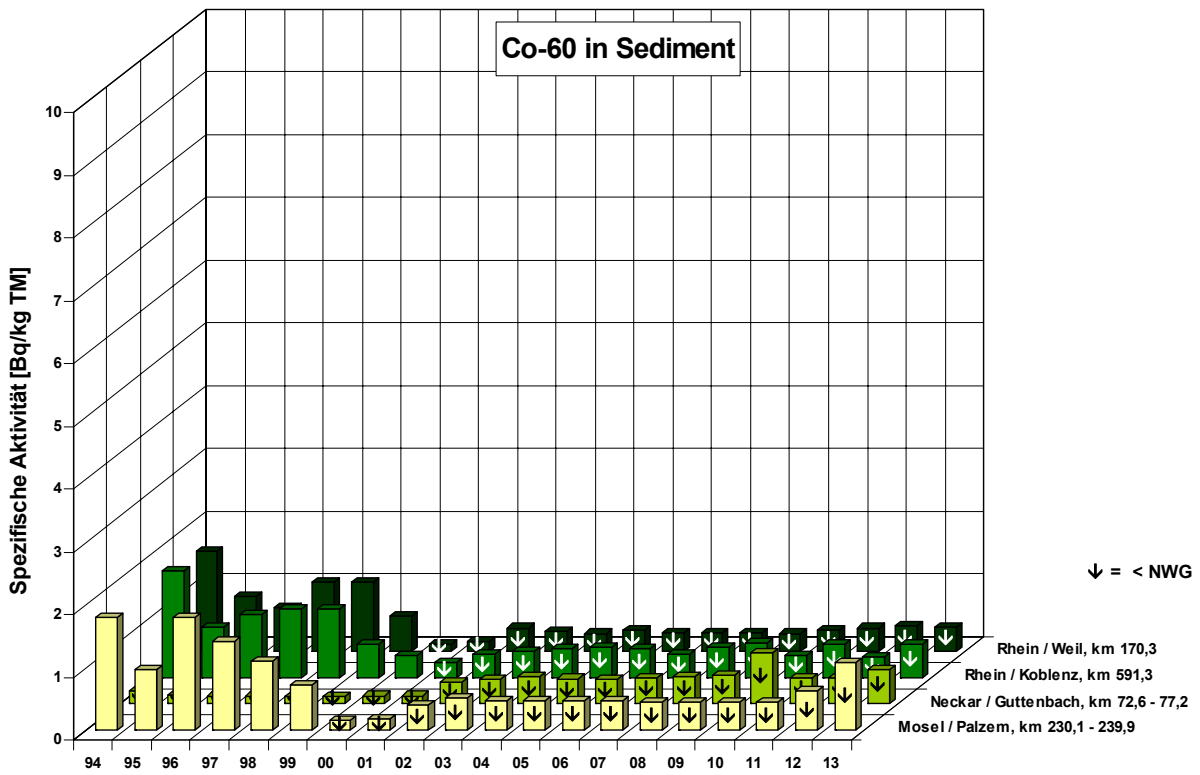
Spezifische Aktivitäten von ^{60}Co in Schwebstoffproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.6

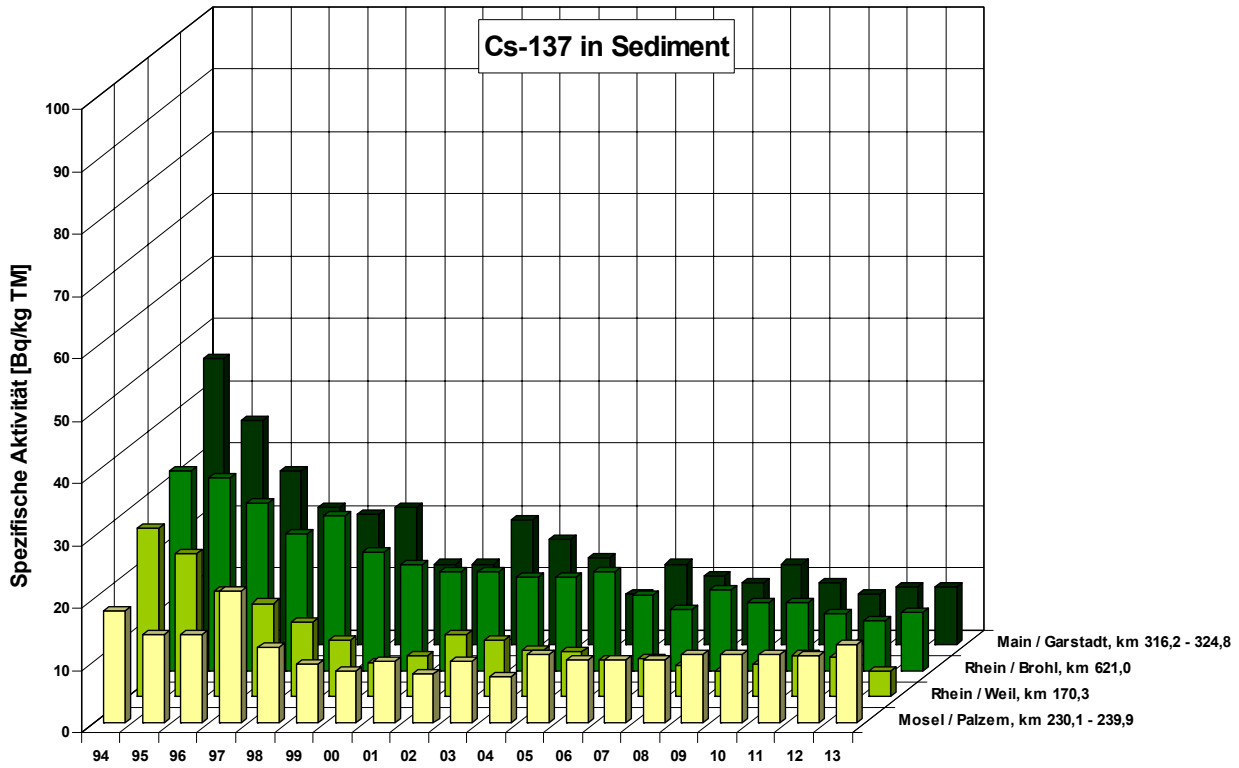
Spezifische Aktivität von ^{137}Cs in Schwebstoffproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.7

Spezifische Aktivität von ^{60}Co in Sedimentproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 6.8

Spezifische Aktivität von ^{137}Cs in Sedimentproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte)

7 RADIOAKTIVE STOFFE IN TRINK- UND GRUNDWASSER

K. Schmidt, C. Wittwer

Bundesamt für Strahlenschutz
Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen

Überwachung nach StrVG und REI

Von den amtlichen Messstellen der Länder für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt werden das Trinkwasser und das Grundwasser

- nach dem Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm nach AVV-IMIS) gemäß Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG)

und

- im Rahmen der Umgebungsüberwachung nach der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI)

regelmäßig überwacht.

Die im Trinkwasser in den Jahren 2011 bis 2013 nachgewiesenen Radionuklide sind hauptsächlich natürlichen Ursprungs, wie z.B. ^{40}K und ^{238}U. Künstliche Nuklide, z.B. ^{137}Cs und ^{90}Sr, treten nur bei nicht oder wenig geschützten Rohwässern (z.B. aus Oberflächenwasser, Uferfiltrat oder oberflächennahem Grundwasser) und nur in sehr geringer Konzentration auf.

Bezüglich der Vorgänge, die zur Kontamination des Trinkwassers durch künstliche sowie in der Atmosphäre enthaltene natürliche radioaktive Stoffe führen, wird auf [42] verwiesen.

In Tabelle 7.1 sind die Anzahl der Messwerte, die Anzahl der Werte unterhalb der Nachweisgrenze, die tatsächlich bestimmten Minimal- und Maximalwerte sowie die Medianwerte des Gehaltes an radioaktiven Stoffen im Trinkwasser und Grundwasser in der Bundesrepublik Deutschland exemplarisch für das Jahr 2013 zusammengestellt. Zum Vergleich sind auch die Messwerte des natürlichen Radionuklids ^{40}K in der Tabelle aufgeführt.

Nahezu alle Messwerte für ^{137}Cs im **Trinkwasser** (mehr als 99 %) liegen unterhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen, die im wesentlichen vom Volumen des zur Messung aufbereiteten Wassers abhängen. Als Nachweisgrenze im Trinkwasser werden im Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm nach AVV-IMIS) 50 mBq/l gefordert; die fünf für ^{137}Cs ermittelten Messwerte lagen im Jahr 2013 im Bereich von 3 bis 6 mBq/l weit unter den geforderten Nachweisgrenzen. Bei den Maximalwerten handelt es sich um Trinkwässer, die aus Oberflächenwässern (z.B. aus Talsperren) gewonnen wurden. ^{90}Sr, hauptsächlich aus dem Fallout der Kernwaffenversuche in den 1950er und 1960er Jahren stammend, konnte in etwa 50 % der Trinkwasserproben mit Konzentrationen oberhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen nachgewiesen werden, der Maximalwert lag im Jahr 2013 bei 13 mBq/l. Als Nachweisgrenze werden im Messprogramm für den Normalbetrieb für Trinkwasser und Grundwasser 0,01 Bq/l gefordert.

Die Messwerte für die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration sind auf Radionuklide zurückzuführen, die größtenteils natürlichen Ursprungs sind.

Die Maximalwerte der Tritium-Konzentration wurden in den Jahren 2011 bis 2013 mit 22, 20 und 17 Bq/l im Rahmen der Umgebungsüberwachung bei kerntechnischen Anlagen ermittelt. Diese Werte stammen aus Einzelwasserversorgungen in der Nähe eines Altrheinarms, der in der Fließrichtung von Grund- und Oberflächenwasser aus dem Bereich des Karlsruher Instituts für Technologie, Campus Nord (KIT) liegt. Selbst unter der Annahme, dass der gesamte Trinkwasserbedarf mit Wasser aus diesen Einzelwasserversorgungen gedeckt würde, ergäbe sich nur eine unwesentliche Erhöhung der Strahlenexposition für die betroffenen Personen gegenüber der natürlichen Strahlenexposition. Das Trinkwasser aus öffentlichen Wasserversorgungen in den Ortschaften in der Umgebung des KIT weist lediglich Tritiumkonzentrationen von <10 Bq/l auf.

Im **Grundwasser** liegen für ^{137}Cs im Jahr 2013 nur zwei Messwerte oberhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen. Die gemessenen Werte von 7 und 13 mBq/l wurden bei einem Beobachtungsbrunnen für oberflächennahes Grundwasser festgestellt.

Die Messwerte für die Gesamt-Alpha-Konzentration in der Tabelle wurden im Rahmen der Umgebungsüberwachung des KIT ermittelt.

Der Bereich der Tritium-Messwerte liegt im Jahr 2011 bei 1,6 bis 17 Bq/l (Median: <5,1 Bq/l), 2012: 1,3 bis 15 Bq/l (Median: <5,8 Bq/l) und 2013: 1,3 bis 20 Bq/l (Median: <5,7 Bq/l). Die höchsten Werte wurden an Probenentnahmestellen bei der Überwa-

chung des Kernkraftwerkes Phillipsburg und auf dem Gelände des Freilagers für radioaktive Abfälle (Kontrollbereich) des VKTA-Rossendorf festgestellt. Bei diesen Stichproben wurde im Jahr 2013 darüber hinaus ^{60}Co in Konzentrationen bis zu 62 mBq/l ermittelt, im Jahr 2011 bis zu 91 mBq/l, 2012 bis zu 25 mBq/l. Diese Messwerte sind auf eine Kontamination des Untergrundes auf dem Betriebsgelände des VKTA-Rossendorf infolge von Leckagen an (inzwischen nicht mehr betriebenen) Beton-Abklingbecken für kontaminierte Wässer zurückzuführen. Alle Proben außerhalb des Kernkraftwerkes Philippsburg und des Forschungsstandortes Dresden-Rossendorf weisen ^{3}H-Werte unterhalb der Nachweisgrenze von 10 Bq/l auf.

Die Strahlenexposition der Bevölkerung durch künstliche radioaktive Stoffe auf dem Weg über das Trinkwasser ist sehr niedrig gegenüber der Strahlenexposition, die durch natürliche Radionuklide verursacht wird. Legt man die Maximalwerte des Jahres 2013 für ^{137}Cs und ^{90}Sr zu Grunde, ergeben sich bei einem angenommenen jährlichen Trinkwasserverzehr von 700 Liter für den Erwachsenen nach StrlSchV Ingestionsdosen von 0,055 bzw. 0,25 µSv/a.

Tabelle 7.1
Überwachung von Trinkwasser und Grundwasser in Deutschland im Jahr 2013

	Anzahl		Aktivitätskonzentration in mBq/l		
Nuklid	**gesamt**	**< NWG**	**Minimalwert**	**Maximalwert**	**Median**
Trinkwasser (mBq/l)					
^{40}K	525	366	15	3400	150
^{137}Cs	529	524	3	6	<8
^{3}H	370	353	1200	17000	<4300
^{90}Sr	159	82	0,12	13	3,4
G-Alpha	12	0	33	69	50
Grundwasser (mBq/l)					
^{40}K	322	161	15	25000	<340
^{137}Cs	309	307	7	13	<15
^{3}H	492	461	1300	20000	<5700
^{90}Sr	67	43	0,46	120	4,1
G-Alpha	76	30	7	150	<40

8 RINGVERSUCHE TRINKWASSER

M. Beyermann, K. Schmidt, C. Wittwer

Bundesamt für Strahlenschutz
Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen

Eine zuverlässige Bestimmung natürlicher Radionuklide im Trinkwasser ist erforderlich, um die Anforderungen der deutschen Trinkwasserverordnung (TrinkwV 2001) [43] und der Europäischen Trinkwasserrichtlinie [44] in Bezug auf die radioaktivitätsbezogenen Parameter einzuhalten. Die TrinkwV wird derzeit überarbeitet, um die Vorgaben der Europäischen Trinkwasserrichtlinie [44] in nationales Recht zu überführen. Zur Umsetzung der Anforderungen in der Praxis wurde 2012 ein Leitfaden zur Untersuchung und Bewertung von Radioaktivität im Trinkwasser [45] veröffentlicht. Er gibt u. a. Empfehlungen zur Messstrategie, zum Einsatz geeigneter Analysenmethoden und zur Beurteilung der Messergebnisse.

Während in Deutschland umfangreiche Erfahrungen bei der Bestimmung von künstlichen Radionukliden in wässrigen Medien vorliegen, die im Rahmen der allgemeinen Umweltüberwachung nach StrVG [46] zu untersuchen sind, steht für trinkwasserrelevante Parameter zunächst die Entwicklung und Erprobung geeigneter Analysenmethoden zur Bestimmung natürlicher Radionuklide im Vordergrund. Dies gilt insbesondere für die Bestimmung des Summenparameters Gesamt-α-Aktivität, der für Übersichtsmessungen und damit als Entscheidungskriterium für die Notwendigkeit vertiefter Untersuchungen in der Trinkwasserrichtlinie der Europäischen Kommission [44] empfohlen wird. Zur Gesamt-α-Aktivität im Trinkwasser der Bundesrepublik Deutschland tragen nach den Ergebnissen in [47] hauptsächlich die Uranisotope ^{238}U und ^{234}U, außerdem ^{226}Ra und in wenigen Fällen ^{210}Po bei.

Im Hinblick auf die künftig erforderliche Untersuchung radioaktivitätsbezogener Parameter nach der TrinkwV [43] wurden 2012 und 2014 in Zusammenarbeit mit der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) Ringversuche zur Bestimmung von **^{222}Rn, ^{226}Ra, ^{228}Ra, ^{238}U, ^{234}U** und der **Gesamt-α-Aktivität** inTrinkwasser durchgeführt, wobei jeweils ein Modell- und ein reales Trinkwasser für die Untersuchungen zur Verfügung gestellt wurden.

Ziel dieser Ringversuche war es, die amtlichen Radioaktivitätsmessstellen der Länder bei der Entwicklung, Überprüfung und Bewertung ihrer analytischen Verfahren zu unterstützen und Laboratorien und Institutionen, die bereits mit der Analyse natürlicher Radionuklide in Trink- und Mineralwasser befasst sind, die Möglichkeit einer externen Qualitätskontrolle zu geben. Außerdem sollte auf diesem Weg ein breiter Erfahrungsaustausch über die Eignung verschiedener Bestimmungsmethoden angeregt und unterstützt werden.

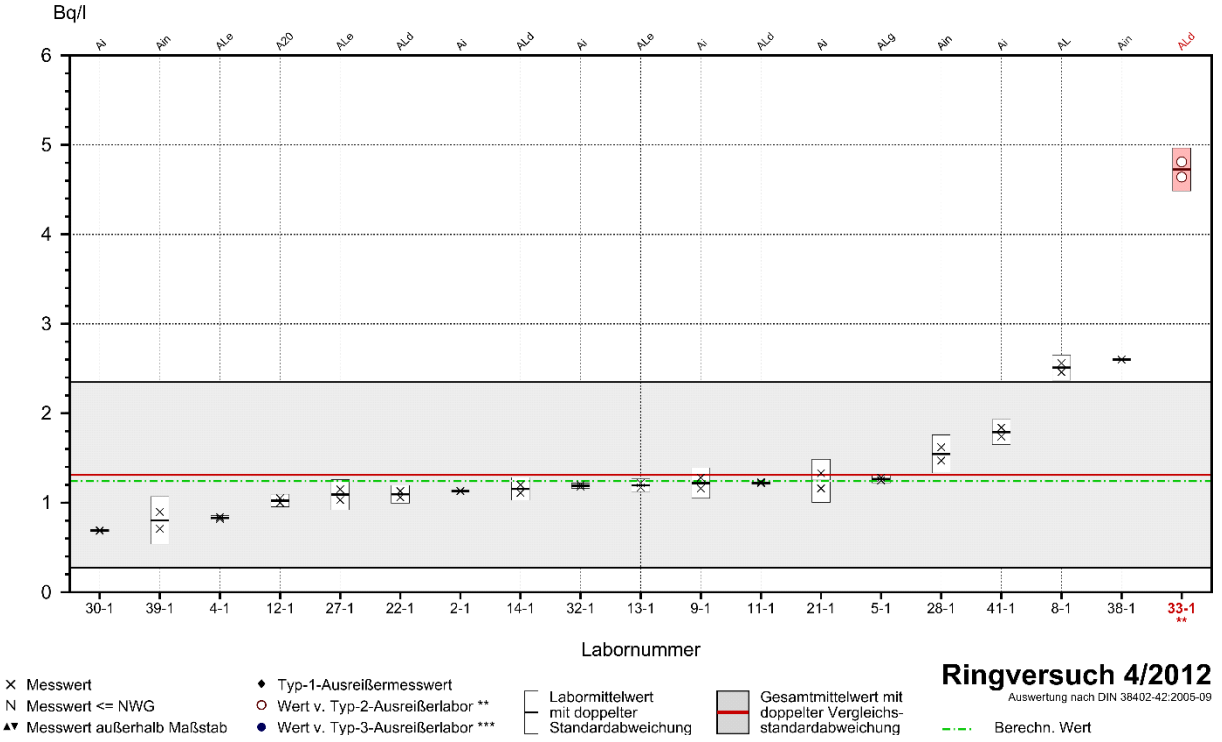
An den Ringversuchen 2012 bzw. 2014 waren 42 bzw. 50 Laboratorien beteiligt. Im Jahr 2014 waren darunter 23 amtliche Messstellen der Länder, 5 Laboratorien von Leitstellen des Bundes, 13 Laboratorien von Firmen, Universitäten und sonstigen Privatinstitutionen, 3 Laboratorien in Großforschungseinrichtungen und 6 Einrichtungen im Ausland.

Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Die Ergebnisse der Ringversuche sind in den Abschlussberichten [48, 49] detailliert dargestellt. Die statistische Auswertung erfolgte nach DIN 38402-42: 2005-09 [50], wobei eine Normalverteilung der Messwerte vorausgesetzt wird. Die Abbildungen 8.1 und 8.2 veranschaulichen beispielhaft die Ergebnisse der statistischen Auswertung für den Summenparameter Gesamt-α-Aktivität (Modellwasser). In dieser Darstellung sind die Laboratorien in der Abszisse nach zunehmenden Messwerten geordnet.

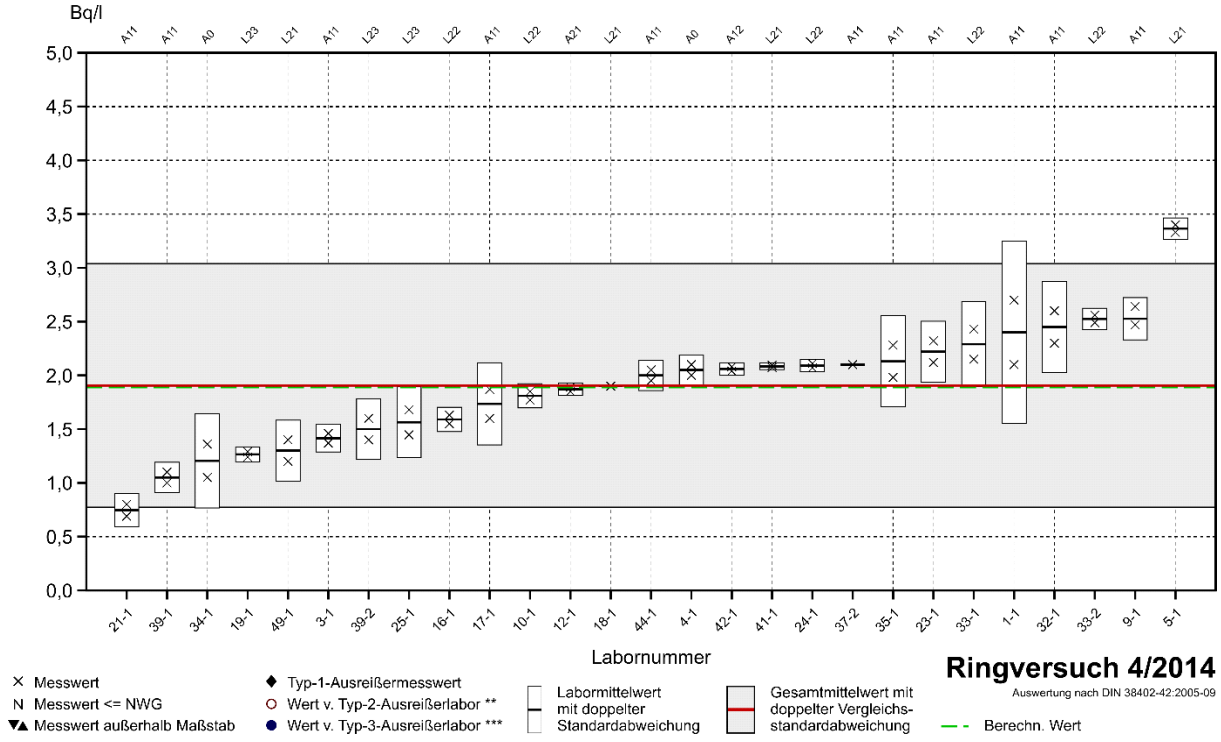
Neben dem Laborcode, dem eingesetzten Analysenverfahren (Code gemäß Methodenkatalog der Leitstelle), den Einzelmesswerten und den Labormittelwerten sind die Gesamtmittelwerte der Aktivitätskonzentrationen $\bar{x}$ (ausreißerfrei), die als Erwartungswerte berechneten Gesamt-α-Aktivitätskonzentrationen und die Streubereiche der Einzelwerte mit einer statistischen Sicherheit von 95 % (= doppelte Vergleichsstandardabweichung) ausgewiesen. Die als Ausreißer identifizierten Messwerte werden in den graphischen Darstellungen durch „**“ (Ausreißer Typ 2) oder „***“ (Ausreißer Typ 3) gekennzeichnet.

Die Qualitätsbewertung der Messwerte der Laboratorien erfolgte auf der Grundlage normierter Abweichungen des jeweiligen Labormittelwertes von einem konventionell richtigen Wert (**Modellwasser**: Sollwert oder ausreißerfreier Gesamtmittelwert; **Realwasser:** ausreißerfreier Gesamtmittelwert) nach den Internationalen Standards ISO/IEC Guide 43-1 [51] und ISO/IEC 17043 [52] sowie ISO 13528 [53].



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 8.1
Gesamt-α-Aktivität im Modellwasser, Kenndaten der statistischen Auswertung 2012



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 8.2
Gesamt-α-Aktivität im Modellwasser, Kenndaten der statistischen Auswertung 2014

Dabei wird eine Berechnung verwendet, in die ein vom Schwierigkeitsgrad der angewandten Bestimmungsmethode abhängiger Faktor s (0,1, 0,2 oder 0,3) eingeht:

$$z = (c_L - c_S) / s$$

mit

c_L Labormittelwert des Labors L;

c_S konventionell richtiger Wert;

s maximal zulässige Abweichung.

Grundsätzlich gilt: $s = 0{,}1 \cdot c_S$.

Abweichend davon wurde für Messmethoden mit radiochemischen Trennoperationen und/oder aufwändiger Präparation der Messproben festgelegt: $s = 0{,}2 \cdot c_S$.

Bei Summenparametern, die für Übersichtsmessungen eingesetzt werden, sind die Kalibrierung der Messgeräte, eine Berücksichtigung möglicher Störeinflüsse und die Interpretation der Messergebnisse auf Grund unterschiedlicher Radionuklidzusammensetzungen und wechselnder Aktivitätsverhältnisse deutlich schwieriger als bei der Ermittlung von Einzelnukliden. Eine Bestimmung der chemischen Ausbeute bei der Abtrennung von der Probenmatrix ist nicht möglich. In diesen Fällen (hier Bestimmung der Gesamt-α-Aktivität) wird von der Leitstelle die zulässige Abweichung wie folgt festgelegt: $s = 0{,}3 \cdot c_S$.

Die Faktoren 0,1 bis 0,3 basieren auf den Auswertungen der vergangenen Ringversuche und orientieren sich u. a. an der beobachteten Leistungsfähigkeit der von den Teilnehmern eingesetzten Verfahren. Eine Berücksichtigung des in der jeweiligen Probe vorliegenden Aktivitätsniveaus ist dabei nicht möglich. Einerseits sind die Nachweisgrenzen der unterschiedlichen, laborspezifischen Verfahren nicht bekannt und andererseits kann für die Untersuchungen nur ein begrenztes Probenvolumen zur Verfügung gestellt werden.

Die Beurteilung der Messwerte erfolgt nach folgender Regel:

| z-Wert | ≤ 2 akzeptables Ergebnis A;

2 < | z-Wert | ≤ 3 fragwürdiges Ergebnis N (W);

3 < | z-Wert | nicht akzeptables Ergebnis N.

In den Tabellen 8.1 und 8.2 werden die Ergebnisse der statistischen Auswertung und der Leistungsbewertung über den z-Wert zusammenfassend dargestellt, wobei die in Spalte 2 angegebene Anzahl der Labore nicht mit der Anzahl der Teilnehmer übereinstimmt. In zahlreichen Fällen (z. B. bei mehr als zwei Ergebnissen für eine Bestimmungsgröße, bei Anwendung verschiedener Analysenmethoden) wurden für einen Teilnehmer mehrere Labornummern vergeben, die Anzahl der in den Auswertungen dokumentierten Laboratorien ist dann höher als die tatsächliche Teilnehmerzahl.

Beim **Ringversuch 2012** lagen Ergebnisse der Gesamt-α-Bestimmung von 19 Laboren für Probe 1 (Modellwasser) bzw. von 22 Laboren für Probe 2 (Realwasser) vor, wobei ein bzw. zwei Ausreißerlabore vom Typ 2 identifiziert wurden. Der Gesamtmittelwert $\bar{x}$ mit 1,31 Bq/l für Probe 1 (Modellwasser) weicht nur um +6 % von dem als Summe der Einzelnuklide berechneten Wert (1,24 Bq/l) ab; dennoch ergab sich ein großer relativer Streubereich von 80 %.

Die Gesamt-α-Aktivität wurde vorwiegend durch direkte Messung einer auf einem Schälchen eingedampften Teilprobe bestimmt. Neben dieser aus dem Bereich der Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen übernommenen Methode wurden auch Verfahren eingesetzt, bei denen die Aktivität nach Aufarbeitung der Proben mit Hilfe von Flüssigszintillationsmessungen (LSC) ermittelt wird. Bei der Bestimmung der Gesamt-α-Aktivität natürlicher Radionuklide ist im Unterschied zur Bestimmung künstlicher Radionuklide eine Begrenzung der Messzeit der Proben von Bedeutung. Lange Messzeiten sind ebenso ungünstig wie unnötige Wartezeiten zwischen Probenpräparation und Messbeginn. Bei der Probenpräparation sollte das im Wasser gelöste ^{222}Rn zunächst vollständig ausgetrieben werden. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 3,8 Tagen wird es jedoch sehr schnell aus vorhandenem ^{226}Ra nachgebildet. Da die Folgenuklide des ^{222}Rn mit Halbwertszeiten im Minuten- bzw. Sekundenbereich ebenfalls zur Impulsrate beitragen, ergibt sich somit bei langen Messzeiten eine Überbewertung der Gesamt-α-Aktivität in Abhängigkeit von ihrem Anteil an ^{226}Ra.

Im Ringversuch 2012 ergab sich nach einer Auswertung der Messwerte anhand des z-Wertes der höchste Anteil nicht akzeptabler Ergebnisse mit einem Wert von 27 % für die Bestimmung der ^{228}Ra-Aktivitätskonzentration im Modellwasser. Für die Messwerte der Gesamt-α-Aktivitätskonzentration betrugen die Anteile beim Modellwasser 16 % und beim Realwasser 18 %. Beim ^{226}Ra im Realwasser waren 20 % der übermittelten Ergebnisse „nicht akzeptabel“.

Tabelle 8.1
Zusammenfassende Darstellung der Ringversuchsergebnisse 2012

Parameter	Anzahl Labore[1)]	% Ausreißer	Anzahl Ausreißer		Anzahl z-Werte[2)]		
			Typ 2	Typ 3	*z* = A	*z* = W	*z* = N
Probe 1 - Modellwasser							
Gesamt-α	19	5,3	1	0	16	0	3
^{226}Ra	26	19,2	4	1	23	1	2
^{228}Ra	21	19,0	3	1	16	1	5
^{234}U	35	2,9	0	1	35	0	0
^{238}U	40	0,0	0	0	39	1	0
^{210}Pb	17	11,8	2	0	–	–	–
^{210}Po	16	12,5	1	1	–	–	–
Probe 2 - Reales Trinkwasser							
Gesamt-α	22	9,1	2	0	18	2	2
^{222}Rn	53	1,9	0	1	53	0	0
^{226}Ra	24	16,7	4	0	20	1	4
^{228}Ra	14	14,3	1	1	–	–	–
^{234}U	35	8,6	3	0	33	0	2
^{238}U	40	20,0	8	0	34	3	3

Tabelle 8.2
Zusammenfassende Darstellung der Ringversuchsergebnisse 2014

Parameter	Anzahl Labore[1)]	% Ausreißer	Anzahl Ausreißer		Anzahl z-Werte[2)]		
			Typ 2	Typ 3	*z* = A	*z* = W	*z* = N
Probe 1 - Modellwasser							
Gesamt-α	27	0,0	0	0	25	2	0
^{226}Ra	39	10,3	4	0	35	2	2
^{228}Ra	25	4,0	0	1	24	2	0
^{234}U	39	12,8	3	2	38	0	1
^{238}U	44	11,4	4	1	42	1	1
^{210}Pb	16	6,3	1	0	15	1	1
^{210}Po	16	0,0	0	0	–	–	–
Probe 2 - Reales Trinkwasser							
Gesamt-α	23	4,3	1	0	–	–	–
^{222}Rn	67	6,0	2	2	54	3	10

1) Messwerte unterhalb von Nachweisgrenzen blieben in der statistischen Auswertung unberücksichtigt.
2) Bei der Qualitätsbeurteilung wurden Messwerte unterhalb von Nachweisgrenzen berücksichtigt.

In Anbetracht der nach [45] empfohlenen Messstrategie und der vergleichsweise hohen Anzahl von „nicht akzeptablen“ Analysenergebnissen war die Bestimmung der Gesamt-α-, der ^{226}Ra- und der ^{228}Ra-Aktivitätskonzentration auch für die nächsten Ringversuche vorzusehen.

Beim **Ringversuch 2014** lagen Ergebnisse der Gesamt-α-Bestimmung von 25 Teilnehmern für die Modellwasserprobe und von 26 Teilnehmern für die Realwasserprobe vor. Zur Ermittlung der Bestimmungsgröße wurden integrale Alphaaktivitätsmessungen, alphaspektrometrische Methoden und LSC-Messungen eingesetzt. Im Vergleich zu 2012 hat sich die Anzahl der Labore, die diesen Summenparameter auch für natürliche Radionuklide ermitteln, deutlich erhöht. Im Abschlussbericht wurde allerdings darauf hingewiesen, dass die in der EU-Trinkwasserrichtlinie [44] bzw. im Leitfaden [45] genannten Anforderungen an die Bestimmungsmethode sehr niedrige Nachweisgrenzen von 0,04 Bq/l bzw.0,025 Bq/l beinhalten.

Der Gesamtmittelwert $\bar{x}$ mit 1,91 Bq/l für das Modellwasser ist nahezu identisch mit dem als Summe der Einzelnuklide berechneten Wert der Gesamt-α-Aktivität (1,89 Bq/l). Sämtliche Ergebnisse konnten bei der statistischen Auswertung berücksichtigt werden, mit zwei Ausnahmen wurden auch im Leistungstest alle Messwerte als „akzeptabel“ bewertet. Die nicht akzeptierten Messwerte wurden in einem Fall mittels LSC-Messung im anderen durch integrale Aktivitätsmessung mit Proportionalzählrohren ermittelt. Der resultierende relative Streubereich der Messwerte von etwa 60 % fällt ebenfalls deutlich geringer aus als beim Ringversuch 2012.

Schlussfolgerungen

Mit der Einschätzung „akzeptables Ergebnis“ für etwa 90 % sämtlicher im Leistungstest beurteilter Messwerte ergibt sich für die beschriebenen Ringversuche als Maßnahme der externen Qualitätskontrolle insgesamt eine positive Bilanz.

Im Vergleich zu den Ergebnissen des Ringversuches 2012 ist für 2014 die höhere Qualität der Messergebnisse für die Parameter ^{228}Ra und Gesamt-α-Aktivität hervorzuheben. Dies betrifft bei beiden Bestimmungsgrößen hauptsächlich den geringeren Anteil an Ausreißerlaboren, beim Summenparameter außerdem den geringeren relativen Streubereich der 2014 für das Modellwasser übermittelten Messwerte. Verallgemeinernde Aussagen zur Verfügbarkeit und routinesicheren Anwendung entsprechender Messmethoden sind daraus aber nicht abzuleiten.

Ebenso reichen die bisherigen Erkenntnisse für Verallgemeinerungen bzw. abschließende Bewertungen der beiden am häufigsten eingesetzten Verfahren zur Ermittlung der Gesamt-α-Aktivitätskonzentration nicht aus, sie zeigen jedoch, dass insbesondere bei hohem Anteil an ^{226}Ra und der Anwendung integraler Messverfahren mit Proportionalzählern in Verbindung mit langen Messzeiten eine, zum Teil erhebliche, Überschätzung der Aktivität auftreten kann.

Die steigende Zahl der Teilnehmer an den Trinkwasserringversuchen kann als Indiz für eine zunehmende Bedeutung derartiger Messaufgaben betrachtet werden. Allerdings ist auch 2014 die Anzahl der Labore, die Messergebnisse für die Parameter Gesamt-α-Aktivität, ^{228}Ra, ^{210}Pb und ^{210}Po übermittelt haben, mit ca. 25 bzw. 16 deutlich geringer als die Zahl der Labore (n = 40), die Bestimmungen der Uranisotope durchführten. Uran ist jedoch in der Trinkwasseranalytik vorrangig als toxisches Schwermetall zu berücksichtigen, Analysen werden nicht mit Hilfe von Aktivitätsmessungen sondern hauptsächlich unter Anwendung instrumenteller Verfahren (z. B. ICP-MS, ICP-OES) durchgeführt. Die Qualitätsüberwachung der Messergebnisse erfolgt hier im Rahmen der trinkwasserrelevanten chemischen und physikalischen Bestimmungsgrößen.

9 RADIOAKTIVE STOFFE IN NORD- UND OSTSEE

J. Herrmann, S. Schmied

Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie
Leitstelle für Meerwasser, Meeresschwebstoff und -sediment

In diesem Kapitel wird der aktuelle Zustand von Nord- und Ostsee hinsichtlich der Kontamination durch künstliche Radionuklide beschrieben. Grundlage der Bewertung sind jährlich zwei Überwachungsfahrten mit eigenen und gecharterten Forschungsschiffen durch das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie sowie zahlreiche Wasserproben, die regelmäßig auch von anderen Schiffen des Bundes an festgelegten Positionen entnommen werden. Damit ist sowohl eine Beschreibung der räumlichen Verteilung als auch des zeitlichen Trends der Kontamination möglich.

In Nord- und Ostsee können künstliche Radionuklide aus folgenden Quellen nachgewiesen werden:

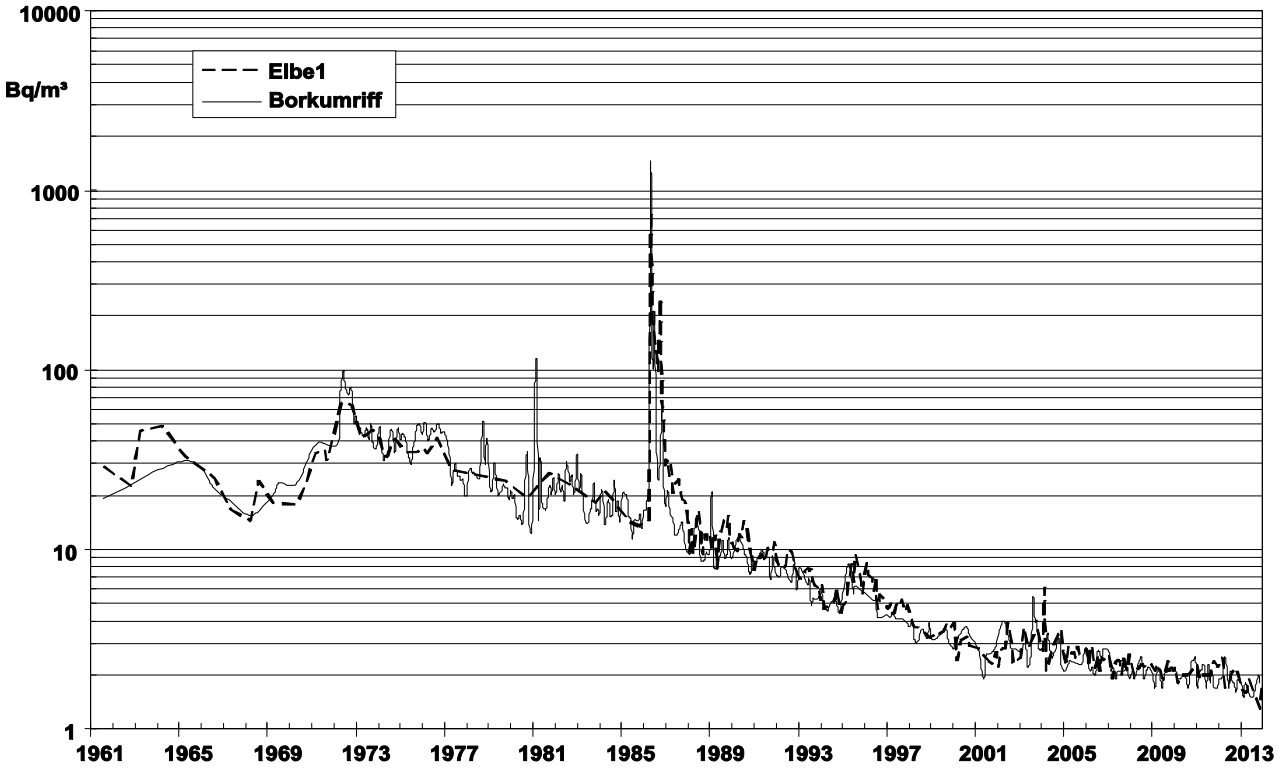
- globaler Fallout aus den atmosphärischen Kernwaffentests der 50er und 60er Jahre,
- Ableitungen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (UK) und La Hague (F),
- Fallout aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl 1986 und
- Ableitungen aus kerntechnischen Einrichtungen wie Atomkraftwerken und Forschungsreaktoren.

Seit Beginn der siebziger Jahre bestimmten die kontrollierten und genehmigten Einleitungen radioaktiver Abwässer aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen für Kernbrennstoffe La Hague (Frankreich) in den Englischen Kanal und Sellafield (Großbritannien) in die Irische See die Aktivitätskonzentration künstlicher Radionuklide in der Nordsee. Diese Kontaminationen werden von Meeresströmungen in andere Meeresgebiete verfrachtet und konnten dort auch über Entfernungen von mehreren tausend Kilometern nachgewiesen werden. Entsprechend der langen Transportzeiten sind nur langlebige Radionuklide mit Halbwertszeiten größer als ein Jahr von Interesse. Die künstliche Radioaktivität in der Ostsee wurde bis zum Unfall im Atomkraftwerk Tschernobyl im Wesentlichen durch den Fallout der atmosphärischen Kernwaffentests der sechziger Jahre sowie den Einstrom kontaminierten Nordseewassers aus dem Skagerrak und Kattegat durch die Beltsee bestimmt.

Einleitungen aus Atomkraftwerken oder anderen kerntechnischen Einrichtungen spielen für das Aktivitätsinventar des Meeres kaum eine Rolle. Sie sind nur in unmittelbarer Umgebung dieser Anlagen nachzuweisen. Dies gilt auch für die bis 1982 durchgeführte Versenkung schwach-radioaktiver Abfälle in mehr als 4000 m Tiefe im Nordostatlantik. Auch die früheren Versenkungen radioaktiver Abfälle durch die ehemalige UdSSR in der Barents- und Karasee sowie das 1989 gesunkene russische Atom-U-Boot „*Komsomolets*“ in etwa 1700 m Tiefe in der Norwegensee führen zu keiner erhöhten Belastung dieser Meeresgebiete oder gar der Nordsee.

Die Einleitungen aus den Wiederaufbereitungsanlagen La Hague und Sellafield lagen in den 70er Jahren um mehrere Größenordnungen höher als in den letzten Jahren. Erhebliche Anstrengungen der Betreiber auf internationalen Druck hin führten dazu, dass die Einleitungen beider Wiederaufbereitungsanlagen für fast alle Radionuklide extrem stark reduziert wurden. Dies führt auch im Wasser der Nordsee zu deutlich geringeren Konzentrationen der meisten künstlichen Radionuklide. So nahm bis Ende der neunziger Jahre die Aktivitätskonzentration an ^{137}Cs in der mittleren Nordsee mit einer durch den Transport bedingten Zeitverzögerung von zwei bis drei Jahren kontinuierlich ab und hat heutzutage nahezu die Hintergrundkonzentration des globalen Fallouts im Wasser des Nordatlantiks erreicht.

Durch den im langjährigen Mittel sehr geringen Wasseraustausch der Ostsee mit der Nordsee durch die dänischen Meerengen ist die durch den Tschernobyl-Unfall eingetragene Aktivität im Wasser der Ostsee über einen längeren Zeitraum verblieben. Die Menge des Zuflusses an salzreichem und aktivitätsarmem Nordseewasser durch die Bodenschicht des Kattegat ist dabei von Jahr zu Jahr hochvariabel, abhängig von meteorologischen Ereignissen und den Ein- und Ausstromereignissen durch die Beltsee. Der zeitliche Verlauf schwankt weniger stark im Bereich der Arkonasee, wo der Ein- und Austrom nicht so deutlich zum Ausdruck kommt. Kompensiert wird der Zufluss an Nordseewasser durch einen stetigen Ausfluss an Oberflächenwasser aus der Ostsee in den Skagerrak. Die Ostsee stellt dadurch seit einigen Jahren die stärkste Quelle für ^{137}Cs im Nordatlantik dar. Die Zeit für einen vollständigen Wasseraustausch der Ostsee wird mit 20 bis 30 Jahren angenommen. Inzwischen nimmt jedoch auch hier die ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration deutlich ab. Die effekti-



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.1

Zeitlicher Verlauf der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration (Bq/m^3) an den Positionen der ehemaligen Feuerschiffe „Borkumriff“ und „Elbe 1“ in der Deutschen Bucht

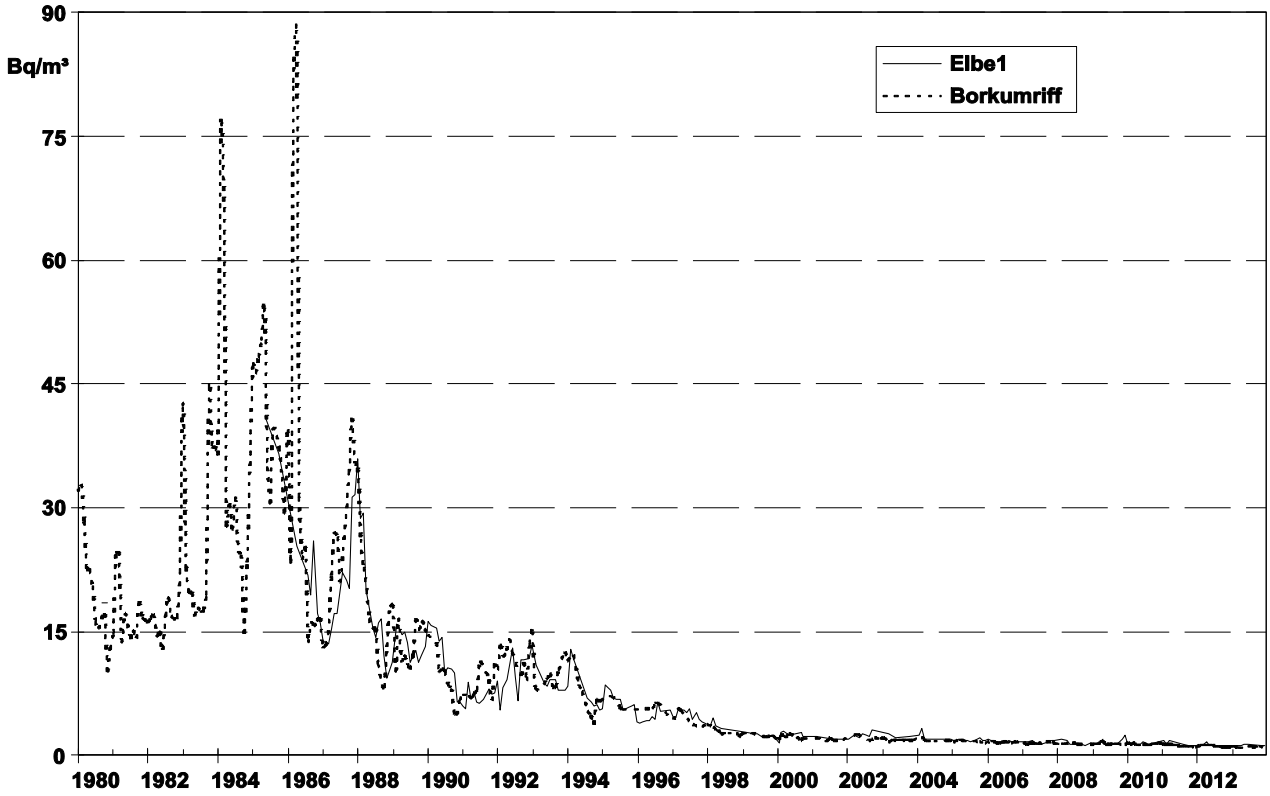
ve Halbwertszeit im Oberflächenwasser der Ostsee wird auf 9 bis 11 Jahre berechnet [18].

Meerwasser in der Nordsee

Die Probenahme zur Überwachung der Deutschen Bucht bzw. Nordsee erfolgte im Zeitraum 2011 bis 2013 auf jährlichen Fahrten im August, die den gesamten Seeraum zwischen dem Englischen Kanal und den Shetlandinseln abdecken. Zusätzlich werden an den Positionen der früheren Feuerschiffe Borkumriff und Elbe 1 in der Deutschen Bucht möglichst monatlich Proben entnommen.

Die Zeitreihen in den Abbildungen 9.1 und 9.2 der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs und ^{90}Sr an den beiden Stationen seit 1961 bzw. 1980 lassen seit einigen Jahren nur noch sehr niedrige Werte erkennen. Der Grund dafür ist, dass aus den Wiederaufbereitungsanlagen Sellafield und La Hague nur noch extrem niedrige Ableitungen dieser beiden Radionuklide zu verzeichnen sind. Zeitverzögert infolge des Reststroms innerhalb der europäischen Schelfmeere liegen die Konzentrationen nur noch wenig über den Kontaminationswerten des Oberflächenwassers des Atlantiks. Dieses ist im Wesentlichen durch die Reste des Fallouts der oberirdischen Kernwaffentests der sechziger Jahre gekennzeichnet. Ein Eintrag von ^{137}Cs aus der Elbe ist nicht zu erkennen. Der Fallout von Tschernobyl mit seinem charakteristischen Verhältnis der Radionuklide ^{134}Cs zu ^{137}Cs war in der deutschen Bucht zwei bis drei Jahre nach dem Unfall nicht mehr zu messen. ^{134}Cs ist im Wasser der Nordsee ebenfalls nicht mehr nachweisbar (NWG ca. 0,2 Bq/m^3). Das Gleiche gilt für den minimalen Eintrag aus dem Fukushimaunfall, derart geringe Kontaminationen sind im Meerwasser in der Nordsee nicht nachweisbar.

Die Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs in der Deutschen Bucht lag im Berichtszeitraum zwischen 1,3 Bq/m^3 an der Elbemündung bis 3,0 Bq/m^3 in der äußeren Deutschen Bucht. Im Vergleich mit früheren Jahren sind die Konzentrationen von ^{137}Cs sehr niedrig. Eine eindeutige Zuordnung zu einer Quelle ist bei diesen geringen Werten kaum noch möglich. Dagegen ist die Aktivitätskonzentration von 10,6 Bq/m^3, die am Ausgang des Skagerrak im Jahr 2011 nachzuweisen war, eindeutig dem Ausfluss aus der Ostsee zuzuordnen. Wie die Vergleichsproben aus der Elbe bei Stade (0,4 bis 0,6 Bq/m^3) zeigen, ist der Beitrag aus dem Elbwasserabfluss vernachlässigbar. Die geringe Höhe der Einträge aus der Elbe ist darauf zurückzuführen, dass ^{137}Cs im Vergleich zu ^{90}Sr an den Tonmineralen der Böden stärker adsor-



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.2

Zeitlicher Verlauf der ^{90}Sr-Aktivitätskonzentration (Bq/m^3) an den Positionen der ehemaligen Feuerschiffe „Borkumriff“ und „Elbe 1“ in der Deutschen Bucht

biert wird und deshalb über die Flüsse weniger eingetragen wird als das aus dem Kernwaffenfallout stammende ^{90}Sr.

Die Aktivitätskonzentration von ^{90}Sr an der Wasseroberfläche der Deutschen Bucht beträgt in den Jahren 2011 bis 2013 zwischen 1,1 und 1,4 Bq/m^3 und unterscheidet sich praktisch nicht mehr vom Hintergrund aus dem Oberflächenwasser des Atlantiks (ca. 1,2 Bq/m³). Auch hier lässt sich an der südlichen norwegischen Küste ein Einfluß des Ostseeausstromes nachweisen (bis zu 3,1 Bq/m^3).

Für $^{(239+240)}$Pu ergeben sich, ähnlich wie in vergangenen Jahren, sehr geringe Aktivitätskonzentrationen im Meerwasser der Nordsee von 3 bis 30 mBq/m^3. Die gefundenen ^{238}Pu/ $^{(239+240)}$Pu-Aktivitätsverhältnisse (zwischen 0,15 und 0,20) zeigen für das Gebiet der gesamten Nordsee vom Englischen Kanal bis auf die Höhe der Shetlandinseln, dass die dominierende Quelle nicht der Kernwaffenfallout ist, sondern die Einleitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen.

Die Aktivitätskonzentration von Tritium (^{3}H) zeigt für das gesamte Gebiet der Nordsee sehr geringe Werte zwischen 0,1 und 1,0 Bq/l, mit Ausnahme des Küstenstromes entlang der europäischen Kontinentalküste. Dieser Wasserkörper ist nach wie vor von recht hohen Tritiumeinleitungen der WAA La Hague markiert, es finden sich Messwerte bis zu 4,9 Bq/l.

Meerwasser in der Ostsee

Die Ostsee erfuhr aus dem Unfall von Tschernobyl einen hohen Eintrag von Fallout. Der Schwerpunkt des Eintrages lag in der südlichen Bottensee, dem Finnischen Meerbusen und – in geringerem Maße – in der Lübecker Bucht. Auf Grund des nur geringen Wasseraustausches mit dem Weltozean dauert es Jahrzehnte, bis Schadstoffe aus der Ostsee entfernt werden. Dies ist seit über 20 Jahren auch mit dem ^{137}Cs aus Tschernobyl zu beobachten. Die Ostsee ist das größte Brackwassermeer der Welt. Insgesamt besteht ein Süßwasserüberschuss, der mit dem salzarmen Oberflächenwasser über die Beltsee in die Nordsee ausgetragen wird. In der salzreichen und dichteren Tiefenschicht findet der Einstrom salzreichen Ozeanwassers statt. Dieses Wechselspiel spiegelt sich auch in den Konzentrationen des Radionuklids ^{137}Cs wider. Im Oberflächenwasser befinden sich die höheren Konzentrationen aus dem Tschernobylfallout, im Tiefenwasser finden wir meist etwas niedrigere Konzentrationen bei höherem Salzgehalt. Besonders deutlich ist dies im Bereich des großen

Belts zu sehen. Aktuelle Berechnungen zeigen, dass das Niveau der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration vor Tschernobyl von 15 Bq/m^3 voraussichtlich zwischen 2020 und 2030 wieder erreicht werden wird.

Abbildung 9.3 stellt den zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs und ^{90}Sr im Oberflächenwasser an der Position Schleimündung in der Ostsee dar. Deutlich zu erkennen sind die höheren Konzentrationen beider Nuklide in den sechziger Jahren und des ^{137}Cs seit dem Tschernobyl-Unfall. Die jahreszeitlichen Schwankungen der ^{137}Cs-Konzentrationen sind durch den jahreszeitlich schwankenden Ein- und Ausstrom des Ostseewassers bestimmt.

Die Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs an der Wasseroberfläche in der westlichen Ostsee lag in den Jahren 2011 bis 2013 etwa zwischen 20 Bq/m^3 im westlichen und 34 Bq/m^3 im östlichen Teil des überwachten Gebietes. Die Konzentrationen nehmen nach Osten nach wie vor leicht zu – in Richtung des Schwerpunktes des Tschernobyl-Fallout. Obwohl die Kontamination der westlichen Ostsee sich gegenüber den Vorjahren verringert hat, liegt sie immer noch mindestens um den Faktor 10 über derjenigen der Deutschen Bucht. Während die Wassersäule der Ostsee im überwiegenden Teil bis hinunter zum Meeresboden eine große Homogenität der Kontamination zeigt, lässt sich im Bodenwasser der Beltsee der Einstrom des Nordseewassers durch den deutlich geringeren Gehalt von ^{137}Cs nachweisen. Hier wurde im Berichtszeitraum mehrfach das sogenannte „ökologische Qualitätsziel für die Ostsee“ (15 Bq/m^3) unterschritten, zum ersten Mal seit dem Tschernobylunfall. Bis dieses Ziel für die gesamte Ostsee erreicht wird, werden noch ungefähr 15 Jahre vergehen.

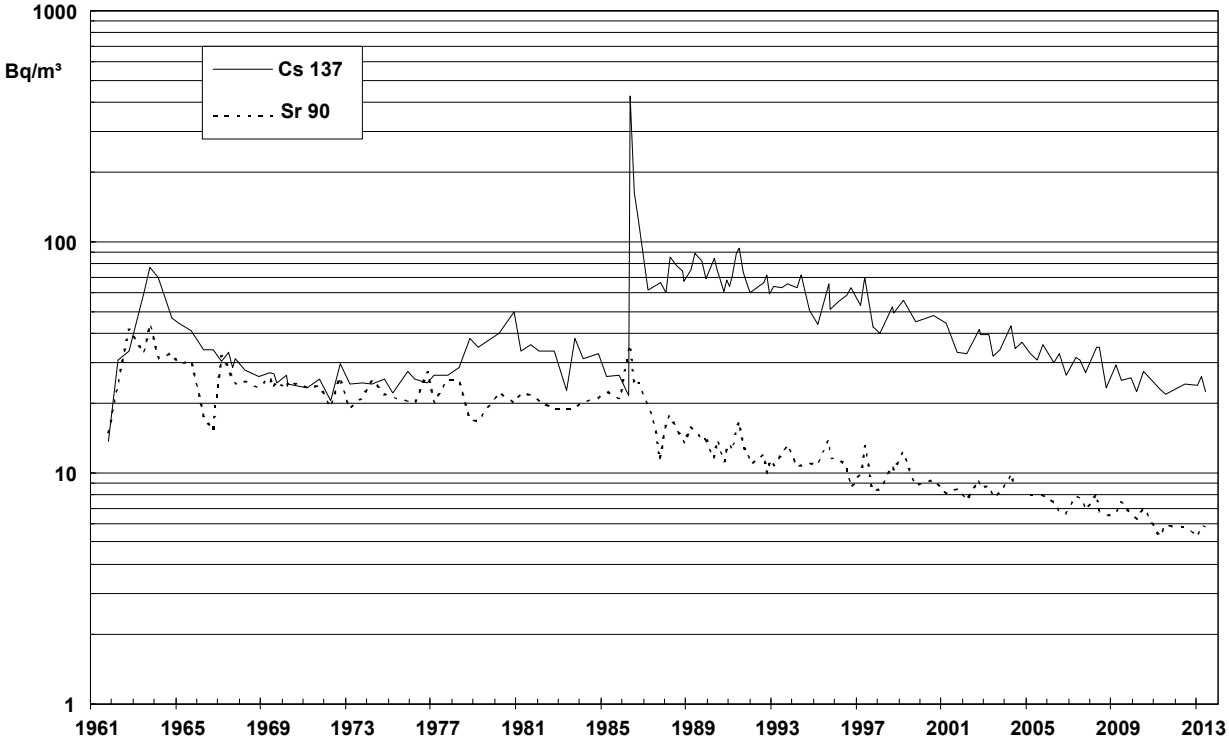
Die Konzentrationen von ^{90}Sr in der westlichen Ostsee lagen im Berichtszeitraum zwischen 5 und 8 Bq/m^3 und damit bis um den Faktor 5 höher als in der Deutschen Bucht. Die Quelle des ^{90}Sr ist nahezu ausschließlich der globale Fallout aus den sechziger Jahren. Die Kombination aus hoher Mobilität des ^{90}Sr mit dem sehr umfangreichen Einzugsgebiet der Ostsee und dem damit verbundenen hohen Süßwasserzufluss führen schon lange zu einem vergleichsweise höheren Gehalt an Radiostrontium.

Sedimente in der Nord- und Ostsee

Die Sedimente der Nordsee sind zum überwiegenden Teil stark sandig, nur lokal finden sich Schlickablagerungen, die nennenswerte Konzentrationen von Radionukliden beeinhalten. Die speziifischen Aktivitäten von ^{137}Cs in den Sedimenten der Deutschen Bucht lagen bei maximal 4 Bq/kg Trockenmasse (TM).

Das ^{137}Cs aus dem Tschernobyl-Unfall wurde in den Sedimenten der westlichen und zentralen Ostsee regional sehr unterschiedlich deponiert. Die höchste Konzentration findet sich vielfach nicht mehr an der Sedimentoberfläche, sondern je nach Ort in Tiefen von 2 bis 8 cm. Hier finden sich spezifische Aktivitäten von bis 125 Bq/kg TM.

Das Inventar an ^{137}Cs betrug in den Jahren 2011 bis 2013 wie in den Vorjahren zwischen 1 und 6 kBq/m^2, wobei die höchsten Werten in den wasseraustauscharmen Buchten zu finden sind. Die Inventare hängen stark von der Körnigkeit und damit den Oberflächeneigenschaften der Sedimente ab und nicht direkt von den umgebenden Wasserkonzentrationen. Dabei sind die in diesem Teil der Ostsee gefundenen Inventare wesentlich geringer als z. B. im Finnischen oder Bottnischen Meerbusen (>100 kBq/m^2).



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.3

Zeitliche Verlauf der ^{137}Cs und ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen (Bq/m^3) an der Position „Schleimündung“ (54°40‘N, 010°05‘O) seit 1961

10 RADIOAKTIVE STOFFE IN FISCHEN

M.-O. Aust, P. Nogueira, G. Kanisch

Johann Heinrich von Thünen-Institut, Institut für Fischereiökologie
Leitstelle für Fisch und Fischereierzeugnisse, Krustentiere, Schalentiere, Meereswasserpflanzen

Fische, Fischereiprodukte, Krusten- und Schalentiere aus Deutschen Binnengewässern werden durch die amtlichen Messstellen der Bundesländer auf radioaktive Stoffe überwacht und die Messwerte in das Integrierte Mess- und Informationssystem des Bundes (IMIS) übertragen. Das Thünen-Institut für Fischereiökologie als zuständige Leitstelle des Bundes nimmt sowohl die Plausibilisierung als auch die Listung und Bewertung dieser Messwerte vor. Zusätzlich ist das Thünen-Institut für Fischereiökologie mit der Überwachung der Radionuklidkonzentrationen in Fisch auf der hohen See betraut. Die Probenahme in Nord- und Ostsee erfolgt durch jährlich durchgeführte Fischereiforschungsausfahrten im Rahmen der allgemeinen Meeresumweltüberwachung. Zusätzliche Messungen von Proben zum Teil auch aus anderen Meeresgebieten (z.B. Grönlandsee, Barentssee) erfolgen in enger Zusammenarbeit mit den Thünen-Instituten für Seefischerei und Ostseefischerei sowie dem Max-Rubner-Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch.

Binnenseen

Die Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs in Fischen aus Binnenseen ist seit 1986, als die Messwerte in Süddeutschland (Baden-Württemberg und Bayern) 200 Bq/kg Feuchtmasse (FM) überstiegen, im Jahr 2012 auf 2,3 Bq/kg FM zurückgegangen (siehe Abbildung 10.1a). Im selben Zeitraum verringerte sich die Aktivitätskonzentration des ^{137}Cs in Binnenseen Norddeutschlands (Schleswig-Holstein, Hamburg, Niedersachsen, Bremen, ab 1991 auch Brandenburg und Mecklenburg-Vorpommern) von 90 Bq/kg FM auf 1,6 Bq/kg FM. Das Maximum im Jahr 1986 und die hohen Messwerte der nachfolgenden Jahre sind auf den Eintrag aus dem Reaktorunfall in Tschernobyl zurückzuführen. Süddeutschland war damals wesentlich stärker betroffen als die norddeutschen Bundesländer. Durch das physikalische Abklingen des Cäsiums mit seiner Halbwertszeit von 30,2 Jahren und die Verdünnung in einigen der Seen hat die Aktivitätskonzentration auch in Fischen deutlich abgenommen. Dieses Abklingen fand in zwei Phasen statt [23]. Die erste Phase war geprägt durch eine effektive Halbwertszeit von 0,7 Jahren, die zweite von 7 Jahren.

Fließgewässer

Die mittleren Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs in Fischen aus Fließgewässern Nord- und Süddeutschlands sind seit den 1980er Jahren von bis zu 30 Bq/kg FM, bedingt durch das Ereignis in Tschernobyl, auf maximal 0,3 Bq/kg FM (inklusive Mitteldeutschland; siehe Abbildung 10.1c) zurückgegangen. Damit sind die ermittelten Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs in Fischen aus Fließgewässern etwa eine Größenordnung niedriger als in denjenigen aus Binnenseen Nord- und Süddeutschlands.

Fischteiche

In Fischen aus Teichhaltung in Nord- und Süddeutschland betrugen die ermittelten mittleren Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs in den 1980er Jahren maximal 22 Bq/kg FM, während die heutigen mittleren Messwerte maximal 0,3 Bq/kg FM betragen (inklusive Mitteldeutschland; siehe Abbildung 10.1b). Der zeitliche Verlauf der mittleren ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration in Fischen aus Teichhaltung (Fischwirtschaften, Angelteiche, Baggerseen) verhält sich damit qualitativ ähnlich der Entwicklung in Fließgewässern (siehe Abbildung 10.1c). Bis 1989 waren die in Fischteichen gefundenen Mittelwerte etwa um die Hälfte niedriger als in Fließgewässern. Ab 1990 ist praktisch kein Unterschied mehr nachweisbar.

Karpfen und Forellen

Eine Einzelbetrachtung der beiden wirtschaftlich bedeutendsten in Aquakultur erzeugten Fischarten Karpfen und Forelle ist in Abbildung 10.1d dargestellt. Die mittleren Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs nehmen seit ihrem Maximum von etwa 16 Bq/kg bzw. 7 Bq/kg in den Jahren 1986 und 1987 kontinuierlich ab. Die im Jahr 2012 ermittelten Werte betragen 0,11 Bq/kg (Forellen) bzw. 0,18 Bq/kg (Karpfen). Da jeweils Forellen und Karpfen aus verschiedenen Binnengewässern gemeinsam ausgewertet wurden, zeigen sich in der Zeitreihe der Karpfen gelegentlich höhere Messwerte, wenn die Fische vermehrt aus Binnenseen entnommen wurden.

Nord- und Ostsee

Die mittlere Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs in Fischen aus der Nordsee ist im Zeitraum 1987 bis 2012 von knapp 3 Bq/kg FM auf 0,2 Bq/kg FM zurückgegangen (siehe Abbildung 10.1e), wobei der Maximal-

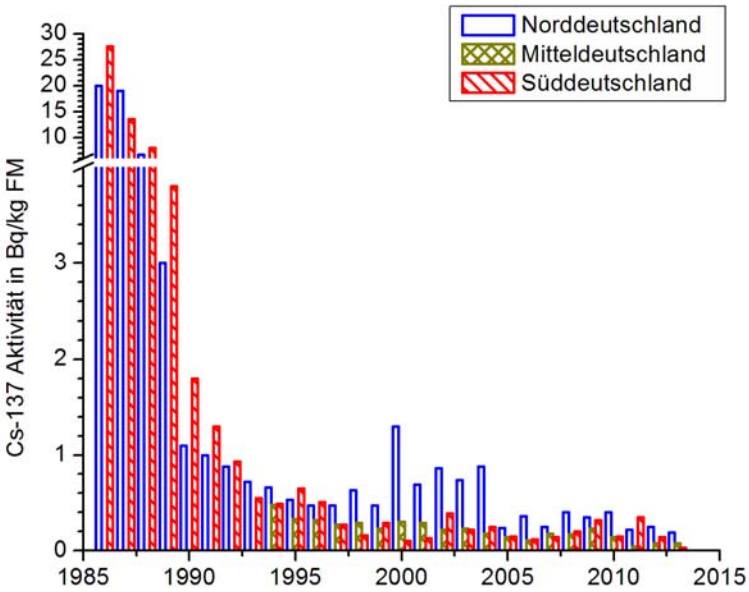


Abbildung 10.1a

Jahresmittelwerte der ^{137}Cs-Aktivität in Fischen aus Binnenseen in Bq/kg FM

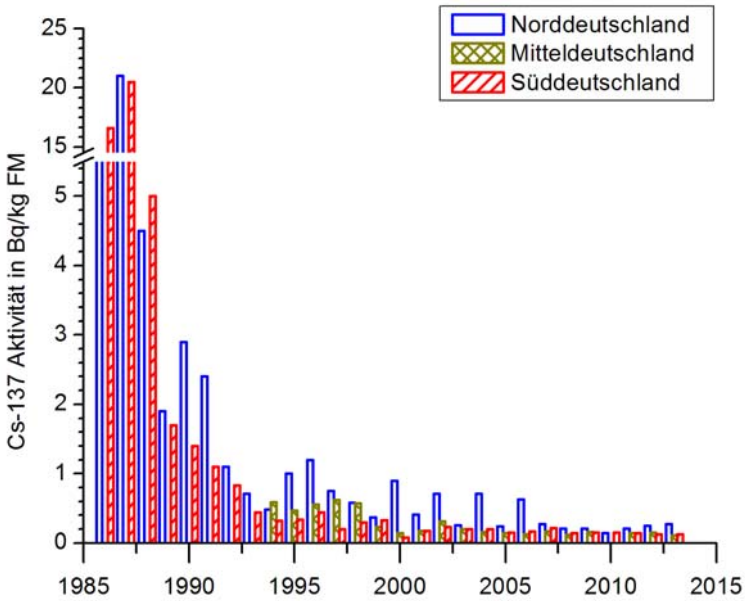


Abbildung 10.1b

Jahresmittelwerte der ^{137}Cs-Aktivität in Fischen aus Fischteichen in Bq/kg FM

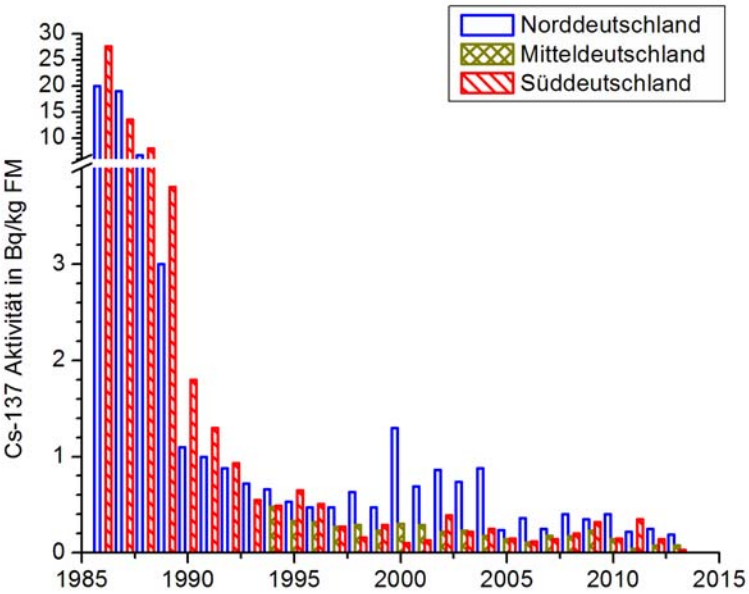


Abbildung 10.1c

Jahresmittelwerte der ^{137}Cs-Aktivität in Fischen aus aus Fließgewässern in Bq/kg FM

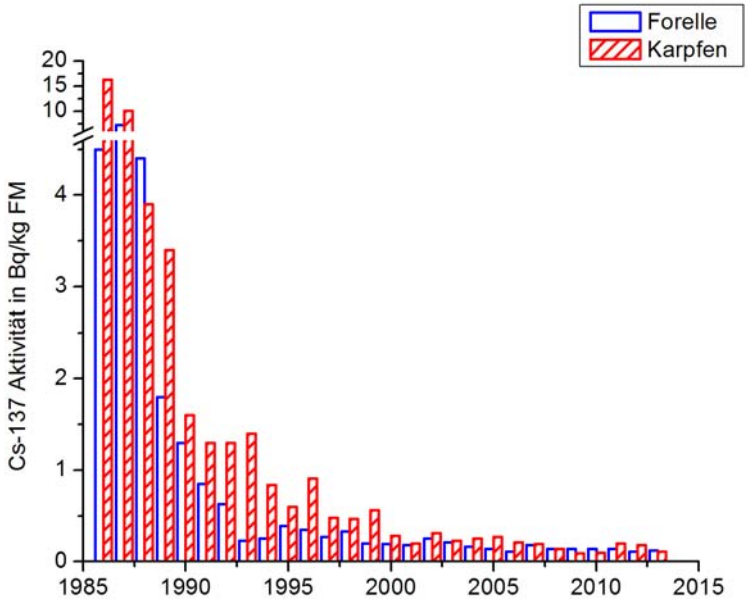


Abbildung 10.1d
Jahresmittelwerte der ^{137}Cs-Aktivität in Karpfen und Forellen in Bq/kg FM

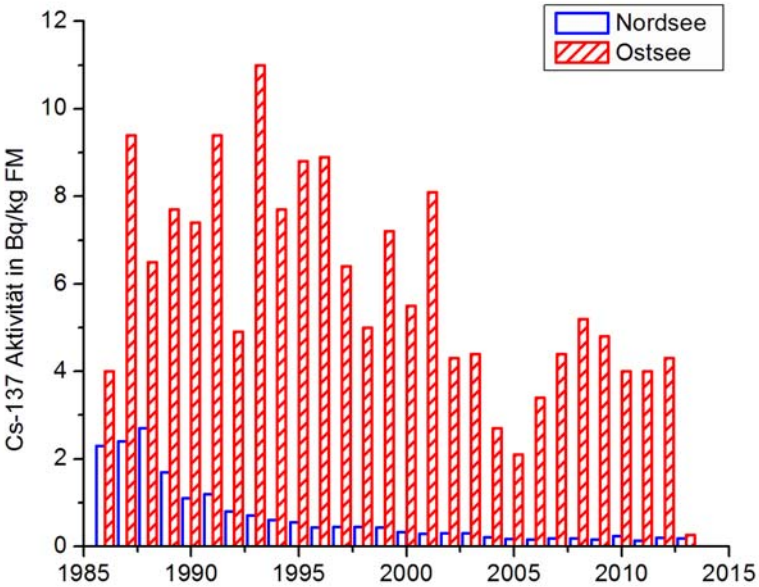


Abbildung 10.1e
Jahresmittelwerte der ^{137}Cs-Aktivität in Fischen aus Nord- und Ostsee in Bq/kg FM

Quelle: Johann Heinrich von Thünen-Institut

wert im Jahr 1987 wiederum dem Reaktorunfall von Tschernobyl geschuldet ist. Allerdings wurde in Fischen aus der Nordsee bereits vorher eine ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration von etwa 2 Bq/kg gemessen, weil ein Teil der Ableitungen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen durch die Nordsee transportiert wird [17]. Insgesamt ist der Einfluss des Fallouts aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl wegen des raschen Abtransports der Radionuklide mit dem Wasser der Nordsee gering. Ab 1988 bis Mitte der 1990er Jahre wurde eine Aktivitätsabnahme verzeichnet, während die Messwerte der ^{137}Cs Aktivitätskonzentrationen in Fischen der Nordsee anschließend nahezu stagnierten. Die Abnahme über den gesamten Zeitraum ist im Wesentlichen mit der kontinuierlichen Reduzierung der Ableitungen aus der englischen Wiederaufarbeitungsanlage Sellafield verbunden [16]. Seit der zweiten Hälfte der 1990er Jahre stagniert die ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration, weil seitdem das ^{137}Cs, das vorher im Sediment der Irischen See gespeichert wurde, auf Grund der reduzierten Ableitungen wieder freigesetzt wird. Dieses remobilisierte ^{137}Cs gelangt mit den Meeresströmungen in die Nordsee und damit in den dort lebenden Fisch.

Die ermittelte mittlere Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs in Fischen der Ostsee ist mit bis zu 11 Bq/kg deutlich höher als jene der Nordsee (siehe Abbildung 10.1e). Grund dafür sind die etwa 4700 TBq ^{137}Cs des Fallouts aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl, die dort niedergegangen sind [21]. Damit war

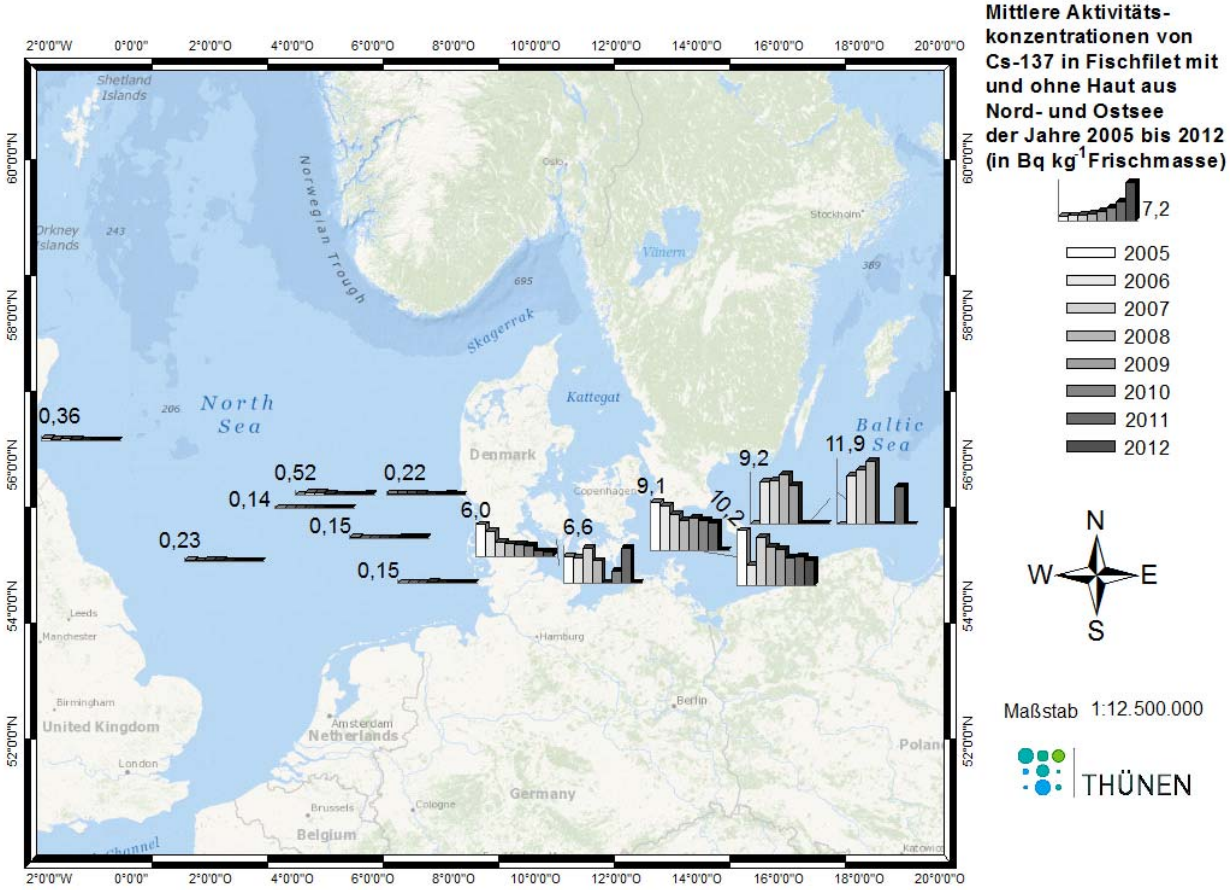


Abbildung 10.2

Mittlere Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs der Jahre 2005 bis 2012, ermittelt in Fischfilet mit und ohne Haut in verschiedenen Untersuchungsgebieten von Nord- und Ostsee. Die Zahlen an den Achsen geben den Maximalwert des Beobachtungszeitraumes an

und ist die Ostsee deutlich stärker von dem Reaktorunfall in Tschernobyl betroffen als die Nordsee. Im Vergleich zum Maximalwert der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration, der im Jahr 1993 gemessen wurde, hat sich dieser bis zum Jahr 2012 nahezu halbiert. Der deutlich langsamere Anstieg, die starken Schwankungen wie auch die deutlich langsamere Abnahme hat verschiedene Ursachen. Zuallererst wurde der Fallout sehr ungleichmäßig über die Ostsee verteilt. Die Bottnische See und der Golf von Finnland waren damals am stärksten betroffen. Eine Konzentrationsabnahme durch Verdünnung geht aber nur sehr langsam vonstatten, weil die Wasserbewegung innerhalb der Ostsee wie auch der Austausch des Wassers mit der Nordsee wesentlich geringer sind als vergleichbare Prozesse in der Nordsee. Im Rahmen des Untersuchungsprogrammes des Thünen-Instituts für Fischereiökologie wurden in den östlich gelegenen Untersuchungsgebieten der Ostsee innerhalb der Deutschen ausschließlichen Wirtschaftszone ^{137}Cs Aktivitätskonzentrationen knapp über 29 Bq/kg FM im Fischfilet gefunden; im Jahr 2012 waren es nur noch 8,5 Bq/kg FM. Im Gegensatz dazu wurden in der Kieler Bucht seit 1986 Maximalwerte bis 9 Bq/kg FM ermittelt, während diese aktuell etwa 2 Bq/kg FM betragen. Damit liegen die aktuellen Messwerte von Fischen aus der Kieler Bucht im Bereich der vor dem Reaktorunfall in Tschernobyl gemessenen Werte [18]. Abbildung 10.2 zeigt die jährlichen Mittelwerte der in Filets von Dorsch, Wittling, Scholle, Flunder und Makrele ermittelten Aktivitätskonzentrationen der Jahre 2005 bis 2012. Sie gibt sowohl die unterschiedlichen Niveaus der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs in Nord- und Ostsee als auch die Verteilung der Cs-Werte innerhalb der Ostsee wider.

Konzentrationsfaktoren für ^{137}Cs in Dorschfilet aus der Ostsee

Über den Konzentrationsfaktor kann die Aufnahme radioaktiver Stoffe in den Fisch über die Menge radioaktiver Ableitungen abgeschätzt werden. Daher

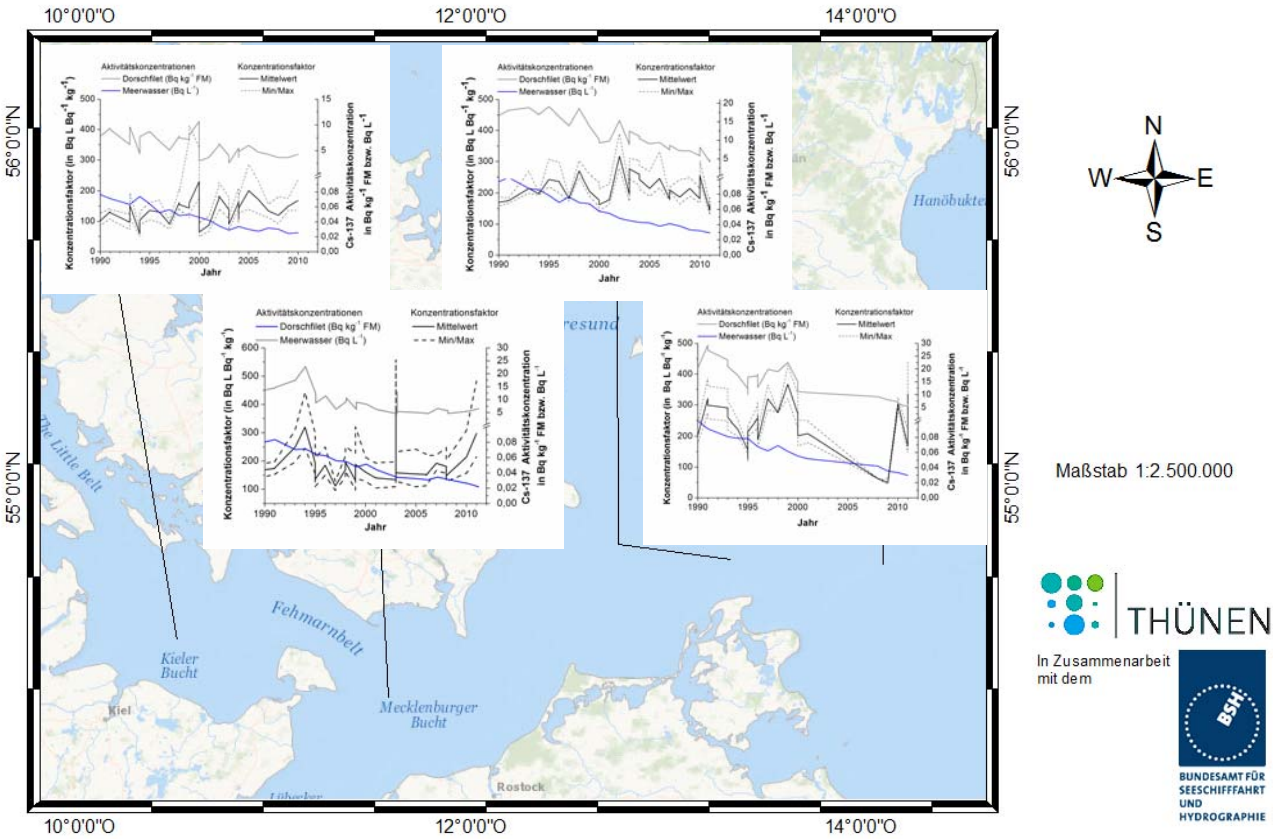


Abbildung 10.3

Mittlere Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs in Wasser (in Bq/l; Daten des Bundesamtes für Seeschifffahrt und Hydrographie) und Dorschfilet mit und ohne Haut (in Bq/kg FM; eigene Messdaten) in vier Untersuchungsgebieten der Ostsee der Jahre 1990 bis 2012 sowie daraus berechnete Konzentrationsfaktoren der Aufnahme in das Dorschfilet (in Bq/l / Bq/kg)

ist er ein wichtiger Parameter für Ausbreitungsrechnungen und die Dosisabschätzung im Falle von Ereignissen mit möglichen nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen. Liegt ein Gleichgewicht (stationärer Fall) zwischen den Aktivitätskonzentrationen in Fisch und Wasser vor, kann er aus dem Verhältnis der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration in Fisch (Bq/kg) zur ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration in Meerwasser berechnet werden. Dieses ist in der Ostsee seit Anfang der 1990er Jahre der Fall. Abbildung 10.3 zeigt die Verläufe der Aktivitätskonzentrationen in Wasser und Fisch und die daraus berechneten Konzentrationsfaktoren in vier Gebieten der Ostsee (Kieler Bucht, Mecklenburger Bucht und östlich bzw. nördlich von Rügen) im Zeitraum 1990 bis 2012. Die mittleren Konzentrationsfaktoren im Dorschfilet betrugen zwischen 50 und 380. Diese Schwankungsbreite ist geringer als jene, die Steele [22] zwischen 1978 und 1985 in Dorschfilet der Nordsee ermitteln konnte (8 bis 1100). Die mittleren Konzentrationsfaktoren im Zeitraum 1986 bis 2012 betrugen für die Kieler Bucht 125, für die Mecklenburger Bucht 186 sowie nördlich bzw. östlich Rügens 210 bzw. 217 (Abbildung 10.3; **siehe dazu** BMUB-Jahresbericht 2012, **Teil B, Kapitel 2.2.1**). Die in der Ostsee ermittelten mittleren Konzentrationsfaktoren sind damit höher als der Wert 100, den die IAEA als mittleren Konzentrationsfaktor für Fisch empfiehlt [19]. Dagegen sind die hier angegebenen Konzentrationsfaktoren in derselben Größenordnung wie sie Steele [22] in Dorschfilet aus der Nordsee ermittelte. Ähnlich den Aktivitätskonzentrationen in Fisch der Ostsee stiegen auch die mittleren Konzentrationsfaktoren von West nach Ost an (Vergleich Abbildung 10.2 und 10.3). Das liegt hauptsächlich an der von West nach Ost abnehmenden Salinität der Ostsee und der damit einher gehenden Verringerung des Kalium-Angebotes. Ereignisse wie Tschernobyl sind aus den Verläufen nur schlecht erkennbar, weil sich i.d.R. innerhalb des Beobachtungszeitraumes sowohl die Aktivitätskonzentration

im Wasser als auch im Fisch in ähnlicher Weise ändern. Ob Wanderungen der Fische oder Süßwassereinbrüche für die kurzfristigen Schwankungen der ermittelten Konzentrationsfaktoren verantwortlich sind, wird zukünftig weiter zu evaluieren sein.

Fazit

Die Ergebnisse machen deutlich, dass der Fallout aus der Reaktorkatastrophe von Tschernobyl die dominierende Quelle der Kontamination von Fischen der Ostsee und der Deutschen Binnengewässer mit Radionukliden war und ist. Die mittleren ^{137}Cs-Werte in Fischen aus der Ostsee sind auch 2012 weiterhin höher als in Fischen aus Binnenseen. Die effektive Halbwertszeit für die Abnahme in Wasser und Fisch ist mit 9 bis 11 Jahren in der Ostsee [18] etwas größer als diejenige in Binnengewässern mit etwa 7 Jahren [23]. Dass auch die Abnahme in Binnengewässern relativ langsam erfolgt, liegt daran, dass bis heute kontinuierlich ^{137}Cs aus den Böden der Wassereinzugsgebiete in die Gewässer eingetragen werden. Dabei war der Einfluss des Fallouts aus der Reaktorkatastrophe in Tschernobyl in den Binnengewässern zunächst höher, wobei hier die größten Auswirkungen auf Fische aus Binnenseen beobachtet wurden. Bis 2012 wurde in den Binnenseen allerdings ein deutlicher Rückgang der mittleren Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs auf etwa 2 Bq/kg FM festgestellt. Im Vergleich dazu war die Kontamination der Fische aus Teichen und Fließgewässern um rund eine Größenordnung niedriger. Die ^{137}Cs-Aktivitätswerte bei Fischen aus Fließgewässern und Teichen nahmen von den 1990er Jahren bis etwa zum Jahr 2005 nur noch langsam ab und schwanken seitdem geringfügig auf dem erreichten niedrigen Niveau.

Im Jahr 2010 ergab sich für die Strahlenexposition der Bevölkerung durch Verzehr von jährlich 9 kg Meeresfisch aus der Ostsee (im Mittel 4 Bq/kg FM für ^{137}Cs) ein Wert von etwa 1 µSv im Jahr [18]. Dieses entspricht weniger als 0,04 % der mittleren natürlichen Strahlenexposition der Bevölkerung. Unter Verwendung der oben angegebenen Mittelwerte der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs sind durch Verzehr von Fischen aus Binnengewässern noch niedrigere Strahlenexpositionen zu erwarten. Für den Verzehr von Fisch, Krusten- und Weichtieren aus der zentralen Nordsee wurde für 2012 mit Hilfe eines Kompartimentmodells [20] eine Strahlenexposition der Bevölkerung von etwa 0,05 µSv im Jahr abgeschätzt, was etwa 0,0022 % der mittleren natürlichen Strahlenexposition entspricht. Dabei wurde ein Fischverzehr von 5,6 kg im Jahr und ein mittlerer Konsum von Krusten- und Weichtieren von je 0,55 kg im Jahr zugrunde gelegt, was den mittleren Verzehrsraten der vergangenen Jahre entspricht.

11 DIE REAKTORKATASTROPHE VON FUKUSHIMA UND IHRE AUSWIRKUNGEN AUF DIE MEERESUMWELT

M.-O. Aust, P. Nogueira, G. Kanisch

Johann Heinrich von Thünen-Institut, Institut für Fischereiökologie
Leitstelle für Fisch und Fischereierzeugnisse, Krustentiere, Schalentiere, Meereswasserpflanzen

Seit der Reaktorkatastrophe im japanischen Kernkraftwerk Fukushima Daiichi sind mittlerweile mehr als vier Jahre vergangen. Bereits wenige Tage nach dem Unfall wurden durch verschiedene japanische Organisationen Messwerte im Internet veröffentlicht. Diese wurde am Thünen-Institut für Fischereiökologie kontinuierlich in eine Datenbank eingepflegt und ausgewertet.

Der Unfall und die Einträge von Radionukliden in die Meeresumwelt

Am 11.03.2011 löste ein Erdbeben der Stärke 9,0 auf der Momenten-Magnituden-Skala vor der Küste Japans einen Tsunami aus. Beide Ereignisse zusammen setzten die Kühlsysteme in vier der Reaktoren des Kernkraftwerkes Fukushima Daiichi außer Funktion. Sämtliche Versuche der Wiederherstellung eines Kühlsystems scheiterten, so dass es in den Reaktoren 1 bis 3 zu Kernschmelzen und dem Abklingbecken über Reaktor 4 zu einer Überhitzung der Brennelemente kam, in deren Folge sich Wasserstoffexplosionen ereigneten. Dadurch wurden erhebliche Mengen radioaktiver Stoffe in die Umwelt freigesetzt. Von den für das Meeresökosystem langfristig dosisrelevanten Stoffen waren es vor allem ^{137}Cs und ^{134}Cs. Im Detail wurden etwa 5 PBq (1 PBq = 10^{15} Bq) ^{134}Cs und 4 PBq ^{137}Cs direkt in den Ozean eingetragen, während 10,2 PBq ^{134}Cs und 8,5 PBq ^{137}Cs mittels Fallout in den Pazifik gelangten [41]. Zusätzlich hat das Erdbeben Schäden am Containment des Reaktorblocks 1 verursacht, wodurch jährlich geschätzt weitere 3,6 TBq (1 TBq = 10^{12} Bq) ^{137}Cs ins Meer gelangen.

Eingeleitete Messprogramme

Kurz nach dem Unfall in dem Kernkraftwerk wurden von der Tokyo Electric Power Company (TEPCO) und verschiedenen japanischen Behörden die ersten spezifischen Messprogramme in der Meeresumwelt initiiert. Neben TEPCO waren dies im Bereich Meerwasser die japanische Nuclear Regulation Authority und für Lebensmittel die japanische Fisheries Agency. Diese Messprogramme wurden bis Ende 2013 immer wieder modifiziert und bis Ende November 2014 wurden ca. 50 000 Meeresorganismen auf ihren Gehalt an radioaktiven Stoffen untersucht.

Bis März 2012 wurden auch in den USA (durch die Food and Drug Administration) und Kanada (durch die Canadian Food Inspection Agency) Messungen durchgeführt. Diese orientierenden Messungen lieferten für ^{137}Cs und ^{134}Cs keine Messwerte, die ein behördliches Eingreifen erforderten. Zusätzlich wurde über Modellrechnungen prognostiziert, dass sich diese Situation, wenn überhaupt, erst Jahre später ändern würde. Daher wurden die Messprogramme nach kurzer Zeit wieder eingestellt. Seit Anfang 2014 führt die Woods Hole Universität spendenfinanzierte Messungen der Cäsium-Aktivität in Wasserproben durch. Die Probeentnahmepunkte liegen entlang der Westküste der USA. Die Proben werden im Rahmen eigener Forschungsausfahrten und denen anderer Universitäten gewonnen. Die erhaltenen Messwerte werden zeitnah im Internet publiziert [30].

Für Lebensmittelimporte aus Japan in die Europäische Union wurde mit der EU-Durchführungsverordnung Nr. 297/2011 am 25.03.2011 ein Kontrollprogramm eingeführt. Die Grundlage bilden Messungen in Japan, deren Ergebnisse stichprobenartig bei der Einfuhr in die EU überprüft werden. Der Umfang des Kontrollprogramms wurde im Vergleich zum Beginn der Kampagne im Jahr 2011 mittlerweile stark reduziert, weil nur in wenigen Fällen Überschreitungen der Grenz- bzw. Höchstwerte ermittelt wurden [28].

Wasser

Abbildung 11.1 zeigt die zeitliche Entwicklung der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs in Meerwasser an den Stationen T1 und T2, die sich direkt am havarierten Kernkraftwerk Fukushima Daiichi befinden, vom Zeitpunkt des Unfalls bis zum Oktober 2014. Das Maximum von 68 000 Bq/l wurde zwischen dem 26. März und dem 08. April 2011 erreicht [24]. Die Aktivitätskonzentrationen im Meerwasser vor den angrenzenden Präfekturen nahm mit der Distanz zum Ereignisort deutlich ab. Das liegt u.a. daran, dass das Kernkraftwerk Fukushima Daiichi nahe dem Ort liegt, an dem die beiden großen pazifischen Meeresströmungen Kuroshio und Oyashio aufeinander treffen und für ostwärts gerichteten Transport in Richtung der US-Küste sorgen. Verschiedene Modellrechnungen kamen daher zu dem Ergebnis, dass das freigesetzte Cäsium nach etwa drei bis sieben Jahren die Küsten der USA erreichen würde [25]. Zusätzlich

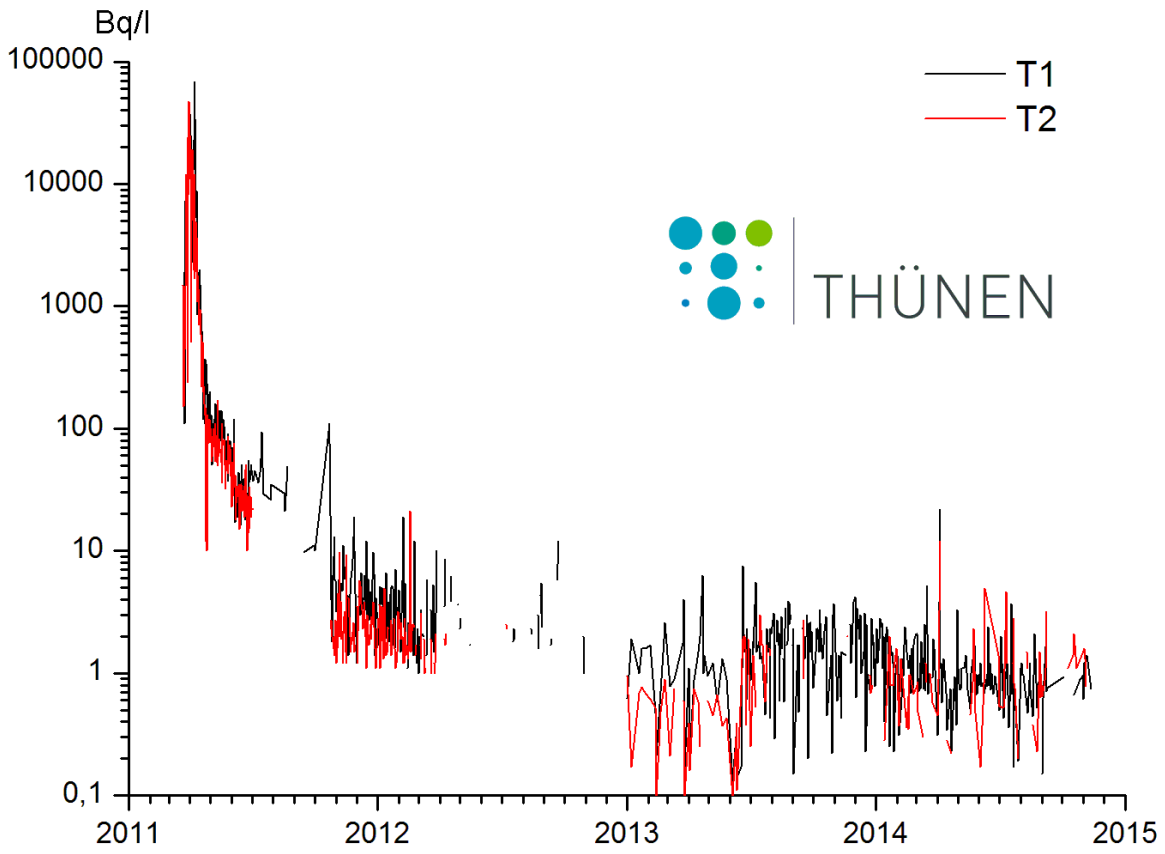


Abbildung 11.1
Zeitliche Entwicklung der ^{137}Cs Aktivitätskonzentration im Wasser des Pazifiks vor dem havarierten Kernkraftwerk Fukushima Daiichi vom Zeitpunkt der Havarie an; Der Messpunkt T1 befindet sich etwa 30 m nördlich der Reaktoren 5 und 6 und der Messpunkt T2 etwa 330 m südlich der Reaktoren 1 bis 4 des Kernkraftwerkes. In den Lücken der i. d. R. täglichen Messungen lagen die ^{137}Cs-Aktivitätskonzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze

wurde prognostiziert, dass sich Aktivitätskonzentrationen innerhalb von sechs bis neun Jahren gleichmäßig im Pazifik verteilen. Die Aktivitätskonzentration im Wasser des Pazifiks soll dann mit 2 Bq/m^3 etwa doppelt so hoch sein als vor dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima-Daiichi [25]. Diese Prognosen scheinen insofern zuzutreffen, als mittlerweile im Rahmen des Messprogramms der Woods Hole Universität an einigen Probeentnahmestellen ^{134}Cs im Wasser nachgewiesen wurde [30]. Die ermittelten Aktivitätskonzentrationen liegen bei bis zu 2,2 Bq/m^3 ^{134}Cs und bis zu 5 Bq/m^3 ^{137}Cs. Auch vor der kanadischen Küste wurden seit 2013 bis zu 2,1 Bq/m^3 der im Wasser ermittelten Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs der Reaktorkatastrophe von Fukushima zugeordnet [37].

Fisch

Abbildung 11.2 zeigt den Verlauf des Median und des Maximums der Gesamt-Cs-Aktivitätskonzentration (Summe aus ^{134}Cs und ^{137}Cs) in Fischen, die vor der Präfektur Fukushima und deren Nachbarpräfekturen Miyagi und Ibaraki gefangen wurden. Die Messwerte wurden den Internetseiten der Fisheries Agency [29] und von TEPCO [39] entnommen. Nach einer anfänglich sehr hohen Kontamination mit den beiden Cäsium-Isotopen mit Maximalwerten von bis zu 14400 Bq/kg gingen diese bis Oktober 2014 auf 120 Bq/kg zurück. Der derzeit in Japan geltende Grenzwert von 100 Bq/kg wird allerdings von weniger als 10 % der Proben überschritten. Somit erklärt sich auch, dass die Mittelwerte im Oktober 2014 bei etwa 10 Bq/kg lagen, was einer etwa halbjährlichen Halbierung der Cäsium-Aktivitätskonzentration entspricht. Hauptgrund für den Rückgang der Cäsium-Aktivitätskonzentration in den Fischen ist die verringerte Aktivitätskonzentration im Meerwasser, wodurch eine Anreicherung über die Nahrungskette deutlich niedriger ausfällt als zum Zeitpunkt der Reaktorkatastrophe. Fische nehmen nur einen Bruchteil des Cäsiums direkt über das Wasser auf. Allerdings weisen demersale und benthische (bodennah lebende) Fischarten, z. B. Plattfische, Rochen und Drachenkopfartige eine etwa dreifach höhere Cäsium-Aktivität auf als pelagische (im Freiwasser lebende). Dieses wird auf das jeweilige Beutespektrum und die

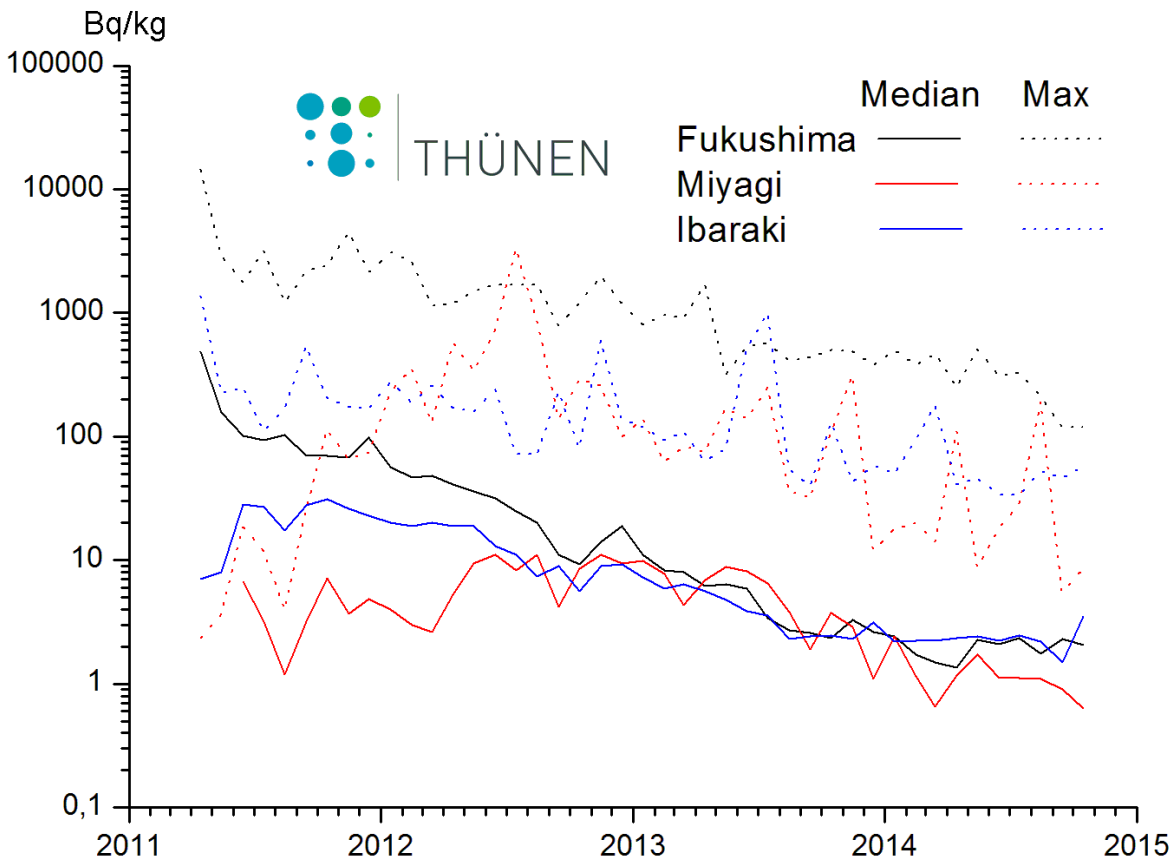


Abbildung 11.2

Zeitliche Entwicklung der mittleren und der maximalen ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration in Fischen, die nach der Reaktorkatastrophe im Kernkraftwerk Fukushima Daiichi vor der Präfektur Fukushima und ihren Nachbarpräfekturen Miyagi und Ibaraki aus dem Pazifik entnommen wurden

Aufnahme von kontaminierten Benthos-Organismen zurückgeführt. In Abbildung 11.2 sind die Monitoring-Organismen, die im Hafenbecken vor dem Kernkraftwerk Fukushima-Daiichi eingesetzt werden, ausdrücklich nicht enthalten. Die entsprechenden Messwerte von bis zu 740 000 Bq/kg in diesen Fischen [38] sorgten weltweit für Aufsehen, obwohl es sehr unwahrscheinlich ist, dass diese Fische in die Umwelt gelangen.

Auch in Fischen, die fern des japanischen Festlands gefangen werden, ist das Cäsium aus dem Kernkraftwerk Fukushima Daiichi noch nachweisbar. So fanden Madigan et al. [35,36] im August 2011 in Blauflossenthunfisch vor der kalifornischen Küste etwa 10 Bq/kg Gesamt-Cäsium und schätzen, dass diese Fische vor dem Beginn ihrer Wanderung aus den japanischen Gewässern zwischen 73 Bq/kg und 147 Bq/kg Gesamt-Cäsium enthalten haben. Eine Wiederholung der Studie im Jahr 2012 zeigte Aktivitätskonzentrationen von etwa 3 Bq/kg Gesamt-Cäsium. Ähnliche Ergebnisse wurden auch von japanischen Behörden veröffentlicht, die seit Mai 2011 Wanderfischarten wie Bonitos, Thunfische und Lachse in bis zu 2000 km Distanz zum havarierten Kernkraftwerk untersuchten. Dabei wurden im Jahr 2011 maximale Gesamt-Cs-Aktivitätskonzentrationen zwischen 4 Bq/kg und 77 Bq/kg gefunden, womit alle Ergebnisse unter dem derzeit gültigen japanischen Grenzwert für Fischprodukte liegen. Seit dem zweiten Halbjahr 2012 liegen die mittleren Cäsium-Aktivitätskonzentrationen bei maximal 1 Bq/kg.

Auch im Rahmen des Deutschen Messprogrammes zur Überwachung der Umweltradioaktivität wurden durch die Messstellen der Bundesländer Messwerte der ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration in aquatischen Biota aus dem Pazifik in das integrierte Mess- und Informationssystem des Bundes übertragen. Die Ergebnisse der Messungen der Jahre 2011 bis 2013 wurden in Tabelle 11.1 zusammengestellt. Die Messwerte liegen alle weit unterhalb von 1 Bq/kg ^{137}Cs und damit unterhalb des EU-Höchstwertes von 100 Bq/kg.

Tabelle 11.1
Spezifische ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration [Bq/kg] in Importproben von Fisch, Krusten- u. Schalentieren sowie Fischereierzeugnissen aus Japan (Messwerte der Bundesländer) aus dem Integrierten Mess- und Informationssystem des Bundes (mit dem Zeichen < werden Werte unterhalb der Nachweisgrenze gekennzeichnet)

Probenart	2011			2012			2013		
	min	max	Median	min	max	Median	min	max	Median
Seefisch	0,09	0,37	0,14	0,09	0,26	0,10	0,09	0,30	0,11
Krusten- u. Schalentiere	<0,26	<0,56	<0,36	- / -	- / -	- / -	<0,1	<0,1	<0,1
Fischereierzeugnisse	<0,23	<0,77	<0,44	<0,1	<0,41	<0,16	<0,09	0,51	0,12

Dosisabschätzung

Mit dem Verzehr mariner Produkte, die radioaktive Stoffe enthalten, nimmt der Mensch die betreffenden Radionuklide auf. Anschließend werden aufgenommene Cäsium-Isotope über den Stoffwechsel im gesamten Körper verteilt, weil es sich um Stoffe handelt, die dem essentiellen Mineralstoff Kalium chemisch sehr ähnlich sind. Die Isotope werden entsprechend ihrer biologischen Halbwertszeit zum Teil wieder aus dem Körper ausgeschieden.

Durch die im Körper befindlichen Radionuklide erhält eine beliebige Person eine Strahlendosis, die von der Höhe der Aktivitätskonzentration im verzehrten Fleisch des Meerestieres (Bq/kg) und der verzehrten Menge des Fischfleisches (kg) abhängig ist. Weil nicht jedes Radionuklid dieselbe Wirkung erzeugt, werden beide vorherigen Angaben mit einem nuklidspezifischen Dosiskoeffizienten („effektive Dosis“) multipliziert, der eine Dosisabschätzung über 70 Jahre ermöglicht. Er wird in Sv/Bq angegeben und beträgt für Erwachsene für ^{137}Cs $1{,}3 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq = 0,013 µSv/Bq und für ^{134}Cs $1{,}9 \cdot 10^{-8}$ Sv/Bq = 0,019 µSv/Bq.

Eine Dosisabschätzung für die bundesdeutsche Bevölkerung ist schwierig, weil nur sehr wenige Fischprodukte aus Japan in Deutschland verkauft werden. Außerdem liegen die Messwerte importierter Fischprodukte etwa in dem Rahmen, wie sie auch in Fisch der Nord- und Ostsee auftreten. Daher folgen einige Rechenbeispiele, um die Vorgehensweise zu verdeutlichen.

1. Es werden 0,2 kg Fischfilet verzehrt (in etwa eine Mahlzeit), das die Radionuklide ^{137}Cs und ^{134}Cs mit jeweils 10 Bq/kg enthält. Daraus ergibt sich für:
   ^{137}Cs: D = 0,2 kg x 10 Bq/kg x 0,013 µSv/Bq = 0,026 µSv
   ^{134}Cs: D = 0,2 kg x 10 Bq/kg x 0,019 µSv/Bq = 0,038 µSv
   Ein Erwachsener erhielte durch diese Mahlzeit eine Dosis von 0,064 µSv.
2. Werden 0,2 kg Fischfilet, das die Radionuklide ^{137}Cs und ^{134}Cs mit jeweils 10 Bq/kg enthält, einmal pro Woche im Zeitraum eines Jahres verzehrt (0,2 kg x 52 Wochen = 10,4 kg), ergibt sich daraus folgende Dosis:
   ^{137}Cs: D = 10,4 kg x 10 Bq/kg x 0,013 µSv Bq = 1,35 µSv
   ^{134}Cs: D = 10,4 kg x 10 Bq/kg x 0,019 µSv Bq = 1,98 µSv
   Die Dosis, die man über ein Jahr aufsummiert erhielte, würde 3,33 µSv betragen.
3. Würde eine Mahlzeit (0,2 kg) aus Fischfilet gegessen werden, deren spezifische Aktivitäten mit 50 Bq/kg ^{134}Cs und 50 Bq/kg ^{137}Cs den geltenden EU-Höchstwert von 100 Bq/kg ausschöpft, so ergäbe sich für:
   ^{137}Cs: D = 0,2 kg x 50 Bq/kg x 0,013 µSv Bq = 0,13 µSv
   ^{134}Cs-: D = 0,2 kg x 50 Bq/kg x 0,019 µSv Bq = 0,19 µSv
   Die gesamte Dosis als Summe der Cs-Radionuklide beträgt 0,32 µSv.

Für den Jahresverzehr (10,4 kg/a) ergibt sich aus dem oben genannten Rechenbeispiel für den Menschen eine Dosis von 16,6 µSv oder 0,0166 mSv. Das entspricht etwa 1,7 % des Grenzwertes von 1 mSv/a für den Menschen durch zugelassene Tätigkeiten, der auf die Richtlinie 2013/59/EURATOM über die Grundnormen für den Strahlenschutz zurückgeht und EU-weit gilt. Im Vergleich dazu beträgt die mittlere natürliche Strahlenexposition des Menschen ca. 2,1 mSv/a, die aber je nach Region zwischen 1 mSv/a und 6 mSv/a beträgt. Allein durch den Verzehr von Lebensmitteln beträgt die mittlere effektive Ingestionsdosis durch Radionuklide aus natürlichen Zerfallsreihen und ^{40}K in Gebieten mit durchschnittlicher natürlicher Radioaktivität etwa 215 µSv/a [27].

Fazit

Der Unfall im Kernkraftwerk Fukushima war mit erheblichen Freisetzungen von Radionukliden verbunden, die über den direkten Eintrag oder per Fallout in den Pazifik gelangten. Die in die Luft freigesetzten und nicht als Fallout in den Pazifik gelangten Radionuklide erreichten Europa vermutlich innerhalb von 10 bis 15 Tagen über den Nordpol [34] und wurden innerhalb von 18 Tagen global verteilt [31]. Obwohl grundsätzlich messbar, waren die Einträge z. B. von Cäsium-Isotopen in andere Meere wie die Grönlandsee gering [33]. Das bedeutet im Umkehrschluss, dass der Pazifik die größten Mengen an Radionukliden aus dem kerntechnischen Unfall im Kernkraftwerk Fukushima-Daiichi aufgenommen hat. Daher sind auch hier die stärksten Auswirkungen zu erwarten. Die Einleitungen sind vergleichbar mit denen, die in den 1970er Jahren durch die Wiederaufbereitungsanlage im englischen Sellafield innerhalb eines Jahres in die Irische See eingeleitet wurden [26] – mit dem Unterschied, dass der Pazifik etwa das 250.000-fache Wasservolumen der Irischen See besitzt. Im Pazifik wurde daher mit einer raschen Verdünnung und Verteilung der Einleitungen gerechnet, was sich später auch in den veröffentlichten Messwerten widerspiegelte. Die Wirkung auf die Meeresorganismen sind nach allem, was bislang wissenschaftlich bekannt ist, als gering einzuschätzen. So zeigten Fische der Ostsee (die Ostsee gilt als am stärksten durch das Cäsium des Fallouts der Reaktorkatastrophe in Tschernobyl belastetes Meer) keine nachweisbaren Beeinträchtigungen. Auch an Fischen der Irischen See wurden in verschiedenen Untersuchungen keine negativen Auswirkungen auf den Gesundheitszustand festgestellt [40]. Die von der Internationalen Strahlenschutzkommission empfohlenen Effektschwellen für Fische [32] liegen ebenfalls über den seit der Reaktorkatastrophe in Fischen des Pazifiks ermittelten Werten. Zweifel entstehen allerdings dadurch, dass die niedrigste in diesem Bericht für terrestrische Insekten angegebene Effektschwellen-Dosis 20-fach höher ist als die Messwerte der Dosis auf Schmetterlinge aus der Präfektur Fukushima, an denen genetische Defekte festgestellt wurden [77]. Das wirft die Frage auf, ob man die Effekte auf Meeresorganismen nicht erfassen kann, weil die betroffenen Organismen bereits verendet sind und/oder als Nahrungsquelle für andere Meeresorganismen gedient haben. Dies ist eine spannende Frage, der sich die Wissenschaftler von heute und morgen stellen müssen.

12 BODEN, PFLANZEN, FUTTERMITTEL, MILCH UND GESAMTNAHRUNG

D.Tait

Max Rubner-Institut, Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch
Leitstelle für Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft

Boden, Pflanzen und Futtermittel

Die Wanderung der Radionuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr in den Boden hinein erfolgt nur sehr langsam. Da beide Radionuklide eine lange Halbwertszeit aufweisen, verändert sich ihre spezifische Aktivität im Boden gegenwärtig von Jahr zu Jahr nur geringfügig. Gelegentliche stärke Schwankungen der Messwerte an einem Ort gehen auf unvermeidliche Variationen in der Probennahme zurück. Die Kontamination des Bodens mit ^{137}Cs war auch im Jahr 2013 durch die Deposition nach dem Tschernobyl-Unfall geprägt, während das ^{90}Sr zum überwiegenden Teil noch aus der Zeit der oberirdischen Kernwaffenversuche stammt. In Abbildung 12.2 und Abbildung 12.3 sind die Landesmittelwerte für die ^{137}Cs-Aktivitätskonzentration in Ackerböden und die entsprechenden Werte für Böden, die als Weiden und Wiesen genutzt werden, dargestellt.

In den Vegetationsperioden 2011 bis 2013 wurden verschiedene Pflanzenproben γ-spektrometrisch gemessen. Im Vordergrund standen dabei Proben solcher Pflanzen, die als Futtermittel dienen, insbesondere Weide- und Wiesenbewuchs. Der ^{137}Cs-Gehalt in Weide- und Wiesenbewuchs ist in Abbildung 12.5 dargestellt. In einigen Bundesländern wurden Futtermittelrohstoffe überwacht. Diese Produktgruppe schließt ein: Mais und Maissilage, Futterrüben, -getreide und -kartoffeln, Günfutterpflanzen, Erbsen, Raps, Ölkuchen/Ölschrote und Sonnenblumen, Kraftfuttermischungen und Silage. Im Mittel liegen die Werte zwischen <0,1 und 0,8 Bq/kg TM für ^{137}Cs und 0,1 Bq/kg und 2,3 Bq/kg für ^{90}Sr. Im Allgemeinen hat die Kontamination pflanzlichen Materials weiterhin abgenommen. Dies ist vor allem auf Verdünnungs- und Bindungseffekte im Boden sowie den physikalischen Zerfall zurückzuführen. Die Kontamination pflanzlichen Materials ist gegenüber dem Vorbericht wieder etwas zurückgegangen, was vor allem auf Verdünnungs- und Bindungseffekte im Boden zurückzuführen ist.

Radioaktive Stoffe in Milch und Milchprodukten

Die Kontamination von Milch und Milchprodukten mit ^{137}Cs aus dem Kernwaffen- und Tschernobylfallout hatte bereits in den Vorjahren ein sehr niedriges Niveau erreicht. Derzeit vermindert sie sich von Jahr zu Jahr nur noch äußerst geringfügig. Die ^{90}Sr-Aktivitätskonzentration ist in den Jahren 2011 - 2013 auf extrem niedrigem Niveau ebenfalls nahezu konstant geblieben (Abbildung 12.6). Andere störfallrelevante Radionuklide wie ^{131}I und ^{134}Cs, die nach dem

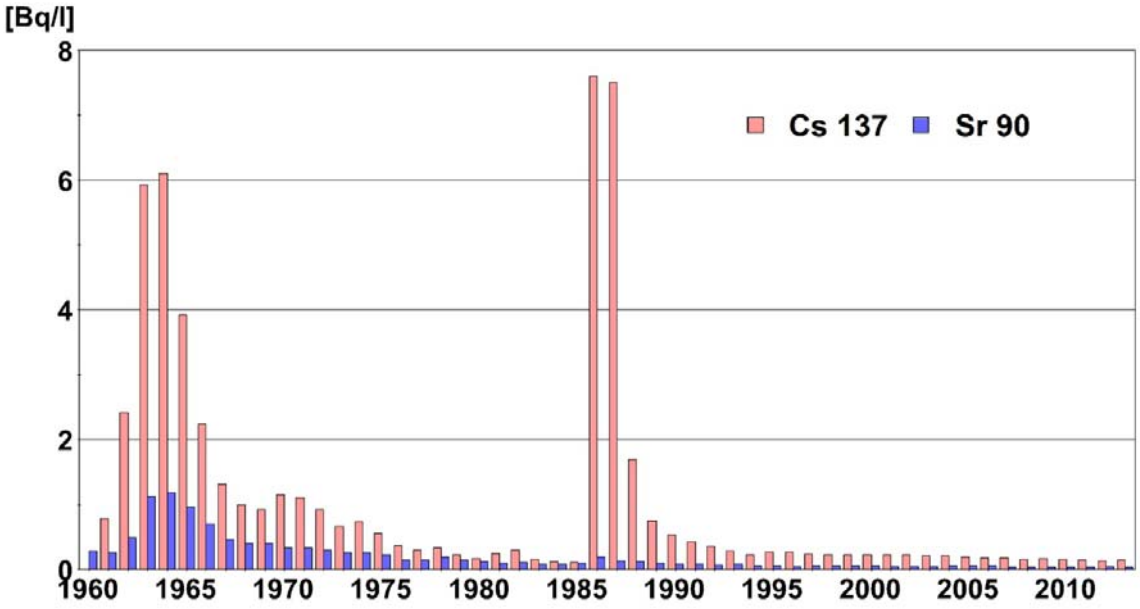


Abbildung 12.1
Jahresmittelwerte der ^{90}Sr- und ^{137}Cs-Konzentrationen in Rohmilch (Bundesgebiet)

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz
Daten aus IMIS

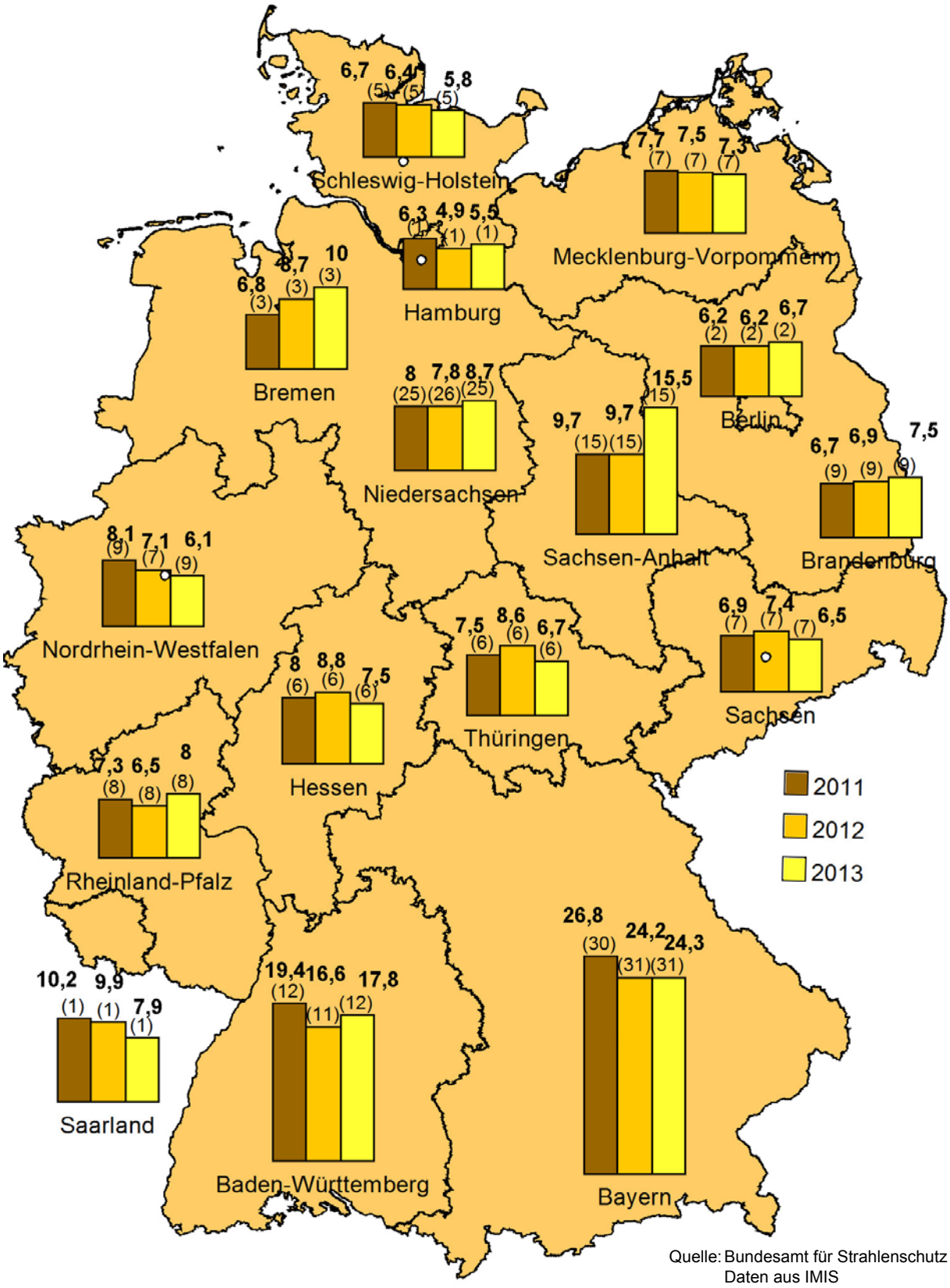
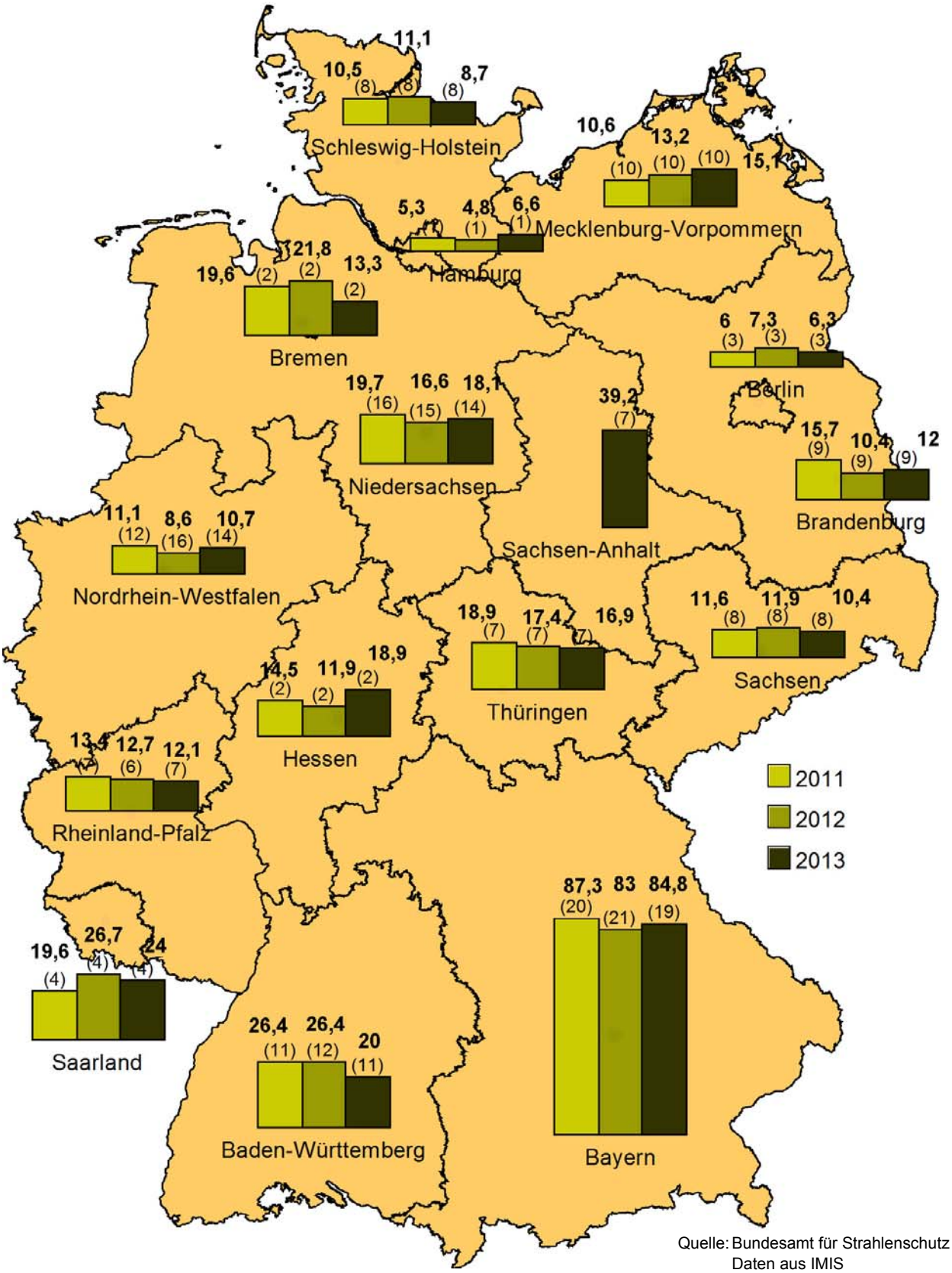


Abbildung 12.2

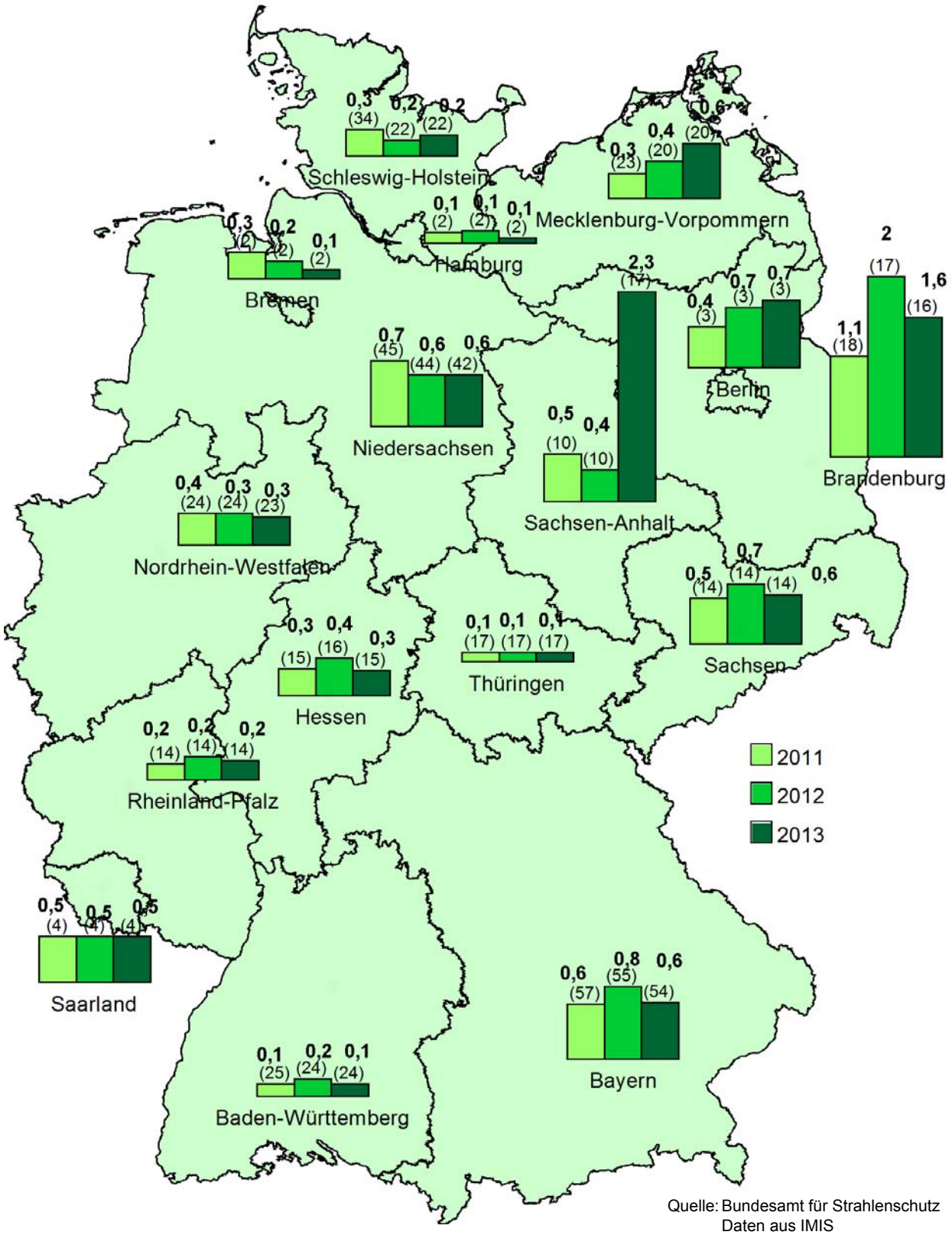
Radioaktive Kontamination von Ackerböden mit ^{137}Cs in den Jahren 2011 bis 2013 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz
Daten aus IMIS

Abbildung 12.3

Radioaktive Kontamination von Weideböden mit ^{137}Cs in den Jahren 2011 bis 2013 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz
Daten aus IMIS

Abbildung 12.5

Radioaktive Kontamination von Weide- und Wiesenbewuchs mit ^{137}Cs in den Jahren 2011 bis 2013 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)

Tschernobylunfall deponiert wurden, werden wegen ihrer kurzen Halbwertszeiten von acht Tagen bzw. zwei Jahren nicht mehr nachgewiesen. Abbildung 12.1 zeigt den Verlauf der Jahresmittelwerte der ^{90}Sr- und ^{137}Cs-Aktivitätskonzentrationen der Milch für den Zeitraum von 1960 bis 2013. Einen Überblick über den ^{137}Cs- und ^{134}Cs-Gehalt in verschiedenen Milchprodukten geben Tabellen in den Jahresberichten über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung [12,13,14] .

Gesamtnahrung, Säuglings- und Kleinkindernahrung

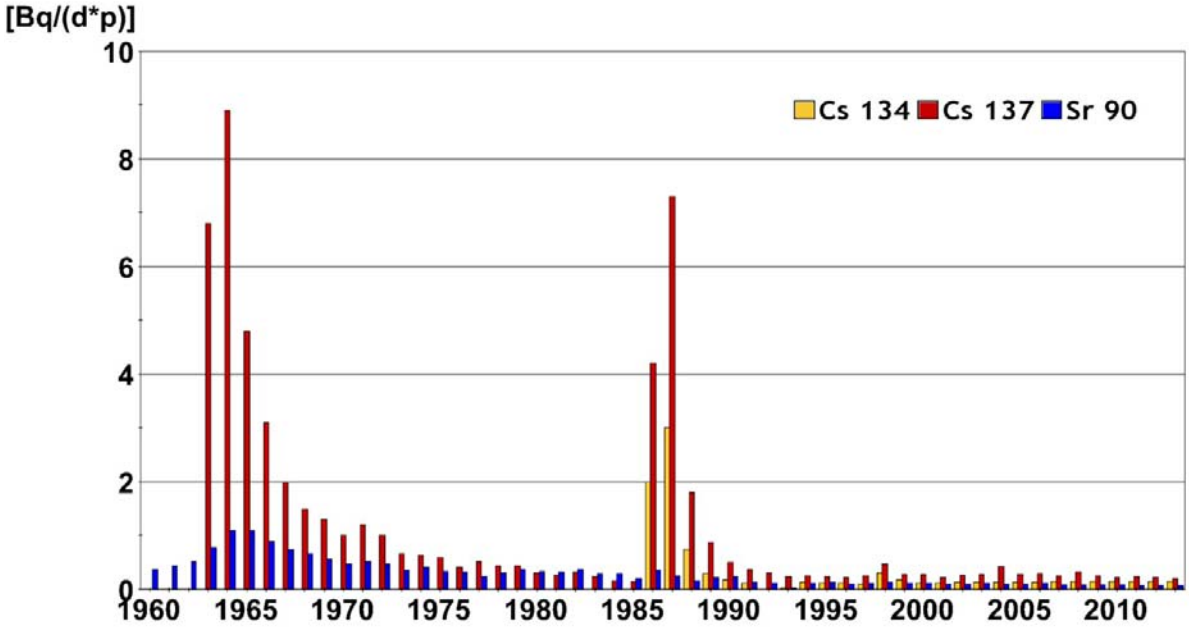
Die Beprobung der Gesamtnahrung dient der Abschätzung der ingestionsbedingten Strahlendosis gesunder Erwachsener in der Bundesrepublik Deutschland. Dazu werden verzehrsfertige Menüs der Gemeinschaftsverpflegung aus Kantinen, Heimen, Krankenhäusern und Restaurants vermessen. Daraus resultiert eine Mittelung der Verzehrsmenge und der Zusammensetzung. Bei den Gesamtnahrungsproben handelt es sich um Tagesrationen für gesunde Erwachsene.

Tabellen über die spezifischen Aktivität in Bq/kg FM (Feuchtmasse) für ^{90}Sr und ^{137}Cs für einige ausgewählte Lebensmittel sowie für Säuglings- und Kleinkindernahrung finden sich in den Jahresberichten über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung [12,13, 14].

Die mittlere tägliche ^{137}Cs-Aktivitätszufuhr einer Person über die Nahrung wird in Bq pro Tag und Person (Bq/d×p) ausgedrückt. Für die Jahre 2011 bis 2013 können diese Werte mit 0,23, 0,22 und 0,20 Bq/(d×p) geschätzt werden und zeigen somit kaum eine Änderung zu den Vorjahren (Abbildung 12.4). Da in diese Schätzung ein hoher Prozentsatz von Messwerten unterhalb der Nachweisgrenzen eingeht, wird der Wert der Aktivitätszufuhr überschätzt, was bei einer Interpretation des Wertes berücksichtigt werden muss.

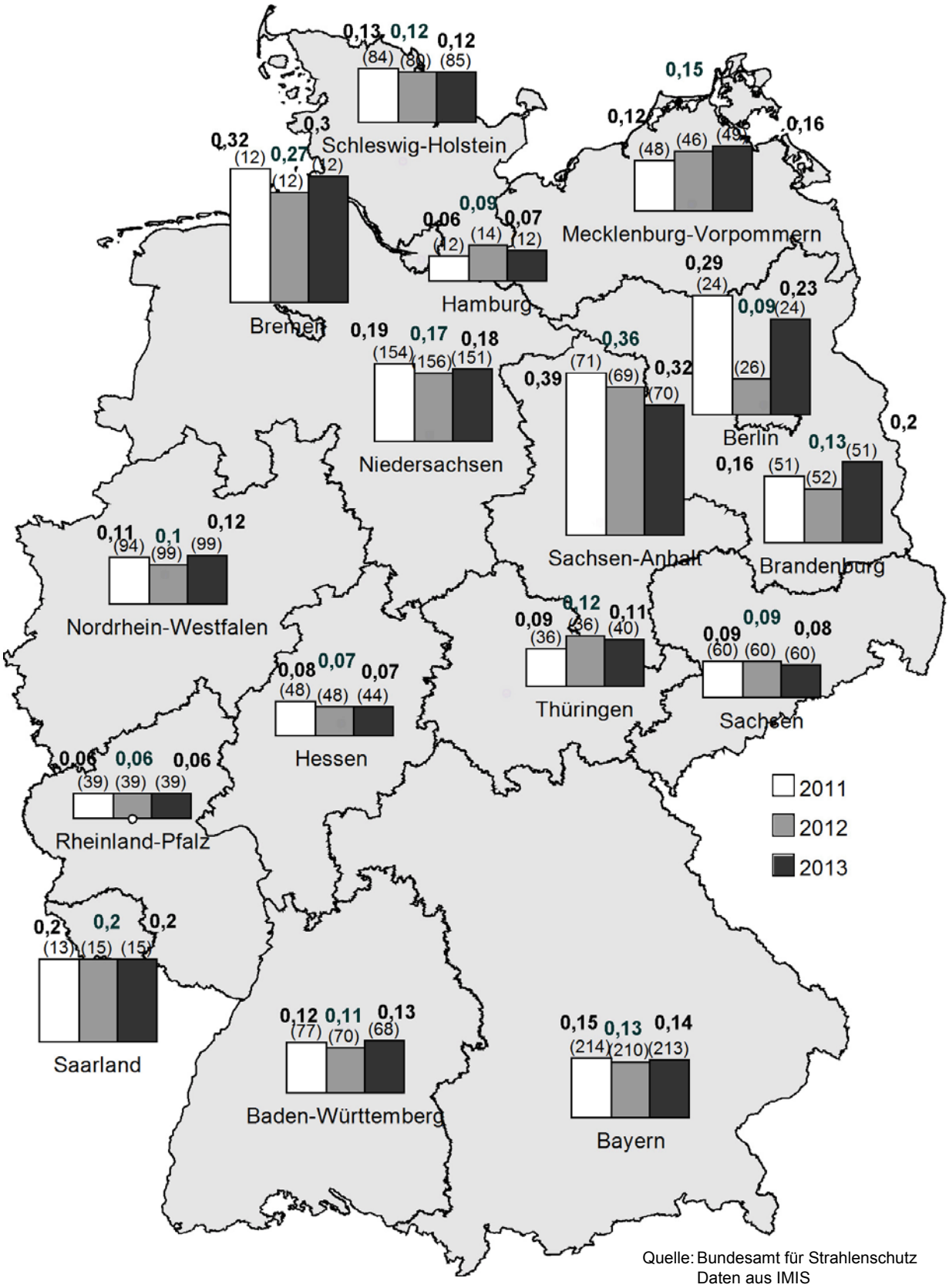
Für ^{90}Sr, mit einer mittleren Aktivitätszufuhr von 0,08 Bq/(d×p), gilt die gleiche Betrachtungsweise wie für ^{137}Cs, wobei ein wesentlich gößerer Anteil der ^{90}Sr-Messwerte nahe oder unterhalb der Nachweisgrenze liegen. Die mittlere jährliche ingestionsbedingte Aktivitätszufuhr lässt sich somit wie folgt abschätzen:

Jahr	Nuklid	Zufuhr
2011	^{90}Sr	29 Bq/(a · p)
	^{137}Cs	84 Bq/(a · p)
2012	^{90}Sr	29 Bq/(a · p)
	^{137}Cs	80 Bq/(a · p)
2013	^{90}Sr	29 Bq/(a • p)
	^{137}Cs	73 Bq/(a • p)



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz
Daten aus IMIS

Abbildung 12.4
Jahresmittel der Aktivitätszufuhr von ^{137}Cs und ^{90}Sr mit der Gesamtnahrung pro Tag und Person



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz
Daten aus IMIS

Abbildung 12.6

Radioaktive Kontamination von Rohmilch mit ^{137}Cs in den Jahren 2011 bis 2013 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/l, Anzahl der Messwerte in Klammern) - nur Routinemessprogramm

13 RINGVERSUCH RADIONUKLIDE IN ROHMILCH 2014

N. Roos, D.Tait

Max Rubner-Institut, Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch
Leitstelle für Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft

Einleitung

Zur Erfüllung ihrer gesetzlichen Aufgaben laut Strahlenschutzvorsorgegesetz [46] und Strahlenschutzverordnung [55] führt die Leitstelle zur Überwachung der Umweltradioaktivität am Max Rubner-Institut (MRI), Bundesforschungsinstitut für Ernährung und Lebensmittel in Kiel, Vergleichsmessungen und Vergleichsanalysen für die Messstellen der Bundesländer durch. Die Leitstelle am MRI ist zuständig für die Umweltbereiche Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft. Seit 1977 hat die Leitstelle 19 Ringversuche durchgeführt, davon allein neun mit Milch. Milch ist ein wichtiges Indikatormedium für die Kontamination der Nahrungskette mit einigen radiologisch relevanten Radionukliden, wie z. B. Strontium-, Iod- und Cäsiumnukliden.

Nach einem nuklearen Ereignis sind zwei rein ß-emittierende Nuklide des Sr, nämlich ^{89}Sr und ^{90}Sr, besonders relevant. Relativ große ^{89}Sr/^{90}Sr-Aktivitätsverhältnisse sind möglich. Mit der nachfolgend beschriebenen Vergleichsmessung wurde eine Ringversuchsreihe begonnen, die den Messstellen die Möglichkeit geben soll, Radionuklidanalysen in Milch mit verschiedenen ^{89}Sr/^{90}Sr-Aktivitätsverhältnissen durchzuführen. Neben diesen reinen ß-Emittern sollten die wichtigsten ß-emittierende Nuklide des I und Cs, ^{131}I, ^{134}Cs und ^{137}Cs, sowie ^{40}K und ^{133}Ba bestimmt werden.

An dem Ringversuch nahmen 72 Institutionen aus Deutschland und dem benachbarten europäischen Ausland teil. Aus der Bundesrepublik Deutschland kamen 56 Laboratorien, fünf Teilnehmer kamen aus Österreich, jeweils drei aus der Schweiz und dem Vereinigtem Königreich, und jeweils einer aus Frankreich, Italien, den Niederlanden, Irland und Luxemburg. Den Hauptteil der Teilnehmer aus Deutschland stellten die amtlichen Messstellen der Länder mit 34 Beteiligungen.

Probenmaterial

Die vom Versuchsgut des MRI zur Verfügung gestellte Rohmilch wurde homogenisiert, um ein Aufrahmen des Fettes während des Transports und der Analysen zu verhindern. Als Schutz vor mikrobiologischem Verderb wurde die Milch mit Natriumazid (0,18 g/l) konserviert. 100 Ringversuchsproben wurden individuell dotiert, indem Rohmilch mit einer Standardlösung des ^{131}I in verdünnter Natronlauge sowie einer Standardlösung der anderen Nuklide (außer ^{40}K) in verdünnter Salzsäure in einem definierten Verhältnis miteinander vermischt wurden. Die Massen der Milch und der zugegebenen Standardlösungen wurden genau notiert. Aus den Mischungsverhältnissen der drei Komponenten wurden für jedes Nuklid in jeder einzelnen Probe Transformationsfaktoren berechnet, mit dem die Teilnehmerergebnisse korrigiert wurden. Auf diese Weise sind die Ergebnisse normiert und können direkt miteinander verglichen werden. Aus den Analysenzertifikaten der verwendeten Standardlösungen wurden die zugewiesenen Werte für die Aktivitätskonzentrationen in der Milchprobe berechnet. In Tabelle 13.1 sind die zugewiesenen Werte den im Ringversuch erzielten Gesamtmittelwerten (ohne Ausreißer) gegenübergestellt. Weil die Kaliumkonzentration und damit die Aktivität des ^{40}K in der Milch homöostatisch geregelt sind, war keine weitere Zugabe dieses Nuklids erforderlich. Die Unsicherheitsangaben der zugewiesenen Werte umfassen alle Verdünnungsschritte und Wägungen der Standardlösungen sowie die Unsicherheitsangaben der Standards selbst und wurden mit dem Programm Gum_MC, Version 2.20 [56] ermittelt. Radionuklidbestimmungen in der undotierten Rohmilch ergaben für ^{90}Sr und ^{137}Cs sehr geringe Werte von jeweils ca. 0,03 Bq/l, die in der Tabelle nicht berücksichtigt sind.

Auswertung der Ringversuchsergebnisse

Nach der Normierung der Teilnehmerergebnisse mit den ermittelten Transformationsfaktoren wurden sowohl Ausreißer mittels mathematischer und grafischer Verfahren identifiziert und entfernt als auch eine Auswertung mit robuster Statistik unter Beibehaltung aller Werte durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 13.2 gegenübergestellt. Die Gesamtmittelwerte unterscheiden sich nur wenig. Die Entfernung der Ausreißer führt aber zu einer Senkung der Streuung der Messwerte. Insbesondere weichen die Werte nach Ausreißerelimination und die mittels robuster Statistik errechneten Werte kaum voneinander ab.

Tabelle 13.1

Zugewiesene Werte und Gesamtmittelwerte[1] (jeweils in Bq/l) zum Bezugsdatum 25.03.2014

Nuklide	zugewiesene Werte ± Messunsicherheit[2]	Gesamtmittelwerte ± Messunsicherheit[3]
^{40}K	nicht zugesetzt	52,0 ± 4,0
^{89}Sr	20,5 ± 0,1	20,0 ± 3,3
^{90}Sr	5,1 ± 0,1	5,6 ± 0,8
^{131}I	211 ± 6	215 ± 10
^{133}Ba	10,0 ± 0,2	10,0 ± 0,6
^{134}Cs	23,1 ± 0,2	22,4 ± 1,2
^{137}Cs	5,7 ± 0,1	5,7 ± 0,3

[1] Die Gesamtmittelwerte wurden aus den ausreißerfreien Datensätzen ermittelt
[2] erweiterte Messunsicherheit, k = 2
[3] Vergleich-Standardabweichung

Tabelle 13.2

Mittelwerte der Teilnehmerergebnisse vor und nach der Elimination der Ausreißer und nach Berechnung eines robusten Mittelwertes

Nuklide	Gesamtmittelwert vor Ausreißerelimination *(Bq/l)*	Gesamtmittelwert nach Ausreißerelimination *(Bq/l)*	robuster Mittelwert nach Algorithmus A[1] (Bq/l)
^{40}K	52,2 ± 5,2 (322)	52,0 ± 4,0 (310)	51,8 ± 3,9 (111)
^{89}Sr	19,5 ± 4,4 (92)	20,0 ± 3,2 (85)	20,0 ± 3,0 (35)
^{90}Sr	5,73 ± 1,69 (140)	5,59 ± 0,82 (123)	5,51 ± 0,87 (52)
^{131}I	215,8 ± 12,1 (331)	215,0 ± 9,7 (313)	214,9 ± 9,7 (114)
^{133}Ba	9,98 ± 0,75 (319)	9,99 ± 0,60 (301)	9,99 ± 0,59 (110)
^{134}Cs	22,5 ± 1,3 (334)	22,5 ± 1,3 (318)	22,4 ± 1,3 (115)
^{137}Cs	5,72 ± 0,31 (334)	5,70 ± 0,25 (321)	5,69 ± 0,20 (115)

1 Berechnet nach DIN ISO 5725-5 [4,5]. Die Streuung bezieht sich auf die dem Mittelwert zugehörige Standardabweichung bzw. robuste Standardabweichung. Die Werte in Klammern geben die Anzahl der Einzelwerte wieder, im Falle des robusten Mittelwertes die Anzahl der Datensätze.

Die Kenndaten der Ringversuchsergebnisse wurden nach DIN ISO 5725 [57, 58] ermittelt. z-Werte wurden bezogen auf den Gesamtmittelwert nach DIN ISO 13528 [59] berechnet und die Beurteilung erfolgte nach DIN EN ISO/IEC 17043 [60] mit folgendem Schema:

$|z| \leq 2$: zufriedenstellende Ergebnisse

$2 < |z| < 3$: fragwürdige Ergebnisse

$|z| \geq 3$: nicht zufriedenstellende Ergebnisse.

Ergebnisse

Die Verteilung der Teilnehmerergebnisse (incl. Ausreißer) um den Gesamtmittelwert war relativ symmetrisch, wobei die Spannbreite bei den ß-emittierenden Nukliden deutlich größer war als bei den γ-emittierenden Nukliden. Bei ^{89}Sr reichte sie von -95% bis +45%, bei ^{90}Sr von -100% bis +125% und bei den γ-emittierenden Nukliden von ca. -20% bis +30%.

In Tabelle 13.3 sind die Ringversuchsergebnisse zusammengefasst.

Tabelle 13.3
Übersicht über die Ringversuchsergebniss

	Einheit	^{40}K	^{89}Sr	^{90}Sr	^{131}I	^{133}Ba	^{134}Cs	^{137}Cs
zugewiesener Wert	Bq/l	-	20,5	5,1	211	10,0	23,1	5,7
erweiterte Unsicherheit (k=2)	Bq/l	-	0,6	0,1	6	0,2	0,2	0,1
Gesamtmittelwert	Bq/l	52,0	20,0	5,6	215	10,0	22,4	5,7
7ugehörige Standardabweichung	Bq/l	4,0	3,2	0,8	10	0,6	1,2	0,3
Anzahl der Labore		66	25	39	67	64	69	68
Anzahl der Datensätze		104	30	45	107	102	108	108
Anzahl der Einzelmessungen		310	85	123	313	301	318	321
Anteil Ausreißer und Einzelmessungen	%	3,7	7,6	12,1	5,4	5,6	4,8	3,9
Minimalwert	Bq/l	40,3	10,7	4,0	185	8,0	19,3	5,0
Maximalwert	Bq/l	67,8	26,7	8,6	243	11,4	25,6	6,6
Wiederhol-Standardabweichung	Bq/l	1,7	1,0	0,3	4	0,3	0,3	0,1
Wiederhol-Variationskoeffizient	%	3,3	5,1	5,3	1,9	2,6	1,3	2,5
Vergleich-Standardabweichung	Bq/l	4,0	3,3	0,8	10	0,6	1,2	0,3
Vergleich-Variationskoeffizient	%	7,8	16,4	14,8	4,5	6,1	5,5	4,5
Gesamtmittelwert/Zugewiesener Wert	%	-	97,8	110,7	102,1	100,0	97,2	100,5

Gammaspektrometrische Messungen

Von den 72 teilnehmenden Laboren haben 71 Teilnehmer Ergebnisse für gamma-spektrometrische Analysen abgegeben. Fast alle Ergebnisse wurden mit HPGe-Detektoren erzielt. Zwei Labore haben GeLi-Detektoren und ein Teilnehmer hat ein Gerät mit NaI-Detektor verwendet. Die Ergebnisse, die mit diesen Detektortypen erzielt wurden, waren nicht signifikant unterschiedlich. Von den Teilnehmern gaben 44 an, Korrektionen von Summationseffekten durchgeführt zu haben, 23 Labore haben diese Korrektionen nicht angewendet und 4 Labore haben keine Angaben dazu gemacht.

^{40}K

Für ^{40}K wurden 322 Messwerte in 111 Datensätzen von 69 Teilnehmern abgegeben. Zwölf Messwerte wurden als Ausreißer (7) oder Einzelwert (5) entfernt (3,7%). Ein zugewiesener Wert konnte nicht angegeben werden, da der Milch kein ^{40}K zugesetzt wurde, sondern das natürlich vorhandene ^{40}K bestimmt werden sollte. Der Gesamtmittelwert unterschied sich kaum von den Werten früherer Ringversuche der Leitstelle, bei denen ^{40}K in Milch analysiert wurde [61, 62]. Die Wiederhol- und Vergleich-Variationskoeffizienten (3,3% und 7,8 %) waren größer als bei den zugesetzten γ-emittierenden Nukliden. Dies ist wahrscheinlich auf die geringe Emissionswahrscheinlichkeit der 1460 keV-Linie (11%) sowie die geringere Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit in diesem Energiebereich zurückzuführen. Der Mangel an Stützpunkten in der Nähe der Gammalinie des ^{40}K bei der Effizienz-Kalibrierung des Detektors mit den üblichen Multinuklidstandardlösungen erfordert Extrapolationen der Kalibrierungskurve, die die Unsicherheiten der Kalibrierung in diesem Bereich vergrößern. Zudem muss gerade für dieses Nuklid jedes Labor entsprechend seiner Messumgebung Korrektionen des Untergrundbeitrages durchführen, die je nach Messeinrichtung unterschiedlich sind, wodurch sich die Streubreite der Ergebnisse erhöht. Der in diesem Ringversuch ermittelte Vergleich-Variationskoeffizient ist gegenüber den aus früheren Ringversuchen erzielten Werten etwas erhöht, vermutlich weil im vorliegenden Ringversuch auf Grund einer anderen Strategie weniger Ausreißer entfernt wurden. Dadurch erweitert sich die Spannbreite der Ergebnisse. So weichen der minimale Datensatzmittelwert um 17,1% und der maximale Datensatzmittelwert um 20,3% vom Gesamtmittelwert ab.

^{131}I

Von den 331 Einzelmessungen in 114 Datensätzen von 70 teilnehmenden Laboren abgegebenen Werten wurden 18 Werte als Ausreißer (13) oder Einzelwert (5) ausgeschlossen (5,4%). Die meisten Ausreißer überschätzten den zugewiesenen Wert. Die Werte der Wiederhol- und Vergleich-Variationskoeffi-

zienten betrugen nur 1,9% bzw. 4,5% und liegen damit nur wenig oberhalb früher erzielter Ergebnisse [61, 62]. Die Spannweite der Ergebnisse schwankt in einem engen Bereich von -9,6% bis 11,6 % um den Gesamtmittelwert. Der Gesamtmittelwert von 215 Bq/l liegt innerhalb des 95 %-Vertrauensbereichs des zugewiesenen Wertes (211 ± 6 Bq/L). Die guten Präzisionsdaten lassen sich u.a. auf die hohe spezifische Aktivität zurückführen. Zudem lässt sich das Gammaspektrum des ^{131}I gut auswerten, da es mehrere ungestörte und eindeutige Photopeaks aufweist.

^{133}Ba

^{133}Ba wurde erstmals in einem Ringversuch der Leitstelle eingesetzt. Von 319 Messwerten in 110 Datensätzen von 67 Teilnehmern wurden 5 Einzelwerte und 13 Ausreißer (zusammen 5,6%) für die Berechnung der Kenndaten nicht berücksichtigt. Der Wiederhol-Variationskoeffizient betrug 2,6% und unterschied sich kaum von den Koeffizienten der anderen γ-emittierenden Nuklide. Der Vergleich-Variationskoeffizient von 6,1% war ebenfalls vergleichbar mit denen der übrigen γ-emittierenden Nuklide. Das Minimum der um Ausreißer bereinigten Ergebnisse war um 16,2% kleiner als der Gesamtmittelwert, das Maximum um 12,6% größer. Bei ^{133}Ba treten Koinzidenz-Summationseffekte auf. Über die Gammalinie bei 356 keV lässt sich ^{133}Ba aber gut bestimmen, wenn die entsprechenden Korrektionen durchgeführt werden. Die ausreißerbereinigten Ergebnisse von Laboren, die eine Summationskorrektion durchgeführt haben (70 Datensätze von 43 Laboren; 10,2 ± 0,5 Bq/l), waren signifikant größer als von den Laboren, die diese Korrektionen nicht angewendet haben (27 Datensätze von 18 Laboren; 9,7 ± 0,5 Bq/l, $P < 0{,}001$). ^{133}Ba wird häufig in Kalibrierstandards verwendet, wodurch eine genaue Auswertung erleichtert wird.

^{134}Cs

Von den 334 Einzelwerten in 115 Datensätze, die von 71 Teilnehmern abgegeben wurden, mussten elf Ausreißer und fünf Einzelwerte entfernt (4,8%) werden. Der Gesamtmittelwert war um 2,8% geringer als der zugewiesene Wert. Die Wiederhol- und Vergleich-Variationskoeffizienten betrugen 1,3% und 5,5% und die Datensatzmittelwerte lagen in einem Bereich zwischen -12% bis +13,2% des Gesamtmittelwertes. Die Unterschätzung des zugewiesenen Wertes bei diesen guten Präzisionsdaten ist zumindest zum Teil auf eine fehlende Korrektion für Summationseffekte bei koinzidenten Gammaphotonen (Summationskorrektion) zurückzuführen. Der Unterschied zwischen den ^{134}Cs-Mittelwerten mit und ohne Summationskorrektion war gering, aber signifikant (22,8 ± 1,1 bzw. 21,7 ± 1,1 Bq/l, $P < 0{,}001$; 70 Datensätze von 40 Teilnehmern mit Summationskorrektion bzw. 31 Datensätze von 23 Teilnehmern ohne Summationskorrektion; ausreißerbereinigte Datensätze).

^{137}Cs

Das Datenkollektiv der ^{137}Cs-Messwerte umfasste vor der Elimination der Ausreißer 334 Einzelmessungen in 115 Datensätzen von 71 Teilnehmern. Der Anteil der Ausreißer und Einzelwerte betrug 3,9%. Der Gesamtmittelwert war nur um 0,5% größer als der zugewiesene Wert. Die Wiederhol- und Vergleich-Variationskoeffizienten betrugen 2,5% und 4,5%. Die Mittelwerte der ausreißerbereinigten Datensätze schwankten nur um ca. 10% um den Gesamtmittelwert. Diese guten Präzisionsdaten sind möglicherweise darauf zurückzuführen, dass dieses Nuklid in allen Laboren, die Radionuklide in Umweltmedien überwachen, routinemäßig erfasst und ausgewertet wird. Zusätzlich ist ^{137}Cs ein Einzelliniennuklid mit einer starken (Emissionswahrscheinlichkeit ca. 85%), ungestörten Gammalinie bei 661,66 keV. Wie ^{133}Ba wird dieses Nuklid auch häufig als Kalibrierstandard benutzt.

Betamessungen

Die Bestimmung von ^{89}Sr wurde von 26 Teilnehmern durchgeführt, ^{90}Sr wurde von 42 Laboren analysiert. ^{89}Sr wurde in 16 Fällen mittels Proportionalzählrohr gemessen, in 12 Fällen mit Flüssigkeitsszintillationszählern (LSC). Für die ^{90}Sr-Bestimmung wurden bei 32 Messungen Proportionalzählrohre und in 12 Fällen LSC-Geräte verwendet. Bei jeweils drei Proben wurden ^{89}Sr und ^{90}Sr mit beiden Gerätearten bestimmt.

^{89}Sr

Es wurden 35 Datensätze mit 92 Einzelwerten abgegeben, vier Einzelwerten und drei Ausreißer (zusammen 7,6% der Werte) wurden entfernt. Die Variationskoeffizienten für Wiederhol- und Vergleichbarkeit betrugen 5,1% bzw. 16,4% und waren damit deutlich größer als bei den γ-emittierenden Nukliden. Die Spannweite der Werte war selbst nach Ausreißereliminierung noch recht groß (-45,2% bis +28,9% des Gesamtmittelwertes). Die große Variation ist durch die im Gegensatz zur Gammaspektrometrie aufwändigere Analytik zu erklären. Der Gesamtmittelwert wich um 2,2% von dem zugewiesenen Wert ab.

^{90}Sr

Für ^{90}Sr wurden von 42 Laboren 52 Datensätze mit 140 Einzelwerten abgegeben. Vier Einzelwerte und 13 Ausreißer wurden entfernt. Diese Quote von 12,1 % war deutlich größer als bei den anderen Nukliden. Die Variationskoeffizienten für Wiederhol- und Vergleichbarkeit waren ähnlich groß wie bei ^{89}Sr und betrugen 5,3 % bzw. 14,8 %. Die Spanne der Werte deckte den Bereich von -24,5 % bis +49,4 % um den Gesamtmittelwert ab. Der Gesamtmittelwert lag knapp 11 % oberhalb des zugewiesenen Wertes. Für die Auswertung des Ringversuchs ist dies allerdings ohne Belang, da die *z*-Werte auf der Basis der Gesamtmittelwerte berechnet wurden.

Zusammenfassung

Der aktuelle Ringversuch der Leitstelle im MRI ist der zehnte Ringversuch mit flüssiger Milch als Probenmaterial. Neben der Bestimmung von γ-emittierenden Nukliden, die routinemäßig in der Überwachung der Umweltradioaktivität untersucht werden, wie ^{137}Cs und das natürlich vorkommende ^{40}K, wurden die nach einem Störfall zu erwartenden Nuklide ^{131}I und ^{134}Cs sowie das in Fallout nicht vorhandene ^{133}Ba bestimmt. Zusätzlich wurden der Milchprobe die Strontiumnuklide ^{89}Sr und ^{90}Sr in einem Verhältnis von 4:1 zugefügt. Die Zugabe der Nuklide (außer ^{40}K) erfolgte in der Weise, die sich in den letzten Jahren selbst bei festem Probenmaterial bewährt hat: jede Probe wurde individuell mit den zu bestimmenden Nukliden versetzt und die Aktivitätskonzentrationen mittels Transformationsfaktoren normiert. Die Zugabe der Nuklide zu einer Probe im flüssigen Zustand begünstigt die homogene Verteilung innerhalb der Probe. Die geringeren Wiederhol- und Vergleich-Variationskoeffizienten der zugesetzten γ-emittierenden Nuklide im Vergleich zu ^{40}K (Tabelle 13.3) bestätigen die Homogenität der Verteilung in der Rohmilchprobe.

Hinsichtlich der Korrektion der Koinzidenzsummation bestätigt sich die Feststellung aus den Ringversuchen der vergangenen Jahre: der Verzicht der Anwendung der Summationskorrektion führt im Mittel zu niedrigeren Werten bei Nukliden mit Summationseffekten. Der zu erwartende Effekt ist bei großen Probenvolumen relativ klein, war jedoch auch in diesem Ringversuch erkennbar. Dies gilt für ^{133}Ba und für ^{134}Cs. Von den 71 Teilnehmern, die gammaspektrometrische Analysen durchgeführt haben, wendeten 46 Labore (65 %) eine Summationskorrektion an. Das sind nur vier Prozentpunkte mehr als beim Ringversuch 2008 [62] mit Rohmilch und sechs Prozentpunkte weniger als im Ringversuch 2012 mit Spinatpulver [63].

Die Ergebnisse der ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Bestimmungen unterscheiden sich kaum von denen früherer Ringversuche [62,63]. Die Ursache für die relativ großen Variationskoeffizienten im Vergleich zu den γ-emittierenden Nukliden liegt hauptsächlich in den zusätzlichen Unsicherheiten, die durch die radiochemische Abtrennung der Strontiumnuklide entstehen, unabhängig davon, welche Methoden zur Messpräparatherstellung verwendet werden. Die Teilnehmerangaben zu den benutzten Methoden zeigten, dass viele unterschiedliche Analysestrategien zur Anwendung kamen. Jedoch waren signifikante Unterschiede in der Richtigkeit oder Streuung der durch die verschiedenen Methoden erzielten Ergebnisse nicht erkennbar.

In Tabelle 13.4 sind die prozentualen Häufigkeiten der *z*-Werte in den Bewertungsklassen für die einzelnen Nuklide aufgeführt.

Nur bei ^{90}Sr fallen 2 % der *z*-Werte, die aus den ausreißerbereinigten Datensätzen ermittelt wurden, in den Bereich „nicht zufriedenstellend“ ($|z| \geq 3$). Bei allen Nukliden sind jeweils mehr als 94 % der *z*-Werte als „zufriedenstellend“ ($|z| \leq 2$) zu bewerten. Deshalb ist das Gesamtergebnis des Ringversuches für alle gemessenen Nuklide als sehr gut zu bewerten.

Tabelle 13.4
Häufigkeit der z-Werte (in %)

z-Wert-Klassen	Nuklide						
	^{40}K	^{89}Sr	^{90}Sr	^{131}I	^{133}Ba	^{134}Cs	^{137}Cs
$\lvert z \rvert \leq 2$	95	97	96	96	97	94	94
$2 < \lvert z \rvert < 3$	5	3	2	4	3	6	6
$\lvert z \rvert \geq 3$	0	0	2	0	0	0	0

14 SCHNELLE BESTIMMUNG DER STRONTIUM-AUSBEUTE SOWIE DER ^{89}SR- UND ^{90}SR-AKTIVITÄTEN BEIM AKTIVITÄTSVERHÄLTNIS 25 DURCH EINE LSC-MESSUNG UND AUSWERTUNG MIT UNCERTRADIO

D. Tait

Max Rubner-Institut, Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch
Leitstelle für Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft

Die Strontiumradionuklide ^{89}Sr ($t_{½}$ = 50,5 Tage) und das für die Dosis besonders relevante ^{90}Sr ($t_{½}$ = 28,81 Jahre) [64] entstehen mit großer Ausbeute durch Kernspaltung z.B. in Kernbrennstäben. Im Inventar eines Kernreaktors nimmt die Aktivität von langlebigen Radionukliden wie ^{90}Sr mit dem Abbrand zu, während sich die Aktivität von kurzlebigen Nukliden wie ^{89}Sr einem Gleichgewichtswert annähert. Das mittlere Aktivitätsverhältnis (^{89}Sr/^{90}Sr) in Kerninventaren eines Kernreaktors beträgt beispielsweise in der Mitte und am Ende einer Betriebsperiode 23,6 bzw. 19,8 [65]. In Kernbrennstäben mit maximalem Abbrand liegt der Wert anfänglich bei 12,3. Nach einem halben Jahr Lagerung fällt er auf ca. 1. Nach Freisetzung bei einem Unfall sind Sr-Nuklide in der Umwelt relativ mobil und werden über die Nahrungskette vom Menschen aufgenommen [66]. Strontium ist chemisch dem Kalzium ähnlich, so dass die aufgenommenen Nuklide im Knochengewebe angereichert werden. Daher ist nach einem Unfall mit Kernspaltmaterial die Überwachung von ^{89}Sr und ^{90}Sr besonders wichtig.

Wegen der stark unterschiedlichen Dosiskoeffizienten [67] der Nuklide ist es erforderlich, die Aktivitätswerte der Einzelnuklide (d.h. ^{89}Sr und ^{90}Sr) in den zu überwachenden Proben zu bestimmen. Auch bei großen (^{89}Sr/^{90}Sr)-Aktivitätsverhältnissen bis ca. 25 müssen die Überwachungsmethoden die Aktivität des radiologisch wichtigeren ^{90}Sr relativ genau bestimmen. Dies wird durch die ähnlichen kernphysikalischen Eigenschaften dieser Nukliden erschwert: beide sind reine Betastrahler, die von der Probe und allen anderen Radionukliden vor der Messung abgetrennt werden müssen. Zusätzlich zerfällt das ^{90}Sr in das ebenfalls radioaktive Tochternuklid ^{90}Y ($t_{½}$ = 2,669 Tage). In einem ursprünglich reinen ^{90}Sr-Präparat nähert sich die Konzentration des ^{90}Y dem radioaktiven Gleichgewicht mit ^{90}Sr (d.h. beide Nuklide haben dann praktisch die gleiche Aktivität) in zwei bis drei Wochen. Die analytische Probleme und einige Lösungsstrategien wurden zusammenfassend beschrieben [68,69,70,71,72].

Die gleichzeitige Bestimmung dieser Nuklide in einer Probe unabhängig vom Zustand des ^{90}Sr/^{90}Y-Gleichgewichtes durch Flüssigkeits-Szintillationsspektrometrie (LSC) wurde bereits beschrieben [73]. Im letzten Leitstellenbericht (Stand 2011 [74]) wurden LSC-Messungen von ^{89}Sr und ^{90}Sr+^{90}Y-Standardlösungen im Aktivitätsverhältnis bis 40 mit Hilfe des Programmes UncertRadio [75] erfolgreich ausgewertet. Dieses Programm beinhaltet ein Modul für die Auflösung der Szintillationsspektren von Nuklidmischungen mit Hilfe einer gewichteten multivariaten linearen „least squares“-Methode und ist ein allgemeines Werkzeug für die Berechnung von Radioaktivitätsmessergebnissen und deren charakteristischen Grenzen (Unsicherheiten, Erkennungs- und Nachweisgrenzen) gemäß DIN ISO 11929 (2010) [76].

Die radiochemische Abtrennung des ^{89}Sr und ^{90}Sr aus der Probe erfordert die Bestimmung der chemischen Ausbeute des Strontiums. Dies wird häufig durch Zugabe einer bekannten Aktivität des Strontiumradiotracers ^{85}Sr zur Probe und anschließender Gammaspektrometrie der charakteristischen Gammalinie bei 514 keV im Messpräparat erreicht. Die Prozedur benötigt einige Stunden Messdauer und im Intensivmessbetrieb würde sie auch wertvolle Gamma-Messkapazität binden. Andererseits erzeugt im Szintillationscocktail gelöstes ^{85}Sr ein gut messbares Szintillationsspektrum, hauptsächlich im Energiebereich weniger als 10 keV. D.h. im Prinzip können die Zählraten des ^{85}Sr, ^{89}Sr und ^{90}Sr mit Hilfe von UncertRadio aus dem LSC-Spektrum einer Mischung der Nuklide ermittelt und die chemische Ausbeute sowie die ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten gleichzeitig und unabhängig vom Zustand des ^{90}Sr/^{90}Y-Gleichgewichtes bestimmt werden.

Dies würde den Zeit- und Arbeitsaufwand bei der ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Bestimmung deutlich verringern. Im Rahmen des IMIS-Intensivmessprogramms wird über die Möglichkeit der Bestimmung des ^{89}Sr und ^{90}Sr innerhalb von 48 Stunden nach Probeneingang diskutiert. Daher prüft die Leitstelle die Möglichkeit der praktischen Umsetzung des Verfahrens.

Es wird hier über die bisherigen Ergebnisse von Tests zur Nutzung dieser Vorgehensweise unter realistischen Bedingungen berichtet. Dabei wurden

Mischlösungen durch Zugabe bekannter Aktivitäten der Radionuklide ^{85}Sr, ^{89}Sr und ^{90}Sr im Gleichgewicht mit ^{90}Y in wässriger Natriumacetat-Pufferlösung hergestellt. Zur Erzeugung eines LSC-Messpräparates wurde das ^{90}Y zuerst aus dem Nuklidgemisch durch Fällung als $Y(OH)_3$ abgetrennt. Aus der ^{90}Y-freien Mutterlauge wurden die Sr-Nuklide als Strontiumcarbonat ($SrCO_3$) gefällt und auf einem Filter gesammelt. Das $SrCO_3$ wurde gelöst, in einem Szintillationsvial mit Szintillationscocktail überführt und das Szintillationsspektrum gemessen. Dies entspricht der in der Leitstelle üblichen Prozedur zur Herstellung eines LSC-Messpräparates aus vorher von einer Probe abgetrenntem ^{90}Sr. Versuche mit den entsprechenden Radiotracern ^{85}Sr und ^{88}Y zeigten chemische Ausbeuten des Strontiums im Bereich 85% bis 97% und einen Dekontaminationsfaktor für das Yttrium von $6{,}1 \cdot 10^3$ (d.h. fast quantitative Entfernung) nach der Hydroxidfällung. Nach dieser Abtrennung wächst die ^{90}Y-Aktivität im Sr-Präparat nach, gemäß der Gleichung:

$$^{90}\text{Sr-Aktivität} \cdot (1 - e^{-\lambda t}),$$

wobei λ die Zerfallskonstante des ^{90}Y und t die Wartezeit zwischen Sr/Y-Abtrennung und Messung sind.

Die Mischlösungen für die Tests wurden mit Standardaktivitäten von ^{89}Sr und ^{90}Sr im Verhältnis 25 zu 1 angesetzt – das größte in [2] betrachtete Verhältnis. Bei diesem Aktivitätsverhältnis jedoch liegt die ^{90}Sr-Aktivität rechnerisch nur geringfügig oberhalb der Nachweisgrenze, wofür die ^{89}Sr-Aktivität maßgeblich ist. Da die ^{90}Sr-Aktivität im Probenmessvial unterhalb der Nachweisgrenze liegen könnte, wurde zusätzlich ein alternatives Verfahren für die ^{90}Sr-Auswertung untersucht. Dieses Verfahren basiert auf der Bestimmung der ^{90}Sr-Aktivität über die Zählrate des nachwachsenden ^{90}Y. Ein Teil des ^{90}Y-Szintillationsspektrums liegt in einem von ^{90}Sr und ^{85}Sr ungestörten und vom ^{89}Sr nur schwach gestörten Energiebereich bei 650 keV bis 970 keV. Es wurde daher geprüft, ob eine ausreichende Nachweiswahrscheinlichkeit innerhalb einer akzeptablen Wartezeit (7 bis 65 Stunden) nach der Sr/Y-Abtrennung in der Praxis erreicht wird.

Vorversuche mit simulierten Mischspektren, die aus Standardspektren der Einzelnuklide ^{85}Sr, ^{89}Sr und ^{90}Sr generiert wurden, zeigten, dass die optimale ^{85}Sr-Zugabe für die Sr-Ausbeutebestimmung mit den für diese Studie geplanten ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten ca. 5 Bq beträgt. Daher wurde allen Testlösungen eine Aktivität von 5,0 Bq ^{85}Sr für die chemische Ausbeutebestimmung zugegeben.

Quellen der Standardlösungen und Aktivitätsnormale

Aktivitätsnormale für ^{85}Sr und ^{89}Sr als Einzelnuklide sowie ^{90}Sr + ^{90}Y im Gleichgewicht wurden von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig bezogen. Die relativen Standardunsicherheiten der zertifizierten Aktivitäten dieser Nuklide betrugen 0,7%, 1,2% bzw. 0,74%. Eine Standardlösung des ^{90}Y wurde von der Fa. Eckert und Ziegler GmbH, Braunschweig gekauft. Die relative Standardunsicherheit betrug in diesem Fall 1,0%. Tabelle 14.1 fasst die Zertifikatsangaben zu möglichen Radionuklidverunreinigungen in den Standardlösungen zusammen.

Tabelle 14.1
Zertifikatsangaben zur Aktivitätsverhältnissen von Verunreinigung und Standardnuklid, A (Verunreinigung) / A (Standardnuklid)

Standardlösung	Mögliche Verunreinigungen	t½ der Verunreinigung	A(Verunreinigung) / A(Standardnuklid)
^{85}Sr	^{84}Rb ^{86}Rb ^{59}Fe	32,8 Tage 18,7 Tage 45,1 Tage	$7{,}9 \cdot 10^{-5}$ $9{,}3 \cdot 10^{-7}$ $1{,}4 \cdot 10^{-5}$
^{89}Sr	^{85}Sr ^{90}Sr	64,85 Tage 28,81 Jahre	$1{,}9 \cdot 10^{-3}$ $< 7{,}1 \cdot 10^{-3}$
^{90}Sr / ^{90}Y	Keine Angaben	-	
^{90}Y	„keine“		

Flüssigkeitsszintillationsmessungen

Die Messungen wurden mit dem TriCarb 3170TR der Fa. Perkin-Elmer im sog. „Low-Level"- Modus durchgeführt. Die Szintillationsvials (Typ „High Performance") waren aus kaliumarmem Glas ebenfalls von der Fa. Perkin-Elmer. Die Temperatur in der Messkammer des LSC lag bei allen Messungen im Bereich 13 °C ± 2 °C. Zugaben von Szintillationscocktail, wässriger Toluolsulfonsäure (zur Lösung von $SrCO_3$), Sr- und Y-Träger sowie Wasser waren in allen Vials gleich, um möglichst gleiche Quenchbedingungen herzustellen.

Vorbereitung von Standards für die Bestimmung der Nachweisvermögens

Die erforderliche Aktivität (meistens 100 Bq) des interessierenden Nuklids wurde durch Pipettierung von 75 µl- bis 450 µl-Aliquotenteile einer wässrigen Standardlösung in ein leeres Szintillationsvial überführt. Dieses Aliquot wurde dann im Umluftofen bei ca. 100°C zur Trockenheit eingedampft. Nach dem Abkühlen wurde der Rückstand in einer Mischung aus 1,0 ml einer 25%igen, wässrigen Toluolsulfonsäurelösung und 1,0 ml einer wässrigen Lösung mit 20 mg Sr- und 10 mg Y-Träger (jeweils als Chloride) gelöst. Danach wurden 19,0 ml des Szintillationscocktails InstaScintGel Plus (von der Fa. Perkin-Elmer) zugegeben. Die Mischung wurde kräftig geschüttelt und vor Beginn der LSC-Messung mindestens 20 Minuten im LSC bei 13 °C ± 2 °C äquilibriert. Vials für die Bestimmung der Untergrundzählraten wurden ohne Aktivitätszugaben aber sonst auf gleiche Weise vorbereitet.

Einstellung der Energiebereiche, Bestimmung der Untergrundzählraten sowie Nachweisvermögen der Standards in diesen Energiebereichen

Unter den o.g. Bedingungen liegen die Szintillationsspektren der Einzelnuklide in den folgenden Energiebereichen:

^{85}Sr: 0,5 bis 10 keV (mit einigen schwachen Emissionslinien bei größeren Energien),

^{89}Sr: 0,5 bis 630 keV (sehr schwache Emissionslinien bei größeren Energien),

^{90}Sr: 0,5 bis 225 keV,

^{90}Y: 0,5 bis 970 keV.

Die Untergrund- (R_0) und Nettozählraten (R_n) des ^{85}Sr, ^{89}Sr, ^{90}Sr sowie des ^{90}Y wurden in den 4 in Tabelle 14.2 aufgelisteten Energiebereichen (A, B, C und D) bestimmt. Dabei wurde die Messung der Nettozählraten in jedem Bereich bis zu einer relativen zählstatistischen Unsicherheit von weniger als 1% durchgeführt. So konnten die erforderlichen LSC-Nachweisvermögen (ε) für die Nuklide in den verschiedenen Bereichen mit möglichst geringer Unsicherheit erreicht werden gemäß

$$\varepsilon_{Nuklid,\ Bereich} = R_{n,\ Nuklid,\ Bereich} / A_{Nuklid},$$

wobei R in s^{-1} und A in Bq berechnet werden.

Die Standards für die Bestimmung der Nachweisvermögen wurden innerhalb weniger Wochen ab dem Zertifikatsreferenzdatum benutzt. Für die Auswertung der LSC-Spektren mit Hilfe von UncertRadio zur gleichzeitigen Bestimmung der ^{85}Sr-Ausbeute sowie der ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten der Proben sind die relevanten Daten in den Energiebereichen A, B und C erforderlich. Zur Bestimmung des ^{90}Sr mit Hilfe des nachwachsenden ^{90}Y werden lediglich die Daten für Energiebereich D benutzt.

Herstellung der Testproben

Testprobenlösungen mit 5,0 Bq ^{85}Sr und den jeweils erforderlichen Ausgangsaktivitäten des ^{89}Sr und ^{90}Sr+^{90}Y wurden durch genaues Pipettieren von Aliquotenteilen der entsprechenden Standardlösungen und Verdünnung in 150 ml einer wässrigen Pufferlösung aus Essigsäure und Natriumacetat (je 0,05 mol /l) hergestellt. Zu dieser Lösung wurden 2 mg inaktiver Strontiumträger (als Strontiumchlorid) zugegeben. Nach einer Äquilibrierungszeit von ca. 20 Minuten wurde der pH-Wert der Lösung durch Zugabe von frisch zubereiteter (carbonatfreier) Natriumhydroxidlösung auf ca. 10,2 eingestellt. Es wurden 0,5 mg inaktiver Yttriumträger zugegeben und die Zeit notiert. Zur Koagulation des unlöslichen aber fast unsichtbaren $Y(OH)_3$ wurde die Lösung 10 Minuten lang gerührt. Nach Filtration durch einen Filter aus Zellulosenitrat (Porendurchmesser 0,45 µm) mit der Hahn'schen Nutsche wurde das $Y(OH)_3$ aus der Lösung entfernt.

Das Filtrat (150 ml) und die Waschlösungen (30 ml) wurden in einem 300 ml Erlenmeyerkolben kombiniert. Zur Fällung des $SrCO_3$ wurden 18 mg inaktiver Sr-Träger und 3 g Ammoniumcarbamat zugegeben. Nach der Auflösung des Ammoniumcarbamats wurde der pH-Wert durch Zugabe von wässriger Natriumhydroxidlösung auf 11,5 eingestellt. Nach einer Stunde im siedenden Wasserbad zur Koagulation des Carbonatniederschlags wurde die Lösung im Eisbad auf Raumtemperatur abgekühlt. Das $SrCO_3$ wurde auf einem Filter aus Zellulosenitrat mit Hilfe der Hahn'schen Nutsche gesammelt und dann mit entionisiertem Wasser mit einer Mischung aus Methanol und Wasser (2:1) gewaschen. Das Filtrat und die Waschlösungen wurden verworfen. Ein Szintillationsvial wurde in einer Wulfsch'en Flasche direkt unter die Filterhalterung mit Filter und Niederschlag gestellt.

Tabelle 14.2

Nachweisvermögen (Ɛ) der 4 relevanten Radionuklide sowie die Untergrundzählraten (R_0) in den Energiebereichen A, B, C, und D

Nuklid	Ɛ (%) bzw. R_0 (Min.$^{-1}$) im Energiebereich (keV)			
	A (0 – 10)	B (10 – 225)	C (225 – 630)	D (650 – 970)
^{85}Sr	24,8	2,01	0,24	0,00
^{89}Sr	1,86	49,8	42,5	0,08
^{90}Sr	6,65	88,1	0,00	0,00
^{90}Y	0,949	31,4	48,1	9,42
Untergrund	1,83	3,56	2,10	0,24

Tabelle 14.3

Auswertung der Szintillationsspektren von Testlösungen mit verschiedenen ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten durch UncertRadio

Zusammensetzung		Proben-anzahl	UncertRadio-Auswertungsergebnis (Bq)		
Nuklid	Bq		Mittelwert	Standard-abweichung	Nachweisgrenze
^{89}Sr ^{90}Sr	12,5 0,50	6	12,5 0,79	0,17 0,20	<0,4 0,51
^{89}Sr ^{90}Sr	50,0 2,0	6	51,0 3,0	0,5 0,9	<0,4 2,0
^{89}Sr ^{90}Sr	100 4,0	6	107 8,9	13,0 4,3	<0,4 4,2
^{89}Sr ^{90}Sr	200 8,0	3	223 18,4	13,0 14,4	<0,4 8,9

Das $SrCO_3$ auf dem Filter wurde in 1,0 ml einer wässrigen Toluolsulfonsäure (25%ig) aufgelöst und die Lösung in das Szintillationsvial unter Vakuum überführt. Der Filter wurde mit 0,5 ml einer wässrigen Lösung mit 10 mg inaktivem Yttriumträger und danach mit 0,5 ml entionisiertem Wasser gewaschen. Beide Waschlösungen wurden in das Szintillationsvial überführt. Nach Zugabe von 19,0 ml InstaScintGel Plus wurde das Vial kräftig geschüttelt und anschließend im LSC-Gerät äquilibriert.

Gleichzeitige Bestimmung der Sr-Ausbeute sowie der ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten in den Testproben mit UncertRadio

Zur Berechnung der Ergebnisse benötigt das Programm UncertRadio folgende Eingaben: Den Zeitabstand zwischen Sr/Y-Abtrennung (s), Messdauer (s), die Nettoimpulszahlen in den Energiebereichen A, B und C aus der LSC-Messung sowie die ^{85}Sr-Aktivitätszugabe bei der Testprobe. Zusätzlich werden die Zerfallskonstanten für ^{85}Sr, ^{89}Sr, ^{90}Sr und ^{90}Y (s^{-1}) zusammen mit den Nachweisvermögen dieser Nuklide mit den Standardunsicherheiten in den Energiebereichen A,B und C benötigt

Bestimmung des ^{90}Sr mittels des nachwachsenden ^{90}Y

Die Werte für Ɛ und R_0 im vierten Energiebereich D sind in Tabelle 14.3 angegeben. Aus der Bruttozählrate der Probe im Bereich D ($R_{b,D}$) wird die Nettozählrate des nachgewachsenen ^{90}Y ($R_{n,\,^{90}Y,D}$) zum Zeitpunkt der Probenmessung mit Gleichung 1 ermittelt:

$$R_{n,\,^{90}Y,D} = R_{b,D} - [R_{0,D} + (A_{^{89}Sr} \cdot \varepsilon_{^{89}Sr,D} \cdot \eta_{Sr})]$$

wobei $R_{0,D}$ die Untergrundzählrate (s^{-1}), $\varepsilon^{89}_{Sr,D}$ das Nachweisvermögen ($Bq^{-1}\ s^{-1}$) für ^{89}Sr im Bereich D und η_{Sr} die chemische Ausbeute des Sr darstellen. Die in diesen Versuchen eingesetzten ^{85}Sr- und ^{90}Sr-Standardaktivitäten ergeben keine signifikanten Zählraten im Energiebereich D.

Die zu erwartende ^{90}Y-Aktivität beim Erreichen des säkularen Gleichgewichts mit ^{90}Sr, und daher die ^{90}Sr-Aktivität in der Probe, wird mit Gleichung 2 berechnet.

$$A_{^{90}Y} = A_{^{90}Sr} = R_{n,\,^{90}Y,D} / \varepsilon_{^{90}Y,D} \cdot \eta_{Sr} \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

wobei $\varepsilon_{^{90}Y,D}$ das Nachweisvermögen ($Bq^{-1}\ s^{-1}$) für ^{89}Sr im Bereich D, λ die Zerfallskonstante des ^{90}Y (h^{-1}), und t das Zeitintervall von der Sr/Y-Abtrennung bis zur Messung (h) darstellen.

Ergebnisse

Tabelle 14.2 fasst die Ergebnisse der Bestimmungen der Nuklidnachweisvermögen sowie die Untergrundzählraten in den benutzten Energiebereichen zusammen. Die Angaben sind Mittelwerte von mindestens 10 Wiederholungsmessungen. Aus Gründen der Übersichtlichkeit sind die relativen Standardabweichungen nicht gezeigt. Für die Nachweisvermögen lagen diese deutlich unterhalb von 1 %, außer bei ^{90}Y und ^{90}Sr im Energiebereich A (beide 1,5 %) sowie ^{85}Sr im Energiebereich C (2,5 %). Die relativen Standardabweichungen für die Untergrundzählraten in den Bereichen A, B, C, und D betrugen 2,0 %, 4,5 %, 6,7 % bzw. 4,0 %.

Die zugegebenen ^{89}Sr- und ^{90}Sr-Aktivitäten in den unterschiedlichen Testlösungen sind in der linken Spalte von Tabelle 14.3 aufgelistet. Aus den durch Bearbeitung dieser Lösungen gewonnenen Szintillationsspektren wurden die Zählraten in den Bereichen A, B und C registriert. Diese Zählraten dienten als Probeeingabedaten für die UncertRadio-Auswertung. Die Ergebnisse für ^{89}Sr und ^{90}Sr sind in den rechten Spalten der Tabelle zusammengefasst. Die Tabelle gibt die Mittelwerte und Standardabweichungen aus den Analysen von mehreren gleichen Testlösungen sowie Nachweisgrenzen gemäß DIN ISO 11929 an.

Die Zählraten dieser Szintillationsspektren im Bereich D wurden zur Bestimmung der ^{90}Sr-Aktivitäten über das nachwachsende ^{90}Y gemessen. Einige der LSC-Vials wurden vor der Messung etwas länger als üblich stehen gelassen, um das Nachwachsen eines größeren ^{90}Y-Anteils zu ermöglichen und die Auswertung zu begünstigen. Die in Tabelle 14.4 angegebenen Mittelwerte und Standardabweichungen ergeben sich daher aus der Auswertung der Spektren von denselben LSC-Vials, die für die UncertRadio-Auswertung benutzt wurden, aber mit unterschiedlichen Zeitabständen zwischen Sr/Y-Abtrennung und Messung.

Zusammenfassung

Die tSIE-Werte sämtlicher Messungen lagen in einem kleinen Schwankungsbereich. Daher sind keine quenchbedingte Variationen der Messwerte zu erwarten. Dies wird durch die gute Übereinstimmung aller Wiederholungsmessungen der Standards bei den Bestimmungen des Nachweisvermögens (Tabelle 14.2) bestätigt. Bei diesen Bestimmungen wurden die Messungen mindestens 10-mal mit einer Messdauer von jeweils 200 Minuten wiederholt. Diese Beobachtung bestätigt zusätzlich, dass die Gesamtmessbedingungen über mindestens einige Tage konstant bleiben.

Die mit UncertRadio berechneten chemischen Ausbeuten lagen im plausiblen Bereich von 85 bis 97 %. Wie in Tabelle 14.3 gezeigt, stimmen die berechneten Werte für die ^{89}Sr-Aktivität in allen Fällen mit den zugegebenen Aktivitäten überein. Die größte Abweichung zwischen den berechneten und zugegebenen Aktivitäten wurde bei den Proben mit einer Zugabe von 200 Bq ^{89}Sr (11 % Diskrepanz) beobachtet. Die ^{90}Sr-Auswertungen mit UncertRadio hingegen sind im Allgemeinen deutlich ungenauer, insbesondere bei den Proben mit der größten ^{89}Sr-Zugabe (200 Bq). Hier wurden große Diskrepanzen zwischen berechneten und zugegebenen Aktivitäten gefunden. Bei den Proben mit ^{90}Sr-Aktivitätszugaben von 0,5 Bq, 2,0 Bq, 4,0 Bq und 8,0 Bq lagen die Abweichungen der mit UncertRadio ermittelten Mittelwerte bei 60 %, 50 %, 120 % bzw. 130 %. Die großen relativen Standardabweichungen der Mittelwerte von 25 %, 30 %, 48 % bzw. 78 % spiegeln die starke Variation bei den Einzelwerten wider.

Andererseits stimmen die über das nachwachsende ^{90}Y berechnete ^{90}Sr-Werte in Tabelle 14.4 mit den zugegebenen Aktivitäten gut überein und die relativen Standardabweichungen sind im Vergleich zur UncertRadio-Auswertung relativ klein. Dies verdeutlicht die bessere Ergebnisqualität bei dieser Art der ^{90}Sr-Auswertung. Genaue Ergebnisse wurden auch bei Wartezeiten unter 20 Stunden zwischen Sr/Y-Abtrennung und Messung erzielt. Auffällig ist lediglich, dass die Werte eher die zugegebenen ^{90}Sr-Aktivitäten überschätzen. Die Blindwert-Aktivitäten von ^{89}Sr und ^{90}Sr betrugen weniger als 0,014 Bq bzw. 0,012 Bq.

Die Nutzung von UncertRadio zur Sr-Ausbeute- und ^{89}Sr-Aktivitätsberechnung mit anschließender Berechnung der ^{90}Sr-Aktivität über das nachgewachsene ^{90}Y liefert ausreichend genaue Ergebnisse bei ^{89}Sr/^{90}Sr-Aktivitätsverhältnissen von 25 in für den Ereignisfall relevanten Aktivitätsbereichen. Wartezeiten zwischen Sr/Y-Abtrennung und Messung von ca. 10 bis 20 Stunden reichen für die ^{90}Sr-Bestimmung auf diesem Weg aus. Allerdings müssen die erforderlichen, aufwändigen Kalibrierungen sorgfältig und unter Berücksichtigung möglicher Verunreinigungen der Standards im Voraus durchgeführt werden.

Wahrscheinlich wird bei kleineren ^{89}Sr/^{90}Sr-Aktivitätsverhältnissen die ^{90}Sr-Bestimmung mit UncertRadio genauer. Untersuchungen zu diesem Aspekt sowie zu den oberen Grenzen der ^{90}Sr-Bestimmung über das nachgewachsene ^{90}Y sind geplant.

Tabelle 14.4

Auswertung des ^{90}Sr über nachgewachsenes ^{90}Y im Energiebereich D der Szintillationsspektren (Testlösungen wie bei Tabelle 3, jedoch unterschiedliche Zeitabstände zwischen Sr/Y-Abtrennung und Messung)

eingesetzte Aktivitäten (Bq) ^{89}Sr / ^{90}Sr	Mittelwert ^{90}Sr (Bq)	Standard-abweichung (Bq)	Anzahl der Messwerte	Bereich der Zeitabstände zwischen Sr/Y-Abtrennung und Messung (Stunden)
12,5 / 0,50	2,3	0,8	6	6,9 bis 62,8
50 / 2,0	0,5	0,13	8	15,4 bis 64,6
100 / 4,0	4,4	1,0	11	7,7 bis 23,4
200 / 8,0	7,3 u. 7,4	--	2	11,4 bis 18,4

15 UNTERSUCHUNG ZUM TRANSFERVERHALTEN DER STÖRFALLRELEVANTEN RADIONUKLIDE CÄSIUM UND STRONTIUM BEI DER HERSTELLUNG VON BIOETHANOL

G. Haase

Max Rubner-Institut, Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch
Leitstelle für Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft

Einleitung

Die folgende Untersuchung wurde durch offene Fragen im Maßnahmenkatalog [54] angeregt. Der Maßnahmenkatalog beschäftigt sich mit Maßnahmen zur Verringerung der Strahlenexposition nach Ereignissen mit nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen, die im Zusammenhang mit einem Störfall oder Unfall in einer in- oder ausländischen kerntechnischen Anlage zum Schutz der Bevölkerung von den zuständigen Behörden ergriffen bzw. empfohlen werden können, wenn bei diesem Ereignis radioaktive Stoffe in nennenswertem Umfang freigesetzt werden oder radiologische Auswirkungen in der Bevölkerung zu erwarten sind. Der Maßnahmenkatalog wurde im Auftrag des damaligen Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) in Zusammenarbeit mit dem Technischen Überwachungsverein (TÜV) Rheinland/Berlin-Brandenburg, der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH und dem Fachbereich für Strahlenhygiene des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erarbeitet. Die erste Version des Maßnahmenkataloges wurde im Juni 1992 und eine zweite überarbeitete Version im Oktober 1999 fertig gestellt. Der Maßnahmenkatalog wurde 2005-07 um den in einer Arbeitsgruppe des Ausschusses Notfallschutz der Strahlenschutzkommission erarbeiteten Teil „Behandlung und Entsorgung kontaminierter landwirtschaftlicher Produkte“ ergänzt.

Mit dieser Ergänzung des Maßnahmenkatalogs wird auch die Frage nach der Kontamination von Getreide und Mais gestellt und der Möglichkeit diese noch wertschöpfend im Rahmen der Bioethanolproduktion einzusetzen. Daher soll in dieser Arbeit das Transferverhalten der störfallrelevanten Radionuklide Cäsium und Strontium in Bioethanol untersucht werden.

Die Untersuchungen sollen Klarheit darüber erbringen, in welchem Ausgangs-, Zwischen- oder Endprodukt die Aktivität der Nuklide wiedergefunden wird und somit die Herstellung von Bioethanol zulässt.

Die durchschnittlichen Stärkegehalte unterschiedlicher Getreidesorten, die hauptsächlich zur Bioethanolerzeugung eingesetzt werden und untersucht wurden:

Weizen	60 - 62 % FM
Roggen	56 - 58 % FM
Gerste	52 - 57 % FM
Hirse	62 - 65 % FM
Mais	62 - 65 % FM

Herkunft der Enzyme und Hefe

Die benötigten Enzympräparate wurden von der Internetversandfirma "www.herstellerangebote.de" bezogen. Hierbei handelte es sich um ein Getreidemaische-Verflüssiger Enzympräparat zur Verflüssigung von Getreidestärke und um ein Getreidemaische-Verzuckerer Enzympräparat zur Verzuckerung von Getreide- und Kartoffelmaischen. Die Trockenreinzuchthefe zur Vergärung der verzuckerten Maische und ein Alkoholometer mit 250 mm Gesamtlänge zum Messen von 0 - 100 Vol.-% in einem Alkohol-Wassergemisch wurden auch von obiger Firma bezogen.

Probenherkunft

Das Getreide wurde aus unterschiedlichen Quellen bezogen. Der Weizen stammt aus Futterbeständen des Versuchsgut Schädtbek, während die anderen Getreidesorten und der Mais von der Großhandelsfirma "Tausend Körner Markt" in Kiel stammen.

Probenaufbereitung (s. Abbildung 15.1)

Die Körner des Getreides und der Mais wurden in einer Mühle zu einem feinen Mehl gemahlen. 800 g des jeweiligen Mehls, 3 l Leitungswasser und 200 - 3000 Bq Aktivität des entsprechenden Nuklids kamen in den Ansatz. Diese Art der Kontamination entspricht einer oberflächlichen Beaufschlagung mit Radionukliden auf den Pflanzen, wie sie nach einem Störfall oder Unfall in einer in- oder ausländischen kerntechnischen Anlage vorliegen kann. Zwei Plastikbehälter mit großem Schraubverschluss wurden mit je 400 g Getreide-/Maismehl, 1,5 l Wasser und der entsprechenden Aktivität befüllt und durch starkes Schütteln vermischt. Beide Behälter wurden in einem Wasserbad auf 65° C erwärmt und alle 10 min aufgeschüttelt, damit sich kein Bodensatz absetzt und eine gleichmäßige Erwärmung gewährleistet war. Beim Erreichen von 65° C wurde der Verflüssiger in die Behälter gegeben und 60 Minuten gehal-

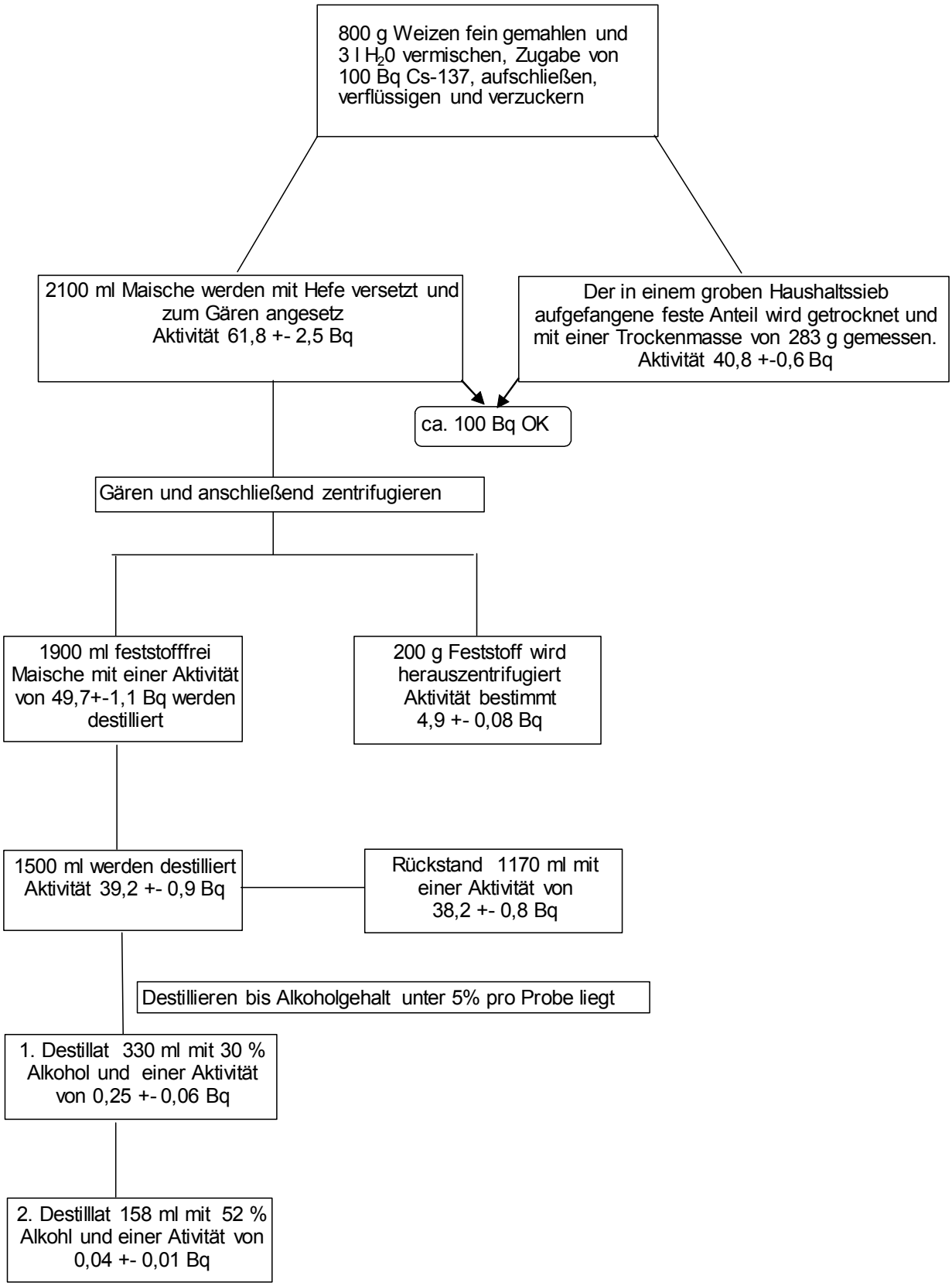


Abbildung 15.1
Fließschema zum Versuchsablauf an einer Beispielprobe

ten. Ein Durchschütteln der Behälter alle 10 min sorgte für eine gute Verteilung des Verflüssigers und der Temperatur. Danach kühlten die Behälter im Wasserbad auf 55°C ab. Bei 55°C wurde der Verzuckerer dazugegeben und 60 min gehalten. Auch hierbei wurden die Behälter alle 10 min durchgeschüttelt, um eine gute Verteilung des Verzuckerers und der Temperatur zu gewährleisten. Anschließend wurde die Maische auf Zimmertemperatur abgekühlt und die groben Bestandteile mit einem Haushaltssieb aufgefangen. Die restlichen festen Bestandteile wurden mit einer Zentrifuge abgetrennt. Die flüssigen und die festen Bestandteile wurden direkt nach dem Zentrifugieren gammaspektrometrisch gemessen. Später wurde die flüssige Maische mit der Trockenreinzuchthefe, die zuvor mit 30°C warmen Wasser angesetzt wurde, vermischt. Dieses Gemisch wurde in einen Gärballon umgefüllt und mit einem Gärröhrchen verschlossen. Der anschließende Gärprozess unter Luftabschluss, bei dem Zucker in Bioethanol umgesetzt wurde, dauerte ca. 3-4 Tage.

Bei der alkoholischen Gärung werden vorwiegend Einfachzucker in Gegenwart von Hefepilzen zu Ethanol und Kohlendioxid abgebaut. Die Enzyme der Hefepilze ermöglichen den biochemischen Gärungsprozess, der auch als Fermentation bezeichnet wird:

$$C_6H_{12}O_6 \rightarrow 2\ C_2H_5OH + 2\ CO_2$$

Glucose > Ethanol + Kohlenstoffdioxid

Tabelle 15.1
^{137}Cs-Aktivität in der Getreide- und Maismaische vor der Destillation

Getreide	Maische ml	Messwert Bq/l
Weizen	1900	26,16 ± 0,58
Weizen	2960	199,58 ± 3,69
Roggen	2240	59,42 ± 0,37
Roggen	2840	67,20 ± 0,89
Gerste	2170	204,72 ± 3,96
Gerste	2365	224,54 ± 4,34
Hirse	2730	48,47 ± 0,65
Hirse	2800	44,69 ± 0,58
Mais	2030	55,44 ± 0,70
Mais	1980	57,05 ± 0,75

Tabelle 15.2
^{85}Sr-Aktivität in der Getreide- und Maismaische vor der Destillation

Getreide	Maische ml	Messwert Bq/l
Weizen	2440	521,47 ± 1,14
Weizen	2760	465,37 ± 0,96
Roggen	2840	672,02 ± 12,89
Roggen	1825	86,02 ± 1,67
Gerste	2365	224,54 ± 4,34
Gerste	2170	204,72 ± 3.96
Hirse	2620	102,78 ± 1,89
Hirse	2240	302,86 ± 5,58
Mais	2533	338,81 ± 0,68
Mais	2020	403,58 ± 0,77

Destillieren

Ein 2,5 l großer Glasrundkolben wurde mit der Maische befüllt und mit Hilfe eines Heizpilzes auf Siedetemperatur gebracht. Ein angeschlossener Kühler mit einer Wasserkühlschlange von 40 cm Länge endete in einem Becherglas, welches zum Auffangen des Destillats diente. Es wurden Destillate mit einem Ethanolgehalt von 10 % - 53 % erhalten. Die Ethanolanteile im Destillat waren sehr stark von der Getreidesorte abhängig.

Matrix	Ethanolgehalt [%]
Weizen	42-52
Roggen	20-50
Gerste	46-53
Hirse	10-25
Mais	30-46

Die Schwankung der Ethanolgehalte kann unter anderem auch daran gelegen haben, dass während des Versuchs die Enzyme und die Hefe nachbestellt werden mussten, die aus einer andern Charge waren, was sich unter anderem auch durch die veränderte Konsistenz zeigte.

Tabelle 15.3
^{137}Cs-Aktivität im Destillat von Getreide und Mais mit Angabe des Ethanolgehalts

Getreide	Destillat ml	Ethanol %	Aktivität Bq/ml	Messwert/NWG
Weizen	158	52	0,00024 ± 0,00007	Messwert
Weizen	308	43	0,00029 ± 0,00009	Nachweisgrenze
Roggen	325	42	0,00016 ± 0,00011	Messwert
Roggen	285	50	0,00028 ± 0,00017	Nachweisgrenze
Gerste	305	46	0,00077 ± 0,00013	Messwert
Gerste	275	50	0,00017 ± 0,00009	Nachweisgrenze
Hirse	270	10	0,00015 ± 0,00002	Nachweisgrenze
Hirse	260	12	0,00023 ± 0,00001	Nachweisgrenze
Mais	415	30	0,00041 ± 0,00001	Nachweisgrenze
Mais	380	42	0,00049 ± 0,00022	Nachweisgrenze

Tabelle 15.4
^{85}Sr-Aktivität im Destillat von Getreide und Mais mit Angabe des Ethanolgehalts

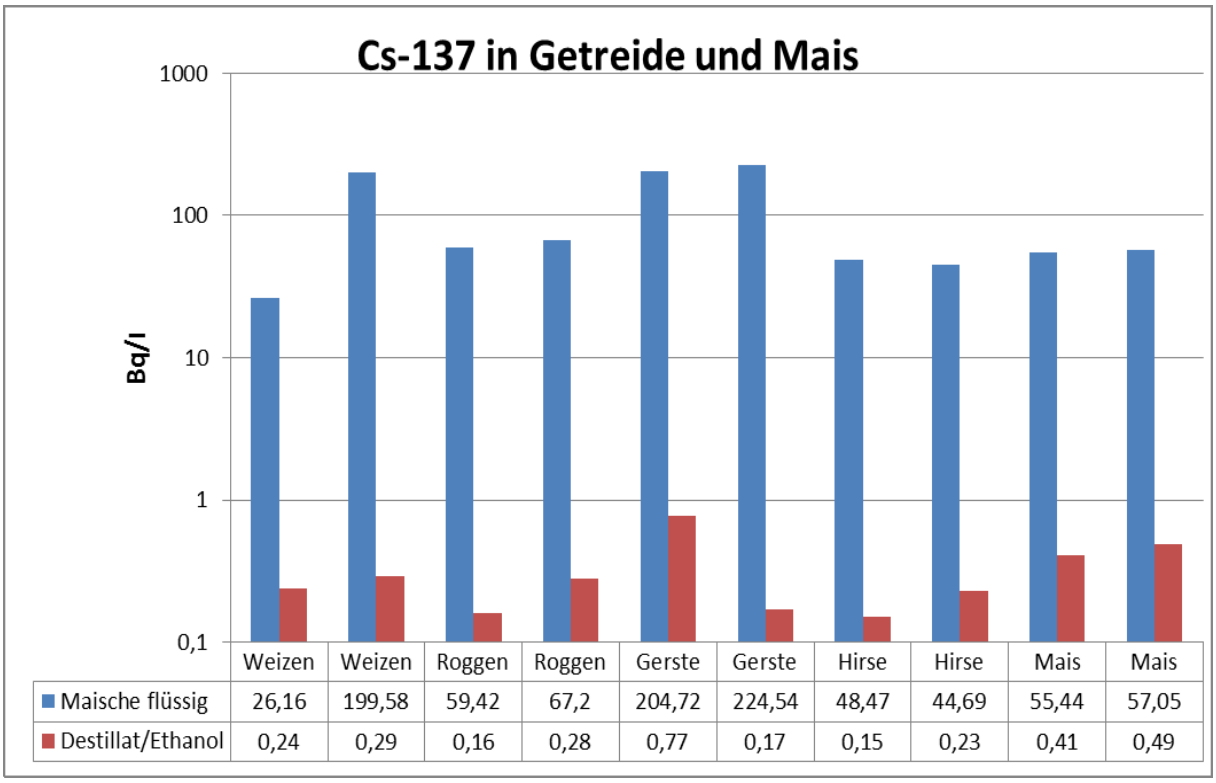
Getreide	Destillat ml	Ethanol %	Aktivität Bq/ml	Messwert/NWG
Weizen	455	42	0,00019 ± 0,00026	Nachweisgrenze
Weizen	200	50	0,00031 ± 0,00005	Nachweisgrenze
Roggen	245	26	0,00061 ± 0,00029	Nachweisgrenze
Roggen	295	20	0,00128 ± 0,00039	Nachweisgrenze
Gerste	310	50	0,00029 ± 0,00023	Nachweisgrenze
Gerste	230	53	0,00027 ± 0,00022	Nachweisgrenze
Hirse	60	25	0,00075 ± 0,00047	Nachweisgrenze
Hirse	140	20	0,00054 ± 0,00020	Nachweisgrenze
Mais	390	46	0,00016 ± 0,00017	Nachweisgrenze
Mais	365	32	0,00039 ± 0,00030	Nachweisgrenze

Beschreibung der Gammamessung

Bei den verwendeten Nuklidstandards handelte es sich bei ^{137}Cs um einen Standard der Physikalisch - Technischen Bundesanstalt in Braunschweig und bei ^{85}Sr um Standards der Perkin Elmer, Life and Analytical Sciences. Das Destillat wurde gammaspektrometrisch gemessen. Hierzu wurde die Maische und das Destillat in einer geeichten Messgeomtrie mit bis zu 120 Stunden Messzeit erfasst. Folgende Volumina mit 50, 100 und 150 Millilitern wurden in den Küvetten verwendet, da die Ausbeute an verwertbarem Destillat von 60-455 ml schwankte. Die Messgeometrie für die Maische wurde mit einem Marinelli-Becher (Volumen ein Liter) realisiert, da hier genügend Probenmenge vorhanden war. Die Efficiency der Gammadetektoren lag bei ca. 25 - 40 %. Die Auswertung der Gammaspektren wurde mit dem Programm Genie 2000 der Firma CANBERRA GmbH durchgeführt. Für die Versuche wurden die Aktivitäten von 100-3000 Bq pro Maischeansatz variiert, um so auch eine Aussage für höher kontaminierte Getreide und Mais zu erhalten. In den Tabellen 15.1 und 15.2 sind für die Gammanuklide ^{137}Cs und ^{85}Sr und für Weizen, Roggen, Gerste, Hirse und Mais die Aktivitäten pro Liter Maische, die zur Destillation heran gezogen wurde, dargestellt.

In den Tabellen 15.3 und 15.4 sind die Ausbeuten der Destillate von Getreide und Mais mit den entsprechenden Ethanolgehalten und Aktivitäten aufgeführt. Zusätzlich ist eine Tabellenspalte angehängt, die Auskunft darüber gibt, ob ein echter Messwert oder eine Nachweisgrenze gemessen wurde.

In den Abbildungen 15.2 und 15.3 wurden die Hauptergebnisse zusammengefasst. Es wurden die Aktivitäten in der flüssigen Maische den im Ethanol/Destillat gemessenen Aktivitäten gegenübergestellt. Die Radioaktivität von Cäsium und Strontium lag im Ausgangsmaterial (800 g Getreide, 3 l Wasser) bei 200 - 3000 Bq Aktivität. Im Destillat mit einem Alkoholgehalt bis zu 53 % wurden fast ausschließlich Nachweisgrenzen gemessen. Mit den gemessenen Aktivitäten/Nachweisgrenzen im Destillat in Bezug auf die eingesetzte Ausgangsaktivität ließ sich für Cäsium ein Transfer von 0,1 - 1,0 Prozent und für Strontium ein Transfer von 0,04 - 1,5 Prozent abschätzen. Da diese Abschätzung hauptsächlich mit Nachweisgrenzen erfolgt ist, wird der wahre Transfer sicher noch kleiner sein. Dieses Ergebnis wurde noch durch die Tatsache unterstützt, dass der Hauptanteil (nahezu 100 %) der Radioaktivität in der wässrigen und festen Phase der Maische gefunden wurde. Mit den in diesem Projekt bestimmten Transferfaktoren wäre also eine Wertschöpfung des Getreides im Rahmen einer Herstellung von Bioethanol nach einer radioaktiven Kontamination in Bezug auf Cäsium und Strontium möglich, da keine oder nur sehr geringe Aktivitäten in den Bioethanol übergehen.

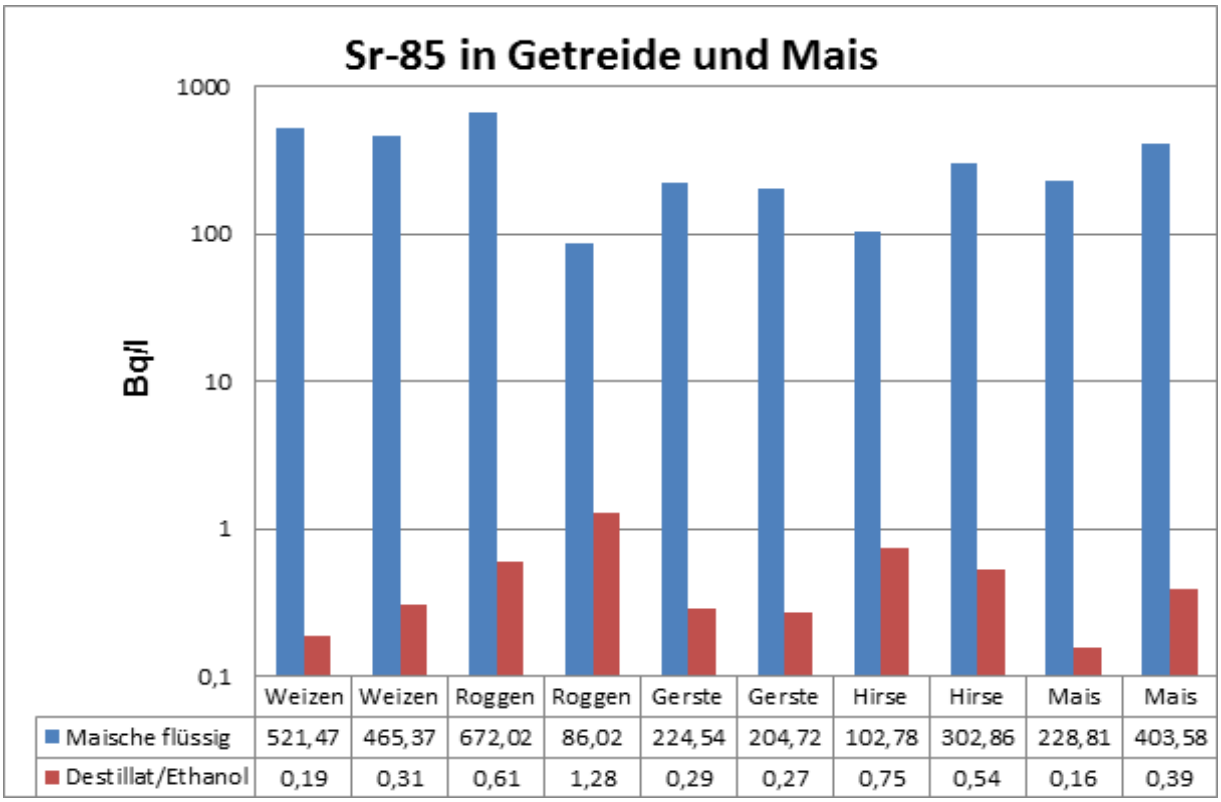


	Weizen	Weizen	Roggen	Roggen	Gerste	Gerste	Hirse	Hirse	Mais	Mais
Maische flüssig	26,16	199,58	59,42	67,2	204,72	224,54	48,47	44,69	55,44	57,05
Destillat/Ethanol	0,24	0,29	0,16	0,28	0,77	0,17	0,15	0,23	0,41	0,49

Quelle: Max Rubner-Institut

Abbildung 15.2

Logarithmische Darstellung der ^{137}Cs-Aktivitäten in der Maische und dem Ethanol/Destillat



	Weizen	Weizen	Roggen	Roggen	Gerste	Gerste	Hirse	Hirse	Mais	Mais
Maische flüssig	521,47	465,37	672,02	86,02	224,54	204,72	102,78	302,86	228,81	403,58
Destillat/Ethanol	0,19	0,31	0,61	1,28	0,29	0,27	0,75	0,54	0,16	0,39

Abbildung 15.3

Quelle: Max Rubner-Institut

Logarithmische Darstellung der ^{85}Sr-Aktivitäten in der Maische und dem Ethanol/Destillat

16 RADIOAKTIVE STOFFE IN ABWASSER, KLÄRSCHLAMM UND ABFÄLLEN

K. Schmidt, C. Wittwer

Bundesamt für Strahlenschutz
Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen

Radioaktive Stoffe in Abfällen

Unter dem Begriff "Abfälle" werden an dieser Stelle nicht nur "Abfälle" (zur Beseitigung) sondern auch wieder verwertbare Reststoffe verstanden, da Abfälle je nach Art der Behandlung auch wieder einer Nutzung zugeführt werden können. Zu überwachen sind nach dem Messprogramm für den Normalbetrieb folgende Medien:

- Sickerwasser und oberflächennahes Grundwasser von Hausmülldeponien,
- Asche, Schlacke, feste und flüssige Rückstände aus Rauchgasreinigungen von Verbrennungsanlagen für Klärschlamm und Hausmüll, sowie
- in den Handel gelangender Kompost aus Kompostierungsanlagen.

Tabellen mit Messwerten von ^{60}Co, ^{137}Cs, ^{40}K, ^{131}I und ^{3}H (Tritium) in den genannten Medien sind in den Jahresberichten „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ des BMUB [13] enthalten.

Tritium im Sickerwasser bzw. oberflächennahen Grundwasser von Hausmülldeponien stammt vorwiegend aus Altlasten der Uhren- und Gerätefertigung. Die Konzentrationsbereiche lagen in den Jahren 2011 bis 2013 zwischen 4,3 und 580 Bq/l, die Mediane lagen bei 20, 24 und 17 Bq/l.

In zahlreichen Proben von Flugasche/Filterstaub aus Verbrennungsanlagen konnte das in der Nuklearmedizin angewandte Nuklid ^{131}I nachgewiesen werden. Die Messwerte lagen in den Jahren 2011 bis 2013 zwischen 0,21 bis 41 Bq/kg TM. Die spezifischen Aktivitäten des natürlich vorkommenden Nuklids ^{40}K lagen in diesem Zeitraum im Bereich von 31 bis 3600 Bq/kg TM. In den festen Rückständen der Rauchgasreinigung (vorwiegend Klärschlammverbrennungsanlagen) findet eine starke Anreicherung von ^{131}I statt; es wurden Werte von 0,27 bis zu 550 Bq/kg TM festgestellt.

Abgesehen von diesen Nukliden ist festzustellen, dass der Gehalt an ^{137}Cs in Reststoffen und Abfällen weiterhin durch den Fallout nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl bestimmt wird. Dies kommt wie auch bei Klärschlamm durch höhere Werte östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell-Eichstätt-Regensburg-Zwiesel im Vergleich zur übrigen Bundesrepublik Deutschland zum Ausdruck. Die Mediane für Flugasche/Filterstaub aus Verbrennungsanlagen lagen in den Jahren 2011 bis 2013 in den schwächer belasteten Gebieten bei 15, 15 und 17 Bq/kg TM, in den höher belasteten Gebieten bei 290, 210 und 110 Bq/kg TM.

Radioaktive Stoffe in Abwasser und Klärschlamm

Abwässer wurden nicht in ihrer ursprünglichen Beschaffenheit (Rohabwässer) sondern stets als gereinigte kommunale Abwässer (Klarwässer) aus den Abläufen der Kläranlagen untersucht. Auch die Messwerte für Klärschlämme beziehen sich vorzugsweise auf konditionierte oder stabilisierte Schlämme in der Form, in der sie die Kläranlagen verlassen bzw. in die Klärschlammverbrennung gegeben werden, z. B. auf teilentwässerte Schlämme (Zentrifugenkuchen), Faulschlämme usw.

In Tabelle 16.1 sind die ausgewerteten Messdaten der amtlichen Messstellen der Bundesrepublik Deutschland exemplarisch für das Jahr 2013 zusammengestellt, für die übrigen Jahre wird auf die Jahresberichte „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ des BMUB [12,13,14] verwiesen. Angegeben wird jeweils die Anzahl der untersuchten Proben, die Zahl der untersuchten Proben mit Werten unterhalb der Nachweisgrenze, die tatsächlich bestimmten Minimal- und Maximalwerte, arithmetische Mittelwerte und zusätzlich die Mediane der Gehalte an ^{60}Co, ^{137}Cs, ^{40}K, ^{131}I, ^{90}Sr sowie von ^{234}U, ^{235}U und ^{238}U.

Die Konzentrationen bzw. spezifischen Aktivitäten der natürlichen Radionuklide ^{40}K, ^{234}U, ^{235}U und ^{238}U in Abwasser und Klärschlamm lagen im bekannten Bereich. Anwendernuklide, wie das hauptsächlich in der Nuklearmedizin eingesetzte ^{131}I wurden nur in einem Teil der Abwasser- und Klärschlammproben festgestellt, in Einzelfällen auch ^{99m}Tc, ^{201}Tl und ^{202}Tl. Die Messwerte für ^{131}I lagen in den Jahren 2011 bis 2013 zwischen 0,62 und 1500 Bq/kg TM (Median für Klärschlamm 2013: 31 Bq/kg TM).

Von den infolge des Kernkraftwerkunfalls in Tschernobyl 1986 in die Umwelt gelangten Spalt- und Akti-

Tabelle 16.1
Allgemeine Überwachung von Abwasser und Klärschlamm 2013

Land	Nuklid	Anzahl		Minimal-werte[1]	Maximal-werte[1]	Mittel-/ Einzel-werte[1]	Mediane
		Gesamt	<NWG				
Abwasser aus Kläranlagen, Ablauf (Bq/l)							
Deutschland	^{40}K	400	179	0,11	11	0,86	0,71
	^{60}Co	400	400				<0,024
	^{131}I	362	226	0,012	16		<0,096
	^{137}Cs	400	392	0,0013	0,013		<0,021
	^{90}Sr	71	31	0,00051	0,05	0,0067	<0,0061
	^{234}U	63	13	0,00008	0,067	0,0097	0,0059
	^{235}U	63	54	0,000079	0,0017		0,0011
	^{238}U	64	14	0,0001	0,12	0,0095	0,0056
Klärschlamm (Bq/kg TM)							
Deutschland	^{40}K	358	0	10	1000	180	140
	^{60}Co	358	357			2,7	<0,55
	^{131}I	330	30	0,72	1100	63	31
	^{137}Cs	358	53	0,1	53	4,6	2,3
	^{90}Sr	58	7	0,44	28	2,2	1,3
	^{234}U	56	0	10	240	51	33
	^{235}U	78	21	0,48	15	3,4	3,6
	^{238}U	77	6	10	170	49	36
Deutschland (Nord[2])	^{60}Co	326	325	2,7	2,7		<0,52
	^{137}Cs	326	53	0,1	24	2,8	2,1
	^{90}Sr	56	7	0,44	28	2,2	1,3
Deutschland (Süd[3])	^{60}Co	32	32				<1,1
	^{137}Cs	32	0	4,6	53	20	13
	^{90}Sr	2	0	0,92	3	1,9	1,9

1) Liegen mehr als 50% der gemessenen Werte unterhalb der Nachweisgrenze, werden nur der Minimalwert und der Maximalwert angegeben. Der arithmetische Mittelwert wurde aus den Messwerten ohne Berücksichtigung der Nachweisgrenzen errechnet.

2) nördlich bzw. westlich der Linie Radolfzell-Eichstätt-Regensburg-Zwiesel

3) östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell-Eichstätt-Regensburg-Zwiesel

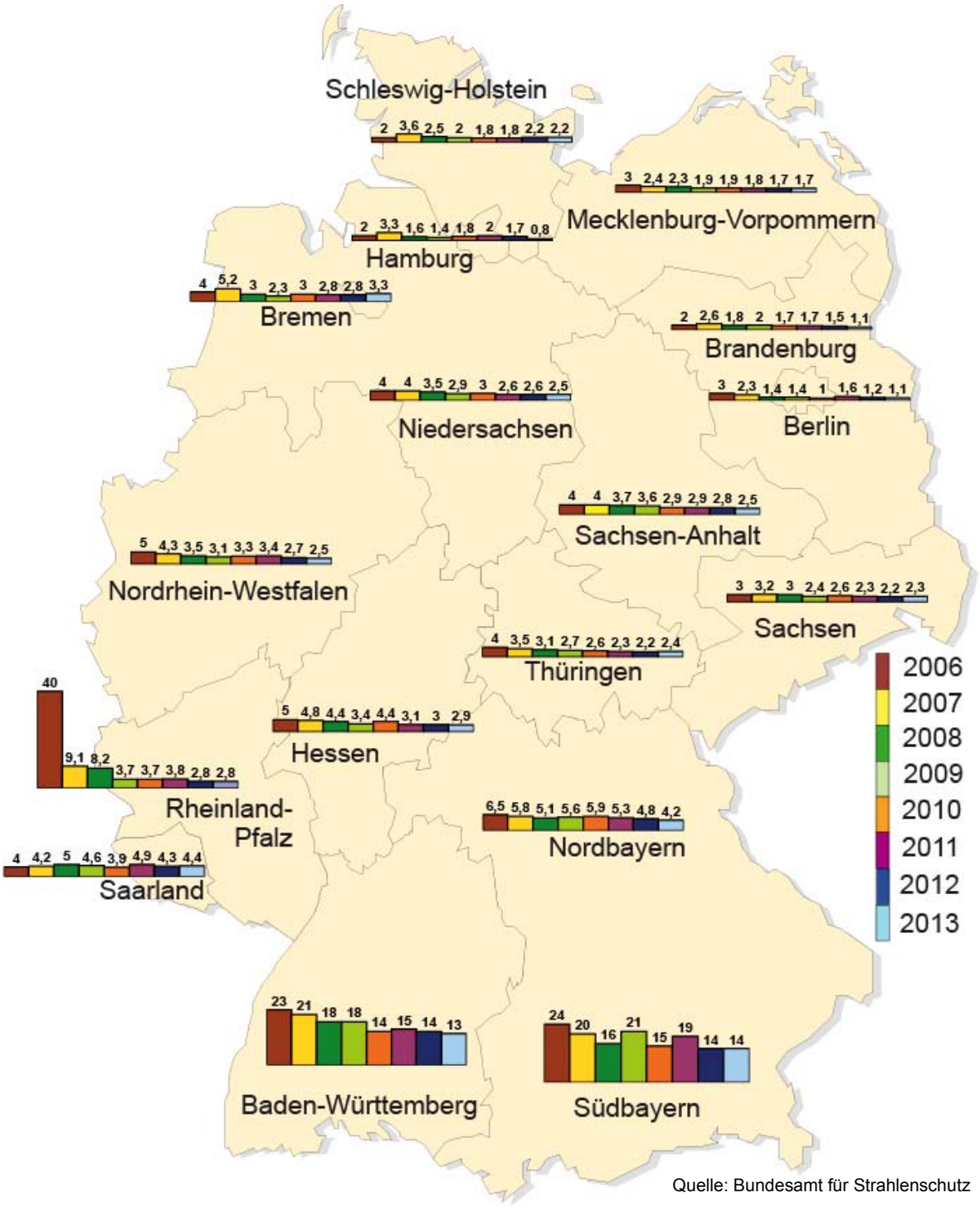
vierungsprodukten hat für kommunale Abwässer nur noch das (langlebige) Leitnuklid ^{137}Cs mit der Halbwertzeit von 30 Jahren Bedeutung. Das kurzlebige Cäsiumisotop ^{134}Cs (Halbwertzeit ca. 2 Jahre) war bis 2010 dagegen nicht mehr nachzuweisen. Während im Jahr 2011 infolge der Havarien mehrerer Reaktoren des Kernkraftwerks in Fukushima Daiichi in einigen wenigen Klärschlammproben erstmals auch wieder Spuren von ^{134}Cs auftraten (Maximalwert 2011: 1,4 Bq/kg TM), war dies 2012 schon nicht mehr der Fall. Die Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs im Abwasser lagen zu 98% unterhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen. Als Nachweisgrenze im Abwasser werden im Messprogramm für den Normalbetrieb (Routinemessprogramm nach AVV-IMIS) 0,1 Bq/l gefordert. Die wenigen für ^{137}Cs ermittelten Messwerte lagen im Jahr 2013 zwischen 0,0013 und 0,013 Bq/l und damit im gleichen Bereich wie in den Vorjahren.

Die Höhe der ^{137}Cs-Kontamination der Klärschlämme variiert auf Grund des regional unterschiedlichen Eintrags deutlich. Als Folge von starken Niederschlä-

gen Anfang Mai 1986 östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell-Eichstätt-Regensburg-Zwiesel treten in diesen Gebieten die höchsten spezifischen Aktivitäten auf. Gemäß dieser Trennlinie sind die Werte in der Tabelle 16.1 für die nördliche und die südliche Bundesrepublik aufgeschlüsselt. Die Maximalwerte der spezifischen Aktivitäten (Jahresmittelwerte) zeigten 2013 - wie in den Vorjahren - die Klärschlämme aus der Kläranlage Tannheim (Baden-Württemberg). Seit 2000 ergaben sich dort folgende Jahresmittelwerte für ^{137}Cs: 140, 140, 110, 110, 98, 86, 71, 65, 56, 56, 47, 43, 46 und 53 Bq/kg TM.

Der zeitliche Verlauf der Jahresmittelwerte für die ^{137}Cs-Gehalte der Klärschlämme der einzelnen Bundesländer (Jahresmittelwerte) seit 2006 ist in Abbildung 16.1 dargestellt. Die bisherige Tendenz zur Abnahmen der Kontamination der Klärschlämme ist nur noch schwach ausgeprägt und nur in wenigen Fällen zu beobachten, z.B. in Thüringen. Die gleiche Entwicklung ist auch in den höher kontaminierten Gebieten wie z.B. im südlichen Bayern zu erkennen. Im Zeitraum von 1988 bis 2013 wurden anfangs noch stark, später nur schwach abnehmende Jahresmittelwerte ermittelt: 970, 520, 330, 220, 140, 130, 108, 89, 75, 68, 63, 43, 38, 37, 44, 30, 25, 24, 24, 20, 16, 21, 15, 19, 14 und 14 Bq/kg TM. Bei dem inzwischen erreichten sehr niedrigen Niveau der spezifischen Aktivität der Klärschlämme sind die zu beobachtenden Schwankungen im Wesentlichen durch die natürliche Streuung der Messwerte bedingt.

Zur radiologischen Beurteilung der Klärschlammkontamination kann die landwirtschaftliche Nutzung der Klärschlämme betrachtet werden. Wird z.B. Klärschlamm mit einer spezifischen Aktivität von etwa 53 Bq/kg TM (Jahresmittelwert 2013 der Kläranlage Tannheim) in einer Menge von 0,5 kg auf einer Fläche von einem Quadratmeter innerhalb von drei Jahren (gemäß Klärschlammverordnung) ausgebracht, entspricht dies einer mittleren jährlichen Aktivitätszufuhr von etwa 9 Bq ^{137}Cs. Dies bedeutet bei einer für das Einzugsgebiet einer entsprechenden Kläranlage typischen Flächenkontamination von ca. 15000 Bq/m^2 ^{137}Cs eine jährliche Aktivitätszufuhr in den Boden von weniger als 0,06 %. Hierbei ist aber anzumerken, dass eine solche Aufstockung des ^{137}Cs-Inventars gegenüber dem radioaktiven Zerfall des bereits im Boden befindlichen Inventars in der Höhe von 2,3 % pro Jahr um ein Vielfaches kompensiert wird.



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 16.1

Zeitlicher Verlauf der Kontamination von Klärschlamm mit ^{137}Cs in Bq/kg Trockenmasse (Ländermittelwerte)

17 ARZNEIMITTEL UND DEREN AUSGANGSSTOFFE SOWIE BEDARFSGEGENSTÄNDE

E. Kabai, L. Hiersche

Bundesamt für Strahlenschutz
Leitstelle für Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände

Die Leitstelle für Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände überwacht routinemäßig vor allem Arzneimittelpflanzen bzw. Pflanzen, die als Ausgangsstoffe für Arzneimittel und Tees dienen. Der Schwerpunkt der Überwachung liegt bei gammastrahlenden Radioisotopen, insbesondere ^{137}Cs, einem Falloutbestandteil der oberirdischen Kernwaffenversuche sowie des Reaktorunfalls von Tschernobyl.

Im Jahr 2013 wurden wie in den Vorjahren Proben ausgewählter pflanzlicher Ausgangsstoffe für Arzneimittel aus verschiedenen Herkunftsländern stichprobenartig untersucht. Die Ergebnisse der spezifischen Aktivitäten von ^{40}K und ^{137}Cs in der Trockenmasse (TM) der Probe für 2013 sind in Tabelle 17.1 zusammengefasst.

Die spezifischen Aktivitäten des Radionuklids ^{137}Cs können je nach Art und lokalen Gegebenheiten, z.B. der Bodenbeschaffenheit oder -kontamination in den verschiedenen Anbaugebieten der Herkunftsländer, erhebliche Variabilitäten aufweisen. Sie bewegen sich zwischen maximal 35 Bq/kg (TM) bei Bitterkleeblättern aus Polen und Werten unterhalb der NWG, wie z.B. bei Gänsefingerkraut aus Ungarn oder Fenchel aus Bulgarien.

Die Aktivitäten des natürlich vorkommenden Radionuklids ^{40}K schwanken entsprechend dem Kaliumgehalt der untersuchten Pflanzenproben, da der Gehalt dieses Elements in der Pflanze geregelt wird. Die Aktivitäten von ^{40}K lagen mit maximal rund 1000 Bq/kg (TM) bei Kamillenblüten und minimal 63 Bq/kg (TM) bei Island-Moos im Rahmen der natürlichen Schwankungsbreite.

Der zeitliche Verlauf der spezifischen Aktivitäten von Island Moos aus verschiedenen mittel- und osteuropäischen Herkunftsgebieten im Zeitraum 2000 bis 2013 ist in Abbildung 17.1 dargestellt.

Abbildung 17.2 gibt den zeitlichen Verlauf der spezifischen Aktivitäten von Bitterkleeblättern aus Polen für die Jahre 2005 bis 2013 wieder und Abbildung 17.3 zeigt die spezifischen Aktivitäten von Gänsefingerkraut aus mitteleuropäischen Ländern für die Jahre 2000 bis 2013. Für die fehlenden Jahre in den Abbildungen 1 bis 3 waren die Proben nicht erhältlich.

Tabelle 17.1

Spezifische Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{40}K in ausgewählten Arzneimittelpflanzen für das Jahr 2013. Angegeben ist die zählstatistische Unsicherheit (2σ)

Artikel	Ursprungsland	^{40}K [Bq/kg (TM)]	^{137}Cs [Bq/kg (TM)]
Bitterkleeblätter	Polen	940 ± 29	35 ± 1,5
Gänsefingerkraut	Ungarn	715 ± 16	NWG: 0,3
Island Moos	Russische Föderation	63 ± 3,6	15 ± 0,5
Pfefferminzblätter	Polen	761 ± 17	0,8 ± 0,2
Salbeiblätter	Bosnien-Herzegowina	496 ± 12	1,6 ± 0,2
Brennnesselblätter	Bulgarien	986 ± 20	0,6 ± 0,1
Thymian	Polen	652 ± 15	1,9 ± 0,2
Rotbuschtee, Maracuja-Orange	Südafrika	109 ± 4,4	NWG: 0,2
Grüner Tee	China	479 ± 11	NWG: 0,3
Melissenblätter	Polen	629 ± 15	0,8 ± 0,2
Johanniskraut	Polen	446 ± 16	0,6 ± 0,2
Mateblätter	Brasilien	466 ± 15	NWG: 0,4
Fenchel	Bulgarien	653 ± 15	NWG: 0,3
Kamillenblüten	Kroatien	1010 ± 20	NWG: 0,4

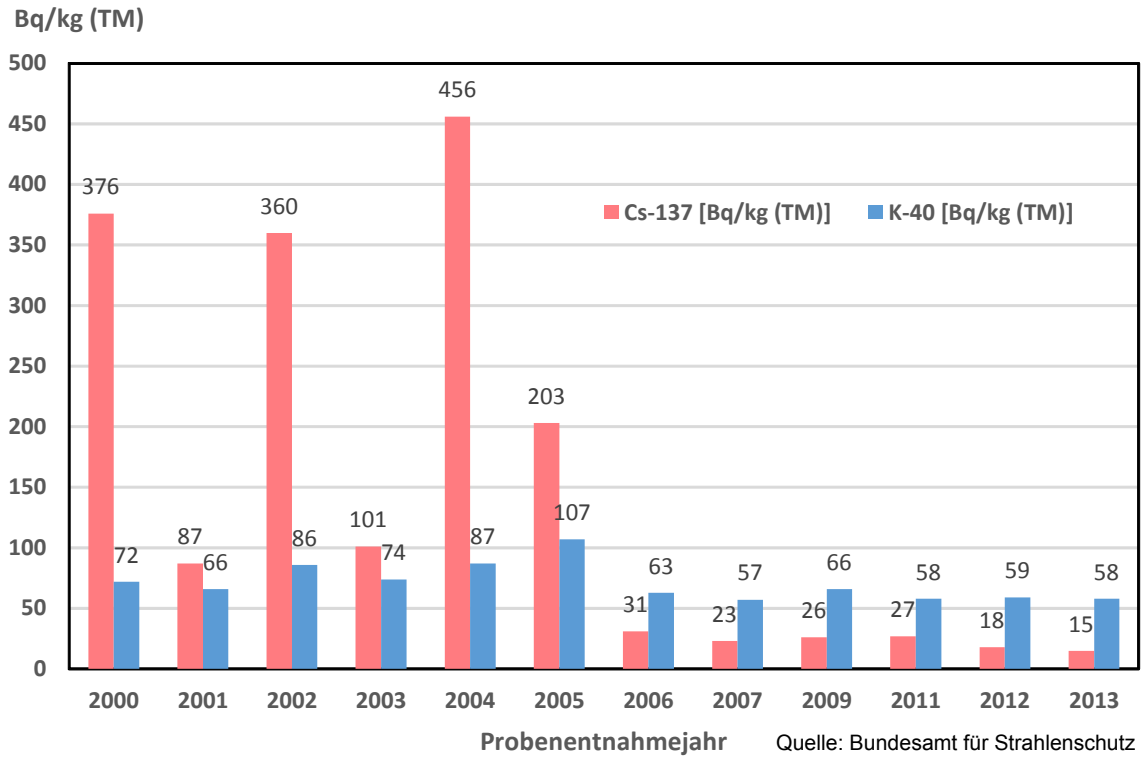


Abbildung 17.1

Spezifische Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{40}K in Island Moos überwiegend aus mittel- und osteuropäischen Ländern für die Jahre 2000 bis 2013

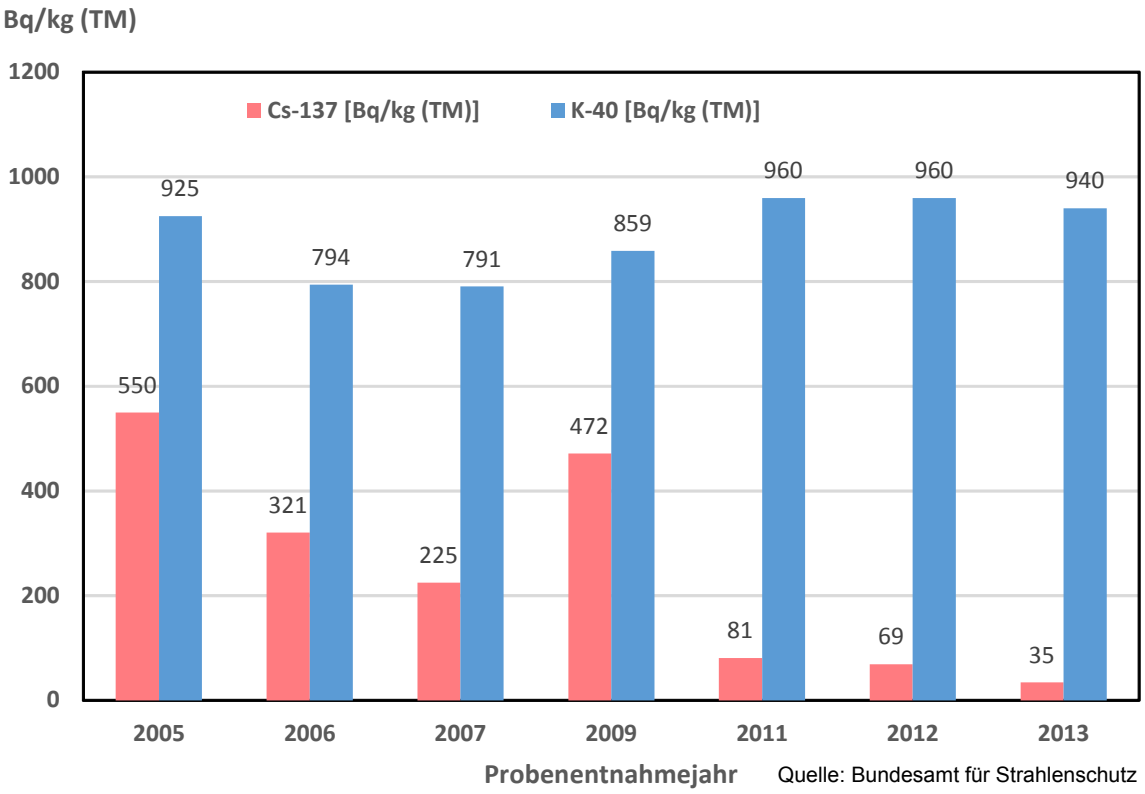


Abbildung 17.2

Spezifische Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{40}K in Bitterkleeblättern aus Polen für die Jahre 2005 bis 2013

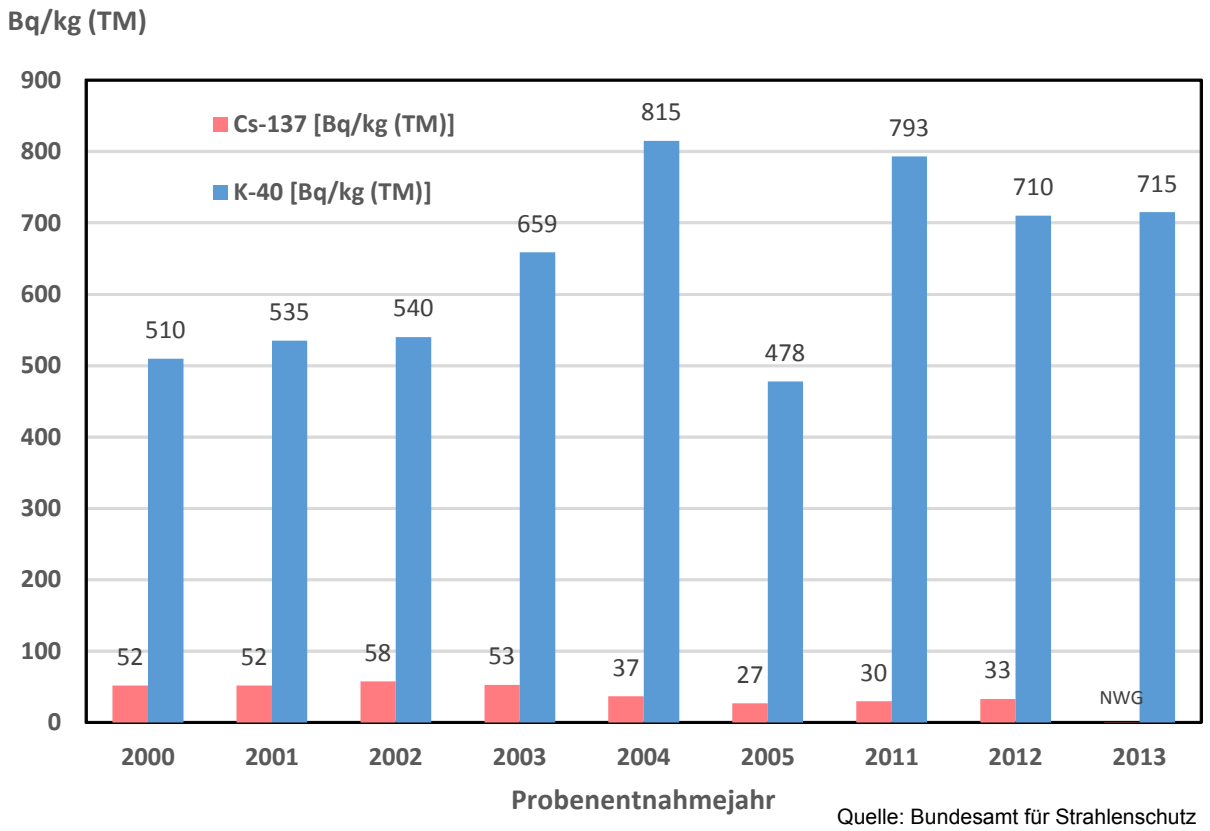


Abbildung 17.3

Spezifische Aktivitäten von ^{137}Cs und ^{40}K in Gänsefingerkraut aus mitteleuropäischen Ländern für die Jahre 2000 bis 2013

ANHANG

LITERATUR

[1] *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2013. Unterrichtung durch die Bundesregierung. Bundestagsdrucksache (im Druck).*

[2] *Der aktuelle Katalog ist auf der Internetseite der PTB www.ptb.de verfügbar. Pfad: PTB > Fachabteilungen > Abteilung 6 > Fachbereich > 6.1 > Fachlabor 6.11 > Katalog Aktivitätsnormale*

[3] *Calibration and Measurement Capabilities - Ionizing Radiation, Germany, PTB:* http://kcdb.bipm.org/appendixC/RI/DE/RI_DE.pdf

[4] *Jörg G, Amelin Y, Kossert K, Lierse v. Gostomski Ch: Precise and direct determination of the half-life of ^{41}Ca. In: Geochimica Cosmochimica Acta 88 (2012) 51-65*

[5] *Kossert K, Jörg G, Lierse v. Gostomski Ch: Experimental half-life determination of 176Lu. In: Applied Radiation and Isotopes 81 (2013) 140-145*

[6] *Broda R, Cassette P, Kossert K: Radionuclde metrology using liquid scintillation counting. Metrologia 44 (2007) S36-S52*

[7] *COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation, and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom, Official Journal of the European Union, 17.01.2014*

[8] *Messergebnisse der Spurenmessstellen nach Fukushima auf dem BfS-Server:* www.bfs.de/de/ion/imis/spurenmessungen.html *(zuletzt abgerufen am 07.11.2014)*

[9] *PTB-Mitteilungen, Fachorgan für Wirtschaft und Wissenschaft, Amts- und Mitteilungsblatt der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt Braunschweig und Berlin, "Spurensuche: Radioaktive Stoffe in der Luft", 124. Jahrgang, Heft 1, März 2014*

[10] *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2011. Unterrichtung durch die Bundesregierung. Bundestagsdrucksache 17/14395, Berlin 2013*

[11] *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2012. Unterrichtung durch die Bundesregierung. Bundestagsdrucksache 18/708, Berlin 2014*

[12] *Bericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2011", Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), Bonn, 2013* http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2013090511044

[13] *Bericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2012", Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), Bonn, 2014* http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2014082611633

[14] *Bericht „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2013", Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), Bonn, (im Druck)*

[15] *Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland, Stand 2011, Methoden, Daten und Bewertung, Auswirkungen der Ereignisse in Fukushima. Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz. Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, ISSN 1864-2810,* http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-201204188048, *2012*

[16] *Aarkrog A: Input of anthropogenic radionuclides into the World Ocean. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography 50/17-21, 2597-2606, 2013*

[17] *Dahlgaard H: Transfer of European coastal pollution to the arctic: Radioactive tracers. Marine Pollution Bulletin 31/1-3: 3-7, 1995*

[18] *HELCOM: Thematic assessment of long-term changes in radioactivity in the Baltic Sea, 2007-2010. Baltic Sea Environmental Proceedings 135, 2013*

[19] *Internationale Atomenergiebehörde (IAEA): Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. Technical reports series 422, ISSN 0074-1914, 2004*

[20] *Kanisch G, Nagel G, Krüger A, Kellermann HJ: Radiological implications from the temporal development of radioactivity in marine food from the North Sea. Kerntechnik 65: 183-189, 2000*

[21] *Nielsen SP, Lüning M, Ilus E, Outola I, Ikäheimonen T, Mattila J, Herrmann J, Kanisch G, Osvath I: Baltic Sea. In: Atwood D: Radionuclides in the Environment. John Wiley & Sons, 2010*

[22] Steele AK: Derived concentration factors for caesium-137 in edible species of North Sea fish. Marine Pollution Bulletin 21/12: 591-594, 1990

[23] Kanisch G: Effektive ^{137}Cs-Halbwertzeiten in Fischen aus Binnenseen und Fließgewässern und ^{137}Cs-Sorptionsverhalten in Böden. In: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (eds.): Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 2004 und 2005 - Daten und Bewertung. Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz, Kap. 14: 74-80, 2007

[24] Bailly du Bois P, Laguionie P, Boust D, Korsakissok I, Didier D, Fiévet B: Estimation of marine source-term following Fukushima Dai-ichi accident. Journal of Environmental Radioactivity 114: 2-9, 2012

[25] Behrens E, Schwarzkopf FU, Lübbecke JF, Böning CW: Model simulations on the long-term dispersal of ^{137}Cs released into the Pacific Ocean off Fukushima. Environmental Research Letters 7/3, 034004, 2012

[26] Buesseler KO: Fukushima and ocean radioactivity. Oceanography - The official journal of the Oceanography Society 27/1: 92-10, 2014

[27] Bundesamt für Strahlenschutz: Dosisbeitrag durch Ernährung. www.bfs.de/de/ion/anthropg/lebensmittel/dosisbeitrag.html, 2014; letzter Zugriff: 02.12.2014

[28] Durchführungsverordnung (EU) Nr. 322/2014 der Kommission vom 28. März 2014 zum Erlass von Sondervorschriften für die Einfuhr von Lebens- und Futtermitteln, deren Ursprung oder Herkunft Japan ist, nach dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima http://eur-lex.europa.eu/legal-content/DE/TXT/?qid=1417533237168&uri=CELEX:32014R0322; letzter Zugriff: 27.11.2014

[29] Fisheries Agency: Results of the monitoring on radioactivity level in fisheries products. Internetseite: www.jfa.maff.go.jp/e/inspection/index.html, 2014; letzter Zugriff: 10.12.2014

[30] How radioactive is our ocean?(2014), Internetseite: www.ourradioactiveocean.org/index.html#home; letzter Zugriff: 27.11.2014

[31] Hsu SC, Huh CA, Chan CY, Lin S, Lin FJ, Liu SC: Hemispheric dispersion of radioactive plume laced with fission nuclides from the Fukushima nuclear event. Geophysical Research Letters 39/1, L00G22, 2012

[32] International Commission on Radiological Protection: Environmental protection - The concept and use of reference animals and plants. Annals of the ICRP 108:4-6, 2012, 236 Seiten

[33] Kanisch G, Aust MO: Does the Fukushima NPP disaster affect the caesium activity of North Atlantic Ocean fish? Biogeosciences 10/8, 5399-5410, 2013

[34] Lujanienė G, Byčenkienė S, Povinec PP, Gera M: Radionuclides from the Fukushima accident in the air over Lithuania: measurement and modelling approaches. Journal of Environmental Radioactivity 114: 74-80, 2012

[35] Madigan DJ, Baumann Z, Fisher, NS: Pacific bluefin tuna transport Fukushima-derived radionuclides from Japan to California. Proceedings of the National Academy of Sciences 109/24: 9483-9486, 2012

[36] Madigan DJ, Baumann Z, Snodgrass OE., Ergül HA, Dewar H, Fisher NS: Radiocesium in Pacific Bluefin Tuna Thunnus Orientalis in 2012 validates new tracer technique. Environmental Science & Technology 47/5: 2287-2294, 2013

[37] Smith JN., Brown RM, Williams W, Robert M, Nelson R, Moran SB: Arrival of the Fukushima radioactivity plume in North American continental waters. Proceedings of the National Academy of Sciences. Im Druck, DOI: 10.1073/pnas.1412814112, 2014

[38] The Tokyo Electric Power Company (TEPCO): Fish Sampling Situation in the port of Fukushima Daiichi NPS (preliminary report); In PDF-Datei, Herunterladbar von: www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/smp/2013/images/fish_130315-e.pdf, 2013, letzter Zugriff: 21.10.14

[39] The Tokyo Electric Power Company (TEPCO, 2014): Results of radioactive analysis around Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. www.tepco.co.jp/en/nu/fukushima-np/f1/smp/index-e.html

[40] Woodhead DS: The radiation dose received by plaice (Pleuronectes Platessa) from the waste discharged into the North-East Irish Sea from the fuel reprocessing plant at Windscale. Health Physics 25/2: 115-121, 1973

[41] Maderich V, Jung KT, Bezhenar R, de With G, Qiao F, Casacuberta N, Masque P, Kim YH: Dispersion and fate of ^{90}Sr in the Northwestern Pacific and adjacent seas: Global fallout and the Fukushima Daiichi accident. Science of The Total Environment 494-495: 261-271, 2014

[42] Viertel H, Bünger Th, Obrikat D: Radioaktive Stoffe in Trink- und Grundwasser. In: Trugenberger-Schnabel A, Peter J, Kanzliwius R, Bernhard C, Bergler I (Hrsg.): Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 1998 bis 2001, Daten und Bewertung, BfS-Schrift 27/2003, Salzgitter 2003

[43] Verordnung über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch (Trinkwasserverordnung - TrinkwV 2001) vom 21. Mai 2001, BGBl. 2001, Teil I, S. 959 und Zweite Verordnung zur Änderung der Trinkwasserverordnung vom 2. August 2013, BGBl., Teil I, S. 2977, 2013

[44] Richtlinie 2013/51/EURATOM DES RATES vom 22.Oktober 2013: Zur Festlegung von Anforderungen an den Schutz der Gesundheit der Bevölkerung hinsichtlich radioaktiver Stoffe in Wasser für den menschlichen Gebrauch. ABL L296 vom 07.11.2013, S. 12

[45] Leitfaden zur Untersuchung und Bewertung von Radioaktivität im Trinkwasser, Empfehlung von BMU, BMG, BfS, UBA DVGW und BDEW - erstellt unter Mitwirkung von Ländervertretern www.bfs.de/de/ion/anthropg/lebensmittel/trinkwasserleitfaden.html

[46] Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz - StrVG) vom 19. Dezember 1986, BGBl. Teil I, S. 2610-2614 (1986); zuletzt geändert am 08. April 2008, BGBl. Teil I, S. 686, 2008

[47] Beyermann M, Bünger T, Gehrcke K, Obrikat D: Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide im Trinkwasser in der Bundesrepublik Deutschland. BfS-SW-Bericht, BfS SW 06/09, Salzgitter, 2009 http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-20100319945

[48] Beyermann M, Bünger T, Guttmann A , Schmidt K, Wershofen H, Winterfeldt I, Labahn A: Ringversuch zur Bestimmung von Radon-222, Radium-226, Radium-228, Uran-238, Uran-234 und der Gesamt-α-Aktivität in Trinkwasser - Ringversuch 4/2012. BfS Schriften, Dezember 2012 http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2012120510259

[49] Beyermann M, Guttmann A, Prautsch C, Schmidt K , Schneider F, Wershofen H, Winterfeldt I, Wittwer C: Ringversuch zur Bestimmung von Radon 222, Radium 226, Radium 228, Uran 238, Uran 234 und der Gesamt-Alpha-Aktivität in Trinkwasser - Ringversuch 4/2014. BfS Fachbereich Strahlenschutz und Umwelt, Berlin, SW 1 - 02/2014, Oktober 2014

[50] Norm DIN 38402 42:2005 09: Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Allgemeine Angaben (Gruppe A) Teil 42: Ringversuche zur Verfahrensvalidierung, Auswertung (A 42). 2005 09

[51] Norm ISO/IEC Guide 43 1:1997: Proficiency testing by interlaboratory comparisons - Part 1: Development and operation of proficiency testing schemes

[52] Norm ISO/IEC 17043:2010: Conformity assessment - General requirements for proficiency testing

[53] Norm ISO 13528:2005: Statistical methods for use in proficiency testing by inter-laboratory comparisons

[54] Übersicht über Maßnahmen zur Verringerung der Strahlenexposition nach Ereignissen mit nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen. Überarbeitung des Maßnahmenkatalogs Band 1 und 2. SSK, Band 60, 2010, 556 Seiten, 93 Abbildungen, 176 Tabellen. ISBN 978-3-87344-163-7

[55] Verordnung zum Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) vom 20. Juli 2001 (BGBl. I S. 1714) zuletzt geändert am 24. Februar 2012 (BGBl. I S. 212)

[56] http://jeanmarie.biansan.free.fr/gum_mc.html Letzter Zugriff am 5.9.2014

[57] DIN ISO 5725-2: Genauigkeit (Richtigkeit und Präzision) von Messverfahren und Messergebnissen - Teil 2: Grundlegende Methode für Ermittlung der Wiederhol- und Vergleichpräzision eines vereinheitlichten Messverfahrens, (ISO 5725-2:1994), einschließlich Technisches Korrigendum 1:2002)

[58] DIN ISO 5725-5: Genauigkeit (Richtigkeit und Präzision) von Messverfahren und Messergebnissen - Teil 5: Alternative Methoden für die Ermittlung der Präzision eines vereinheitlichten Messverfahrens, (ISO 5725-5:1998)

[59] DIN ISO 13528:2009-01: Statistische Verfahren für Eignungsprüfungen durch Ringversuche, (ISO 13528:2005)

[60] DIN EN ISO/IEC 17043:2010-5: Konformitätsbewertung - Allgemeine Anforderungen an Eignungsprüfungen, (ISO/IEC17043:2010)

[61] Haase G, Tait D, Wiechen A: Ergebnisse der Ringanalyse 1997/98 zur Bestimmung von I-131 in Milch. Kieler Milchwirtschaftliche Forschungsberichte, Bd. 50, Nr. 3, 195-210, 1998

[62] Hartmann R, Tait D, Haase G: Ringversuch Rohmilch. In: Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland, Stand 2011, Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz. Hrsg.: BMU (Bonn), ISSN 1864-2810, 29-33, 2012

[63] Roos N, Tait D: Vergleichsprüfung mit Spinatpulver als Probenart für umwelt-relevante Nuklide. Schriftenreihe Fachgespräch Überwachung der Umweltradio-aktivität. 15. Fachgespräch in

Bremen, 5. bis 7.3.2013, Daten - Modelle - Information (Hrsg.) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), 259-267, 2013

[64] Schötzig U, Schrader H: Halbwertszeiten und Photonen-Emissions-Wahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden. PTB-Bericht PTB-Ra-16/5, Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig, 1998

[65] Bachner D, Friedrichs HG, Haider G, Morlock G, Ullrich W: Ermittlungen der Spaltproduktfreisetzung. Deutsche Risikostudie Kernkraftwerke. Köln, TÜV Rheinland. Fachband 6 (1980) 8-22

[66] Selected radionuclides. Environmental Health Criteria 25. World Health Organization, Geneva p. 68, 1983

[67] Bekanntmachungen der Dosiskoeffizienten zur Berechnung der Strahlenexposition vom Juli 2001, Band 1. Bundesanzeiger Nr. 160a 53 (1), 2001

[68] Brun S, Kergadallan Y, Boursier B, Fremy JM, Jan F: Methodology for the determination of radiostrontium in milk: a review. Lait 83 (1), 2003

[69] Vajda N, Kim CK: Determination of radiostrontium isotopes: A review of analytical methodology, Applied Radiation and Isotopes, 68:2306-2326, 2010

[70] Rapid Simultaneous Determination of ^{89}Sr and ^{90}Sr in Milk: A Procedure Using Scintillation Counting. IAEA Report No. IAEA/AQ/27, IAEA, Vienna, 2013

[71] Salonen L, in Crook MA, Johnson P (Eds.): Liquid Scintillation Counting 5, Heyden and Son, 1978

[72] L'Annunziata MF, (Ed.), Handbook of Radioactivity Analysis. Academic Press, San Diego, p. 490, 1998

[73] Tait D, Wiechen A: Use of liquid scintillation counting for the fast determination of ^{89}Sr and ^{90}Sr in milk. The Science of the Total Environment, 130/131:447, 1993

[74] Tait D: Schnelle Bestimmung des ^{89}Sr und des ^{90}Sr mit dem Flüssigkeitsszintillationszähler (LSC). In: Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland, Stand 2011, Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz. Hrsg.: BMU (Bonn), ISSN 1864-2810, 22-28, 2012

[75] www.ti.bund.de/de/fi/arbeitsbereiche/meeresumwelt/leitstelle-umweltradioaktivitaet-in-fisch/uncertradio/

[76] ISO 11929:2010, Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit, and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation - fundamentals and application. Reviewed 2014. Available from the ISO store,www.iso.org/iso/home/search.htm?qt=ISO+11929+2010&published=on&active_tab=standards&sort_by=rel

[77] Hiyama A, Nohara C, Kinjo S, Taira W, Gima S, Tanahara A, Otaki JM: The biological impacts of the Fukushima nuclear accident on the pale grass blue butterfly. Scientific Reports 2, Article number: 570, doi:10.1038/srep00570, 2012

VERWENDETE ABKÜRZUNGEN

AtG	Atomgesetz
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BGA	Bundesgesundheitsamt
BGBl	Bundesgesetzblatt
BMUB	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit
BSH	Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie
/d·p	pro Tag und Person
DAkkS	Deutsche Akkreditierungsstelle
DWD	Deutscher Wetterdienst
ENORM	Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material
EURATOM	Europäische Gemeinschaft für Atomenergie
EUROMET	Organisation der metereologischen Staatsinstitute in Europa
FM	Feuchtmasse
$G\alpha$	Gesamt-Alpha-Aktivität
$G\beta$	Gesamt-Beta-Aktivität
HWZ	Halbwertszeit
IAR	Institut für Atmosphärische Radioaktivität (heute: Fachbereich für Strahlenschutz und Umwelt)
ICRP	Internationale Strahlenschutzkommission
ICRU	Internationale Kommission für radiologische Einheiten
IMIS	Integriertes Mess- und Informationssystem
KFÜ	Kernkraftwerks-Fernüberwachungssystem
KIT	Karlsruher Institut für Technologie
KKW	Kernkraftwerk
MRI	Max Rubner-Institut
N	Zahl der Einzelmessungen
n.n.	nicht nachgewiesen / nachweisbar
NORM	Naturally Occurring Radioactive Material
NWG	Nachweisgrenze
ODL	Ortsdosisleistung
PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
$R\beta$	Rest-Beta-Aktivität
RöV	Röntgenverordnung
RMP	Routinemessprogramm
REI	Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen
RSK	Reaktor-Sicherheitskommission
SSK	Strahlenschutzkommission
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
StrVG	Strahlenschutzvorsorgegesetz
tSIE	Transformed Spectral Index
TM	Trockenmasse
UBA	Umweltbundesamt
UNSCEAR	Wissenschaftliches Komitee der Vereinten Nationen über die Wirkung von atomarer Strahlung
VOAS	Verordnung über die Gewährleistung von Atomsicherheit und Strahlenschutz
WAA	Wiederaufarbeitungsanlage
ZdB	Zentralstelle des Bundes zur Überwachung der Umweltradioaktivität

EIGENSCHAFTEN DER IM TEXT ERWÄHNTEN RADIONUKLIDE

Radionuklid	Element	Strahlungsart	Halbwertszeit	Bemerkungen
H-3, ^{3}H, Tritium	Wasserstoff	β^-	12,32 a	
Be-7, ^{7}Be	Beryllium	ε, γ	53,3 d	durch kosmische Strahlung
C-14, ^{14}C	Kohlenstoff	β^-	5730 a	durch kosmische Strahlung
F-18, ^{18}F	Fluor	β^+	1,83 h	Verwendung in der Medizin
K-40, ^{40}K	Kalium	β^-, γ	1,3 x 10^9 a	natürlich
Co-58, ^{58}Co	Kobalt	ε, β^+, γ	70,9 d	
Co-60, ^{60}Co	Kobalt	β^-, γ	5,27 a	
Se-79, ^{79}Se	Selen	β^-, γ	3,27 x10^5 a	Uran-Spaltprodukt
Kr-85, ^{85}Kr	Krypton	β^-, γ	10,76 a	Edelgas
Kr-85 m, ^{85m}Kr	Krypton	β^-, γ	4,48 h	Edelgas
Rb-85, ^{85}Rb	Rubidium		stabil	Ausgangsstoff für ^{85}Sr-Erzeugnung
Sr-85, ^{85}	Strontium	β^-	65 d	Tracer
Sr-89, ^{89}Sr	Strontium	β^-, γ	50,5 d	
Sr-90, ^{90}Sr	Strontium	β^-	28,6 a	Uran-Spaltprodukt
Y-88, ^{88}Y	Yttrium	ε	107 d	Uran-Spaltprodukt
Y-90, ^{90}Y	Yttrium	β^-	64 h	Uran-Spaltprodukt
Tc-99, ^{99}Tc	Technetium	β^-	213000 a	
Tc-99 m, ^{99m}Tc	Technetium	R	6,01 h	Verwendung in der Medizin
Sb-125, ^{125}Sb	Antimon	β^-	2,7582 a	
Te-132, ^{132}Te	Tellur	β^-	3,20 d	
I-129, ^{129}I	Jod	β^-, γ	1,57x10^7 a	
I-131, ^{131}I	Jod	β^-, γ	8,02 d	Uran-Spaltprodukt
I-132, ^{132}I	Jod	β^-	2,295 h	
I-133, ^{133}I	Jod	β^-	20,8 h	
Xe-127, ^{127}Xe	Xenon	ε, R	36,4 d	Edelgas
Xe-131m, ^{131}Xe	Xenon	R	11,92 d	Edelgas
Xe-133, ^{133}Xe	Xenon	β^-, R	5,25 d	Edelgas

Radionuklid	Element	Strahlungsart	Halbwertszeit	Bemerkungen
Xe-133m, ^{133m}Xe	Xenon	R	2,19 d	Edelgas
Xe-135, ^{135}Xe	Xenon	β^-, γ	9,1 d	Edelgas
Cs-134, ^{134}Cs	Cäsium	β^-, γ	2,06 a	
Cs-137, ^{137}Cs	Cäsium	β^-, γ	30,17 a	Uran-Spaltprodukt
Cs-136, ^{136}Cs	Cäsium	β^-	13,2 d	
Ba-133, ^{133}Ba	Barium	ε, γ	10,5 a	Uran-Spaltprodukt
Ce-139, ^{139}Ce	Cer	ε, γ	137,6 d	
Tl-201, ^{201}Tl	Thallium	ε, R	73,1 h	
Tl-202, ^{202}Tl	Thallium	ε, γ	12,2 d	
Tl-208, ^{208}Tl	Thallium	β^-, γ	3,1 min	Thorium-Zerfallsreihe
Pb-210, ^{210}Pb	Blei	β^-	22,3 a	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Pb-212, ^{212}Pb	Blei	β^- γ	10,6 h	Thorium-Zerfallsreihe
Bi-212, ^{212}Bi	Wismut	β, γ	60,6 min	Thorium-Zerfallsreihe
Bi-214, ^{214}Bi	Wismut	β	19,9 min	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Po-210, ^{210}Po	Polonium	α	138,4 d	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Po-212, ^{212}Po	Polonium	α	304 nsec	Thorium-Zerfallsreihe
Po-214, ^{214}Po	Polonium	α	164 µsec	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Po-218, ^{218}Po	Polonium	α	3,05 min	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Rn-220, ^{220}Rn	Radon	α	55,6 sec	Thorium-Zerfallsreihe, Edelgas
Rn-222, ^{222}Rn	Radon	α	3,82 d	Uran-Radium-Zerfallsreihe, Edelgas
Ra-226, ^{226}Ra	Radium	α, γ	1600 a	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Ra-228, ^{228}Ra	Radium	β^-	5,75 a	Thorium-Zerfallsreihe
Th-228, ^{228}Th	Thorium	α, γ	1,9 a	Thorium-Zerfallsreihe
Th-230, ^{230}Th	Thorium	α	$7{,}54 \times 10^4$ a	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Th-232, ^{232}Th	Thorium	α	$1{,}4 \times 10^{10}$ a	Thorium-Zerfallsreihe
Th-nat, Th_{nat}	Thorium			
U-234, ^{234}U	Uran	α	$2{,}45 \times 10^5$ a	
U-235, ^{235}U	Uran	α, R	$7{,}04 \times 10^8$ a	

Radionuklid	Element	Strahlungsart	Halbwertszeit	Bemerkungen
U-238, ^{238}U	Uran	α	$4{,}47 \times 10^{9}$ a	
U-nat, U_{nat}	Uran			
Pu-238, ^{238}Pu	Plutonium	α, R	87,74 a	
Pu-239, ^{239}Pu	Plutonium	α, R	$2{,}4 \times 10^{4}$ a	
Pu-240, ^{240}Pu	Plutonium	α, R	6563 a	
Pu-241, ^{241}Pu	Plutonium	α, R	14,35 a	
Am-241, ^{241}Am	Americium	α, R	432 a	
Cm-244, ^{244}Cm	Curium	α, R	18,1 a	

α= Alphastrahlung
β^-= Betastrahlung
β^+= Positronenstrahlung
γ= Gammastrahlung
ε= Elektroneneinfang
R= Röntgenstrahlung

SI-EINHEITEN IM STRAHLENSCHUTZ

Phys. Größe	SI-Einheit	alte Einheit	Umrechnung
Aktivität	Becquerel (Bq) 1 Bq = 1/s	Curie (Ci)	1 Ci = $3{,}7\ 10^{10}$Bq 1 Bq = $2{,}7\ 10^{-11}$Ci = 27 pCi
Energiedosis	Gray (Gy) 1 Gy = 1 J/kg	Rad (rd)	1 rd = 0,01 Gy 1 Gy = 100 rd
Äquivalentdosis	Sievert (Sv) 1 Sv = 1 J/kg	Rem (rem)	1 rem = 0,01 Sv 1 Sv = 100 rem
Ionendosis	Coulomb pro Kilogramm (C/kg)	Röntgen (R)	1 R = $2{,}58\ 10^{-4}$ C/kg = 0,258 mC/kg 1 C/kg = 3876 R
Energiedosisleistung	Gray pro Sekunde (Gy/s)	Rad pro Sekunde (rd/s)	1 rd/s = 0,01 Gy/s 1 Gy/s = 100 rd/s

PRÄFIXE

Präfix	Kurzbezeichnung	Faktor
Exa	E	10^{18}
Peta	P	10^{15}
Tera	T	10^{12}
Giga	G	10^{9}
Mega	M	10^{6}
Kilo	k	10^{3}
Hekto	h	10^{2}
Deka	da	10^{1}

Präfix	Kurzbezeichnung	Faktor
Dezi	d	10^{-1}
Zenti	c	10^{-2}
Milli	m	10^{-3}
Mikro	µ	10^{-6}
Nano	n	10^{-9}
Piko	p	10^{-12}
Femto	f	10^{-15}
Atto	a	10^{-18}

GLOSSAR

Fachbegriff	Erläuterung
Aerosol	feste oder flüssige Schwebeteilchen in Luft
Aktivität	Anzahl der je Sekunde zerfallenden Atomkerne eines radioaktiven Stoffes
Alphastrahler	Radionuklide, die Alphateilchen (Heliumatomkerne) aussenden
anthropogen	durch den Menschen verursacht
Äquivalentdosis	Produkt aus Energiedosis und einem u.a. von der Strahlenart abhängigen Bewertungsfaktor. Die Äquivalentdosis ist das Maß für die Wirkung einer ionisierenden Strahlung auf den Menschen
Becquerel	SI-Einheit der Aktivität. Die Aktivität von 1 Becquerel (Bq) liegt vor, wenn 1 Atomkern je Sekunde zerfällt.
Betastrahlung	Teilchenstrahlung, bestehend aus beim radioaktiven Zerfall oder bei der Spaltung von Atomkernen ausgesandten Elektronen
Dekontamination	Beseitigung oder Verminderung von radioaktiven Verunreinigungen
Deterministisch	Nicht-stochastisch; deterministische Strahlenschäden sind solche, bei denen die Schwere des Schadens mit der Dosis variiert und ein Schwellenwert bestehen kann, z.B. Hautrötung, Augenlinsentrübung (siehe auch stochastisch)
Dosis	Siehe Energiedosis und Äquivalentdosis
Effektive Dosis	Summe der gewichteten mittleren Äquivalentdosen in den einzelnen Organen und Geweben des Körpers. Der Wichtungsfaktor bestimmt sich aus den relativen Beiträgen der einzelnen Organe und Gewebe zum gesamten Strahlenrisiko des Menschen bei Ganzkörperbestrahlung
Energiedosis	Quotient aus der Energie, die durch ionisierende Strahlung auf das Material in einem Volumenelement übertragen wird, und der Masse in diesem Volumenelement
Ereignisfall	Ein Ereignis wie z.B. ein Unfall in einem Atomkraftwerk mit „möglichen, nicht unerheblichen radiologischen Auswirkungen“ (§1, Abs. 2 StrVG)
Fallout	Aus der Atmosphäre auf die Erde in Form kleinster Teilchen abgelagertes radioaktives Material, das zum Beispiel bei Kernwaffenversuchen entstanden ist
Gammastrahlung	Energiereiche elektromagnetische Strahlung, die bei der radioaktiven Umwandlung von Atomkernen oder bei Kernreaktionen auftreten kann
Gammasubmersion	Strahlenexposition durch Gammastrahlung von radioaktiven Gasen in der Atmosphäre
Ganzkörperdosis	Mittelwert der Äquivalentdosis über Kopf, Rumpf, Oberarme und Oberschenkel als Folge einer als homogen angesehenen Bestrahlung des ganzen Körpers
Gray	SI-Einheit der Energiedosis
Ingestion	Aufnahme radioaktiver Stoffe mit der Nahrung
Inhalation	Aufnahme radioaktiver Stoffe mit der Atemluft
Inkorporation	Aufnahme radioaktiver Stoffe in den menschlichen Körper
Intensivbetrieb	Betrieb von IMIS im Ereignisfall mit verkürzten Messintervallen und erweiterten Messporgrammen (Intensivmessprogrammen)

Fachbegriff	Erläuterung
Ionisierende Strahlen	Elektromagnetische- oder Teilchenstrahlen, welche die Bildung von Ionen bewirken können (z.B.z.B. Alphastrahlen, Betastrahlen, Gammastrahlen, Röntgenstrahlen)
In-situ-Messung	Messung im Freien mit mobilen Messeinrichtungen (Feldmessung)
Isotop	Atomart eines chemischen Elements mit gleichen chemischen Eigenschaften (gleicher Ordnungszahl), aber verschiedener Massenzahl
Kontamination	Verunreinigung mit radioaktiven Stoffen
Kosmische Strahlung	Sehr energiereiche Strahlung aus dem Weltraum
Median	Mittelwert, unterhalb dessen ebensoviele kleinere Werte wie oberhalb größere Werte liegen
Nuklearmedizin	Anwendung radioaktiver Stoffe in der Medizin zu diagnostischen und therapeutischen Zwecken
Nuklid	Durch Protonenzahl (Ordnungszahl) und Massenzahl charakterisierte Atomart
Organdosis	Mittelwert der Äquivalentdosis über ein Organ
Ortsdosis	Äquivalentdosis für Weichteilgewebe, gemessen an einem bestimmten Ort
Ortsdosisleistung	In einem kurzen Zeitintervall erzeugte Ortsdosis, geteilt durch die Länge des Zeitintervalls
Radioaktive Stoffe	Stoffe, die Radionuklide enthalten
Radioaktivität	Eigenschaft bestimmter chemischer Elemente bzw. Nuklide, ohne äußere Einwirkung Teilchen- oder Gammastrahlung aus dem Atomkern auszusenden
Radiojod	Radioaktive Jodisotope
Radionuklide	Instabile Nuklide, die unter Aussendung von Strahlung in andere Nuklide zerfallen
SI-Einheiten	Einheiten des Internationalen Einheitensystems (SI). Die Anwendung der Einheiten im Strahlenschutzmesswesen ist durch die Ausführungsverordnung zum Gesetz über Einheiten im Messwesen vom 13.12.1985 (BGBl.I S.2272) geregelt
Sievert	SI-Einheit der Äquivalentdosis 1 Sievert = 1 000 Millisievert (mSv) = 1 000 000 Mikrosievert (µSv)
Stochastisch	Zufallsbedingt; stochastische Strahlenschäden sind solche, bei denen die Wahrscheinlichkeit des Auftretens mit der Dosis variiert, nicht jedoch deren Schwere (siehe auch deterministisch)
Strahlenbelastung	Siehe Strahlenexposition
Strahlenexposition	Einwirkung ionisierender Strahlung auf den menschlichen Körper oder seine Teile
Terrestrische Strahlung	Strahlung der natürlich radioaktiven Stoffe, die überall auf der Erde vorhanden sind

SACHVERZEICHNIS

A

Abfälle *89*
Abwasser *20* , *24 –25* , *89*
Ackerböden *67*
Aerosole *22*
Aktivitätsnormale *12*
Alpha-Strahler *24*
Arzneimittel *93*
Atomkraftwerk siehe Kernkraftwerk
atomrechtliche Genehmigungsverfahren *20*

B

Berlin *33*
Beryllium-7 *29* , *33* , *38*
Biblis *24*
Binnengewässer *37* , *40*
Binnenseen *55*
Bismut-214 *27*
Boden *66*
Bundesamt für Gewässerkunde *37*
Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie *50*
Bundesamt für Strahlenschutz *16* , *27* , *32* , *43* , *45* , *93*
Bundesforschungsanstalt für Ernährung und Lebensmittel *66* , *77*
Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit *25*

C

Cäsium-134 *51* , *70* , *90* , *102*
Cäsium-137 *12* , *27* , *29* , *33* , *37 –38* , *40 –44* , *51 –54* , *66 –71* , *89 –93* , *102*
Cobalt-58 *37 –38*
Cobalt-60 *37 –38* , *41 –42* , *44* , *89*

D

Deutsche Bucht *51*
Deutscher Wetterdienst *27* , *32 –33*
Donau *40* , *42*

E

Edelgase *22*
effektive Dosis *25* , *28* , *33*
Elbe *40* , *42*
Emissionsüberwachung *25*
EU-Berichterstattung *27*

F

Fallout *51*
Fische *55*
Fischteiche *55*
Fließgewässer *55*
Fluor-18 *12*
Fortluft *20* , *22* , *25*
Futtermittel *66*

G

Genehmigungswert *22* , *25*
Gesamt-Beta *29*
Gesamtnahrung *70*
Grundwasser *43* , *45*

H

Helmholtz-Zentrum München *27*

I

IMIS *27*
Iod-131 *22 –23* , *27* , *37 –38* , *66* , *89 –90* , *101*

J

Johann Heinrich von Thünen-Institut *55* , *61*

K

Kalium-40 *29* , *33* , *38 –39* , *89 –90* , *93*
Kernkraftwerk *20* , *22* , *24 –26*
- Biblis *22*
- Brokdorf *23 –24*
- Brunsbüttel *22* , *24*
- Emsland *23 –24*
- Grafenrheinfeld *22* , *24*
- Grohnde *23 –24*
- Gundremmingen *23 –24*
- Isar *22* , *24*
- Krümmel *23 –24*
- Neckarwestheim *22* , *24*
- Philippsburg *22 –24*
- Stade *22*
- Unterweser *22* , *24*

kerntechnische Anlagen *25*
Kernwaffenteststoppabkommen *32*
Kernwaffenversuche *51*
Klärschlamm *89* , *92*
Kohlenstoff-14 *22*

L

La Hague *51*

M

Main *42*
Max-Rubner-Institut *66* , *72* , *77* , *83*
Milch *66*
Mosel *40* , *42*
Mutual Recognition Arrangement *12*

N

Neckar *42*
Niederschlag *27 –30*
Nordsee *50 –51* , *55* , *61*

O

Oberflächenwasser *37 –40*
Offenbach *33*

Ostsee *50* , *52* , *55*

P

Pflanzen *66*
Physikalisch-Technische Bundesanstalt *12* , *27* , *32* –*33*
Plutonium-238 *52*
Plutonium-239 *52*
Plutonium-240 *52*
Probenentnahme *31*

Q

Qualitätsmanagement *12*

R

Radon *12*
Referenzmaterialien *13*
Referenzperson *25*
REI *43*
Rhein *40* , *42*
Rohmilch *66* , *71*
Rubidium-85 *101*

S

Säuglingsnahrung *70*
Schilddrüsendosis *25*
Schwebstoff *37* , *41*
Sediment *37* , *39* , *42* , *53*
Selen-79 *101*
Sellafield *51*
Spurenanalyse *32*
Strahlenschutzverordnung *38*
Strahlenschutzvorsorgegesetz *38*
Stromerzeugung *22* , *26*
Strontium-90 *37* , *40* , *51* –*52* , *66* , *70* , *89* –*90*

T

Technetium-99m *89*
Tellur-132 *101*
Thallium-201 *89*
Thallium-202 *89*
Thorium *39*
Thorium-232 *38*
Thoron *12*
Trinkwasser *39* , *43* –*45*
Tritium *22* , *24* , *31* , *37* –*39*
Tschernobyl *29* , *51* , *53* , *66*

U

Uran *39*
Uran-234 *33* , *89* –*90*
Uran-235 *38* , *89* –*90*
Uran-238 *33* , *38* , *89*

W

Weideböden *68*
Weser *42*
Wiesenbewuchs *69*

X

Xenon *32*

Y

Yttrium-88 *101*
Yttrium-90 *101*