Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland

Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz

Stand 2021

Daten und Bewertung







MRI 🐲 Max Rubner-Institut

Bundesamt für Strahlenschutz









BUNDESAMT FÜR SEESCHIFFFAHRT UND HYDROGRAPHIE

Impressum

Herausgeber:

Redaktion:

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) Postfach 12 06 29 53048 Bonn

Bundesamt für Strahlenschutz Postfach 10 01 49 38201 Salzgitter

Josef Peter Angelika Löbke-Reinl Claudia Bernhard-Ströl Angela Trugenberger-Schnabel

Stand:

2021

ISSN 1864-2810

VORWORT

Die Überwachung der Umweltradioaktivität ist seit über 50 Jahren ein aktuelles Thema mit immer neuen Aspekten und Schwerpunkten. Letztlich ist sie eine Folge der Kernwaffenversuche in den 1950er und 60er Jahren und dem damit verbundenen radioaktiven Fallout. Zur Umsetzung der Verpflichtungen des Euratom-Vertrags von 1957 und im Zuge der großtechnischen friedlichen Nutzung der Kernenergie wurde diese Überwachung ausgeweitet und zunehmend gesetzlich geregelt. Zusätzlich wurde ab 1990 die Überwachung der bergbaulichen Altlasten in den neuen Bundesländern integriert.

Während die Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) die Überwachung von kerntechnischen Anlagen regelt, wird die Überwachung der radioaktiven Stoffe in der Umwelt durch das 1986 verabschiedete Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) und in Folge das 2017 verabschiedete Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) vorgegeben.

Neben den messenden Institutionen kommt den "Leitstellen" eine wichtige Bedeutung zu. Sie sind jeweils verantwortlich für festgelegte Umweltbereiche, z. B. Luft, Gewässer, Lebensmittel bzw. für Überwachungsaufgaben bei kerntechnischen Anlagen, z. B. Abluft und Abwasser. Daher wurden sie jeweils in den oberen Bundesbehörden angesiedelt, deren Aufgaben ohnehin in diesen Umweltbereichen liegen.

Die Quantifizierung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und die dazugehörige Bewertung stehen zunehmend im öffentlichen Interesse. Ereignisse wie der Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl im Jahr 1986 und die Reaktorkatastrophe in Fukushima 2011 haben den Fokus der Fachleute und der Öffentlichkeit auf dieses Thema gelenkt. Die Konsequenzen aus diesen Ereignissen fanden und finden auch in gesetzlichen Regelungen ihren Niederschlag.

Um belastbares Datenmaterial zu erhalten, ist nicht nur die Ermittlung von Messwerten selbst, sondern auch deren Qualitätssicherung unerlässlich. 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 und Validierung der jeweils angewandten Verfahren. Die Ergebnisse dieser Ringversuche bzw. Vergleichsmessungen spiegeln die hohe Qualität der Analysen und Messungen wider.

Die Leitstellen prüfen die ermittelten Messdaten der Messstellen des Bundes und der amtlichen Messstellen der Länder auf Plausibilität, bevor diese in die Berichterstattung gegenüber dem BMU und der EU einfließen. Die geprüften Daten stehen darüber hinaus über entsprechende Plattformen anderen Institutionen und auch der Öffentlichkeit zur Verfügung und werden für den internationalen Datenaustausch verwendet.

Außerdem arbeiten die Leitstellen ständig an der Optimierung von Analysemethoden. Dabei steht die schnelle Verfügbarkeit von Messergebnissen im Falle eines radiologischen Ereignisses im Vordergrund. Die Entwicklung automatisierter Verfahren, z. B. bei der Probenentnahme trägt der aktuellen Personalentwicklung Rechnung (z. B. Kapitel 6, "Umstellung der Niederschlagsprobenentnahme im DWD", Seite 50). Darüber hinaus beschäftigen sich die Leitstellen auch mit radioökologischen Fragestellungen und Modellen (z. B. Kapitel 11 "Trübe Aussichten für Fische? Modellierung der Strahlungseffekte auf Fischaugen mittels Monte-Carlo-Simulation", Seite 77).

Der vorliegende Bericht enthält die Beiträge der Leitstellen für die Jahre 2017 bis 2019 (in einigen Fällen bis 2020). Der Schwerpunkt des Berichts liegt, wie auch in den Vorjahren, auf der Darstellung aktueller Untersuchungen, Messergebnisse und (Weiter)Entwicklungen sowie auf der Betrachtung übergreifender radioökologischer Zusammenhänge.



LEITSTELLEN ZUR ÜBERWACHUNG DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Leitstelle A - Luft und Niederschlag

Der Deutsche Wetterdienst ist eine dem Bundesministerium für Verkehr und digitale Infrastruktur (BMVI) nachgeordnete Dienststelle mit Sitz der Zentrale in Offenbach am Main und einem weit verzweigten Netz an Messstationen. Die Leitstelle ist im Referat "Radioaktivitätsüberwachung" der Abteilung "Messnetze und Daten" eingebunden. Auf Grund der Messprogramme der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) und der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität (AVV IMIS) ist eine wesentliche Aufgabe des DWD die erforderlichen Messverfahren zu dokumentieren, weiterzuentwickeln und den Qualitätsstandard zu halten.

Leitstelle B - Überwachung der atmosphärischen Aktivität

- γ-Ortsdosisleistung, In-situ-Gammaspektrometrie
- Spurenanalyse, Neutronenortsdosis(leistung), γ-Ortsdosis

Die Arbeitsschwerpunkte der Abteilung Notfallschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) liegen in der fachlichen Unterstützung des Bundesministeriums für Umwelt, Natuschutz und nukleare Sicherheit (BMU) in Fragen der Strahlenschutz- und der Notfallvorsorge. Für die beiden Leitstellen bedeutet dies die Erfüllung von Messaufgaben im Rahmen des "Integrierten Mess- und Informationssystems" (IMIS), die Prüfung und Zusammenfassung von Messdaten sowie die Weiterentwicklung und Dokumentation von Mess- und Analyseverfahren. Insbesondere ist der Betrieb des Frühwarn-Messnetzes für die Überwachung der Gamma-Ortsdosisleistung (ODL-Messnetz) zu gewährleisten und die zugehörige Alarmorganisation (Rufbereitschaft) bereit zu stellen.

Aktivitätsnormale und Radionukliddaten

Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) ist das nationale Metrologie-Institut mit wissenschaftlich-technischen Dienstleistungsaufgaben. Sie ist als Nachfolgerin der 1887 in Berlin gegründeten Physikalisch-Technischen Reichsanstalt (PTR) die technische Oberbehörde der Bundesrepublik Deutschland für das Messwesen und für die physikalische Sicherheitstechnik. Die PTB gehört zum Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie (BMWi). Sie hat ca. 1800 Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter, neun wissenschaftlich-technische Abteilungen (davon zwei in Berlin), die sich in rund 200 Arbeitsgruppen gliedern. Ihr Jahresetat beträgt circa 130 Mio Euro (Stand 2014).

Leitstelle C - Oberflächenwasser, Schwebstoff und Sediment in Binnengewässern

Die Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG) ist eine dem Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Verkehr und digitale Infrastruktur (BMVI) zugeordnete Oberbehörde mit Sitz in Koblenz.

Im Rahmen der Überwachung der Radioaktivität in den Binnengewässern nimmt die BfG seit 1961 die Aufgaben einer Leitstelle wahr. Ab 1986 ist sie zudem als Messstelle des Bundes für die Überwachung der Bundeswasserstraßen (BWaStr) zuständig. Die BWaStr bilden mit circa 7.300 km Länge ein wichtiges bundesweites Verkehrswegenetz für die Schifffahrt.

Leitstelle D - Meerwasser, Meeresschwebstoff und -sediment

Das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH) mit Sitz in Hamburg und Rostock ist eine Bundesoberbehörde für zentrale maritime Aufgaben im Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Verkehr und digitale Infrastruktur (BMVI). Es wurde 1990 durch die Zusammenlegung des Deutschen Hydrographischen Instituts (DHI) mit dem Bundesamt für Schiffsvermessung gebildet. Die Aufgaben reichen von nautisch-technischen Fragestellungen über die Genehmigung von Offshore-Windkraftanlagen bis zur wissenschaftlichen Beschreibung und Überwachung der Meeresumwelt, hauptsächlich von Nord- und Ostsee. Das BSH unterhält hierfür ein chemisches Laboratorium in Hamburg-Sülldorf.

Leitstelle E/F - Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft

Das Max-Rubner-Institut (MRI) ist eine dem Bundesministerium für Ernährung und Landwirtschaft (BMEL) nachgeordnete Dienststelle. Die Leitstelle ist dem Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch in Kiel angegliedert. Der Aufgabenbereich der Leitstelle wird in einem sehr hohen Maße durch das "Gesetz zum Schutz vor der schädlichen Wirkung durch ionisierende Strahlung (Strahlenschutzgesetz -StrlSchG 2020)" und die "Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI)" geregelt. Zu den Aufgaben der Leitstelle gehören Arbeiten im Rahmen der Radioaktivitätsüberwachung und Forschungen auf dem Gebiet der Radioökologie der Nahrungsketten, die von ihrer Erzeugung bis hin zum Verbraucher analysiert werden. Die Leitstelle ist in das bundesweite "Integrierte Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität (IMIS)" eingebunden und für die Umweltbereiche Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft verantwortlich.

Leitstelle G - Fisch und Fischereiezeugnisse, Krustentiere, Schalentiere, Meereswasserpflanzen

Das Johann Heinrich von Thünen-Institut (TI) ist eines von vier Bundesforschungsinstituten im Geschäftsbereich des Bundesministeriums für Ernährung und Landwirtschaft (BMEL). Mit den Aufgaben der Leitstelle ist das Thünen-Institut für Fischereiökologie (FI) in Bremerhaven betraut. Die erforderlichen Proben von Fischen und Fischnährtieren, in denen die Aktivität radioaktiver Stoffe ermittelt wird, werden auf den Fahrten der drei Fischereiforschungsschiffe und kommerzieller Fischereischiffe in Nord- und Ostsee, aber auch der Barents- und Grönlandsee gewonnen. Gleichzeitig dienen die Reisen der Entwicklung neuer Probennahme- und Aufbereitungstechniken. Zur Analyse der Proben steht ein Laboratorium mit Messplätzen für die Gammaspektrometrie sowie die radiochemische Aufarbeitung für den quantitativen Nachweis von ⁹⁰Sr, Pu-Isotopen und ²⁴¹Am zur Verfügung. Die Messergebnisse werden neben der Identifikation von Quellen und Verteilungen der Radionuklide auch zur Plausibilisierung entsprechender IMIS-Messdaten der Ländermessstellen herangezogen.

Leitstelle H - Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen

Diese Leitstelle gehört zu den Gründungsleitstellen, die bereits seit dem Jahre 1961 zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung die Radioaktivität in der Umwelt überwachen. Seit 1994 werden die Aufgaben der Leitstelle vom Fachgebiet "Emissionen und Immissionen: Wasser, Sedimente" des Fachbereichs Strahlenschutz und Umwelt des BfS in Berlin wahrgenommen. Für eigene Untersuchungen stehen radiochemische Labore zur Probenaufbereitung und Herstellung von Messpräparaten sowie Geräte für die spektrometrische Bestimmung von Radionukliden zur Verfügung. Hier werden unter anderem Messungen zur Kontrolle der Eigenüberwachung radioaktiver Emissionen mit dem Abwasser aus kerntechnischen Anlagen durchgeführt.

Leitstelle I - Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände

Die Leitstelle für Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände befindet sich in der Abteilung Umweltradioaktivität des BfS und überwacht routinemäßig vor allem Arzneimittelpflanzen beziehungsweise Pflanzen, die als Ausgangsstoffe für Arzneimittel dienen. Der Schwerpunkt liegt hierbei auf der Bestimmung der Aktivität gammastrahlender Radioisotope, mit besonderem Augenmerk für das Radionuklid Caesium-137, einem Fall-out-Bestandteil der oberirdischen Kernwaffenversuche sowie des Reaktorunfalls von Tschernobyl.

Leitstelle J - Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

Die Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen hat ihren Sitz im Fachgebiet "Emissionen und Immissionen: Luft" des Bundesamtes für Strahlenschutz.

Die Aufgaben der Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen leiten sich aus dem Atomgesetz (AtG), dem Paragraf 48 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV), Fassung 2001 bzw. dem Paragraf 103 StrlSchV, Fassung 2018 und der zuletzt 2006 neu gefassten Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) her.

Leitstelle K - Fragen der Radioaktivitätsüberwachung bei erhöhter natürlicher Radioaktivität (ENORM)

Die Aufgaben dieser im BfS Berlin angesiedelten Leitstelle umfassen die Entwicklung und Bereitstellung von Methoden zur Bestimmung der spezifischen Aktivitäten natürlicher Radionuklide in verschiedenen Umweltmedien, beispielsweise in Böden, Sedimente und Baustoffen sowie in industriellen Rückständen (ENORM), um eine zuverlässige Ermittlung der Strahlenexposition durch diese Stoffe zu ermöglichen. Zudem werden Arbeitsfelder betrachtet, bei denen erheblich erhöhte Expositionen durch natürlich terrestrische Strahlungsquellen auftreten können. Das betrifft beispielsweise Arbeitsfelder mit erhöhten Radon-222 Expositionen oder erhöhten Expositionen durch Uran und Thorium und deren Zerfallsprodukte.

INHALTSVERZEICHNIS

	Vorwort	3
	Leitstellen zur Überwachung der Umweltradioaktivität	5
	Inhaltsverzeichnis	7
	Zusammenfassung	8
	Summary	13
1	Aktivitätsnormale und Spurenstoffe	18
2	Natürliche Radionuklide in Umweltmedien, industriellen Rückständen, Baustoffen und Gebäu den	ו- 25
3	Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kernkraftwerken, Stilllegung von Kernkraftwerken, Expositi nen der Bevölkerung	o- 30
4	Messnetz für Luft und Niederschlag	37
5	Spurenmessung in der bodennahen Luft	43
6	Umstellung der Niederschlagsprobenentnahme im DWD	50
7	Radioaktive Stoffe in Binnengewässern	52
8	Radioaktive Stoffe in Trink- und Grundwasser	61
9	Radioaktive Stoffe in Nord- und Ostsee	64
10	Radioaktive Stoffe in Fischen	71
11	Trübe Aussichten für Fische? Modellierung der Strahlungseffekte auf Fischaugen mittels Mon Carlo-Simulation	te- 77
12	Boden, Pflanzen, Futtermittel, Milch und Gesamtnahrung	81
13	Ringversuch Milch 2019	87
14	Ringversuch Boden 2019	93
15	Radioaktive Stoffe in Abwasser, Klärschlamm und Abfällen 1	.00
16	Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände 1	.05

Anhang

Literatur	109
Verwendete Abkürzungen	113
Eigenschaften der im Text erwähnten Radionuklide	114
SI-Einheiten im Strahlenschutz	117
Präfixe	117
Glossar	117
Sachverzeichnis	120

ZUSAMMENFASSUNG

Im vorliegenden Bericht werden Daten zur Radioaktivität in der Umwelt und in der Umgebung kerntechnischer Anlagen aus den Jahren 2017 bis 2019 in einem größeren zeitlichen Rahmen zusammengestellt und bewertet. Die mittlere Strahlenexposition der Bevölkerung betrug in diesen drei Jahren pro Jahr etwa 3,8 mSv. Davon entfielen ca. 2,1 mSv auf die natürliche Strahlenexposition sowie etwa 1,7 mSv auf die zivilisatorische Strahlenexposition. Ausführlicheres Datenmaterial für die einzelnen Jahre ist den Jahresberichten des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, und nukleare Sicherheit über "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" zu entnehmen [50] - [52].

Aktivitätsnormale und Spurenstoffe (Kapitel 1)

Eine wichtige Aufgabe des Fachbereichs "Radioaktivität" der Physikalisch-technischen Bundesanstalt (PTB) ist die Bestimmung von Radionukliddaten, insbesondere von Emissionswahrscheinlichkeiten und Halbwertszeiten. Im Berichtszeitraum wurden neue Primärnormalmessmethoden zur genauen Aktivitätsbestimmung von ²²⁵Ac und ²²⁷Th entwickelt. Die Anwendung von ²²⁵Ac für nuklearmedizinische Anwendungen in der Therapie ist derzeit Thema einer Reihe von Studien.

Im Rahmen des EMPIR-Projektes "MetroRADON" ist die Entwicklung von definierten ²²²Rn-Emanationsquellen, speziell für die aktuell erforderlichen niedrigen Aktivitätskonzentrationsbereiche in Raumluft von 100 Bq/m³ bis 300 Bq/m³, vorangetrieben worden. Eine Fortsetzung dieses erfolgreichen Metrologieprojektes stellt das im Jahr 2020 gestartete und im Rahmen von EMPIR als 19ENV01 geförderte Projekt traceRadon dar. Erste vielversprechende Entwicklungen in diesem Projekt sind Detektor-Emanationsquellen-Kombinationen mit Aktivitäten von wenigen Becquerel.

Durch die Aktivitätsbestimmung an Ringversuchsmaterialien unterstützt die PTB die Leitstellen bei der Durchführung von Ringvergleichen im Rahmen des Messprogrammes nach dem Strahlenschutzgesetz.

Im Berichtszeitraum gab es nur wenige bemerkenswerte Messergebnisse in der Spurenmessung von Radionukliden in der bodennahen Luft in Braunschweig.

Natürliche Radionuklide in Umweltmedien, industriellen Rückständen, Baustoffen und Gebäuden (Kapitel 2)

Die Leitstelle ENORM führt jährlich einen Messvergleich für tragbare Ortsdosisleistungsmessgeräte auf Referenzflächen der Wismut GmbH in Reust (Thüringen) durch. Die drei Referenzmessflächen mit jeweils etwa 400 Quadratmetern Fläche bestehen aus Beton, Haldenmaterial der ehemaligen Uranerzförderung sowie Rückständen der Aufbereitung (Tailings). Durch die Auswahl der Materialien konnten Referenzmessflächen mit erheblich unterschiedlichen Ortsdosisleistungen zwischen etwa 70 nSv/h und 820 nSv/h geschaffen werden.

Außerdem führt die Leitstelle jährliche Vergleichs- und Eignungsprüfung passiver Radonmessgeräte durch. Das BfS verfügt über eine umfassende Datengrundlage, die eine Bestimmung der messtechnischen Unsicherheiten der passiven Radonmesssysteme ermöglicht. Basierend auf den Daten von über 10 000 Einzelmessungen wird ein im BfS entwickeltes Verfahren zur Eignungsprüfung angewendet. Der Teilnehmerkreis der jährlichen Vergleichs und Eignungsprüfung umfasst sowohl behördlich bestimmte Messstellen nach § 169 des Strahlenschutzgesetzes und anerkannte Stellen nach § 155 der Strahlenschutzverordnung als auch weitere Messlabore aus dem In- und Ausland. Die Ergebnisse werden in einem Bericht veröffentlicht.

Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kernkraftwerken, Stillegung von Kernkraftwerken, Expositionen der Bevölkerung (Kapitel 3)

Im atomrechtlichen Genehmigungsverfahren werden maximale Aktivitätsabgaben mit Fortluft und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen festgelegt. Die tatsächlichen Ableitungen aus Kernkraftwerken werden erfasst und nach Art und Aktivität bilanziert.

In den Jahren 2018 und 2019 waren in Deutschland noch acht Kernkraftwerksblöcke mit einer elektrischen Bruttoleistung von jährlich etwa 8,6 GW in Betrieb. Sie haben zur Stromerzeugung etwa 12 Prozent beigetragen. Die Menge der dabei abgeleiteten radioaktiven Stoffe liegt im Allgemeinen weit unter den Genehmigungswerten. Somit unterschreiten auch die aus den Aktivitätsableitungen berechneten Werte der jährlichen Exposition erheblich die in der Strahlenschutzverordnung festgelegten Dosisgrenzwerte von beispielsweise 0,3 mSv für die effektive Dosis. Die Expositionswerte der Referenzperson in der Umgebung der Kernkraftwerke, die mit den ungünstigen Annahmen, die für die Referenzperson vorgegeben sind, berechnet werden, liegen in der Regel unter 0,01 mSv pro Jahr; mit realistischeren Annahmen ergeben sich deutlich kleinere Dosiswerte.

Messnetz für Luft und Niederschlag (Kapitel 4)

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). An 48 Messstellen wird die Radioaktivität in der Luft und im Niederschlag durch den Deutschen Wetterdienst (DWD) ständig überwacht. Dazu gehört auch die natürliche Radioaktivität in der Luft als Aktivitätskonzentration der aerosolpartikelgebundenen Radonfolgeprodukte ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi.

Für künstliche Radionuklide wie zum Beispiel ¹³¹I und ¹³⁷Cs liegen im Normalbetrieb die berechneten Nachweisgrenzen der Luftmonitore zwischen 5 mBq/m³ und 10 mBq/m³. Zahlreiche erhobene Werte werden im Kapitel grafisch und tabellarisch zusammengefasst. Messergebnisse zu den Nukliden U_{nat}, ⁽²³⁹⁺²⁴⁰⁾Pu, ²⁴¹Am, ⁹⁰Sr und Tritium sind ebenfalls dargestellt.

Spurenmessung in der bodennahen Luft (Kapitel 5)

Vom BfS, dem DWD und der PTB werden Untersuchungen im Rahmen der Spurenanalyse Untersuchungen durchgeführt. Die Spurenanalyse dient der Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt im Rahmen der gesetzlichen Aufgaben und dem Nachweis von verdeckten nuklearen Aktivitäten.

Bei den Edelgasmessungen werden Luftproben unter anderem auf ihren Gehalt an radioaktivem Xenon und ⁸⁵Kr untersucht. Während ⁸⁵Kr überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt wird, stellt ¹³³Xe den Hauptbestandteil im bestimmungsgemäßen Betrieb der Edelgasableitungen von Kernkraftwerken und Isotopenproduktionsanlagen dar. Bei den Messungen im Berichtszeitraum fanden sich in der Regel keine auffälligen Ergebnisse. Kurzzeitige Schwankungen im zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen sind auf Emissionen aus den europäischen Wiederaufbereitungsanlagen für Kernbrennstoffe (La Hague/Frankreich und Sellafield/England) zurückzuführen. Ein Beispiel für erhöhte Messwerte an mehreren deutschen Stationen ist der Probenentnahmezeitraum vom 13.08. bis 20.08.2018, dabei wurde die höchste ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration mit 6,15 Bq/m³ in Trier (DWD) erreicht, was auf eine hohe Auslastung der Wiederaufbereitungsanlage in La Hague im Juli und August hindeutet.

Im Berichtszeitraum gab es zwei auffällige Beobachtungen im Bereich der Spurenanalyse. Ende September bis Anfang Oktober 2017 wurden an verschiedenen Spurenmessstellen in Ost-, Mittel- und Südeuropa ¹⁰⁶Ru detektiert. Auch in Deutschland wurde in dieser Zeit an mehreren Messstellen des DWD ¹⁰⁶Ru nachgewiesen. Die Aktivitätskonzentrationen lagen zwischen wenigen Mikrobecquerel und einigen Millibecquerel pro Kubikmeter Luft. Ausbreitungsberechnungen von radioaktiven Stoffen in der Atmosphäre deuteten schon frühzeitig auf einen Ursprung im südlichen Ural oder dem südlichen Russland hin. Eine weitere Auffälligkeit war der Nachweis von Spuren von ¹³¹I in Finnland und Mittel-Norwegen im Januar 2018, wie über den *"Ring of 5"*, einem informellen Zusammenschluss europäischer Spurenmessstellen, berichtet wurde. Die Aktivitätskonzentrationen lagen bei etwa 1 μ Bq/m³ und darunter. Im Zeitraum vom 05.02. bis 12.03.2018 wurden in einigen Ländern erneut Spuren von ¹³¹I nachgewiesen. Von den deutschen Spurenmessstellen wurdenkeine ¹³¹I-Nachweise berichtet.

Umstellung der Niederschlagsprobenentnahme im DWD (Kapitel 6)

Im Rahmen der Automatisierung des Messnetzes wurde die Niederschlagsprobenentnahme auf automatische Sammelsysteme umgestellt. In diesen Sammelsystemen wird der Niederschlag nach einer Vorfilterung durch einen Ionenaustauscher geleitet, der die gelösten Ionen aus dem Niederschlag entfernt. Die Aktivitätsbestimmung erfolgt im Anschluss gammaspektrometrisch am Ionenaustauscher.

Es hat sich gezeigt, dass ein nicht vernachlässigbarer Anteil der Gesamtaktivität auf dem Vorfilter zurückbleibt. Daher muss die gesamte, mit dem Niederschlag deponierte Aktivität aus der Summe der gemessenen Aktivitäten von Vorfilter und Ionenaustauscher bestimmt werden. Es sollte daher auch geklärt werden, ob durch die Verfahrensumstellung ein Bruch innerhalb der langjährigen Messreihen zu erwarten ist.

Auf Grund der durchgeführten Versuche kann davon ausgegangen werden, dass ein deutlicher Bruch in den Messreihen nicht zu erwarten ist, da sich die Abweichungen zwischen den beiden Verfahren,

insbesondere bei Aktivitäten nahe der Nachweisgrenzen, noch im Rahmen der Messunsicherheiten bewegen.

Die im Vergleich zu den Vorjahren deutlich höheren Aktivitätskonzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope bei der Spurenmessstelle Braunschweig (PTB) sind auf die Trockenheit und die erhöhte Resuspension von Bodenstaub im Sommer des Berichtsjahres zurückzuführen.

Auffällige Beobachtung im Bereich der Spurenanalyse war eine Freisetzung von Ruthenium-106 (¹⁰⁶Ru) im Herbst 2017. Ende September bis Anfang Oktober 2017 wurde an verschiedenen Spurenmessstellen in Ost-, Mittel- und Südeuropa ¹⁰⁶Ru detektiert. Auch in Deutschland wurde in dieser Zeit an mehreren Messstellen des DWD ¹⁰⁶Ru nachgewiesen. Berechnungen zur Ausbreitung von radioaktiven Stoffen in der Atmosphäre deuteten schon frühzeitig auf einen Ursprung im südlichen Ural hin, auch ein Ursprungsort im südlichen Russland konnte zunächst nicht ausgeschlossen werden.

Radioaktive Stoffe in Binnengewässern (Kapitel 7)

Die Radioaktivität wird in Binnengewässern in den Kompartimenten Oberflächenwasser, Schwebstoff und Sediment ermittelt. Die Überwachung der dynamischen Kompartimente Oberflächenwasser und Schwebstoff ermöglicht es, aktuelle Einträge und kurzfristige Veränderungen radioaktiver Kontaminationen in Gewässern zeitnah und mit hoher Genauigkeit zu erfassen. Die Sedimente stellen hingegen das Langzeitspeichermedium von Radionukliden in Gewässern dar.

Der radiologische Gütezustand der Binnengewässer unterlag in den Jahren 2017 bis 2019 keinen größeren Veränderungen im Vergleich zum vorangegangenen Berichtzeitraum. 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 weiterhin in erster Linie auf die Radionuklide zurück, die über die Fallouts der Kernwaffenversuche und des Reaktorunfalls von Tschernobyl in die Gewässer gelangten.

Radioaktive Stoffe in Trink- und Grundwasser (Kapitel 8)

Die im Trink- und Grundwasser in den Jahren 2017, 2018 und 2019 nachgewiesenen Radionuklide sind hauptsächlich natürlichen Ursprungs, wie z. B. ⁴⁰K und ²³⁸U. Künstliche Nuklide, z. B. ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr, treten nur in sehr geringen Konzentrationen bei nicht oder wenig geschützten Rohwässern (z. B. aus Oberflächenwasser, Uferfiltrat oder oberflächennahem Grundwasser) oder im Rahmen der Umgebungsüberwachung kerntechnischer Anlagen auf.

Für Plutoniumisotope werden in der Regel nur Ergebnisse kleiner als die bei der Messung erreichte Nachweisgrenze übermittelt. Die wenigen tatsächlichen Messwerte liegen ausnahmslos mehr als vier Größenordnungen unterhalb der geforderten Nachweisgrenze für Plutoniumisotope im Routinemessprogramm.

Radioaktive Stoffe in Nord- und Ostsee (Kapitel 9)

Das Kapitel beschreibt den aktuellen Zustand von Nord- und Ostsee hinsichtlich der Kontamination durch künstliche Radionuklide (wie z. B. ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr). 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.

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 Anlagen wie Kernkraftwerken und Forschungsreaktoren.

Die Werte der Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr liegen im erwartbaren Schwankungsbereich. Der zeitliche Verlauf der Aktivitätskonzentrationen ist im Kapitel grafisch dargestellt.

Radioaktive Stoffe in Fischen (Kapitel 10)

Die Messergebnisse im Überwachungszeitraum machen deutlich, dass der Fallout aus der Reaktorkatastrophe von Tschernobyl nach wie vor die dominierende Quelle der Kontamination von Fischen der Ostsee und der Deutschen Binnengewässer mit Radionukliden ist. Die mittleren ¹³⁷Cs-Werte in Fischen aus der Ostsee sind auch 2018 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 etwas größer als diejenige in Binnengewässern mit etwa 7 Jahren. Dass auch die Abnahme in Binnengewässern relativ langsam erfolgt liegt daran, dass bis heute kontinuierlich ¹³⁷Cs aus den Böden der Wassereinzugsgebiete in die Gewässer eingetragen wird. 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 2019 wurde in den Binnenseen allerdings ein deutlicher Rückgang der mittleren spezifischen Aktivität von ¹³⁷Cs auf unter 0,5 Bq/kg FM festgestellt.

Trübe Aussichten für Fische? Modellierung der Strahlungseffekte auf Fischaugen mittels Monte-Carlo-Simulation (Kapitel 11)

Der strahleninduzierte Graue Star beim Menschen ist seit langem als eine wichtige Augenerkrankung dokumentiert. Zur Analyse des Zusammenhangs zwischen strahleninduziertem Grauen Star und der Belastung durch ionisierende Strahlung wurden in den vergangenen zehn Jahren Studien bei Wildtieren durchgeführt. Die Ergebnisse deuten auch darauf hin, dass ionisierende Strahlung durch die Erhöhung der Häufigkeit von Katarakten und anderen Strahlenexpositionseffekten die Organismenanzahl in den Regionen mit höheren Hintergrundstrahlungswerten verringert.

Im vorliegenden Kapitel wurde ein mathematisches Modell für ein Fischauge beschrieben und dieses in das Forellen-Modell der ICRP integriert. Mit diesem mathematischen Modell des Fischauges wurde die absorbierte Dosis in der Fischaugenlinse in einem externen Expositionsszenario einer Elektronenstrahlungsquelle in verschiedenen Wasserzusammensetzungen berechnet. Das Ergebnis zeigt, dass die Zusammensetzung des Wassers für die absorbierte Betastrahlungs-Dosis der Augenlinse von Fischen nur eine geringe Rolle spielt.

Boden, Pflanzen, Futtermittel, Gesamtnahrung sowie Milch- und Milchprodukte (Kapitel 12, 13, 14)

Die Wanderung der Radionuklide ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr in den Boden hinein erfolgt nur sehr langsam. Auf Grund der langen Halbwertszeit der Radionuklide verändert sich ihre spezifische Aktivität im Boden gegenwärtig von Jahr zu Jahr nur geringfügig. Die Kontamination des Bodens mit ¹³⁷Cs war auch im Jahr 2019 durch die Deposition nach dem Tschernobyl-Unfall geprägt, während das ⁹⁰Sr zum überwiegenden Teil noch aus der Zeit der oberirdischen Kernwaffenversuche stammt. Durch Tiefenwanderung in den Boden sowie den physikalischen Zerfall hat im Allgemeinen auch die Kontamination pflanzlichen Materials weiterhin abgenommen. Die Kontamination von Milch und Milchprodukten mit ¹³⁷Cs aus dem Kernwaffen- und Tschernobyl-Fallout hatte bereits in den Vorjahren ein sehr niedriges Niveau erreicht und vermindert sich derzeit von Jahr zu Jahr nur noch äußerst geringfügig.

Neben der Messung und Bewertung der Bereiche Boden, Pflanzen, Futtermittel, Milch und Gesamtnahrung führt die Leitstelle am Max Rubner-Institut Vergleichsmessungen für die Messstellen der Bundesländer durch. Die Messstellen der Bundesländer sind nach der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) und der StrlSchV dazu aufgerufen, an entsprechenden Vergleichsmessungen teilzunehmen. Im Jahr 2019 rief die Leitstelle zu Vergleichsmessungen in Bereichen Milch und Boden auf. An den sogenannten Ringversuchen nahmen zahlreiche Laboratorien teil. Die Ergebnisse sind tabellarisch und grafisch zusammengefasst.

Radioaktive Stoffe in Abwasser, Klärschlamm und Abfällen (Kapitel 15)

Bei der Überwachung der Umweltradioaktivität durch die amtlichen Messstellen der Länder (§ 162 Strl-SchG) werden nur solche Abfälle berücksichtigt, die von radioökologischer Bedeutung sein können. Im Wesentlichen werden an diesen Medien gammaspektrometrische Untersuchungen (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁴⁰K) vorgenommen. Im Sickerwasser und in oberflächennahem Grundwasser von Deponien wird darüber hinaus auch Tritium bestimmt.

In 38 % der untersuchten Proben von Hausmülldeponien wurden in den Berichtsjahren 2017 bis 2019 ¹³⁷Cs nachgewiesen. Die Aktivitätskonzentrationen lagen zwischen 0,0028 Bq/l und 0,2 Bq/l; die Grö-

ßenordnung der berechneten Mediane blieb mit <0,047 Bq/l (2017), 0,043 Bq/l (2018) und <0,036 Bq/l (2019) relativ unverändert. In einem Teil der Abfall- und Reststoffproben konnte das in der Nuklearmedizin angewandte Nuklid ¹³¹l, vereinzelt auch ^{99m}Tc und ¹¹¹ln, nachgewiesen werden. Ebenso wurde ⁶⁰Co nachgewiesen.

Bezüglich radioaktiver Stoffe in Abwasser und Klärschlamm sieht das Routinemessprogramm die Überwachung von etwa 90 Abwasserreinigungsanlagen in Deutschland vor. Vorwiegend erfolgen gammaspektrometrische Untersuchungen (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁶⁰Co, ⁴⁰K, ^{99m}Tc). Darüber hinaus werden über radiochemische Verfahren die Aktivitäten von ⁹⁰Sr sowie Plutonium- und Uranisotope bestimmt. In einem Teil der Abwasser- und Klärschlammproben wurden Anwendernuklide, wie das hauptsächlich in der Nuklearmedizin eingesetzte ¹³¹I, festgestellt, in Einzelfällen auch ^{99m}Tc, ¹¹¹In und ¹⁷⁷Lu.

Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände (Kapitel 16)

Der Schwerpunkt der Routinemäßigen Überwachung von vor allem Arzneimittelpflanzen bzw. Pflanzen, die als Ausgangsstoffe für Arzneimittel und Tees dienen, liegt bei gammastrahlenden Radioisotopen, insbesondere ¹³⁷Cs, einem Falloutbestandteil der oberirdischen Kernwaffenversuche sowie des Reaktorunfalls von Tschernobyl.

Die spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs 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 56 Bq/kg (TM) bei schwarzem Bitterklee aus Polen und Werten unterhalb der Nachweisgrenze, wie z. B. bei Johanniskraut aus Serbien.

SUMMARY

This report compiles and assesses data on radioactivity in the environment and around nuclear facilities from 2017 to 2019 in a broader temporal framework. The average radiation exposure of the population during these three years was approx. 3.8 mSv per year. Of this, about 2.1 mSv was due to natural radiation exposure and about 1.7 mSv to civilisational radiation exposure. More detailed data for the individual years can be found in the annual reports of the Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation and Nuclear Safety on "Environmental Radioactivity and Radiation Exposure" [50]–[52].

Activity standards and trace substances (Chapter 1)

An important task of the "Radioactivity" department of the National Metrology Institute (PTB) is the determination of radionuclide data, especially emission probabilities and half-lives. During the reporting period, new primary standard measurement methods were developed to accurately determine the activity of ²²⁷Th. The use of ²²⁵Ac for nuclear medicine applications in therapy is currently the subject of a number of studies.

Within the EMPIR project "MetroRADON", the development of defined ²²²Rn emanation sources, especially for the currently required low activity concentration ranges in indoor air of 100 Bq/m³ to 300 Bq/m³, has been advanced. A continuation of this successful metrology project is the traceRadon project, which will be launched in 2020 and funded under EMPIR as 19ENV01. The first promising developments in this project are detector-emanation source combinations with activities of a few becquerels.

By determining the activity on interlaboratory test materials, the PTB supports the control centres in carrying out interlaboratory comparisons within the framework of the measurement programme according to the Radiation Protection Act.

In the reporting period, there were only a few noteworthy measurement results in the trace measurement of radionuclides in the air near the ground in Braunschweig.

Natural radionuclides in environmental media, industrial residues, building materials, and buildings (Chapter 2)

The ENORM control centre conducts an annual measurement comparison for portable local dose rate meters on reference areas of Wismut GmbH in Reust (Thuringia). The three reference measurement areas, each with an area of about 400 square metres, consist of concrete, material from former uranium ore mining, and residues from processing (tailings). The choice of materials made it possible to create reference measurement areas with considerably different local dose rates between approx. 70 nSv/h and 820 nSv/h.

In addition, the control centre conducts annual comparative and proficiency testing of passive radon measuring devices. The BfS has a comprehensive data basis that enables a determination of the metrological uncertainties of the passive radon measuring systems. Based on the data of more than 10000 individual measurements, a procedure developed at the BfS is used for the suitability test. The group of participants in the annual comparison and proficiency test includes officially designated measuring laboratories according to Section 169 of the Radiation Protection Act and recognised bodies according to Section 155 of the Radiation Protection Ordinance as well as other measuring laboratories from Germany and abroad. The results are published in a report.

Discharge of radioactive substances from nuclear power plants, decommissioning of nuclear power plants, exposures of the population (Chapter 3)

In the nuclear licensing procedure, maximum activity discharges with exhaust air and waste water from nuclear facilities are specified. Actual discharges from nuclear power plants are recorded and assessed for by type and activity.

In 2018 and 2019, eight nuclear power plant units with a gross annual electrical output of approx. 8.6 GW were still in operation in Germany. They contributed approx. 12% to electricity generation. The amount of radioactive substances discharged in the process is generally far below the licensing values. Thus, the values of annual exposure calculated from the activity discharges also fall considerably below the dose limits of 0.3 Sv for the effective dose specified in the Radiation Protection Ordinance. The exposure values of the reference person in the vicinity of the nuclear power plants calculated with the unfavourable assumptions given for the reference person are usually below 0.01 mSv per year; with more realistic assumptions, significantly smaller dose values result.

Measuring network for air and precipitation (Chapter 4)

The measurement networks of the BfS and Germany's National Meteorological Service, the Deutscher Wetterdienst (DWD) as well as its radiochemical central laboratory in Offenbach are components of the Integrated Measuring and Information System (IMIS) for monitoring environmental radioactivity. Radioactivity in the air and in precipitation is continually monitored by the DWD at 48 measuring points. This also includes natural radioactivity in the air as activity concentrations of the aerosol particle-bound radon decay products ²¹⁴Pb and ²¹⁴Bi.

For artificial radionuclides such as ¹³¹I and ¹³⁷Cs, the calculated detection limits of the air monitors are between 5 mBq/m³ and 10 mBq/m³ in normal operation. Numerous collected values are summarised graphically and in tabular form in the chapter. Measurement results for the nuclides Unat, ⁽²³⁹⁺²⁴⁰⁾Pu, ²⁴¹Am, ⁹⁰Sr, and tritium are also shown.

Trace measurement in the air near the ground (Chapter 5)

Investigations are carried out by the BfS, the DWD, and the PTB within the framework of trace analysis investigations. Trace analysis is used for the monitoring radioactive substances in the environment within the framework of legal tasks and the detection of covert nuclear activities.

In the noble gas measurements, air samples are analysed for their content of radioactive xenon and ⁸⁵Kr, among others. While ⁸⁵Kr is predominantly released into the atmosphere during the reprocessing of nuclear fuels, ¹³³Xe is the main component in the intended operation of the noble gas discharges of nuclear power plants and isotope production facilities. During the measurements in the reporting period, there were generally no striking results. Short-term fluctuations in the temporal course of activity concentrations are due to emissions from the European nuclear fuel reprocessing plants (La Hague/ France and Sellafield/England). An example of elevated readings at several German stations is the sampling period from 13–20 August 2018, where the highest 85Kr activity concentration of 6.15 Bq/m³ was reached in Trier (DWD). This suggests a high utilisation of the reprocessing plant in La Hague in July and August.

In the reporting period, there were two conspicuous observations in the area of trace analysis. In late September to early October 2017, ¹⁰⁶Ru was detected at various trace monitoring sites in Eastern, Central, and Southern Europe. Also in Germany, ¹⁰⁶Ru was detected at several DWD measuring stations during this period. The activity concentrations were between a few microbecquerels and a few millibecquerels per cubic metre of air. Dispersion calculations of radioactive substances in the atmosphere pointed early on to an origin in the southern Urals or southern Russia. Another striking feature was the detection of traces of ¹³¹I in Finland and central Norway in January 2018 as reported via the *"Ring of*

5", an informal association of European trace monitoring stations. The activity concentrations were about 1 μ Bq/m³ and below. From 5 February to 12 March 2018, traces of ¹³¹I were again detected in some countries. No ¹³¹I detections were reported from the German trace monitoring stations.

Changeover of precipitation sampling at the DWD (Chapter 6)

As part of the automation of the monitoring network, precipitation sampling was changed over to automatic collection systems. In these collection systems, after pre-filtering, the precipitation is passed through an ion exchanger, which removes the dissolved ions from the precipitation. The activity is then determined by gamma spectrometry on the ion exchanger.

It has been shown that a non-negligible proportion of the total activity remains on the pre-filter. The total activity deposited with the precipitate must therefore be determined from the sum of the measured activities of the prefilter and ion exchanger. It should therefore also be clarified whether a break within the long-term measurement series is to be expected as a result of the change in procedure.

Based on the tests carried out, it can be assumed that a clear break in the measurement series is not to be expected because the deviations between the two methods, especially for activities close to the detection limits, are still within the measurement uncertainties.

The significantly higher activity concentrations of uranium and plutonium isotopes at the trace measuring station Braunschweig (PTB) compared to previous years are due to the drought and the increased resuspension of soil dust in the summer of the reporting year.

A conspicuous observation in the area of trace analysis was a release of ruthenium-106 (¹⁰⁶Ru) detections in autumn 2017. In late September to early October 2017, ¹⁰⁶Ru was detected at various trace monitoring sites in Eastern, Central, and Southern Europe. Also in Germany, ¹⁰⁶Ru was detected at several DWD measuring stations during this period. Calculations on the dispersion of radioactive substances in the atmosphere pointed to an origin in the southern Urals at an early stage. A place of origin in southern Russia was also not ruled out at first.

Radioactive substances in inland waters (Chapter 7)

In inland waters, radioactivity is determined in the compartments surface water, suspended matter, and sediment. Monitoring of the dynamic surface water and suspended sediment compartments makes it possible to record current inputs and short-term changes in radioactive contamination in water bodies promptly and with high accuracy. The sediments, however, represent the long-term storage medium for radionuclides in aquatic systems.

In the reporting period 2017 to 2019, the radiological quality status of inland waters was not subject to any major changes compared with recent years. With regard to radiological effects, it is evident (as in other environmental areas) that the natural radionuclides currently contribute the major share to the radiation dose compared with the artificial radionuclides. The proportion of artificial radionuclides continues to be primarily due to radionuclides that entered the waters via fallouts from nuclear weapons testing and the Chernobyl reactor accident.

Radioactive substances in drinking water and groundwater (Chapter 8)

Radionuclides detected in drinking water and groundwater in 2017, 2018, and 2019 are mainly of natural origin (e. g. ⁴⁰K and ²³⁸U). Artificial nuclides (e. g. ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr) occur only in negligible concentrations in unprotected or poorly protected raw waters (e. g. from surface water, bank filtrate or nearsurface groundwater) or in the context of environmental monitoring of nuclear facilities.

For plutonium isotopes, only results smaller than the detection limit reached during the measurement are usually transmitted. The few actual measured values are, without exception, more than four orders

of magnitude below the required detection limit for plutonium isotopes in the routine measurement programme.

Radioactive substances in the North Sea and the Baltic Sea (Chapter 9)

The chapter describes the current state of the North Sea and Baltic Sea with regard to contamination by artificial radionuclides (such as ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr). The assessment is based on two monitoring surveys per year by the Federal Maritime and Hydrographic Agency using its own and chartered research vessels as well as numerous water samples that are also regularly taken by other federal vessels at specified positions.

Artificial radionuclides can be detected in the North Sea and Baltic Sea from the following sources:

- global fallout from atmospheric nuclear weapons testing in the 1950s and 1960s
- discharges from the reprocessing plants in Sellafield (UK) and La Hague (F)
- fallout from the Chernobyl reactor accident in 1986
- fischarges from nuclear facilities such as nuclear power plants and research reactors.

The values of the activity concentrations of ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr are within the expected range of fluctuation. The temporal course of the activity concentrations is shown graphically in the chapter.

Radioactive substances in fish (Chapter 10)

The measurement results in the monitoring period make it clear that the fallout from the Chernobyl reactor disaster is still the dominant source of contamination of fish in the inland waters of the Baltic Sea and German with radionuclides. The mean ¹³⁷Cs levels in fish from the Baltic Sea continue to be higher than in fish from inland lakes in 2018.

The effective half-life for the decrease in water and fish is slightly longer in the Baltic Sea (9-11 years) than in inland waters (7 years). The fact that decrease in inland waters is also relatively slow is because 137 Cs is still being continuously discharged from the soils of the water catchment areas into the water bodies. The impact of the fallout from the Chernobyl reactor disaster was initially higher in inland waters; the greatest effects observed here were on fish from inland lakes. However, by 2019, a significant decrease in the mean specific activity of 137 Cs to below 0.5 Bq/kg FM was observed in inland lakes.

Bleak prospects for fish? Modelling of radiation effects on fish eyes using Monte Carlo simulation (Chapter 11)

Radiation-induced cataracts in humans have long been documented as a major eye disease. To analyse the relationship between radiation-induced cataracts and exposure to ionising radiation, several studies have been conducted in wildlife over the past decade. The results also suggest that by increasing the frequency of cataracts and other radiation exposure effects, ionising radiation reduces the number of organisms in the regions with higher background radiation levels.

In this chapter, a mathematical model for a fish eye was described and integrated into the trout model of the ICRP. This mathematical model of the fish eye was used to calculate the absorbed dose in the fish eye lens in an external exposure scenario of an electron radiation source in different water compositions. The result shows that the composition of the water plays only a minor role for the absorbed beta radiation dose of the eye lens of fish.

Soil, plants, animal feed, and total food as well as milk and dairy products (Chapters 12, 13, 14)

The migration of the radionuclides ¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr into the soil is negligible. Because of the long half-life of radionuclides, their specific activity in the soil currently changes only slightly from year to year. The contamination of the soil with ¹³⁷Cs in 2019 was also characterised by deposition after the Chernobyl

accident, while the ⁹⁰Sr still predominantly originates from the time of above-ground nuclear weapons testing. Because of deep migration into the soil as well as physical decay, contamination of plant material has generally also continued to decrease. Contamination of milk and dairy products with ¹³⁷Cs from nuclear weapons and Chernobyl fallout had already reached a low level in previous years and is decreasing only extremely slightly from year to year.

In addition to measuring and evaluating the areas of soil, plants, feed, milk, and total food, the control centre at the Max Rubner Institute carries out comparative measurements for the measuring stations of the federal states. According to the Guideline concerning Emission and Immission Monitoring of Nuclear Installations (REI) and the Radiation Protection Ordinance (StrlSchV), the measuring stations of the Federal States are called upon to participate in corresponding comparison measurements. In 2019, the control centre called for comparative measurements in areas such as milk and soil. Numerous laboratories took part in the round robin tests. The results are summarised in tabular and graphical form.

Radioactive substances in waste water, sewage sludge, and waste (Chapter 15)

In the monitoring of environmental radioactivity by the official measuring bodies of the Federal States (Section 162 StrlSchG), only waste that may be of radioecological importance is taken into account. Essentially, gamma spectrometry analyses (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁴⁰K) are carried out on these media. Tritium is also determined in leachate and near-surface groundwater from landfills.

 137 Cs was detected in 38 % of the analysed samples from domestic waste sites from 2017 to 2019. Activity concentrations ranged from 0.0028 Bq/l to 0.2 Bq/l; the magnitude of the calculated medians remained relatively unchanged at < 0.047 Bq/l (2017), 0.043 Bq/l (2018) and < 0.036 Bq/l (2019). In some of the waste and residue samples, the nuclide 131 I used in nuclear medicine was detected as well as 99m Tc and 111 In in isolated cases. Likewise, 60 Co was detected.

With regard to radioactive substances in waste water and sewage sludge, the routine measurement programme provides for the monitoring of about 90 waste water treatment plants in Germany. Mainly gamma spectrometry analyses (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁶⁰Co, ⁴⁰K, ^{99m}Tc) are carried out. In addition, the activities of ⁹⁰Sr as well as plutonium and uranium isotopes are determined by radiochemical methods. In some of the waste water and sewage sludge samples, user nuclides such as ¹³¹I, which is mainly used in nuclear medicine, were detected; in individual cases also ^{99m}Tc, ¹¹¹In, and ¹⁷⁷Lu.

Medicinal products and their starting materials as well as consumer goods (Chapter 16)

The focus of routine monitoring of mainly medicinal plants or plants that serve as starting materials for medicines and teas is on gamma-emitting radioisotopes, in particular ¹³⁷Cs, a fallout component of above-ground nuclear weapons testingas well as of the Chernobyl reactor accident.

The specific activities of ¹³⁷Cs can show considerable variability depending on the species and local conditions (e. g. soil composition or contamination in the different growing regions of the countries of origin). They range between a maximum of 56 Bq/kg (DM) in black bitter clover from Poland and values below the detection limit (e. g. in the case of St. John's wort from Serbia).

AKTIVITÄTSNORMALE UND SPURENSTOFFE

H. Wershofen, D. Arnold, O. Nähle, K. Kossert, S. Röttger, D. Zapata-Garcia

Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig Leitstelle für Aktivitätsnormale und Radionukliddaten (Leitstelle B)

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 auch die PTB als Nationales Metrologie Institut (NMI) Deutschlands regelmäßig an internationalen Vergleichsmessungen, die von dem in Paris angesiedelten Bureau International des Poids et Mesures (BIPM) organisiert werden.

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 [1] und durch Aktivitätsbestimmungen an eingereichten Proben.

Eine weitere wichtige Aufgabe des Fachbereichs "Radioaktivität" ist die Bestimmung von Radionukliddaten, insbesondere von Betaspektren. Emmissionswahrscheinlichkeiten und Halbwertszeiten. Bei vielen Nukliden kann die Halbwertszeit durch die Messung des Abklingverhaltens z. B. mit 4π-Ionisationskammern oder Flüssigszintillationszählern bestimmt werden. Dazu müssen 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 der Messgröße gegeben sein. Durch den Einsatz des in der PTB entwickelten UCLA [2] zur Messung kleiner Ströme an Ionisationskammern konnten hier deutliche Verbesserungen erreicht werden.

In der PTB werden fortlaufend Halbwertszeiten in einem Bereich von wenigen Stunden bis hin zu einigen Jahrzehnten mit relativen Unsicherheiten in der Größenordnung von 10⁻⁴ bestimmt.

Im Berichtszeitraum wurden neue Primärnormalmessmethoden zur genauen Aktivitätsbestimmung von ²²⁵Ac und ²²⁷Th entwickelt [3], [4], [5]. Im Rahmen dieser Arbeiten konnten die Halbwertszeiten dieser beiden Radionuklide sowie die der Folgeprodukte ²¹³Po, ²¹³Bi und ²⁰⁹Pb mit kleinen Unsicherheiten neu bestimmt werden. Die Anwendung von ²²⁵Ac für nuklearmedizinische Anwendungen in der Therapie ist derzeit Thema einer Reihe von Studien.

Bei den genannten Radionukliden wurde die Flüssigszintillationszählung (LSC) zur Aktivitätsbestimmung verwendet [6]. Die LSC-Methoden spielen in der Radionuklidmetrologie eine besonders wichtige Rolle und eignen sich auch gut zur Aktivitätsbestimmung von reinen Betastrahlern oder Elektroneneinfängern, wobei hierbei grundlegenden Nukliddaten wie der Form des β-Spektrums eine besonders hohe Bedeutung zukommt [7]. Um solche fundamentalen Daten zu bestimmen, beteiligt sich die PTB in großem Umfang an internationalen Projekten, um die Datenbasis zu verbessern. Dabei werden kryogene Kalorimeter (metallic magnetic calorimeters, MMC) eingesetzt, die in einem Temperaturbereich unter 20 mK arbeiten und die in einem Goldabsorber deponierte Energie aus dem radioaktiven Zerfall als Temperaturerhöhung messen. Diese führt zu einer Änderung der Magnetisierung in einem Sensor, die durch hochpräzise Messungen mittels SQUIDs (superconducting quantum interference device) gemessen werden kann. Hieraus können Energiespektren mit bisher unerreichter Energieauflösung rekonstruiert werden. Arbeiten zu diesem ehrgeizigen Projekt im Bereich der Grundlagenforschung haben im Sommer 2016 begonnen und werden im Rahmen von drei geförderten EM-PIR-Projekten bearbeitet. Hierbei werden Betaspektren und Elektroneneinfangwahrscheinlichkeiten von insgesamt acht relevanten Nukliden bestimmt [8], [9].

Weitere Modernisierungen der Messtechnik durch die Eigenentwicklung eines LSC-Counters und den verstärkten Einsatz von Digitizern bei der Datenaufnahme ermöglichen eine stetige Erweiterung und Verbesserung der Absolutmethoden zur Aktivitätsbestimmung, z. B. auch an den Koinzidenzmessplätzen.

Im Rahmen des EMPIR-Projektes "MetroRADON" ist die Entwicklung von definierten ²²²Rn-Emanationsquellen, speziell für die aktuell erforderlichen niedrigen Aktivitätskonzentrationsbereiche in Raumluft von 100 Bq/m³ bis 300 Bq/m³, vorangetrieben worden. Unterschiedliche Verfahren zur Herstellung dieser Quellen wurden untersucht (Tropfdeposition, Chemiesorption, Elektrodeposition, Aufdampfen und massenseparierte Ionenimplantation). Die unterschiedlichen Verfahren eignen sich zur Herstellung von Quellen mit unterschiedlichen ²²⁶Ra/²²⁸Th Aktivitäten und unterschiedlichem Emanationsverhalten. Auch die Abhängigkeit der Emanation der Quellen von Umweltparametern, wie Temperatur, Luftdruck oder relativer Luftfeuchte, ist unterschiedlich. Deshalb wurde im Rahmen von MetroRA-DON ebenfalls ein aktives, portables Überwachungssystem zur Online-Bestimmung der Emanationseigenschaften der unterschiedlichen Quellen mittels Szintillationsdetektoren entwickelt und aufgebaut. Dabei wird die γ -Aktivität des Mutternuklids der Quelle und der in der Quelle verbliebenen Töchternuklide bestimmt und aus der Abweichung zum radioaktiven Gleichgewicht die Emanation des Radons bestimmt. Zur exakten Lösung dieses zeitlich gestörten Systems aus gekoppelten Differentialgleichungen wurde ein numerisches Verfahren auf der Basis eines Kalmanfilters entwickelt, um auch außerhalb von stationären Phasen die Abgabe von Radongas in das Kalibriervolumen bestimmen zu können. Damit ist ein erheblicher Fortschritt für die metrologische Nutzung von Emanationsquellen erreicht worden. Folgt das Emanationsverhalten einer eigenen Dynamik, so stellt die Messgröße die Faltung dieses dynamischen Signals mit der Impulsantwort des radioaktiven Systems dar. Damit handelt es sich bei der Schätzung des emanierenden ²²²Rn auf Basis der Messung des sich in der Quelle befindlichen ²²²Rn um ein inverses Problem. Mit Hilfe dieser Erkenntnis wurden neue statistische Methoden auf der Basis des Bayesschen Filters (Kalman Filter, Assumed density filtering [10]) entwickelt, die in Zukunft erlauben aus einer Zeitreihe von spektrometrischen Daten eine angenäherte Wahrscheinlichkeitsverteilung für das emanierende ²²²Rn zu berechnen, bevor das radioaktive Gleichgewicht erreicht wurde. Zugleich wird die Wahrscheinlichkeit dafür ermittelt, dass sich die Quelle aktuell in einem stabilen Regime befindet. Abbildung 1.1 zeigt beispielhaft Rohdaten, gewonnen aus gemessenen γ -Spektren einer ²²⁶Ra-Quelle, die aus diesen Daten geschätzte Aktivität des in der Quelle verbliebenen ²²²Rn und des emanierten ²²²Rn sowie die Wahrscheinlichkeit für stabile Regime. Dabei wurden für die Analyse für jeden Zeitpunkt nur Daten verwendet, die bis zu diesem Zeitpunkt vorgelegen haben - dadurch eignet sich das Verfahren auch für den Online-Einsatz.

Eine Fortsetzung dieses erfolgreichen Metrologieprojektes stellt das im Jahr 2020 gestartete und im Rahmen von EMPIR als 19ENV01 geförderte Projekt traceRadon¹ dar. Hierbei wird der Schritt von der bereits niedrigen Raumluftaktivitätskonzentration zu der noch um Größenordnungen niedrigeren Außenluftaktivitätskonzentration vollzogen. Dieser Schritt ist für zwei sehr große und bisher völlig getrennt agierende Forschungsgebiete von großer Bedeutung. Und zwar sowohl für den Strahlenschutz, genauer gesagt die Umweltradioaktivität, als auch für die Atmosphären- bzw. Klimaforschung, für die Radon als ausgezeichneter Tracer für die treibhausrelevanten Klimagase, wie z. B. CO₂, CH₄ und N₂O fungiert. Im Rahmen von traceRadon ist die PTB in den kommenden drei Jahren mit der Weiterentwicklung der Radon- und Thoron-Emanationsquellen sowie der Rückführung und Vergleichsmessung für die Außenluftaktivitätskonzentration und den Radonfluss aus dem Boden eingebunden.

Erste vielversprechende Entwicklungen in diesem Projekt sind Detektor-Emanationsquellen-Kombinationen mit Aktivitäten von wenigen Becquerel. Für die exakte Bestimmung der niedrigen ²²⁶Ra-Aktivität ist eine sehr effiziente Alphaspektrometrie unter definiertem Raumwinkel notwendig. Auch für die Online-Bestimmung der Variation der Emanation der Quelle wird ein sehr effizienter Nachweis des ²²⁶Ra sowie der Folgeprodukte des ²²²Rn benötigt. Dieses wird durch die direkte Kombination der Quelle mit einem alphaspektrometrischen Detektor erreicht. Zum ersten Mal ist dieses, durch thermisches Aufdampfen (PVD) von ²²⁶Ra auf einen ionenimplantierten Siliziumdetektor, gelungen.

Dabei wurden 150 Bq ²²⁶RaCl₂ direkt auf die Totschicht des Detektors aufgedampft. Damit ist der

¹ Das Projekt traceRadon wurde aus dem EMPIR-Programm, das von den teilnehmenden Staaten kofinanziert wird, und aus dem Forschungs- und Innovationsprogramm "Horizont 2020" der Europäischen Union finanziert. 19ENV01 traceRadon bezeichnet die EMPIR-Projektreferenz.



Abbildung 1.1

Quelle: Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Das oberste Diagramm zeigt die integrale Zählrate oberhalb der höchstenergetischen ²²⁶Ra-Energie (E_{γ} = 186,1 keV). Diese Zählrate enthält nur noch Ereignisse von ²²²Rn und seinen Folgeprodukten. Die Variation der Zählraten ist durch Variation von Umweltparametern bedingt.

Die nächste Graphik zeigt die damit bestimmte verbleibende ²²²Rn-Aktivität in Bq in der Quelle. Der blassblaue Streifen markiert das 90% Konfidenzintervall der Unsicherheit.

Die dritte Graphik zeigt die äquivalente Darstellung des emanierten ²²²Rn in Atomen pro Sekunde aus der Quelle - die eigentlich zu bestimmende Größe.

Die unterste Graphik stellt die Wahrscheinlichkeit für die Stabilität der Emanation der Quelle über einen Zeitraum von knapp 100 Tagen dar.

Detektor selbst die Quelle des ²²²Rn, welches im Wesentlichen durch Rückstoß aus dem Zerfall des ²²⁶Ra emaniert. Gleichzeitig ist er spektrometrischer Detektor für die entstehende Alphastrahlung sowohl des ²²⁶Ra als auch des ²²²Rn und dessen Folgeprodukten, mit einer Nachweiswahrscheinlichkeit von annähernd 50%. Das erstmalig

mit einer Quelle-Detektor-Kombination aufgenommene Alphaspektrum ist in Abbildung 1.2 zu sehen. Dargestellt ist die Impulshöhenverteilung über der Energie der α -Teilchen. Auf Grund ihrer Energie identifiziert man ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁸Po und ²¹⁴Po.



Abbildung 1.2

Alphaspektrum einer Quelle-Detektor-Kombination zur Bestimmung des zeitlichen Verlaufs sehr geringer ²²²Rn-Emanationen. Das schwarze Histogramm zeigt die Häufigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der Energie der α -Teilchen. Die rote Line zeigt die optimierte Anpassung eines um einen exponentiellen Tail erweiterten, gaußförmigen Peaks pro Linie. Die erzielte Halbwertsbreite (FWHM) der Gaußverteilungen beträgt FWHM = 40 keV.

Die Methode der α -Zählung unter definiertem Raumwinkel, eine Absolutmethode zur Bestimmung der Aktivität offener, Alphateilchen emittierender radioaktiver Quellen, ist nicht nur wieder in das Leistungsangebot aufgenommen worden, sondern wird in Richtung α -Spektrometrie unter definiertem Raumwinkel weiterentwickelt und verbessert.

Ziel ist hierbei neben der Bestimmung der Aktivität mit kleinstmöglicher Unsicherheit auch gleichzeitig die radioaktiven Verunreinigungen zu erkennen und Isotopengemische genauer zu charakterisieren. Dieser erweiterte Anspruch stellt eine neue metrologische Qualität dar, die eine verbesserte spektrometrische Auflösung und komplexe Auswerte-Algorithmen erfordert.

Die Bestimmung von Emissionsraten und Aktivitäten radioaktiver Quellen alphastrahlender Nuklide erfolgt durch die Messung der pro Zeit auf einen Detektor mit bekanntem Raumwinkel auftreffenden Alphateilchen. Aktuell werden relative Standard-Messunsicherheiten von 0,3% erreicht. Diese Art der Aktivitätsbestimmung ist eine Absolutmethode in dem Sinne, dass zur Bestimmung aller notwendigen Kalibrierfaktoren nur Messungen notwendig sind, die auf den Basiseinheiten unseres Einheitensystems beruhen. Das sind in diesem Falle Zeit- und Längenmessungen.

Derzeit laufen die Weiterentwicklung der bestehenden Apparaturen sowie die Optimierung des Energie-Auflösungsvermögens der Detektorsysteme. Bei der Neukonstruktion liegt der Schwerpunkt auf der Reduzierung der Messunsicherheit. Diese ist im Wesentlichen bestimmt durch die Unsicherheiten von Längenmessungen. Durch eine Vergrößerung der Messapparatur lassen sich die relativen Unsicherheiten dieser Längenmessungen deutlich reduzieren. Konstruktiv ist dieses Verfahren durch die maximale Größe des Detektors begrenzt. Bezüglich der aktiven Fläche wird durch den Einsatz von Detektoren der neuesten Generation (Oberfläche von 5000 mm²) eine Verbesserung um mehr als einen Faktor 10 erreicht. Daneben wird die neue Apparatur Maßnahmen zur Reduzierung des Nulleffekts enthalten und einen schnellen Quellwechsel ermöglichen. Damit eröffnet sich eine Möglichkeit im Bereich der kurzlebigen Nuklide neben Aktivitäts- auch Halbwertszeitbestimmungen vorzunehmen.

Ein Beispiel für die neuartigen Untersuchungsmöglichkeiten stellt die Bestimmung der Zusammensetzung einer ²³³U-Quelle, für eine neue Generation optischer Atomuhren auf der Basis eines ²²⁹Thorium-Kernübergangs per Alpha-Spektrometrie, dar.

Die Entwicklung dieser neuen Generation optischer Atomuhren betreibt die Abteilung 4 der PTB. Für die angestrebte Realisierung noch geringerer Unsicherheiten wird eine Quelle von ²²⁹Th-Ionen benötigt. Eine Möglichkeit ²²⁹Th-Ionen zu produzieren ist, diese als Rückstoßionen aus dem Alpha-Zerfall des ²³³U zu gewinnen. Eine erste Analyse einer am Institut für Kernchemie der Johannes Gutenberg-Universität Mainz hergestellten Quelle erfolgte per Alpha-Spektrometrie unter definiertem Raumwinkel. Dabei wird untersucht, ob sich außer ²³³U weitere radioaktive (α emittierende) Isotope in der Quelle befinden. Diese Isotope stellen auf Grund ihres α -Zerfalls und des damit verbundenen Rückstoßes der Tochterisotope eine Quelle weiterer Nuklide dar, was wiederum eine Quelle für einen erhöhten Untergrund bei der Separation des ²²⁹Th für die Experimente darstellt.

An der Universität in Mainz wurde ²³³U elektrolytisch auf einem titanbeschichteten Siliziumwafer abgeschieden. Der Siliziumwafer mit einem Durchmesser von 30 mm und einem Loch von 6 mm Durchmesser in der Mitte wurde in der PTB mit Hilfe von Alphaspektrometrie unter definiertem Raumwinkel und in der Gammaspektrometrie vermessen. Dafür wurde auch eine Autoradiographie der Quelle erstellt (Abbildung 1.3).

Aus der Impulshöhenverteilung des gemessenen Spektrums wurden durch Minimierung der Abweichung der Einzellinien unter Berücksichtigung der Kerndaten die identifizierten Nuklide sowie deren Aktivität bestimmt. Abgesehen von den Linien des ²³³U sind die Linien des ersten Folgeproduktes ²²⁹Th zu finden. Als Verunreinigungen identifiziert wurden ²³²U und seine Folgeprodukte, wie ²²⁸Th und ²²⁴Ra bis hin zum ²¹²Po.

Unter den weiteren bereits detektierten Verunreinigungen sind verschiedene Plutoniumisotope wie ²³⁸Pu, ²⁴⁰Pu und ²⁴²Pu. Diese Isotope konnten mit der gammaspektrometrischen Messung dieser Quelle bestätigt werden.



Quelle: Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Abbildung 1.3

Autoradiographie der ²³³U-Quelle mit 30 mm Durchmesser und einem Loch in der Mitte auf einem Tibeschichteten Si-Wafer. Die Aktivitätsskala läuft von grün (Untergrund) über gelb bis rot (höchste Aktivität). Die Autoradiographie ist notwendig, um die Geometriekorrekturfaktoren für die Alphaspektrometrie dieser speziellen Quelle unter definiertem Raumwinkel auswerten zu können.

Die γ-Spektrometrie-Messplätze werden modernisiert und weiterentwickelt. Hierzu zählen die Umrüstung auf Wiederverflüssigungsdeware sowie die Umstellung auf schnellere digitale Messaufnahmesysteme. Auf vermehrte Kundenanfragen nach höheren Aktivitäten reagiert die PTB, indem das Leistungsangebot mittels eines neuen Messplatzes erweitert wird, der speziell für hohe Aktivitäten ausgelegt wird.

Im Rahmen der Digitalisierung in der Metrologie laufen Bestrebungen, Methoden der künstlichen Intelligenz für die Spektrometrie zu nutzen. So werden z. B. Convolutional Neural Networks (CNN) zur Nuklididentifikation erprobt oder in Kombination mit Monte-Carlo-Simulation zur Entfaltung von Spektren verwendet.

In diesem Zusammenhang wurde eine Methode entwickelt, um radioaktive Mischlösungen direkter zu charakterisieren. Die Aktivitätsbestimmung von Mischlösungsstandards erfolgt ausschließlich über γ -Spektrometrie, da primäre Methoden die Nuklide nicht aufgelöst messen können. Will man die kleinen Unsicherheiten der primären Methoden auch für Mischlösungen erreichen, benötigt man eine möglichst direkte Methode ohne weitere zusätzliche Unsicherheitsbeiträge.

Zu diesem Zweck wurde ein neues Bayes-basiertes Verfahren entwickelt. Es beruht auf der Messung der Spektren der Ausgangslösung und der zu bestimmenden Mischlösung in exakt gleicher Geometrie.

Durch gleichzeitiges *Rebinning* der Spektren sowie multivariate gauß'sche Optimierung (Minimierung) der Abweichung der Spektren werden Aktivitätstransferfaktoren bestimmt. Die Unsicherheitsverteilungen dieser Aktivitäten sollen zukünftig mittels Markov-Chain Monte-Carlo bestimmt werden.

Abbildung 1.4 zeigt das Histogramm des γ -Spektrums einer Mischlösung (schwarze Punkte) in Abhängigkeit von der Energie der γ -Quanten. Die Einzelnuklidspektren (¹⁰⁹Cd, ¹⁵⁴Eu (¹⁵⁵Eu), ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs), aus denen sich die Mischlösung zusammensetzt, sind als blasse Histogramme dargestellt. Die optimierte, digitale Kombination dieser Spektren ist zum Vergleich als intensives rotes Histogramm abgebildet.

In Abbildung 1.5 ist ein Ausschnitt aus diesem Spektrum für den besonders interessanten Energiebereich um die Hauptlinie des ¹⁰⁹Cd bei E_{γ} = 88,03 keV dargestellt.

Man erkennt, dass sowohl der nicht konstante Untergrund als auch die nur mit sehr geringer Zählrate vorhandene Linie des ¹⁵⁵Eu (E_{γ} = 86,55 keV, pg = 0,307) zu einer perfekten Anpassung führen, obwohl ¹⁵⁵Eu hier nur eine Verunreinigung der ¹⁵⁴Eu-Einzelnuklidlösung ist.



Abbildung 1.4

Histogramm des γ-Spektrums der Mischlösung (schwarze Punkte) in Abhängigkeit von der Energie der γ -Quanten. Die Einzelnuklidspektren (¹⁰⁹Cd, ¹⁵⁴Eu (¹⁵⁵Eu), ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs), aus denen sich die Mischlösung zusammensetzt, sind als blasse Histogramme dargestellt. Die optimierte, digitale Kombination dieser Spektren ist zum Vergleich als intensives rotes Histogramm abgebildet.

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 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/cm³ und 11 g/cm³.

Durch die Aktivitätsbestimmung an Ringversuchsmaterialien unterstützt die PTB die Leitstellen bei der Durchführung von Ringvergleichen im Rahmen des Messprogrammes nach dem Strahlenschutzgesetz. Hierzu erhält die PTB zufällig ent-



Abbildung 1.5 Ausschnitt aus dem in Abbildung 4 gezeigten Spektrum für den besonders interessanten Energiebereich um die Hauptlinie des ¹⁰⁹Cd bei E = 88,03 keV

nommene Proben aus der Menge der für die Teilnehmer vorbereiteten Ringversuchsproben. Die Proben werden 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.

Zur Erweiterung seiner Kalibrier- und Messmöglichkeiten für Radionuklide in Umweltproben hat der Fachbereich "Radioaktivität" in den Jahren 2016 bis Ende 2018 im Rahmen einer größeren Umbaumaßnahme einen geeigneten Messraum und die notwendige technische Infrastruktur geschaffen. Ein Multikollektor-Massenspektrometer mit induktiv gekoppeltem Plasma (engl. Multi-Collector Inductively Coupled Mass-Spectrometer, MC-ICP-MS) wurde im November 2018 in Betrieb genommen und erste Messungen an Aktivitätsnormal-Lösungen von Uran und Plutonium wurden ab 2019 durchgeführt. Dazu wurden Lösungen eingesetzt, die keiner radiochemischen Vorreinigung in der PTB mehr bedurften, da der 2. Bauabschnitt zur Labor- und Gebäudesanierung noch nicht abgeschlossen und somit kein PTB-eigenes Radiochemielabor verfügbar war.

Spurenmessstelle für radioaktive Stoffe in der Luft

Messergebnisse

Im Berichtszeitraum gab es nur wenige bemerkenswerte Messergebnisse in der Spurenmessung von Radionukliden in der bodennahen Luft in Braunschweig.

Auch in den Jahren 2017 bis 2019 wurden die üblichen Schwankungen der Aktivitätskonzentration der regelmäßig messbaren Radionuklide beobachtet. Diese Schwankungen treten i. d. R. jahreszeitlich oder wetterbedingt auf. Daneben wurde häufig ein Anstieg der Aktivitätskonzentration des natürlichen Radionuklids ²¹⁰Pb beobachtet. ²¹⁰Pb kommt nicht nur in Bodenstaub vor, sondern z. B. auch in Flugaschen aus Kohlekraftwerken, kohlebefeuerten privaten Heizanlagen, an Stäuben aus der Baustoffindustrie oder in Flugstaub aus der Eisen- und Stahlgewinnung. Radioökologische und dosimetrische Aspekte zur Nutzung natürlich radioaktiver Stoffe sind in [11] beschrieben.

Lebhaftes Medieninteresse fand eine Freisetzung von ¹⁰⁶Ru im Herbst 2017. Die Herkunft des ¹⁰⁶Ru ist bis heute trotz internationaler Bemühungen nicht abschließend geklärt [12], [13], [14], [15]. Bemerkenswert ist, dass auf Grund der Wetterlage die ¹⁰⁶Ru enthaltenden Luftmasse die PTB erst sehr spät und damit so "verdünnt" erreichte, dass in der PTB kein ¹⁰⁶Ru nachweisbar war.

2 NATÜRLICHE RADIONUKLIDE IN UMWELTMEDIEN, INDUSTRIELLEN RÜCKSTÄNDEN, BAUSTOFFEN UND GEBÄUDEN

N. Klasen, S. Feige

Bundesamt für Strahlenschutz

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

Aufgaben der Leitstelle ENORM

Die Leitstelle ENORM wurde 2002, nach der Novellierung der Strahlenschutzverordnung (StrSchV 2001) eingerichtet. Natürliche Radionuklide kommen überall in der Umwelt vor. Als Nebeneffekt industrieller Prozesse kann es zu erheblichen Anreicherungen natürlicher Radionuklide in den industriellen Rückständen kommen. Im Strahlenschutzgesetz (StrlSchG §5 Absatz 32, §§60-66, Anlage 1) sind alle überwachungsbedürftigen Rückstände (NORM-Stoffe) erfasst. Regelungen zum Schutz vor Radon hingegen finden sich im StrlSchG in Teil 4 Kapitel 2 (in §§ 121 bis 132) sowie in Teil 4 Kapitel 1 der StrSchV(§§ 153 bis 158).

Die Aufgaben der Leitstelle sind die Erarbeitung und die Aktualisierung von Richtlinien, Merkblättern und Vorschriften zur Bestimmung der spezifischen Aktivitäten natürlicher Radionuklide in verschiedenen Umweltmedien, beispielsweise in Böden, Sedimenten und Baustoffen sowie in industriellen Rückständen, um eine zuverlässige Ermittlung der Strahlenexposition durch diese Stoffe zu ermöglichen. Die Leitstelle ENORM entwickelt, erfasst und bewertet die Eignung von Probenentnahme- und Analyseverfahren, mit denen der Gehalt relevanter Radionuklide wie beispielsweise ²³⁸U, ²²⁶Ra und ²¹⁰Pb aus der Uran/Radium-Zerfallsreihe, ²³²Th, ²²⁸Ra und ²²⁸Th aus der Thorium-Zerfallsreihe sowie ²³⁵U und ²²⁷Ac aus der Uran/Actinium-Zerfallsreihe mittels gammaspektrometrischer Analyse bestimmt wird. Die entsprechenden Messverfahren sind in den Messanleitungen (BMU, Hrsg.) dokumentiert und sollen die Erfüllung der Anforderungen an eine qualitätsgestützte Datenerhebung sicherstellen. Zur Prüfung der Qualität der von den beteiligten Institutionen erhobenen Messergebnisse organisiert die Leitstelle regelmäßig Ringversuche und Vergleichsmessungen und bietet fachliche Beratung für Behörden und Messstellen an.

Dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) als Leitstelle ENORM wurde vom Gesetzgeber die Aufgabe übertragen, Maßnahmen der Qualitätssicherung von Radonmessungen, die dem Strahlenschutz an Arbeitsplätzen dienen, durchzuführen. Die Zuverlässigkeit der für die Überwachung ein-

gesetzten Methoden ist nachzuweisen. Eine qualitätsgesicherte Messung der Radon-Aktivitätskonzentration bzw. der Exposition ist entscheidend, um beispielsweise die Situation an Arbeitsplätzen und in Aufenthaltsräumen zu bewerten, über Reduzierungsmaßnahmen zu entscheiden oder die Dosis von Beschäftigten zu bestimmen. Mit der Darstellung der Radonaktivitätskonzentration in Luft hat das BfS ein Verfahren aufgebaut, das auf primäre nationale Normale der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) für Volumen [m³] und Aktivität [Bq] rückführbar ist. Das BfS betreibt damit eine Primärnormaleinrichtung für die Aktivitätskonzentration [Bg/m³] von Radon, die höchsten metrologischen Ansprüchen genügt. Das BfS-Radonkalibrierlabor unterhält ein Qualitätsmanagementsystem nach DIN EN ISO/ IEC 17025 und ist bei der DAkkS für die Kalibrierung von Geräten zur Messung der Aktivitätskonzentration von ²²²Rn in Luft und der potentiellen Alphaenergie-Konzentration der kurzlebigen ²²²Radon-Folgeprodukte akkreditiert. Die Weitergabe der Messgröße Radon-Aktivitätskonzentra-

tion in Luft erfolgt über Kalibrieraufträge von öffentlichen Institutionen und privat-wirtschaftlichen Unternehmen aus dem In- und Ausland. Daneben verfügt das BfS über ein eigenes Fertigungs- und Analyselabor für passive Radondetektoren für methodische Untersuchungen des Messverfahrens mit Festkörperspurdetektoren.

ODL-Messvergleich auf den Referenzflächen der Wismut GmbH, Ronneburg (Reust, Thüringen)

Die Leitstelle ENORM führt jährlich einen Messvergleich für tragbare Ortsdosisleistungsmessgeräte auf Referenzflächen der Wismut GmbH in Reust (Thüringen) durch. Der Messvergleich dient der Qualitätskontrolle von Messgeräten, die bei umgebungsdosimetrischen Messungen eingesetzt werden. Die drei Referenzmessflächen mit jeweils etwa 400 Quadratmetern Fläche bestehen aus Beton, Haldenmaterial der ehemaligen Uranerzförderung sowie Rückständen der Aufbereitung (Tailings). Durch die Auswahl der Materialien konnten Referenzmessflächen mit erheblich unterschiedlichen Ortsdosisleistungen zwischen etwa 70 nSv/h und 820 nSv/h geschaffen werden. Am Messvergleich nehmen neben BfS und



Abbildung 2.1 Im BfS-Radonkalibrierlabor bieten verschiedene Behälter die Möglichkeit, Kalibrieratmosphären unterschiedlicher Radonaktivitätskonzentration bereit zu stellen.

Wismut GmbH auch Landesbehörden, Forschungseinrichtungen, Universitäten sowie private Unternehmen mit insgesamt etwa 150 Messgeräten teil.

Jährliche Vergleichs- und Eignungsprüfung passiver Radonmessgeräte des BfS

Vielfach werden passive Exposimeter zur Bestimmung der Radon-Aktivitätskonzentration in der Raumluft oder der personenbezogenen Exposition eingesetzt. Zur Qualitätssicherung dieser Geräte hat sich die Teilnahme an Vergleichs- und Eignungsprüfungen bewährt, bei der die Messergebnisse einer Anzahl von kontrolliert exponierten Geräten mit einem Referenzwert verglichen werden. Das BfS verfügt nach 18 abgeschlossenen Vergleichsmessungen mit fast 50 verschiedenen Messgerätetypen über eine umfassende Datengrundlage, die eine Bestimmung der messtechnischen Unsicherheiten der passiven Radonmesssysteme ermöglicht. Basierend auf den Daten von über 10000 Einzelmessungen wird heute ein im BfS entwickeltes Verfahren zur Eignungsprüfung angewendet.

Der Teilnehmerkreis der jährlichen Vergleichsund Eignungsprüfung umfasst sowohl behördlich bestimmte Messstellen nach § 169 des Strahlenschutzgesetzes und anerkannte Stellen nach § 155 der Strahlenschutzverordnung als auch weitere Messlabore aus dem In- und Ausland. Die Ergebnisse werden mit einem Bericht veröffentlicht [78].



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 2.2

Die Referenzflächen der Wismut GmbH in Ronneburg in 2018. Im Bildvordergrund sind unterschiedliche Ortsdosisleistungsmessgeräte im Einsatz zu sehen.



Abbildung 2.3

Queнe: випаesamt rur Strahlenschutz

Messwerte der Messgeräte der am Messvergleich teilnehmenden Institutionen. Die Qualität der Ergebnisse unterscheidet sich zum Teil deutlich hinsichtlich Richtigkeit und Genauigkeit. Die Referenzwerte vom 18.06.2019 nachmittags für die unterschiedlichen Flächen liegen bei 74 ± 4 nSv/h (oben, Beton), 211 ± 6 nSv/k (mittig, Haldenmaterial), 809 ± 12 nSv/h (unten, Tailings). Die Referenzwerte sind als gestrichelte Linien eingezeichnet.







Abbildung 2.5 Verschiedene passive Radondetektoren einer Expositionsgruppe der Vergleichsprüfung 2019

ABLEITUNG RADIOAKTIVER STOFFE AUS KERNKRAFTWERKEN, STILLLEGUNG VON KERNKRAFTWERKEN, EXPOSITIONEN DER BEVÖLKERUNG

A. Heckel¹, M. Siegfried²

Bundesamt für Strahlenschutz ¹Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen (Leitstelle J) ²Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen (Leitstelle H)

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 für die Bevölkerung geltenden Dosisgrenzwerte gewährleistet ist.

Ausstieg aus der Stromerzeugung durch Kernenergie

Auf Grund des Reaktorunfalls in der Kernkraftwerksanlage Fukushima Daiichi in Japan vom 11.03.2011 veranlasste die Bundesregierung für alle noch in Betrieb befindlichen Kernkraftwerke eine Sicherheitsüberprüfung. 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 bis zum Ende 2022 zeitlich gestaffelt zu beenden.

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 Exposition der Bevölkerung rechnerisch abgeschätzt.

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 einigten sich im November 2012 auf neue Sicherheitsanforderungen für den Betrieb der Kernkraftwerke (Sicherheitsanforderungen an Kernkraftwerke, die auf Grund neuer wissenschaftlich-technischer Erkenntnisse am 03.03.2015 angepasst wurden). 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 BMU bietet auf seinen Internetseiten weitere Informationen zu diesem Thema an. Diese können unter folgender Internet-Adresse abgerufen werden: www.bmu.de/ PM5241.

Abschalttermine

Mit Inkrafttreten des geänderten Atomgesetzes am 06.08.2011 wurde den Kernkraftwerken Biblis A und B, Neckarwestheim 1, Brunsbüttel, Isar 1, Unterweser, Philippsburg 1 und Krümmel die weitere Berechtigung zum Leistungsbetrieb entzogen. Diese acht Anlagen sind seitdem endgültig abgeschaltet. Zwischenzeitlich wurden die Kernkraftwerke Grafenrheinfeld am 27.06.2015, Gundremmingen B am 31.12.2017 und Philippsburg 2 am 31.12.2019 ebenfalls endgültig abgeschaltet.

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

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 2019"

(http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2020092123025).

In den Jahren 2018 und 2019 waren in Deutschland noch acht Kernkraftwerksblöcke mit einer elektrischen Bruttoleistung von jährlich etwa 8,6 GW in Betrieb. Sie haben zur Stromerzeugung etwa 12 Prozent beigetragen. Die Standorte der Kernkraftwerke und die Bruttostromerzeugung sind aus Abbildung 3.1 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 2017 bis 2019 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. 10¹⁵ Bq für Edelgase und ca. 10¹⁰ Bq für ¹³¹I.

Tabelle 3.1

Ableitung radioaktiver St	toffe mit der Fortluf	t aus Kernkraftwerken ir	n den Jahren 2017 bis 2019
---------------------------	-----------------------	--------------------------	----------------------------

		Ableitung mit der Fortluft in Bq				
Kernkraftwerk	Jahr	Edelgase	Schweb- stoffe ^{c)}	¹³¹	¹⁴ CO ₂	³ Н
Stade ^{a)}	2017	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	4,5 • 10 ⁸
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	4,0 • 10 ⁸
	2019	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	3,0 • 10 ⁸
Biblis Block A ^{a)}	2017	n.n.	n.n.	n.n.	5,4 • 10 ¹⁰	1,7 • 10 ¹¹
	2018	n.n.	n.n.	n.n.	9,9 • 10 ⁹	1,6 • 10 ¹¹
	2019	n.n.	n.n.	n.n.	1,8 • 10 ¹⁰	7,2 • 10 ¹⁰
Biblis Block B ^{a)}	2017	2,1 • 10 ¹¹	n.n.	n.n.	4,7 • 10 ¹⁰	4,9 • 10 ¹¹
	2018	5,7 • 10 ¹⁰	n.n.	n.n.	9,5 • 10 ¹⁰	4,2 • 10 ¹¹
	2019	2,7 • 10 ¹¹	n.n.	n.n.	5,1 • 10 ⁹	2,7 • 10 ¹¹
Neckarwestheim 1 ^{a)}	2017	n.n.	3,1 • 10 ⁴	n.n.	2,0 • 10 ⁸	3,6 • 10 ¹⁰
	2018	n.n.	6,5 • 10 ⁴	n.n.	1,2 • 10 ⁸	1,2 • 10 ¹⁰
	2019	n.b.	1,1 • 10 ⁵	n.b.	4,0 • 10 ⁷	5,0 • 10 ⁹
Brunsbüttel ^{a)}	2017	n.n.	4,6 • 10 ⁶	n.n.	5,1 • 10 ⁹	2,3 • 10 ⁸
	2018	n.n.	5,3 • 10 ⁶	n.n.	7,6 • 10 ⁹	1,9 • 10 ⁹
	2019	n.n.	2,9 • 10 ⁶	n.n.	1,4 • 10 ⁹	6,5 • 10 ⁹
Isar 1 ^{a)}	2017	n.n.	n.n.	n.n.	1,7 • 10 ⁹	8,1 • 10 ¹⁰
	2018	1,4 • 10 ⁹	n.n.	n.n.	4,4 • 10 ⁸	2,4 • 10 ¹⁰
	2019	n.n.	n.n.	n.n.	6,5 • 10 ⁸	9,2 • 10 ⁹
Unterweser ^{a)}	2017	2,3 • 10 ¹⁰	n.n.	n.n.	7,0 • 10 ⁸	2,7 • 10 ¹¹
	2018	2,6 • 10 ¹⁰	n.n.	n.n.	7,0 • 10 ⁸	6,8 • 10 ¹⁰
	2019	1,7 • 10 ⁹	2,4 • 10 ⁴	n.n.	4,4 • 10 ⁸	2,7 • 10 ¹⁰
Philippsburg 1 ^{a)}	2017	n.n.	5,3 • 10 ⁵	n.n.	1,3 • 10 ⁹	1,1 • 10 ¹¹
	2018	n.b.	3,3 • 10 ⁵	n.b.	1,6 • 10 ¹⁰	5,0 • 10 ¹⁰
	2019	n.b.	2,8 • 10 ⁵	n.b.	3,3 • 10 ¹⁰	3,8 • 10 ¹⁰
Grafenrheinfeld ^{a)}	2017	n.n.	5,8 • 10 ⁴	n.n.	2,6 • 10 ⁹	1,6 • 10 ¹¹
	2018	n.n.	1,6 • 10 ⁴	n.n.	9,0 • 10 ⁸	2,0 • 10 ¹¹
	2019	n.n.	4,4 • 10 ⁴	n.n.	3,3 • 10 ⁹	1,4 • 10 ¹¹
Krümmel ^{b)}	2017	1,0 • 10 ¹⁰	3,3 • 10 ⁴	n.n.	1,9 • 10 ⁹	n.n.
	2018	n.n.	1,2 • 10 ⁴	n.n.	1,6 • 10 ⁹	n.n.
	2019	5,8 • 10 ¹⁰	n.n.	n.n.	2,1 • 10 ⁹	1,1 • 10 ¹⁰
Gundremmingen Block B ^{a)} und C	2017 2018 2019	8,4 • 10 ¹² 1,7 • 10 ¹³ 8,9 • 10 ¹²	5,3 • 10 ⁵ 6,1 • 10 ⁵ 5,5 • 10 ⁵	6,9 • 10 ⁷ 8,6 • 10 ⁷ 8,8 • 10 ⁷	2,5 • 10 ¹¹ 1,5 • 10 ¹¹ 1,7 • 10 ¹¹	1,1 • 10 ¹¹ 6,6 • 10 ¹⁰ 8,4 • 10 ¹⁰

Tabelle 3.1	
Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Fortluft aus Kernkraftwerken in den Jahren 2017 bis	2019

	Jahr	Ableitung mit der Fortluft in Bq				
Kernkraftwerk		Edelgase	Schweb- stoffe ^{c)}	¹³¹	¹⁴ CO ₂	³ Н
Grohnde	2017	9,7 • 10 ¹⁰	n.n.	n.n.	2,3 • 10 ¹⁰	1,4 • 10 ¹¹
	2018	4,3 • 10 ¹⁰	n.n.	n.n.	3,2 • 10 ¹⁰	1,4 • 10 ¹¹
	2019	1,7 • 10 ¹¹	n.n.	n.n.	4,7 • 10 ¹⁰	1,1 • 10 ¹¹
Philippsburg 2	2017 2018 2019	$2,7 \cdot 10^{11} 4,2 \cdot 10^{11} 3,2 \cdot 10^{11}$	1,4 • 10 ⁵ 1,4 • 10 ⁵ 8,7 • 10 ⁴	n.n. n.n. 1,9 • 10 ⁴	6,3 • 10 ¹⁰ 3,3 • 10 ¹⁰ 2,0 • 10 ¹⁰	1,4 • 10 ¹² 5,9 • 10 ¹¹ 5,7 • 10 ¹¹
Brokdorf	2017 2018 2019	$1,7 \cdot 10^{11} \\ 3,3 \cdot 10^{11} \\ 3,1 \cdot 10^{11}$	n.n. 5,1 • 10 ⁵ n.n.	3,3 • 10 ⁴ n.n. 5,2 • 10 ⁶	2,0 • 10 ¹¹ 1,7 • 10 ¹¹ 1,5 • 10 ¹¹	1,3 • 10 ¹¹ 1,2 • 10 ¹¹ 1,3 • 10 ¹¹
Isar 2	2017	2,6 • 10 ¹¹	n.n.	n.n.	9,7 • 10 ¹⁰	1,7 • 10 ¹¹
	2018	6,3 • 10 ¹¹	n.n.	n.n.	6,9 • 10 ¹⁰	1,8 • 10 ¹¹
	2019	1,4 • 10 ¹²	n.n.	n.n.	8,8 • 10 ¹¹	1,5 • 10 ¹¹
Emsland	2017	$1,3 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	1,8 • 10 ¹¹	5,5 • 10 ¹¹
	2018	$1,5 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	1,5 • 10 ¹¹	5,7 • 10 ¹¹
	2019	$1,6 \cdot 10^{11}$	n.n.	n.n.	1,8 • 10 ¹¹	6,7 • 10 ¹¹
Neckarwestheim 2	2017	1,1 • 10 ¹¹	n.n.	n.n.	1,8 • 10 ¹¹	2,3 • 10 ¹¹
	2018	1,0 • 10 ¹¹	1,9 • 10 ⁴	n.n.	1,5 • 10 ¹¹	2,5 • 10 ¹¹
	2019	9,8 • 10 ¹⁰	1,0 • 10 ⁴	n.n.	2,0 • 10 ¹¹	2,2 • 10 ¹¹
KKR Rheinsberg ^{a)}	2017	n.b.	6,2 • 10 ⁵	n.b.	n.b.	n.b.
	2018	n.b.	3,3 • 10 ⁵	n.b.	n.b.	n.b.
	2019	n.b.	3,4 • 10 ⁵	n.b.	n.b.	n.b.
KGG Gundremmingen ^{a) d)}	2017	n.b.	n.n.	n.b.	7,5 • 10 ⁷	1,4 • 10 ⁹
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	3,0 • 10 ⁷	1,9 • 10 ¹⁰
	2019	n.b.	n.n.	n.b.	2,5 • 10 ⁷	1,2 • 10 ¹⁰
KWL Lingen ^{a)}	2017	n.b.	4,3 • 10 ³	n.b.	n.n.	n.n.
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	n.n.
	2019	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	n.n.
KWO Obrigheim ^{a)}	2017	n.b.	n.n.	n.b.	4,4 • 10 ⁸	4,9 • 10 ¹⁰
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	1,3 • 10 ⁸	2,4 • 10 ¹⁰
	2019	n.b.	1,3 • 10 ⁴	n.b.	4,8 • 10 ⁷	2,3 • 10 ⁹
KWW Würgassen ^{a)}	2017	n.b.	n.n.	n.b.	4,6 • 10 ⁷	9,0 • 10 ⁸
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	4,3 • 10 ⁷	9,0 • 10 ⁸
	2019	n.b.	n.n.	n.b.	5,0 • 10 ⁷	9,4 • 10 ⁸
KGR Greifswald ^{a)}	2017	n.b.	n.n.	n.b.	n.b.	n.b.
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	n.b.	n.b.
	2019	n.b.	n.n.	n.b.	n.b.	n.b.
THTR Hamm-Uentrop ^{a)}	2017	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	4,1 • 10 ⁷
	2018	n.b.	n.n.	n.b.	n.n.	4,3 • 10 ⁷
	2019	n.b.	3,5 • 10 ²	n.b.	n.n.	5,3 • 10 ⁷

Tabelle 3.1Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Fortluft aus Kernkraftwerken in den Jahren 2017 bis 2019

	Jahr	Ableitung mit der Fortluft in Bq				
Kernkraftwerk		Edelgase	Schweb- stoffe ^{c)}	131	¹⁴ CO ₂	³ Н
KMK Mühlheim-Kärlich ^{a)}	2017 2018 2019	n.b. n.b. n.b.	n.n. n.n. n.n.	n.b. n.b. n.b.	2,2 • 10 ⁸ 1,2 • 10 ⁸ 2,1 • 10 ⁵	n.n. 2,1 • 10 ¹⁰ 4,5 • 10 ⁸

a) Anlage stillgelegt b) Anlage dauerhaft im Nichtleistungsbetrieb d) mit Technologiezentrum

c) Halbwertszeit > 8 Tage, ohne ¹³¹I, 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 2017 bis 2019

		Ableitung mit dem Abwasser in Bq				
Kernkraftwerk	Jahr	Spalt- und Aktivierungs- produkte (außer Tritium)	³ Н	Alpha- Strahler		
Stade ^{a)}	2017 * 2018 * 2019	4,98E+04	1,34E+06	3,25E+03		
Biblis Block A ^{a)}	2017	5,31E+07	8,12E+11	n.n.		
	2018	6,25E+07	1,28E+12	2,14E+04		
	2019	4,69E+07	5,57E+11	2,37E+05		
Biblis Block B ^{a)}	2017	4,71E+07	3,72E+12	n.n.		
	2018	1,71E+07	9,39E+11	n.n.		
	2019	2,82E+07	1,01E+12	9,60E+04		
Neckarwestheim 1 ^{a)}	2017	1,44E+05	8,09E+10	n.n.		
	2018	n.n.	1,70E+11	n.n.		
	2019	n.n.	2,44E+10	n.n.		
Brunsbüttel ^{a)}	2017	7,96E+06	1,32E+09	n.n.		
	2018	1,69E+07	1,90E+08	n.n.		
	2019	8,87E+06	6,71E+09	n.n.		
Isar 1 ^{a)}	2017	2,41E+07	2,90E+11	n.n.		
	2018	2,44E+07	2,00E+11	n.n.		
	2019	5,50E+07	6,30E+10	n.n.		
Unterweser ^{a)}	2017	7,25E+06	3,16E+12	8,52E+04		
	2018	2,69E+07	3,29E+12	9,92E+05		
	2019	2,67E+06	3,56E+10	3,59E+04		
Philippsburg 1 ^{a)}	2017	1,56E+07	5,66E+10	n.n.		
	2018	1,45E+07	2,86E+10	2,86E+04		
	2019	3,93E+06	2,38E+11	n.n.		
Grafenrheinfeld ^{a)}	2017	7,19E+07	2,97E+11	n.n.		
	2018	5,57E+06	1,62E+10	1,27E+02		
	2019	8,08E+06	1,74E+11	1,18E+05		

		Ableitung mit dem Abwasser in Bq				
Kernkraftwerk	Jahr	Spalt- und Aktivierungs- produkte (außer Tritium)	³ Н	Alpha- Strahler		
Krümmel ^{b)}	2017	n.n.	6,70E+07	n.n.		
	2018	n.n.	7,70E+07	n.n.		
	2019	1,07E+06	1,95E+09	n.n.		
Gundremmingen Block B ^{a)} und C	2017 2018 2019	5,57E+08 5,52E+08 4,44E+08	2,22E+12 1,73E+12 1,43E+12	n.n. n.n. 3,00E+01		
Grohnde	2017	n.n.	1,17E+13	n.n.		
	2018	n.n.	2,03E+13	n.n.		
	2019	n.n.	1,50E+13	n.n.		
Philippsburg 2	2017	2,49E+07	1,14E+13	n.n.		
	2018	2,35E+07	1,36E+13	n.n.		
	2019	3,37E+07	1,62E+13	n.n.		
Brokdorf	2017	n.n.	1,13E+13	n.n.		
	2018	n.n.	2,41E+13	n.n.		
	2019	3,13E+05	2,39E+13	n.n.		
Isar 2	2017	n.n.	1,30E+13	n.n.		
	2018	n.n.	2,20E+13	n.n.		
	2019	n.n.	2,10E+13	n.n.		
Emsland	2017	n.n.	1,30E+13	n.n.		
	2018	n.n.	1,20E+13	n.n.		
	2019	n.n.	9,94E+12	n.n.		
Neckarwestheim 2	2017	n.n.	1,19E+13	n.n.		
	2018	n.n.	1,59E+13	n.n.		
	2019	n.n.	1,43E+13	n.n.		
Greifswald Block 1-5 ^{a)}	2017	n.n.	4,60E+07	n.n.		
	2018	7,18E+04	n.n.	9,80E+03		
	2019	1,40E+04	3,10E+07	1,40E+04		
Rheinsberg ^{a)}	2017	1,96E+06	n.n.	9,95E+04		
	2018	2,32E+06	n.n.	1,00E+05		
	2019	1,43E+06	n.n.	9,70E+04		
Mülheim-Kärlich ^{a)}	2017	6,82E+05	1,46E+06	2,33E+02		
	2018	6,06E+05	1,97E+07	n.n.		
	2019	2,38E+05	4,36E+06	n.n.		
Obrigheim ^{a)}	2017	1,83E+07	7,06E+08	3,05E+04		
	2018	3,35E+06	1,45E+09	3,84E+04		
	2019	2,26E+06	4,62E+07	1,07E+04		
Lingen ^{a)}	2017	3,49E+05	1,20E+06	1,15E+03		
	2018	6,82E+04	1,19E+06	1,35E+01		
	2019	9,05E+04	6,94E+06	3,87E+02		
a) Anlage stillgeleg b	b) Anlage dauerhaft im Nichtleistungsbetrieb					

Tabelle 3.2Ableitung radioaktiver Stoffe mit dem Abwasser aus Kernkraftwerken in den Jahren 2017 bis 2019

n.n. nicht nachgewiesen * keine Ableitung

Exposition der Bevölkerung

Auf Grund der Umsetzung der Richtlinie 2013/59/ Euratom vom 05.12.2013 in nationales Recht wurde das Strahlenschutzrecht neu geordnet. So traten das Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) vom 27.06.2017 [60] und die entsprechend überarbeitete Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) vom 29.11.2018 [59] überwiegend zum 31.12.2018 in Kraft. Hingegen wurde das Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrlSchVG) zum 01.10.2017 aufgehoben.

Insbesondere bei der Ermittlung der Exposition von Einzelpersonen der Bevölkerung gibt es dabei einige grundlegende Änderungen: So wird nun im Gegensatz zur Strahlenschutzverordnung vom 20.07.2001 [16] - das Lagrange-Partikelmodell für atmosphärische Ausbreitungsrechnungen, die repräsentative Person und realitätsnähere Annahmen beim Verzehr eingeführt. Mit der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zur Ermittlung der Exposition von Einzelpersonen der Bevölkerung durch genehmigungs- oder anzeigebedürftige Tätigkeiten (AVV Tätigkeiten), die am 08.06.2020 in Kraft trat, ist die Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung [16] abgelöst worden. Auf Grundlage der Übergangsvorschriften im § 193 der Strahlenschutzverordnung [59] werden jedoch die Dosisermittlung betreffende Änderungen erst im Kalenderjahr 2020 umgesetzt.

Aus den Ergebnissen der Emissionsüberwachung wird die Exposition in der Umgebung der kerntechnischen Anlagen im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 noch für die in der Strahlenschutzverordnung vom 20.07.2001 [16] definierte Referenzperson nach der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung [16] ermittelt. Die Daten über die Ableitungen radioaktiver Stoffe mit Fortluft und Abwasser aus Kernkraftwerken und die Werte der daraus resultierenden Exposition werden in den jährlichen Berichten der Bundesregierung an den Deutschen Bundestag über "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" und ausführlicher in den gleichnamigen Jahresberichten des BMU [50,51,52] 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 Exposition erheblich die in der Strahlenschutzverordnung festgelegten Dosisgrenzwerte von beispielsweise 0,3 mSv für die effektive Dosis. 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.



Abbildung 3.1

Standorte von Kernkraftwerken in der Bundesrepublik Deutschland mit Bruttostromerzeugung in den Jahren 2017 bis 2019 (in MWa) und im benachbarten Ausland sowie weitere kerntechnische Anlagen
4

MESSNETZ FÜR LUFT UND NIEDERSCHLAG

T. Steinkopff, A. Dalheimer, M. Mirsch, H. Diedrich-Roesch, G. Frank

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

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/DE/themen/ion/notfallschutz/bfs/umwelt/ imis.html bzw. auf den Folgeseiten von www.dwd.de/radioaktivitaet sowie in den Berichten der vorangegangenen Jahre.

Zusätzlich werden vom BfS, dem DWD und der PTB 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 ⁷Be auf der Zugspitze in ein spezielles Messprogramm (Global Atmosphere 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 durch den Deutschen Wetterdienst (DWD) ständig überwacht. Dazu gehört auch die natürliche Radioaktivität in der Luft als Aktivitätskonzentration der aerosolpartikelgebundenen Radonfolgeprodukte ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi. Für künstliche Radionuklide wie zum Beispiel ¹³¹I und ¹³⁷Cs liegen im Normalbetrieb die berechneten Nachweisgrenzen der Luftmonitore zwischen 5 mBq/m³ und 10 mBq/m³. An allen Messstellen werden über einen Zeitraum von einer Woche zu-



Abbildung 4.1 Langlebige Gesamtbetaaktivität im Niederschlag - Jahresmittelwert der Jahressummen an den DWD-Stationen



Abbildung 4.2 Dem Erdboden im Mittel pro Monat durch Niederschläge in den Jahren 2017 bis 2019 zugeführte Gesamt-β–Aktivität in Bq/m²

dem Filter mit einem hohen Luftdurchsatz besaugt und diese im Anschluss gammaspektrometrisch untersucht. Die Nachweisgrenzen liegen zwischen 0,2 μ Bq/m³ und 1 μ Bq/m³ bezogen auf das Radionuklid ¹³⁷Cs. Weitere Untersuchungen der Luft- und Niederschlagsproben erfolgen im radiochemischen Labor in Offenbach.

Für den Niederschlag wurde eine bis zum Jahr 1957 zurückgehende Messreihe für die Gesamtβ-Aktivität, gemittelt über alle Messstationen des DWD, fortgesetzt (Abbildung 4.1).

Die Messungen der langlebigen Gesamt-β-Aktivität im Niederschlag ergaben für die Deposition einen über 42 Messstationen gemittelten Wert. Wegen einer Automatisierung der Messstationen und der Umstellung auf andere Probenentahmeund Messverfahren wurde die Anzahl der Stationen schrittweise reduziert: 2017: 42 Messstationen, 2018: 29 Messstationen, 2019: 23 Messstationen. Aus den stationsspezifischen Jahressummen ergaben sich Werte von 38 Bq/m² für das Jahr 2017, 38 Bq/m² für das Jahr 2018 und 32 Bq/ m² für das Jahr 2019. Diese Werte lassen sich durch die Anwesenheit natürlicher Radionuklide und deren langlebiger Betaaktivität erklären. Die stationsspezifischen mittleren Monatssummen dung 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 2017 bis 2019 anhand der Messstationen Potsdam und Offenbach die Messergebnisse für die Deposition von ⁷Be und ¹³⁷Cs. Für ¹³⁷Cs wurde ein Wert von 85 mBq/m² in Offenbach für das Jahr 2018 festgestellt. Der Messwert und die errechneten Nachweisgrenzen sind dabei abhängig vom jeweiligen Standort, der Niederschlagsmenge und dem für die Messung verwendeten Detektor.

Mittels radiochemischer Trennverfahren wurden im Labor Analysen der Aerosol- und der Niederschlagsproben von den Stationen München, Offenbach, Potsdam und Schleswig, bezogen auf ein Sammelintervall von einem Monat, zur Bestimmung von ⁹⁰Sr und einzelner Uran-, Plutoniumund Americium-Isotope sowie für Tritium im Niederschlag durchgeführt. Für die ⁹⁰Sr-Bestimmung und zur Analyse der Alpha-Strahler wird die Extraktionschromatographie bzw. ein Ionenaustauschverfahren eingesetzt. Die erreichten Nachweisgrenzen für die Messung der Aerosol- und der Niederschlagsproben sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Bei geringen Niederschlagsmengen liegen die erreichten Nachweisgrenzen deutlich über den im Schnitt erreichten Nachweisgrenzen. Bei den Urannukliden handelt es sich um natürliche Isotope, die in der Luft oder im Niederschlag immer in Spuren nachzuweisen sind. Die Messergebnisse für die Aktivitätskonzentrationen dieser natürlichen Nuklide liegen im erwarteten Bereich und sind der Übersichtlichkeit halber zusammengefasst als natürliches Uran für die Stationen Offenbach und Potsdam in Abbildung 4.4) dargestellt.

Tabelle 4.1

Geforderte und erreichte Nachweisgrenzen für ⁹⁰Sr, ²³⁴U, ⁽²³⁹⁺²⁴⁰⁾Pu und ²⁴¹Am

	Nachweisgrenze	⁹⁰ Sr	²³⁴ U, ²³⁸ U	⁽²³⁹⁺²⁴⁰⁾ Pu	²⁴¹ Am
Luft	gefordert nBq/m ³	1000	100	100	100
	erreicht nBq/m ³	30 - 6450	1 -75	1 - 9	1 - 82
Niederschlag	gefordert μBq/l	k.A.	k.A.	k.A.	k.A.
	erreicht µBq/l	17933 - 1029490	68 - 1690	70 - 10600	149 - 74600

Auf natürlichem Weg entstehen durch Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit den Atomen der hohen Atmosphärenschichten neue radioaktive Nuklide, wie z. B. Tritium. Durch die dauernde Neubildung und den radioaktiven Zerfall in der Atmosphäre und den damit in ständigem Austausch stehenden Ozeanen und biologischen Systemen bildet sich ein Gleichgewicht aus. Seit 1944 wurden zudem große Mengen von Radionukliden, wie z. B. auch Tritium, bei der militärischen und der zivilen Nutzung der Kernenergie in die Umwelt freigesetzt.

So lässt sich die derzeit gemessene Aktivitätskonzentration von Tritium im Niederschlag auch heute noch zum Teil auf die oberirdischen Kernwaffenversuche zurückführen. Seit 2005 werden



DWD-Station Offenbach

DWD-Station Potsdam



Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 4.3

Dem Erdboden im Mittel pro Monat durch Niederschläge in den Jahren 2017 bis 2019 zugeführte Aktivität von ⁷Be und ¹³⁷Cs in Bq/m² an den DWD-Stationen Offenbach und Potsdam



Nuklidspezifische Deposition mit dem Niederschlag DWD-Station Offenbach





Abbildung 4.4

Quelle: Deutscher Wetterdienst

Dem Erdboden im Mittel pro Monat durch Niederschläge in den Jahren 2017 bis 2019 zugeführte Aktivität von $U_{natr}^{(239+240)}$ Pu-, ²⁴¹Am und ⁹⁰Sr in µBq/m² an den DWD-Stationen Offenbach und Potsdam

beim DWD Tritiumbestimmungen über elektrolytische Anreicherung im Niederschlag durchgeführt. Durch das elektrolytische Anreicherungsverfahren konnte die Nachweisgrenze von 3 Bq/I bei der Direktmessung auf ca. 0,3 Bq/l nach der Anreicherung gesenkt werden. An den Spurenmessstellen Aachen, München, Offenbach, Schleswig, Berlin (ab 2010 Potsdam) und Trier (ab 2014) wird der Niederschlag in speziellen Niederschlagsauffangwannen gesammelt. Regelmäßige Vergleichsmessungen mit dem Bundesamt für Gewässerkunde fanden an der Messstelle Trier statt. Ein Aliquot des Niederschlages wird als Monatsmischprobe im Labor in Offenbach aufgearbeitet und für die Elektrolyse vorbereitet. Anschließend werden die Monatsmischproben elektrolytisch angereichert und mittels Flüssigszintillationszähler (LSC) der Tritiumgehalt in der Probe bestimmt.

Abbildung 4.5 zeigt die Tritium-Aktivitätskonzentrationen der Monatsmischproben im Niederschlag nach elektrolytischer Anreicherung an den RA-Messstellen Aachen, Potsdam, München, Offenbach, Schleswig und Trier von 2005 bis 2019 mit Messwerten zwischen 0,5 Bq/l und 1,5 Bq/l. Generell variieren derzeit je nach Jahreszeit und den kontinentalen Luftmassenverfrachtungen die Tritiumgehalte an den 6 Spurenmessstellen von 0,5 Bq/l bis 2 Bq/l.

Die aufwändigen Messverfahren 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 Messverfahren, die eine schnelle Datenauswertung erlauben.



Tritium im Niederschlag nach elektrolytischer Anreicherung Monatsproben von 2005-2019

Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 4.5

Bq/I

Aktivitätskonzentration von Tritium im Niederschlag an den DWD-Stationen Aachen, München, Offenbach, Potsdam, Schleswig und Trier in den Jahren 2005 bis 2019

SPURENMESSUNG IN DER BODENNAHEN LUFT

J. Bieringer¹, T. Steinkopff², A. Dalheimer², H. Wershofen³, D. Zapata-Garcia³

¹Bundesamt für Strahlenschutz Leitstelle für die Überwachung der atmosphärischen Radioaktivität (Leitstelle B)

²Deutscher Wetterdienst, Zentrale Offenbach/Main Leitstelle für Luft und Niederschlag (Leitstelle A)

³Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig Leitstelle für Aktivitätsnormale und Radionukliddaten (Leitstelle B)

Eine ausführliche Darstellung der Messergebnisse für die Jahre 2017 bis 2019 ist den Berichten des BMU über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung zu entnehmen [50,51,52].

Spurenmessstelle Freiburg/Schauinsland (BfS)

Edelgase

Bei den im Rahmen der Spurenanalyse durchgeführten Edelgasmessungen werden Luftproben unter anderem auf ihren Gehalt an radioaktivem Xenon und ⁸⁵Kr untersucht. Während ⁸⁵Kr überwiegend bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in die Atmosphäre freigesetzt wird, stellt ¹³³Xe mit einer Halbwertszeit von 5,27 Tagen den Hauptbestandteil im bestimmungsgemäßen Betrieb der Edelgasableitungen von Kernkraftwerken und Isotopenproduktionsanlagen dar.

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 ¹³³Xe lagen - mit Ausnahme der Messwerte nach der Reaktorkatastrophe von Fukushima - zwischen 1 und 100 mBg/m³ Luft. Als Beispiel ist in Abbildung 5.1 die Zeitreihe der Aktivitätskonzentration von ⁸⁵Kr an der Messstation Schauinsland dargestellt. Der Medianwert der ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration an der Messstation Schauinsland lag in den letzten Jahren bei ca. 1,6 Bq/m³. Kurzzeitige Schwankungen im zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen sind auf Emissionen aus den europäischen Wiederaufbereitungsanlagen für Kernbrennstoffe (La Hague/Frankreich und Sellafield/England) zurückzuführen.

Von Zeit zu Zeit werden erhöhte ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentrationen in der bodennahen Luft an einzelnen oder zeitweise auch allen deutschen Sammelstationen beobachtet. Ein Beispiel für erhöhte Messwerte an mehreren deutschen Stationen ist der Probenentnahmezeitraum vom 13.08. bis 20.08.2018, dabei wurde die höchste ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration mit 6,15 Bq/m³ in Trier (DWD) erreicht. Der Jahreshöchstwert in Freiburg betrug 3,65 Bq/m³ in diesem Probenentnahmezeitraum. Diese Beobachtung passt zu den ⁸⁵Kr-Emissionswerten der Wiederaufbereitungsanlage in La Hague, die auf eine hohe Auslastung der Anlage im Juli und August hindeuten.

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 ist die einzige derartige Station in Mitteleuropa und beinhaltet automatisch arbeitende Systeme für den nuklidspezifischen Nachweis aerosolpartikelgebundener Radioaktivität sowie für den Nachweis der radioaktiven Xenon-Isotope ¹³⁵Xe, ^{133m}Xe, ¹³³Xe und ^{131m}Xe (SPALAX-System). In den Tagesproben werden mit dem RASA-System typischerweise Nachweisgrenzen von ca. 1,6 µBq/m³ Luft für das aerosolgebundene ¹³⁷Cs erreicht. Für die radioaktiven Xenon-Isotope liegen die Nachweisgrenzen zurzeit bei ca. 0,3 mBq/m³ Luft, bezogen auf ¹³³Xe.

Im Jahr 2018 wurde der bisher verwendete Messcontainer durch ein festes Gebäude ersetzt (Abbildung 5.2), welches das Stationsgebäude auf dem Schauinsland ergänzt. Mit dem neuen Gebäude wurde ein neues RASA-System installiert und das gesamte System im Oktober 2018 nach den Vorgaben der CTBTO re-zertifiziert. Ein Parallelbetrieb beider RASA-Systeme diente der Qualitätssicherung, im Anschluss wurde das alte System deinstalliert und der Container zurückgebaut.

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 Hochvolumen-



Abbildung 5.1 Zeitverlauf der ⁸⁵Kr-Aktivitätskonzentration an der BfS-Messstation auf dem Schauinsland



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 5.2 BfS-Messstation auf dem Schauinsland sammler betrieben. Die Nachweisgrenzen für diese Messungen liegen für ¹³⁷Cs bei etwa 0,1 μ Bq/m³, im Jahresmittel liegen die Aktivitätskonzentrationen an der Station Schauinsland bei etwa 0,2 μ Bq/m³ und in Freiburg bei 1 μ Bq/m³. In Abbildung 5.3 sind die Zeitreihen der Aktivitätskonzentrationen des anthropogenen¹³⁷Cs und des kosmogenen ⁷Be an der Station Schauinsland dargestellt; die Messwerte lagen in dem für die Station üblichen Schwankungsbereich.

Die mittlere Aktivitätskonzentration für ⁹⁰Sr lag bei ca. 0,03 μ Bq/m³. Im Mai 2018 wurde der höchste Wert im Berichtszeitraum mit 0,47 μ Bq/m³ ermittelt. Dieser lässt sich durch die wetterbedingte erhöhte Resuspension mit verstärktem Eintrag von Bodenstaub in die Atmosphäre erklären, was durch die in diesem Zeitraum ebenfalls erhöhten ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentrationen bestätigt wurde.

Die gemessenen Aktivitätskonzentrationen für die Uranisotope ²³⁴U und ²³⁸U lagen zwischen 0,013 μ Bq/m³ und 0,26 μ Bq/m³. Deren Nachweisgrenzen bewegten sich zwischen 0,0002 μ Bq/m³ und 0,009 μ Bq/m³. Das Radionuklid ²³⁵U wurde mit Aktivitätskonzentrationen zwischen 0,004 μ Bq/m³ und 0,02 μ Bq/m³ nachgewiesen, die Nachweisgrenzen lagen zwischen 0,0002 μ Bq/m³ bis 0,01 μ Bq/m³.

Für ²³⁸Pu sowie für ⁽²³⁹⁺²⁴⁰⁾Pu wurden keine Aktivitätskonzentrationen oberhalb der erreichten Nachweisgrenzen zwischen 0,0002 μ Bq/m³ und 0,01 μ Bq/m³ beobachtet.

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 m³/h über eine Woche beaufschlagt wurden. An den Spurenmessstellen Potsdam und Offenbach sind (im Rahmen der EU-Berichterstattung) Aerosolsammler mit einem Luftdurchsatz von ca. 1000 m³/h im Einsatz. Hier reduziert sich die Nachweisgrenze für die gammaspektrometrischen Messungen um den Faktor 10 auf ca. 0,2 µBq/m³ bezogen auf ¹³⁷Cs. Die Nachweisgrenze für ⁹⁰Sr lag bei 0,5 µBq/m³ und für (²³⁹⁺²⁴⁰⁾Pu bei 0,05 µBq/m³.

Tatsächliche Messwerte für ¹³⁷Cs, ²³⁴U und ²³⁸U sind 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 2017, 2018 und 2019 die Ergebnisse der Messungen von ⁷Be, ⁴⁰K, ¹³⁷Cs, ²³⁴U, ²³⁵U und ²³⁸U graphisch dargestellt (Abbildungen 5.4 und 5.5). Die normalerweise auftretende typische Erhöhung der ⁷Be-Aktivitätskonzentration im Frühjahr und Sommer tritt auch in den Jahren 2017, 2018 und 2019 schwach ausgeprägt auf.

Spurenmessstelle Braunschweig (PTB)

Auch in den Jahren 2017 bis einschließlich 2019 wurde neben den üblichen Schwankungen der regelmäßig messbaren Radionuklide wiederholt ein Anstieg der Aktivitätskonzentration des natürlichen Radionuklids Blei-210 (²¹⁰Pb) beobachtet. Die Jahresmittelwerte der in Wochenproben gemessenen Aktivitätskonzentration lagen im Bereich von 285 μ Bg/m³ (2019) bis 374 μ Bg/m³ (2018). Die Maximalwerte innerhalb der wöchentlichen Messreihen lagen zwischen 862 µBq/ m³ (2019) und 1351 μBq/m³ (2017). Aktivitätskonzentrationen in dieser Größe werden oft bei Inversionswetterlagen erreicht. Dann erhöhen sich auch oft die Aktivitätskonzentration von ⁴⁰K und des an Bodenstaub gebundenen ¹³⁷Cs, das aus bekannten Freisetzungen wie dem Kernwaffen-Fallout oder dem Kernkraftwerk-Unfall in Tschernobyl stammt. Auch aus der Verbrennung von Holz, das mit ¹³⁷Cs aus Tschernobyl belastet ist, sind Beiträge denkbar. Die beobachteten Minima der Aktivitätskonzentration von ²¹⁰Pb sind meist niederschlagsbedingt und betrugen im Berichtszeitraum nur 65 μ Bq/m³ (2019) bis ca. $100 \ \mu Bq/m^3$ (2017 und 2018). ²¹⁰Pb kommt nicht nur in Bodenstaub vor, sondern z. B. auch in Flugaschen aus Kohlekraftwerken, kohlebefeuerten privaten Heizanlagen, an Stäuben aus der Baustoffindustrie oder in Flugstaub aus der Eisen- und Stahlgewinnung. Radioökologische und dosimetrische Aspekte zur Nutzung natürlich radioaktiver Stoffe sind in [11] beschrieben.

Anfang 2019 wurde das Radiochemielabor der PTB-Spurenmessstelle zur Durchführung umfangreicher Umbau und Sanierungsmaßnahmen außer Betrieb genommen. Daher liegen monatliche Aktivitätskonzentrationen von ⁹⁰Sr, Uran- und Plutoniumisotopen nur bis Dezember 2018 vor. Die Aktivitätskonzentrationen des ⁹⁰Sr lagen zwischen 0,017 μ Bq/m³ und 0,056 μ Bq/m³. Die erreichten Nachweisgrenzen liegen im Bereich von 0,001 μ Bq/m³ bis 0,003 μ Bq/m³.

Die messbaren Aktivitätskonzentrationen von ²³⁸Pu lagen im Bereich von 0,00006 μBq/m³ bis 0,00048 μBq/m³. Für dieses Radionuklid wurden



Abbildung 5.3 Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz Zeitverlauf der Aktivitätskonzentrationen von ⁷Be und ¹³⁷Cs an der BfS-Messstation auf dem Schauinsland

Nachweisgrenzen zwischen 0,00003 μBq/m³ und 0,00021 μBq/m³ erreicht. Die Messergebnisse für ⁽²³⁹⁺²⁴⁰⁾Pu bewegten sich 2018 im Bereich zwischen 0,00009 μBq/m³ und 0,00624 μBq/m³. Hier wurden Nachweisgrenzen zwischen 0,00004 μBq/m³ und 0,00026 μBq/m³ erreicht.

Die Aktivitätskonzentrationen von ²³⁴U und ²³⁸U lagen im Berichtszeitraum zwischen 0,0414 µBq/m³ und 0,8141 µBq/m³. Deren erreichte Nachweisgrenzen fallen in den Bereich zwischen 0,00010 µBq/m³ und 0,00023 µBq/m³. Das Radionuklid ²³⁵U war in Aktivitätskonzentrationen zwischen 0,0019 µBq/m³ und 0,0404 µBq/m³ messbar. Für die Aktivitätskonzentration dieses Isotops wurden Nachweisgrenzen im Bereich von 0,00004 µBq/m³ bis 0,000011 µBq/m³ erreicht. Die gemessenen Aktivitätsverhältnisse $A(^{234}U)/A(U-238)$ und $A(^{235}U)/A(^{238}U)$ liegen unter Berücksichtigung der Messunsicherheiten bei den zu erwartenden natürlichen Verhältnissen.

Die im Vergleich zu den Vorjahren deutlich höheren Aktivitätskonzentrationen der Uran- und Plutoniumisotope sind auf die Trockenheit und die erhöhte Resuspension von Bodenstaub im Sommer des Berichtsjahres zurückzuführen. Der maximale Staubgehalt in der Luft trat im August auf.

Dagegen verläuft der Pegel der Aktivitätskonzentration des ⁹⁰Sr im Jahresverlauf gleichmäßiger. Die im Januar und Februar 2018 gemessenen Aktivitätskonzentrationen erscheinen im Vergleich mit denen der Uran- und Plutoniumisotope relativ hoch. Ursachen dafür konnten nicht ermittelt werden. Zur Qualitätssicherung durchgeführte Nulleffekt-Kontrollmessungen sowie radiochemisch bestimmte Blindwerte zeigten keinen Hinweis auf Beiträge aus diesen möglichen Quellen.

Auffällige Beobachtungen im Bereich der Spurenanalyse

¹⁰⁶*Ru:* Das herausragende Ereignis im Bereich der Spurenmessung, das auch ein lebhaftes Medieninteresse fand, war eine Freisetzung von Ruthenium-106 (¹⁰⁶Ru) im Herbst 2017. Ende September bis Anfang Oktober 2017 wurden an verschiedenen Spurenmessstellen in Ost-, Mittel- und Südeuropa ¹⁰⁶Ru detektiert. Auch in Deutschland wurde in dieser Zeit an mehreren Messstellen des DWD ¹⁰⁶Ru nachgewiesen. Die Aktivitätskonzentrationen lagen zwischen wenigen Mikrobecquerel und einigen Millibecquerel pro Kubikmeter Luft. Der Maximalwert wurde an der DWD-Stati-



DWD-Station Offenbach Nuklidspezifische Messungen Aerosolfilter

Quelle: Deutscher Wetterdienst

111 19 500 19 NOV 19

Abbildung 5.4

Jan 17

Zeitlicher Verlauf der mittleren wöchentlichen Aktivitätskonzentrationen von ⁷Be, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K an den Spurenmessstellen des DWD in Potsdam und Offenbach

Mai 18

Monat/Jahr

Sep 18 NOV 28

Jan 19 Mrz 19 Mai 19

Spurenmessung in der bodennahen Luft

14127 500 17 NOV 27



Nuklidspezifische Aktivitätskonzentrationen in der Luft DWD-Station Potsdam



Quelle: Deutscher Wetterdienst

Abbildung 5.5

Zeitlicher Verlauf der mittleren wöchentlichen Aktivitätskonzentrationen von U_{nat}, ^{239/40}Pu, ²⁴¹Am und ⁹⁰Sr an den Spurenmessstellen des DWD in Potsdam und Offenbach

on Görlitz im Zeitraum vom 25.09.2017 bis 02.10.2017 mit 49 mBq/m^{3 106}Ru erreicht. Bemerkenswert ist in diesem Zusammenhang, dass auf Grund der Wetterlage die belasteten Luftmassen zwar Norddeutschland trafen, aber zunächst an Braunschweig vorbeizogen und erst in einem späteren Zeitraum die Spurenmessstelle der PTB trafen. Zu diesem Zeitpunkt waren sie jedoch bereits so verdünnt, dass auch dort kein ¹⁰⁶Ru nachgewiesen werden konnte. An den Sammelstationen des BfS auf dem Schauinsland und in Freiburg wurde kein Ru-106 nachgewiesen.

Berechnungen zur Ausbreitung von radioaktiven Stoffen in der Atmosphäre deuteten schon frühzeitig auf einen Ursprung im südlichen Ural hin, auch ein Ursprungsort im südlichen Russland konnte zunächst nicht ausgeschlossen werden. Abschätzungen ergaben eine Quellstärke von 100 TBq ¹⁰⁶Ru. Die Herkunft des¹⁰⁶Ru ist bis heute trotz internationaler Bemühungen nicht abschließend geklärt [12, 13, 14, 15].

¹³¹*I*: Im Januar 2018 wurden Spuren von ¹³¹I in Finnland und Mittel-Norwegen nachgewiesen, wie über den *"Ring of 5"*, einem informellen Zusammenschluss europäischer Spurenmessstellen, berichtet wurde. Die Aktivitätskonzentrationen lagen bei etwa 1 μBq/m³ und darunter. Im Zeitraum vom 05.02. bis 12.03.2018 wurden in einigen Ländern erneut Spuren von ¹³¹I nachgewiesen. Messergebnisse oberhalb der Nachweisgrenze meldeten Finnland, Polen, Norwegen und die Tschechische Republik. Die maximale Aktivitätskonzentration in einer Probe lag bei 4,5 μBq/m³. Da es sich i.d.R. um Wochenproben handelt, ist die Ermittlung einer Quelle durch Ausbreitungsrechnungen nur sehr eingeschränkt möglich.

Von den deutschen Spurenmessstellen wurden keine ¹³¹I-Nachweise berichtet.

Nachweise von ¹³¹I sind nicht ungewöhnlich, da es in großen Mengen für medizinische Zwecke produziert und gehandhabt wird. Dabei sind Freisetzungen im Rahmen der jeweiligen Genehmigung möglich. Je nach Wetterlage können diese Freisetzungen mit den Methoden der Spurenanalyse detektiert werden. In den Wintermonaten wird dies - bedingt durch die Wetterlage - in Nordeuropa wiederholt beobachtet.

UMSTELLUNG DER NIEDERSCHLAGSPROBENENTNAHME IM DWD

A. Dalheimer, H. Diedrich-Roesch

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

Die Bestimmung der mit dem Niederschlag deponierten Aktivität erfolgte im DWD bisher über die monatliche Sammlung der Niederschläge gefolgt vom Eindampfen der Niederschlagsprobe und einer gammaspektrometrischen Messung.

Im Rahmen der Automatisierung des Messnetzes wurde die Niederschlagsprobenentahme auf automatische Sammelsysteme umgestellt. In den automatischen Sammelsystemen wird der Niederschlag nach einer Vorfilterung durch einen Ionenaustauscher geleitet, der die gelösten Ionen aus dem Niederschlag entfernt. Die Aktivitätsbestimmung erfolgt im Anschluss gammaspektrometrisch am Ionenaustauscher.

Durch umfangreiche Untersuchungen hat sich gezeigt, dass ein nicht vernachlässigbarer Anteil der Gesamtaktivität auf dem Vorfilter zurückbleibt. Dies hat zur Folge, dass die gesamte, mit dem Niederschlag deponierte Aktivität aus der Summe der gemessenen Aktivitäten von Vorfilter und Ionenaustauscher bestimmt werden muss. Die Berechnung der charakteristischen Grenzen muss dementsprechend angepasst werden.

Im Rahmen der Untersuchungen sollte auch geklärt werden, ob durch die Verfahrensumstellung ein Bruch innerhalb der langjährigen Messreihen zu erwarten ist.

Dazu wurde eine alte Ringversuchslösung mit ⁸⁵Sr und ²⁴¹Am dotiert, um ausreichende Aktivitäten auch von 2 und 3-wertigen Ionen zu erhalten. Von jeder Lösung wurden jeweils drei Verdünnungen (1:1, 1:6 und 1:12) hergestellt. Dies erfolgte auf Grund von Vorversuchen, die gezeigt hatten, dass die Verteilung der Aktivität zwischen Vorfilter und Ionenaustauscher von der Ionenkonzentration und damit auch der Aktivitätskonzentration abhängig ist.

In Tabelle 6.1 bzw. Abbildung 6.1 sind die Ergebnisse der eingedampften Proben und der Ionenaustauscherproben, jeweils als Summe der Vorfilter- und der Ionenaustauscheraktivität, dargestellt.

	1-12			1-6			1-1		
Nuklid	einged.	lonen- aust.	Diff (%)	einged.	lonen aust.	Diff (%)	einged.	lonen aust.	Diff (%)
⁵⁴ Mn		8,55E-01		9,20E-01	1,02E+00	10,9%	9,85E-01	8,82E-01	-10,5%
⁸⁵ Sr	3,12E+01	2,73E+01	-12,4%	3,12E+01	2,93E+01	-6,2%	2,94E+01	2,55E+01	-13,4%
¹³⁷ Cs	1,62E+01	1,33E+01	-18,3%	1,62E+01	1,33E+01	-18,1%	1,64E+01	1,43E+01	-12,8%
²⁴¹ Am	2,11E+01	1,98E+01	-6,4%	2,14E+01	2,15E+01	0,5%	2,17E+01	2,22E+01	2,5%

Tabelle 6.1

Vergleich eingedampfte Proben - Ionenaustauscherproben

Die relativen Abweichungen zwischen eingedampften Proben und Ionenaustauscherproben bleiben bei den Nukliden ⁵⁴Mn und ²⁴¹Am im Rahmen der Messunsicherheiten. Deutlichere Abweichungen ergaben sich bei ⁸⁵Sr und insbesondere bei den höheren Verdünnungen von ¹³⁷Cs, wo die Abweichungen nicht mehr im Rahmen der Messunsicherheiten liegen. Die Ursache konnte in der vorliegenden Untersuchung nicht geklärt werden; hierzu sind weitere Versuche erforderlich.

Ein deutlicher Bruch in den Messreihen ist auf Grund der Versuche nicht zu erwarten, da sich die Abweichungen zwischen den beiden Verfahren, insbesondere bei Aktivitäten nahe der Nachweisgrenzen, noch im Rahmen der Messunsicherheiten bewegen.



Abweichung eingedampfte - Ionenaustauscherproben

Abbildung 6.1 Vergleich eingedampfte Proben - Ionenaustauscherproben

RADIOAKTIVE STOFFE IN BINNENGEWÄSSERN

J. Wiederhold, A. Schmidt

Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG), Koblenz Leitstelle für Oberflächenwasser, Schwebstoff und Sediment in Binnengewässern (Leitstelle C)

Die Radioaktivität in Binnengewässern entsteht durch den Zerfall von natürlichen und künstlichen Radionukliden in Wasser, Schwebstoffen und Sediment. Zu den relevanten natürlichen Radionukliden zählen einerseits das aus der Verwitterung von Gesteinen freigesetzte sehr langlebige ⁴⁰K sowie die Bestandteile der Zerfallsreihen von ²³⁸U, ²³⁵U und ²³²Th. Zum anderen tragen auch kosmogene Nuklide, die ständig neu gebildet und über die Atmosphäre in Gewässer eingetragen werden, zur natürlichen Radioaktivität bei (z. B. ³H und ⁷Be). Die wichtigsten künstlichen Radionuklide, die in Binnengewässern vorkommen, sind ³H, ⁵⁸Co, ⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ¹³¹I und ¹³⁷Cs. Tritium (³H) stammt heutzutage, neben dem natürlichen kosmogenen Anteil, aus den Ableitungen kerntechnischer Anlagen und Isotopen verarbeitender Betriebe. Die langlebigen Spaltprodukte ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs wurden hauptsächlich durch die Fallouts der oberirdischen Kernwaffenversuche und des Reaktorunfalls von Tschernobyl im Jahr 1986, hier insbesondere ¹³⁷Cs, in die Gewässer eingetragen. Signifikante Einträge des Reaktorunfalls von Fukushima im Jahr 2011 konnten dagegen in Binnengewässern in Deutschland nicht nachgewiesen werden. In geringem Umfang werden die aus dem Normalbetrieb kerntechnischer Anlagen stammenden Aktivierungsprodukte ⁵⁸Co und ⁶⁰Co in Gewässern gefunden. Das vergleichsweise kurzlebige ¹³¹I (HWZ: 8 Tage) stammt dagegen meist aus nuklearmedizinischen Anwendungen.



Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Abbildung 7.1 Verhalten von Radionukliden in Fließgewässern

In Binnengewässern wird die Radioaktivität in den Kompartimenten Oberflächenwasser, Schwebstoff und Sediment ermittelt (Abbildung 7.1). Die Überwachung der dynamischen Kompartimente Oberflächenwasser und Schwebstoff ermöglicht es, aktuelle Einträge und kurzfristige Veränderungen radioaktiver Kontaminationen in Gewässern zeitnah und mit hoher Genauigkeit zu erfassen. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass Radionuklide in Fließgewässern in gelöster Form oder partikulär gebunden mit Wasser bzw. Schwebstoffen über weite Strecken flussabwärts verfrachtet werden können. Die Sedimentation von Schwebstoffen erfolgt bevorzugt in Stillwasserbereichen, wie sie z. B. Häfen, Buhnenfelder, Altarme, Stauhaltungen und Uferböschungen darstellen, was dort zu einer Anreicherung von Radionukliden im Sediment führen kann. Die Sedimente stellen das Langzeitspeichermedium von Radionukliden in Gewässern dar. In Sedimenten lassen sich somit die langfristigen Auswirkungen radioaktiver Kontaminationen verfolgen. Um präzise Rückschlüsse über zeitliche Trends ziehen zu können, ist jedoch eine Altersbestimmung der genommenen Sedimentproben erforderlich. Eine spätere Weiterverfrachtung bereits abgelagerter Radionuklide infolge Resuspension von Sedimenten, beispielsweise bei Hochwasserereignissen, ist möglich und kann wiederum über Schwebstoffmessungen verfolgt werden. Die Verteilung verschiedener Radionuklide zwischen der Wasserphase und der Festphase (Schwebstoffe/Sedimente) sowie ihr Transportverhalten in Fließgewässern lässt sich aus dem geochemischen Verhalten der jeweiligen chemischen Elemente ableiten. So wird ³H als Bestandteil des Wassermoleküls relativ schnell transportiert und eignet sich daher gut für Traceranwendungen in der Hydrologie, während beispielsweise ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs eine starke Affinität zur Bindung an Partikeloberflächen aufweisen, wodurch sie sich überwiegend in Schwebstoffen und Sedimenten finden und entsprechend langsamer transportiert werden. Ein kleiner Teil der Radionuklide in Binnengewässern wird von Biota aufgenommen (z. B. Wasserpflanzen, Fische) und kann somit in die Nahrungskette gelangen.

Tabelle 7.1

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

Kompartiment	Radionuklid	Wertebereich
Oberflächenwasser	³ H (kosmogener Anteil)	0,5 bis 1
(by))	$ \begin{array}{llllllllllllllllllllllllllllllllllll$	bis 0,5
	⁴⁰ K	0,01 bis 5
	²³² Th	bis 0,1
	²³⁵ U	bis 0,05
	²³⁸ U	bis 0,1
Schwebstoff und Sediment	⁷ Be	bis 1000
	⁴⁰ K	50 bis 1000
	²³² Th	bis 100
	²³⁵ U	bis 10
	²³⁸ U	bis 100

Regionale Unterschiede in den Gehalten natürlicher Radionuklide in Binnengewässern (Tabelle 7.1) sind im Wesentlichen auf den geogenen Hintergrund des jeweiligen Einzugsgebietes sowie auf anthropogene Einflüsse zurückzuführen. So reichte im Berichtszeitraum etwa die Spanne der mittleren Aktivitätskonzentration von ⁴⁰K in Oberflächenwasser von 0,02 Bg/l in der Sösetalsperre (Harz, Niedersachsen), deren ionenarmes Wasser natürlicherweise einen geringen Härtegrad aufweist, bis hin zu 4,7 Bg/l in der durch den Kalibergbau beeinflussten Werra (Gerstungen, km 137,5, Thüringen). Die historischen Folgen des Uranbergbaus lassen sich beispielsweise in Oberflächenwasser der Weißen Elster (Bad Köstritz, km 126,0, Thüringen) mit mittleren Aktivitätskonzentrationen im Berichtszeitraum von 0,038 Bq/l ²³⁸U bzw. 0,0018 Bq/l ²³⁵U erkennen. Höhere mittlere spezifische Aktivitäten von ²³⁸U in Schwebstoff- und Sedimentproben wurden im Berichtszeitraum zum Beispiel in der Saale (Schkopau, km 109,0, Sachsen-Anhalt) mit 89 Bq/ kg Trockenmasse (TM) und der Elbe (Hamburg, Bunthaus km 609,8) mit 70 Bq/kg TM gemessen. Die Gehalte natürlicher Radionuklide in Binnengewässern unterliegen jedoch nur relativ geringen zeitlichen Schwankungen und bedürfen daher normalerweise keiner besonderen Überwachung.

Die kontinuierliche Überwachung der Binnengewässer auf radioaktive Stoffe konzentriert sich

daher insbesondere auf die künstlichen Radionuklide. Es gilt ihre Veränderungen innerhalb der Gewässer zu erfassen sowie mögliche Auswirkungen auf Menschen und Umwelt abzuschätzen. Die entsprechenden Überwachungsprogramme basieren auf dem Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) sowie der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) und sind in der AVV-IMIS sowie der REI näher ausgeführt. Die Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG) betreibt mit Unterstützung der Wasserstraßen- und Schifffahrtsverwaltung (WSV) ein Bundesmessnetz mit 40 Stationen an den Bundeswasserstraßen. Die Messstellen der Länder überwachen die weiteren Fließgewässer sowie stehende Gewässer (Seen, Talsperren), wobei jeweils in regelmäßigen Abständen (z. B. monatlich oder quartalsweise) Proben von Oberflächenwasser, Schwebstoffen und Sediment den Gewässern entnommen und untersucht werden. Eine ausführlichere Darstellung der ermittelten Messergebnisse im Berichtszeitraum findet sich in den jeweiligen Jahresberichten des BMU zur "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung". Eine zusammenfassende Bewertung des radiologischen Gütezustands der Binnengewässer ergibt für den vorliegenden Berichtszeitraum 2017 bis 2019 folgendes Bild:

In Oberflächenwasser lagen die Aktivitätskonzentrationen von Tritium (³H) im Jahresmittel überwiegend unterhalb der im Routinemessprogramm (RMP) für die Messstellen der Länder geforderten Nachweisgrenze (NWG) von 10 Bq/l (Abbildung 7.2). Leicht höhere Werte wurden lediglich in Flüssen gemessen, in die eine genehmigte Ableitung von ³H aus kerntechnischen Anlagen erfolgt, aber auch hier lagen die Jahresmittelwerte bei maximal 39 Bq/l (Mosel, Wincheringen km 222,2) bzw. 22 Bq/l (Ems, Geeste km 106,3). Diese Werte nahmen im weiteren Verlauf flussabwärts jeweils auf maximal 16 Bq/l (Mosel, Koblenz km 2,0) bzw. 6 Bg/l (Ems, Terborg km 24,6) ab. In der historischen Übersicht in Abbildung 7.2 lässt sich die Inbetriebnahme des KKW Cattenom 1986 (Mosel) sowie des KKW Emsland 1988 (Ems) erkennen. Die in den 1970er Jahren erhöhten und dann gleichmäßig abfallenden ³H-Werte lassen sich dagegen überwiegend auf die Nachwirkungen der oberirdischen Kernwaffentests zurückführen.

Die mittleren Aktivitätskonzentrationen von ⁹⁰Sr in Oberflächenwasser lagen meist unter der NWG des RMP von 0,01 Bq/l. Maximale Einzelwerte von 0,026 Bq/l bzw. 0,025 Bq/l wurden an der Weser (Rinteln, km 163,2) bzw. der Weißen Elster (Bad Köstritz, km 126,0) gemessen, wobei auch hier die jeweiligen Jahresmittelwerte unter 0,01 Bg/l lagen. Die in Abbildung 7.3 hervorgehobenen Jahresmittelwerte des Berichtszeitraums für ⁹⁰Sr in Oberflächenwasser aus verschiedenen Fließgewässern scheinen einen leichten Anstieg gegenüber den Vorjahren zu zeigen, wobei die Werte weiterhin in einem sehr niedrigen Bereich liegen und die relativ hohen Messungenauigkeiten von 30-40 % für diesen Wertebereich berücksichtigt werden müssen. Die weitere Entwicklung dieses möglichen Trends wird jedoch über die nächsten Jahre weiter im Auge behalten. Messungen von ⁹⁰Sr in Sedimenten wurden nur sehr vereinzelt durchgeführt, v. a. im Rahmen der Umgebungsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI), wobei als maximaler Einzelwert eine spezifische Aktivität von 8,15 Bq/kg TM in der Mosel (Perl/Apach, km 242,6) gemessen wurde.

Das Vorkommen von ¹³⁷Cs in Oberflächenwasser ist vor allem im historischen Kontext des Tschernobyl-Unfalls zu betrachten. In der logarithmischen Auftragung der Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs in verschiedenen Fließgewässern (Abbildung 7.4) lassen sich die stark erhöhten Werte im Jahr 1986 erkennen, gefolgt von einem relativ raschen Rückgang auf Werte unterhalb der geforderten NWG des RMP von 0,01 Bq/l (Bund) bzw. 0,05 Bq/l (Länder). In der Donau, die stärker als andere Flüsse vom Tschernobyl-Fallout betroffen war, verlief dieser Rückgang etwas langsamer; seit etwa 2000 bewegen sich aber auch hier die Werte in einem tiefen Hintergrundbereich. Im Berichtszeitraum konnte in der überwiegenden Zahl der Oberflächenwasserproben aus Fließgewässern und stehenden Gewässern kein ¹³⁷Cs nachgewiesen werden. In diesem Fall wurden die Jahresmittelwerte aus den erreichten NWG berechnet (weißer Symbolinhalt in Abbildung 7.4), dies stellt somit eine obere Grenze und eine Überschätzung der tatsächlichen Werte dar. Maximale Einzelwerte für ¹³⁷Cs wurden im Berichtszeitraum für Fließgewässer mit 0,038 Bg/l in der Elbe (Billwerder Bucht, km 618,0) und für stehende Gewässer mit 0,044 Bq/l im Arendsee (Sachsen-Anhalt) gemessen.

Auch in den Kompartimenten Schwebstoff und Sediment sind die spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs überwiegend auf die Nachwirkungen des Tschernobyl-Unfalls zurückzuführen, wobei auch heute noch regional erhöhte Werte gemessen werden. Aus den wiederum logarithmisch aufgetragenen spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs in Schwebstoffen (Abbildung 7.5) lassen sich die stark erhöhten Werte ab 1986 gefolgt von einem gegenüber dem Oberflächenwasser langsamer verlaufenden Rückgang erkennen. Auch im Berichtszeitraum lagen die meisten Werte in Schwebstoffproben noch oberhalb der NWG des RMP von 5 Bq/kg TM und beispielsweise in der Donau auch noch deutlich über den Werten von vor 1986 (Abbildung 7.5). Die höchsten Einzelwerte der spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs in Schwebstoffen lagen in Fließgewässern bei 72,8 Bg/kg TM (Donau, Ulm-Wiblingen, km 2590,8). In stehenden Gewässern wurde der Maximalwert mit 303 Bq/kg TM im Steinhuder Meer (Niedersachsen) gefunden. Letzterer kann darauf zurückgeführt werden, dass das langlebige Nuklid ¹³⁷Cs in einem von Mudden (Seeschlamm) geprägten, grundwassergespeisten Flachsee mit geringem Abfluss und viel Wassersport als sedimentbürtiger Schwebstoff remobilisiert wird.

Die spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs in Sedimenten (Abbildung 7.6) zeigen einen ähnlichen zeitlichen Verlauf in Bezug auf den Tschernobyl-Unfall wie die Schwebstoffproben (Abbildung 7.5). Auch hier lagen die Werte im Berichtszeitraum überwiegend oberhalb der NWG des RMP von 5 Bq/kg TM. Maximale Einzelwerte für ¹³⁷Cs in Fließgewässern wurden mit 119 Bq/kg TM in der Weser (Minden, km 204,4) und 73,7 Bq/kg TM in der Elde (Parchim, km 72,5) gemessen. In stehenden Gewässern wurden die höchsten spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs in Sedimenten im Schollener See (Sachsen-Anhalt) mit bis zu 323 Bq/kg TM gemessen, was sich auf verstärkte atmosphärische Deposition durch lokale Niederschlagsereignisse kurz nach dem Tschernobyl-Unfall zurückführen lässt. Weitere Beispiele für erhöhte Sedimentgehalte von ¹³⁷Cs in stehenden Gewässern mit jeweils mehreren Messungen >120 Bg/kg TM stellen die Aabach-Talsperre (Nordrhein-Westfalen), der Schweriner See (Mecklenburg-Vorpommern), das Steinhuder Meer (Niedersachsen), der Wittensee (Schleswig-Holstein) und der Starnberger See (Bayern) dar.

Die von kerntechnischen Anlagen eingeleiteten anlagenspezifischen Spalt- und Aktivierungsprodukte waren abgesehen von ³H (siehe oben) im Fernbereich der jeweiligen Anlagen in Binnengewässern im Allgemeinen nicht nachweisbar oder wegen der Vorbelastung aus anderen Quellen (Fallouts, Nuklearmedizin) nicht eindeutig zuordenbar. Ausnahmen stellen der vereinzelte Nachweis von ⁵⁸Co und ⁶⁰Co in Schwebstoffen und Sedimenten dar, wobei die mittleren spezifischen Aktivitäten meist unterhalb der geforderten NWG des RMP (Länder) von 5 Bq/kg TM lagen. Maximalwerte wurden jeweils an der Mosel (Perl, km 241,96) mit spezifischen Aktivitäten von 9,7 Bq/

kg TM für ⁵⁸Co und 12,8 Bq/kg TM für ⁶⁰Co gemessen. An der Mosel wurde zudem gelegentlich auch das künstliche Radionuklid ^{110m}Ag mit spezifischen Aktivitäten bis 3,5 Bq/kg TM in Schwebstoffen und Sedimenten gemessen, welches genauso wie das vereinzelt in Rhein (Philippsburg, km 389,7) und Donau (Gundelfingen, km 2548,5) nahe an Ausläufen bzw. Entwässerungskanälen in Sedimenten nachgewiesene ⁵⁴Mn vermutlich aus den Ableitungen der jeweiligen kerntechnischen Anlagen stammt. Aus den historischen Trends der Jahresmittelwerte von ⁶⁰Co in ausgewählten Fließgewässern in Schwebstoffen (Abbildung 7.7) und Sedimenten (Abbildung 7.8) lässt sich erkennen, dass die Messwerte im Berichtszeitraum, wie bereits seit ungefähr dem Jahr 2000, überwiegend unterhalb der erreichten NWG lagen. Lediglich an der Mosel lässt sich in Sedimenten ein leicht ansteigender Trend gegenüber den Vorjahren beobachten; dies wird in den nächsten Jahren weiter beobachtet werden.

Ein Bereich, der in letzter Zeit auch in Binnengewässern stärker an Bedeutung gewonnen hat, sind künstliche Radionuklide, die aus der Nuklearmedizin stammen. Dabei handelt es sich überwiegend um relativ kurzlebige Nuklide wie beispielsweise ¹³¹I (HWZ: 8 Tage), ¹⁷⁷Lu (HWZ: 6,6 Tage) oder ^{99m}Tc (HWZ: 6 Stunden), die in der Medizin zu diagnostischen Zwecken oder zur Behandlung eingesetzt werden. Das Abwasser nuklearmedizinischer Einrichtungen wird zwar erst nach einer längeren Abklingphase kontrolliert abgeleitet, jedoch kommt es durch die Ausscheidungen der behandelten Patienten nach der Entlassung aus der Klinik über die Kläranlagen zu Einträgen von Radionukliden in Gewässer. Bedingt durch die relativ kurzen HWZ stellen die Zeitspanne zwischen Probennahme und Messbeginn sowie die Probenart (z. B. Einzel- oder Mischprobe) wichtige Parameter für den Nachweis von Radionukliden aus medizinischen Anwendungen in Gewässern dar. Da in vielen Fällen Monatsmischproben mit Bezugsdatum Monatsmitte untersucht werden, können kurzlebige Nuklide wie beispielweise ^{99m}Tc in Binnengewässern in der Regel nicht nachgewiesen werden.

Insbesondere ¹³¹I wird aber in den letzten Jahren an einzelnen Messstationen regelmäßig in Schwebstoffen und vereinzelt auch in Oberflächenwasser und Sedimenten nachgewiesen. Auch wenn es sich bei ¹³¹I um ein Nuklid handelt, welches als Spaltprodukt in kerntechnischen Anlagen entsteht und dem im Zusammenhang mit Freisetzungen durch Unfälle (z. B. Tschernobyl) eine große Bedeutung zukommt, so wird inzwischen die Nuklearmedizin als Hauptquelle des in den letzten Jahren in Binnengewässern nachgewiesenen ¹³¹I angenommen. Die Jahresmittelwerte der spezifischen Aktivitäten von ¹³¹I in Schwebstoffproben der Mosel und des Rheins zeigen im Berichtszeitraum keinen eindeutigen Trend, der Anteil von Proben mit Gehalten oberhalb der NWG nimmt jedoch tendenziell zu (Abbildung 7.9). Die maximalen Einzelwerte betrugen 86 Bg/kg TM an der Mosel (Trier, km 196,0) bzw. 31 Bq/kg TM am Rhein (Weil, km 173,0). Weitere Fließgewässer mit mehreren Messwerten >10 Bq/kg TM für ¹³¹l in Schwebstoffen sind z. B. die Spree (Berlin, km 27,2) und die Saar (Schoden, km 7,7). In Oberflächenwasser wurde ¹³¹I nur vereinzelt mit Aktivitätskonzentrationen von maximal 0,2 Bq/l gemessen. Zudem konnte vereinzelt ¹⁷⁷Lu in Oberflächenwasser mit maximalen Aktivitätskonzentrationen von 0,55 Bg/l nachgewiesen werden. Die Gehalte an Alphastrahlern in Binnengewässern gehen im Wesentlichen auf die natürlichen Radionuklide der Zerfallsreihen von ²³⁸U, ²³⁵U und ²³²Th zurück.

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 § 99 der StrlSchV abgeschätzt werden.

Legt man für zur Trinkwassergewinnung genutzte Flussabschnitte ³H-Gehalte von 10 Bq/l sowie ⁹⁰Sr- und ¹³⁷Cs-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 (> 17 Jahre; 350 I Jahreskonsum von nicht aufbereitetem Wasser) zu ca. 0,21 μ Sv/a abgeschätzt werden. Für Kleinkinder (< 1 Jahr; 215 l Jahreskonsum) beträgt die Dosis hier ca. 0,68 μ Sv/a. Allein der auf das natürliche Radionuklid ⁴⁰K für einen typischen Gehalt von 0,4 Bq/l zu erwartende Dosisbeitrag liegt mit ca. 0,87 bzw. 5,3 μ Sv/a fast eine Größenordnung höher. Die hier angenommenen Trinkwasser-Verzehrsmengen sind der StrlSchV (Stand 2018), Anlage 11 Teil B Tabelle 1 entnommen.

In Sedimenten war insbesondere ¹³⁷Cs noch deutlich nachweisbar. Würde Sediment mit einem ¹³⁷Cs-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 (> 17 Jahre) zu erwartende zusätzliche effektive Dosis mit ca. 11 µSv/a abgeschätzt werden. Der Dosisbeitrag der natürlichen Radionuklide ⁴⁰K, 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 deutlich höher. Zum Vergleich: Der Dosisgrenzwert nach § 99 der StrlSchV für Ableitungen aus kerntechnischen Anlagen beträgt 300 µSv/a.

Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass der radiologische Gütezustand der Binnengewässer im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 keinen größeren Veränderungen im Vergleich zu den letzten Vorjahren unterlag. 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 weiterhin in erster Linie auf die Radionuklide zurück, die über die Fallouts der Kernwaffenversuche und des Reaktorunfalls von Tschernobyl in die Gewässer gelangten.



Abbildung 7.2 Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentrationen (Bq/I) von ³H in Oberflächenwasser ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum



Sr-90 in Oberflächenwasser

Abbildung 7.3 Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentrationen (Bq/I) von ⁹⁰Sr in Oberflächenwasser ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum



Abbildung 7.4

Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Zeitlicher Verlauf der Aktivitätskonzentrationen (Bq/l) von ¹³⁷Cs in Oberflächenwasser ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum. Weißer Symbolinhalt kennzeichnet Datensätze mit allen Werten <NWG



Abbildung 7.5

Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Zeitlicher Verlauf der spezifischen Aktivitäten (Bq/kg TM) von ¹³⁷Cs in Schwebstoffproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum



Abbildung 7.6 Zeitlicher Verlauf der spezifischen Aktivitäten (Bq/kg TM) von ¹³⁷Cs in Sedimentproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum



Co-60 in Schwebstoff

Abbildung 7.7

Zeitlicher Verlauf der spezifischen Aktivitäten (Bq/kg TM) von ⁶⁰Co in Schwebstoffproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum. Weißer Symbolinhalt kennzeichnet Datensätze mit allen Werten <NWG

Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde



Abbildung 7.8

Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Zeitlicher Verlauf der spezifischen Aktivitäten (Bq/kg TM) von ⁶⁰Co in Sedimentproben ausgewählter Binnengewässer (Jahresmittelwerte) mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum. Weißer Symbolinhalt kennzeichnet Datensätze mit allen Werten <NWG



Abbildung 7.9

Quelle: Bundesanstalt für Gewässerkunde

Zeitlicher Verlauf von ¹³¹I in Schwebstoffproben ausgewählter Binnengewässer mit hervorgehobenen Werten für den Berichtszeitraum: (A) Anteil der Proben mit Messwerten oberhalb der NWG und (B) Jahresmittelwerte der spezifischen Aktivitäten (Bq/kg TM). Fehlerbalken kennzeichnen die gemittelte Messungenauigkeit

RADIOAKTIVE STOFFE IN TRINK- UND GRUNDWASSER

P. Hofmann, K. Schmidt, C. Wittwer

Bundesamt für Strahlenschutz

Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen (Leitstelle H)

Überwachung nach StrlSchG und REI

Die amtlichen Messstellen der Länder (§ 162 Strl-SchG) untersuchen im Rahmen der Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt regelmäßig Trink- und Grundwasser

 nach dem Messprogramm zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (Routinemessprogramm nach AVV-IMIS)

und

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

Das Routinemessprogramm nach der AVV-IMIS sieht die viertel- bzw. halbjährliche Untersuchung von Trinkwässern von ca. 80 Probeentnahmeorten in Deutschland (bundesweit) vor.

Im Rahmen des Messprogramms der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) werden in der Umgebung kerntechnischer Anlagen Proben von weiteren ca. 50 Probenentnahmestellen untersucht. Für die Überwachung der Radioaktivität im Grundwasser sind entsprechend dem Routinemessprogramm der AVV-IMIS ca. 60 Probenentnahmestellen und im Rahmen der REI ca. 150 Probenentnahmeorte viertel- bis halbjährlich zu untersuchen. Die Auswahl der Probenentnahmeorte berücksichtigt geologische Gegebenheiten und insbesondere die unterschiedliche Beeinflussung der Grundwässer durch Niederschlag und Oberflächenwasser.

Die Proben werden vorwiegend mittels Gammaspektrometrie untersucht und hierbei die Aktivitätskonzentrationen von z. B. ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co und ⁴⁰K ermittelt. Des Weiteren werden über radiochemische Verfahren die Aktivitätskonzentrationen für Tritium und ⁹⁰Sr sowie - entsprechend des Routinemessprogramms - der Uran- und Plutoniumisotope bestimmt.

Bezüglich der Grundlagen zur Radioaktivität im Grund- und Trinkwasser und der daraus resultierenden Exposition für die Bevölkerung wird auf [53] verwiesen.

Die im Trink- und Grundwasser in den Jahren 2017, 2018 und 2019 nachgewiesenen Radionu-

klide sind hauptsächlich natürlichen Ursprungs, wie z. B. ⁴⁰K und ²³⁸U. Künstliche Nuklide, z. B. ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr, treten nur in sehr geringen Konzentrationen bei nicht oder wenig geschützten Rohwässern (z. B. aus Oberflächenwasser, Uferfiltrat oder oberflächennahem Grundwasser) oder im Rahmen der Umgebungsüberwachung kerntechnischer Anlagen auf.

Für Plutoniumisotope werden in der Regel nur Ergebnisse kleiner als die bei der Messung erreichte Nachweisgrenze übermittelt. Wird ein sehr großes Probenvolumen eingesetzt, kann in Ausnahmefällen eine Kategorisierung als tatsächlicher Messwert erfolgen. Diese übermittelten Messwerte liegen ausnahmslos mehr als vier Größenordnungen unterhalb der geforderten Nachweisgrenze für Plutoniumisotope im Routinemessprogramm.

In Tabelle 8.1 sind die Gehalte an ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, Gesamt-Alpha und Tritium (³H) im Trinkwasser und Grundwasser in der Bundesrepublik Deutschland für die Jahre 2017 bis 2019 zusammengestellt. Zum Vergleich sind auch die Messwerte des natürlichen Radionuklids ⁴⁰K in den Tabellen aufgeführt. Angegeben werden jeweils die Gesamtanzahl der untersuchten Proben, die Anzahl der untersuchten Proben mit dem Ergebnis kleiner Nachweisgrenze (NWG) sowie der kleinste und größte bestimmte tatsächliche Messwert.

Um einen besseren Überblick über die zeitliche Entwicklung der Daten zu erhalten, ist zusätzlich der für jedes Berichtsjahr berechnete parameterspezifische Median in der Tabelle dokumentiert. Für dessen Kalkulation wird ein Ergebnis kleiner Nachweisgrenze gleichrangig wie ein tatsächlicher Messwert berücksichtigt, indem dieser mit dem Wert der NWG gleichgesetzt wird. Für die Daten aus dem Jahr 2017 wird zusätzlich auf den bereits veröffentlichten Jahresbericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" des BMU [50] verwiesen.

Trinkwasser

Für Trinkwasser liegen für den genannten Berichtszeitraum nahezu alle übermittelten¹³⁷Cs-Messwerte (mehr als 99 %) unterhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenze, die im Wesentlichen vom Volumen des zur Messung aufbereiteten Wassers abhängt. Als Nachweisgrenze im Trinkwasser werden im Routinemessprogramm 0,05 Bq/l bezogen auf ⁶⁰Co gefordert. Die insgesamt neun ermittelten ¹³⁷Cs- Messwerte für die Berichtsjahre 2017 bis 2019 reichten von 0,000085 bis 0,0091 Bq/l und lagen damit im Vergleich weit unterhalb der geforderten Nachweisgrenze für ⁶⁰Co. Diese Ergebnisse wurden vornehmlich in Trinkwässern, die aus Oberflächenwässern (z. B. aus Talsperren) gewonnen wurden, gemessen.

⁹⁰Sr, hauptsächlich aus dem Fallout der Kernwaffenversuche in den 1950er und 1960er Jahren stammend, konnte in etwa 43 % der Trinkwasserproben mit Konzentrationen oberhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen nachgewiesen werden, der Maximalwert lag im Jahr 2018 bei 0,018 Bq/l. Als Nachweisgrenze werden im Routinemessprogramm für Trinkwasser und Grundwasser 0,01 Bq/l gefordert.

Die übermittelten Daten für die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration entstammen alle von Proben aus der Umgebungsüberwachung des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT). Der Median sämtlicher Ergebnisse aus dem Jahr 2019 ist mit 0,033 Bq/l vergleichbar zu dem ermittelten Median aus dem Jahr 2018 mit 0,034 Bq/l, währenddessen der Median im Berichtsjahr 2017 mit 0,044 Bq/l noch etwas erhöhter war.

Die Maximalwerte der Tritium-Aktivitätskonzentration wurden in den Jahren 2017 bis 2019 mit 13, 16 und 18 Bg/l im Rahmen der Umgebungsüberwachung bei kerntechnischen Anlagen des KIT ermittelt. Diese Proben stammten aus Einzelwasserversorgungen in der Nähe eines Altrheinarms, der in der Fließrichtung von Grund- und Oberflächenwasser aus dem Bereich des KIT, Campus Nord, liegt. Selbst unter der Annahme, dass der gesamte Trinkwasserbedarf mit Wasser aus diesen Einzelwasserversorgungen gedeckt werden würde, ergäbe sich nur eine unwesentliche Erhöhung der Exposition für die Bevölkerung gegenüber der natürlichen Strahlenexposition. Das Trinkwasser aus öffentlichen Wasserversorgungen in den Ortschaften in der Umgebung des KIT weist Tritium-Aktivitätskonzentrationen von <10 Bg/l auf. Der mit der geänderten Trinkwasserverordnung (TrinkwV) vom 18. November 2015 an geltende Parameterwert für Tritium von 100 Bg/l wird damit vollumfänglich eingehalten [54].

Grundwasser

Im Grundwasser wurde für ¹³⁷Cs nur für das Berichtsjahr 2017 ein Messwert oberhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen ermittelt. Der gemessene Wert von 0,065 Bq/l wurde auf Erdbauarbeiten neben einem Grundwasserbrunnen der Forschungsneutronenquelle München (FRM II) rückgeführt [55].

⁹⁰Sr konnte in 44 % der Grundwasserproben mit Konzentrationen oberhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen nachgewiesen werden, es wurden Aktivitätskonzentrationen zwischen 0,000078 und 0,021 Bq/l gemessen. Der für 2017 bis 2019 jeweilig berechnete Median betrug 0,0038 bzw. <0,0039 Bq/l.

Die Messwerte für die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration in der Tabelle stammen ausschließlich zu gleichen Teilen aus der Umgebungsüberwachung des KIT in Baden-Württemberg (49%) und des Brennelemente-Zwischenlagers in Ahaus in Nordrhein-Westfalen (51%). Die übermittelten Ergebnisse der zu betrachtenden Berichtsjahre stimmen gut miteinander überein.

In etwa 9 % der Grundwasserproben konnte Tritium mit Konzentrationen oberhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenze nachgewiesen werden. Die Größenordnung im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 lag zwischen 0,58 und 35 Bg/l. Die höchsten Tritium-Aktivitätskonzentrationen wurden im Rahmen der Umgebungsüberwachung der Kernkraftwerke Philippsburg und Obrigheim festgestellt. Im Jahr 2017 wurde zusätzlich noch ein Messwert für einen Brunnen der KTA Forschungsneutronenquelle Heinz-Maier-Leibnitz übermittelt. Querkontaminationen respektive Messgerätefehler sind hierbei nicht ausgeschlossen, da eine wiederholte Probenentnahme an diesem Brunnen nur Tritium-Werte unterhalb der Nachweisgrenze ergaben. Ein weiterer Messwert für Tritium wurde im Jahr 2017 in einer Probe aus einer Grundwassermessstelle auf dem Gelände des Freilagers für radioaktive Abfälle (Kontrollbereich) des VKTA-Rossendorf erhoben. Bei dieser Stichprobe wurde darüber hinaus ⁶⁰Co in einer Konzentration von 0,0085 Bg/l (2017) ermittelt. Diese Messwerte sind auf eine Kontamination des Untergrunds auf dem Betriebsgelände des VKTA-Rossendorf infolge von Leckagen an (inzwischen nicht mehr betriebenen) Beton-Abklingbecken für kontaminierte Wässer zurückzuführen. Alle Proben außerhalb der genannten Standorte weisen Tritium-Werte unterhalb der Nachweisgrenze von 10 Bg/l auf.

Die Exposition der Bevölkerung durch künstliche radioaktive Stoffe auf dem Weg über das Trinkwasser ist sehr niedrig gegenüber der Exposition, die durch natürliche Radionuklide insgesamt verursacht wird. Legt man jeweils den Maximalwert für ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr für den Berichtszeitraum 2017 bis 2019 zu Grunde (Tabelle 8.1), ergeben sich bei einem angenommenen jährlichen Trinkwasserverzehr von 700 Liter für den Erwachsenen nach StrlSchV Ingestionsdosen von 0,083 μ Sv/a bzw. 0,35 μ Sv/a. Im Vergleich hierzu beträgt die mittlere Ingestionsdosis (Medianwert) für Erwachsene durch den Verzehr von Trinkwasser in Deutschland einer vom BfS durchgeführten Studie zufolge 8,6 μSv/a [56]56. In der Trinkwasser-Studie wurden insgesamt 582 Trinkwasserproben aus weiten Teilen Deutschlands auf natürliche Radionuklide (²²⁸Ra, ²²⁶Ra, ²³⁸U, ²³⁴U, ²²²Rn, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po) untersucht und die Exposition durch die Aufnahme dieser natürlichen Radionuklide mit dem Trinkwasser bestimmt. Im Unterschied zur TrinkwV [54] enthält die ermittelte Ingestionsdosis der BfS-Studie auch den Beitrag von ²²²Rn.

Tabelle 8.1Überwachung von Trinkwasser und Grundwasser in Deutschland 2017-2019

	An	zahl			Median ^a				
Nuklid	gesamt	< NWG	Minimal- wert	Maximal- wert					
Trinkwasser (Bq/l)									
2017 - 2019					2017	2018	2019		
⁴⁰ K	1588	1042	0,015	4,4	0,18	<0,16	<0,17		
¹³⁷ Cs	1590	1579	8,5E-05	0,0091	<0,0086	<0,0079	<0,0084		
³ Н	958	865	0,52	18	3,6	<5,0	<4,2		
⁹⁰ Sr	485	279	9,7E-05	0,018	0,0031	0,0035	<0,0039		
G-Alpha	17	0	0,026	0,061	0,044	0,034	0,033		
Grundwasser (Bq/I)									
2017 - 2019					2017	2018	2019		
⁴⁰ K	1058	688	0,015	24	<0,39	<0,42	<0,48		
¹³⁷ Cs	1054	1053	-	0,065	<0,019	<0,017	<0,023		
³ Н	1298	1187	0,58	35	<5,6	<5,3	<5,5		
⁹⁰ Sr	212	118	7,8E-05	0,021	0,0038	<0,0039	<0,0039		
G-Alpha	157	88	0,016	0,13	<0,05	<0,05	<0,05		

a Der angegebene Median berücksichtigt das Messergebnis "<NWG" so, als wäre ein tatsächlicher Messwert gleich der NWG erhalten worden.

RADIOAKTIVE STOFFE IN NORD- UND OSTSEE

S. Schmied

Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie Leitstelle für Meerwasser, Meeresschwebstoff und -sediment (Leitstelle D)

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 der zeitlichen Trends 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 Anlagen wie Kernkraftwerken 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 Reaktorunfall von 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 Kernkraftwerken 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 Metern 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 einer Tiefe von etwa 1700 m in der Norwegensee führen zu keiner erhöhten Belastung dieser Meeresgebiete oder gar der Nordsee.

Die Einleitungen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen 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 Wiederaufarbeitungsanlagen für fast alle Radionuklide stark reduziert wurden. Dies führt auch im Meerwasser der Nordsee zu deutlich geringeren Konzentrationen der meisten künstlichen Radionuklide. So nahm bis Ende der neunziger Jahre die Aktivitätskonzentration an ¹³⁷Cs 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 Meerwasser der Ostsee über einen längeren Zeitraum verblieben. Die Menge des Zuflusses an salzreichem und aktivitätsarmem Nordseewasser durch die Bodenschicht des Kattegats 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 weniger 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 ¹³⁷Cs im Nordatlantik dar. Die Zeit für einen vollständigen Wasseraustausch der Ostsee wird mit 20 bis 30 Jahren angenommen. Inzwischen nimmt jedoch auch hier die ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration deutlich ab.



Abbildung 9.1

Zeitlicher Verlauf der ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration (Bq/m³) an den Positionen der ehemaligen Feuerschiffe "Borkumriff" und "Elbe 1" in der Deutschen Bucht

Meerwasser in der Nordsee

Die Probenentahme zur Überwachung der Deutschen Bucht bzw. Nordsee erfolgte in den Jahren 2017 bis 2019 auf Fahrten im Januar und August. Zusätzlich werden an den Positionen der früheren Feuerschiffe Borkumriff und Elbe 1 in der Deutschen Bucht Proben möglichst monatlich entnommen.

Die Zeitreihen der Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr in den Abbildungen 9.1 und 9.2 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 Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague nur noch sehr niedrige Ableitungen dieser beiden Radionuklide zu verzeichnen sind. Zeitverzögert infolge des Reststroms innerhalb der europäischen Schelfmeere liegen die Konzentrationen nur noch geringfügig 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 ¹³⁷Cs aus der Elbe ist nicht zu erkennen. Der Fallout von Tschernobyl mit seinem charakteristischen Verhältnis der Radionuklide ¹³⁴Cs zu ¹³⁷Cs war in der deutschen Bucht bereits zwei bis drei Jahre nach dem Unfall nicht mehr zu messen. ¹³⁴Cs ist im Wasser der Nordsee ebenfalls nicht mehr nachweisbar (NWG ca. 0,3 Bq/m³).

Die Aktivitätskonzentration von ¹³⁷Cs in der Deutschen Bucht im Jahr 2017 (Abbildung 9.3) liegt zwischen 0,7 Bq/m³ an der Elbemündung bis 2,6 Bq/m³ in der äußeren Deutschen Bucht. Im Vergleich mit früheren Jahren sind die Konzentrationen von ¹³⁷Cs sehr niedrig. Eine eindeutige Zuordnung zu einer Quelle ist bei diesen geringen Werten kaum noch möglich. Dagegen ist die Aktivitätskonzentration von 4,9 Bq/m³ (Abbildung 9.4), die am Ausgang des Skagerrak nachzuweisen war, eindeutig dem Ausfluss aus der Ostsee zuzuordnen. Wie die Vergleichsprobe aus der Elbe bei Stade (0,8 Bq/m³) zeigt, ist der Beitrag aus dem Elbwasserabfluss vernachlässigbar. Die geringe Höhe der Einträge aus der Elbe ist darauf zurückzuführen, dass ¹³⁷Cs im Vergleich zu ⁹⁰Sr an den Tonmineralen der Böden stärker adsorbiert wird und deshalb über die Flüsse weniger eingetragen wird.



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.2

Zeitlicher Verlauf der ⁹⁰Sr-Aktivitätskonzentration (Bq/m³) an den Positionen der ehemaligen Feuerschiffe "Borkumriff" und "Elbe 1" in der Deutschen Bucht

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 30 Jahren auch mit dem ¹³⁷Cs 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 dichteren Tiefenschicht findet der Einstrom salzreichen Ozeanwassers statt. Dieses Wechselspiel spiegelt sich auch in den Konzentrationen des Radionuklids ¹³⁷Cs 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 Vor-Tschernobyl-Niveau der ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration von 15 Bg/m³ voraussichtlich zwischen 2020 und 2030 wieder erreicht werden wird.

Abbildung 9.5 stellt den zeitlichen Verlauf der Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr im Oberflächenwasser an der Position Schleimündung in der Ostsee dar. Deutlich zu erkennen sind die höheren Konzentrationen beider Nuklide in den sechziger Jahren und die höhere Konzentration des ¹³⁷Cs seit dem Tschernobyl-Unfall. Die jahreszeitlichen Schwankungen der ¹³⁷Cs-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 2017 und 2018 unter 20 Bq/m³ im westlichen und über 20 Bq/m³ im östlichen Teil des überwachten Gebietes (Abbildung 9.6 und 9.7). Die Konzentrationen nehmen nach Osten nach wie vor leicht zu – in Richtung des Schwerpunktes des Tschernobyl-Fallouts. Obwohl die Kontamination der westlichen Ostsee sich gegenüber den Vorjahren verringert hat, liegt sie immer noch um den Faktor 10 über derjenigen der Deutschen Bucht. Während die Wassersäule der Ostsee im



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.3 Aktivitätskonzentration von ¹³⁷Cs in der Deutschen Bucht im Januar 2017



Abbildung 9.4 Aktivitätskonzentration von ¹³⁷Cs im August 2017 in der Nordsee



Abbildung 9.5 Zeitlicher Verlauf der ¹³⁷Cs- und ⁹⁰Sr -Aktivitätskonzentrationen (Bq/m³) an der Position "Schleimündung" (54°40'N, 010°05'O) seit 1961

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 ¹³⁷Cs nachweisen. Dabei weisen die Proben im Bereich der Mecklenburger Bucht den größten Unterschied in der ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration zwischen Oberflächen- und Bodenwasser auf.

Die Konzentrationen von ⁹⁰Sr liegen in der westlichen Ostsee im Jahr 2017 (Abbildung 9.8) zwischen 4,6 Bq/m³ und 9,1 Bq/m³ und damit bis um den Faktor 5 höher als in der Deutschen Bucht. Die Quelle des ⁹⁰Sr ist nahezu ausschließlich der globale Fallout aus den sechziger Jahren. Die Kombination aus hoher Mobilität des ⁹⁰Sr 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 Nordsee

Die Sedimente der Nordsee sind zum überwiegenden Teil stark sandig, nur lokal finden sich Schlickablagerungen, die nennenswerte Konzentrationen von Radionukliden beeinhalten. Sedimentproben wurden im Berichtszeitraum an den üblichen Stationen der Deutschen Bucht entnommen. Auf Grund personeller Engpässe waren die Messergebnisse bis zum Redaktionsschluss nicht vollständig abgabebereit. Die bisher vorliegenden Ergebnisse zeigen keine auffälligen Werte.

Sedimente in der Ostsee

Das ¹³⁷Cs 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 verschiedenen Tiefen.

Das Inventar an ¹³⁷Cs betrug im Jahr 2017 zwischen 0,5 kBq/m² und 4,3 kBq/m², wobei die höchsten Werte in den wasseraustauscharmen Buchten zu finden sind (Abbildung 9.9). Die Inventare hängen stark von der Körnigkeit der Sedimente und nicht direkt von den umgebenden Aktivitätskonzentrationen im Meerwasser ab.



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.6 Aktivitätskonzentration von ¹³⁷Cs an der Wasseroberfläche und in der Wassersäule in der westlichen Ostsee



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.7 Aktivitätskonzentration von ¹³⁷Cs an der Wasseroberfläche und in der Wassersäule in der westlichen Ostsee



Quelle: Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie

Abbildung 9.8 Aktivitätskonzentration von ⁹⁰Sr an der Wasseroberfläche und in der Wassersäule in der westlichen Ostsee im Juni 2017



Abbildung 9.9 Inventar an ¹³⁷Cs im Meeressediment im Juni 2017

10 RADIOAKTIVE STOFFE IN FISCHEN

M.-O. Aust, P. Nogueira

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

Fische und Fischereiprodukte sowie Krusten- und Schalentiere aus deutschen Binnengewässern werden durch die amtlichen Messstellen der Bundesländer auf radioaktive Stoffe untersucht 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 Zusammenführung und Bewertung dieser Messwerte vor. Zusätzlich ist das Thünen-Institut für Fischereiökologie mit der Überwachung der Radionuklidkonzentrationen in Organismen auf der hohen See betraut. Die Probenentnahme in Nord- und Ostsee erfolgt im Rahmen zweier jährlich stattfindender Fischereiforschungsausfahrten an Bord von FFS Walther Herwig III. Zusätzliche Proben, zum Teil auch aus anderen Meeresgebieten wie der Grönlandsee, werden u.a. von den Thünen-Instituten für Seefischerei und Ostseefischerei bereitgestellt.

Binnenseen

Die mittlere spezifische Aktivität von ¹³⁷Cs in Fischen aus Binnenseen ist seit 1986, als die Messwerte in Süddeutschland (Baden-Württemberg und Bayern) 200 Bq/kg Feuchtmasse (FM) überstiegen, im Jahr 2019 auf weniger als 0,5 Bq/kg FM zurückgegangen (siehe Abbildung 10.1a). Im selben Zeitraum verringerte sich die mittlere spe-zifische Aktivität von ¹³⁷Cs in Binnenseen Norddeutschlands (Schleswig-Holstein, Hamburg, Niedersachsen, Bremen, ab 1991 auch Brandenburg und Mecklenburg-Vorpommern) von 90 Bq/kg FM auf unter 1,0 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 verringerte sich die spezifische Aktivität auch in Fischen deutlich. Dieses Abklingen fand in zwei Phasen statt [17]. Die erste Phase war geprägt durch eine effektive Halbwertszeit von 0,7 Jahren, die zweite von 7 Jahren.

Fließgewässer

Die mittleren spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs in Fischen aus Fließgewässern Nord- und Süddeutschlands sind seit den 1980er Jahren von maximal 30 Bq/kg FM, bedingt durch das Ereignis in Tschernobyl, auf Werte stabil unter 0,2 Bq/kg FM (inklusive Mitteldeutschland; siehe Abbildung 10.1c) zurückgegangen. Damit sind die ermittelten spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs in Fischen aus Fließgewässern etwa um eine Größenordnung niedriger als jene aus Binnenseen Nord- und Süddeutschlands.

Fischteiche

In Fischen aus Teichhaltung in Nord- und Süddeutschland wurden in den 1980er Jahren mittlere spezifische ¹³⁷Cs-Aktivitäten von maximal 22 Bq/kg FM ermittelt, während die heutigen mittleren Messwerte maximal 0,3 Bq/kg FM betragen (inklusive Mitteldeutschland; siehe Abbildung 10.1b). Der zeitliche Verlauf der mittleren spezifischen ¹³⁷Cs-Aktivität 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. Seit 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 spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs nahmen seit ihrem Maximum von etwa 16 Bq/kg bzw. 7 Bq/kg in den Jahren 1986 und 1987 kontinuierlich ab und liegen seit dem Jahr 2012 unterhalb 0,2 Bq/kg. Die Werte betrugen im Jahr 2019 im Mittel 0,12 Bq/kg (Forellen) bzw. 0,15 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 spezifische Aktivität von ¹³⁷Cs in Fischen aus der Nordsee ist im Zeitraum 1987 bis







Abbildung 10.1b Jahresmittelwerte der ¹³⁷Cs-Aktivität in Fischen aus Fischteichen in Bq/kg FM



Abbildung 10.1c Jahresmittelwerte der ¹³⁷Cs-Aktivität in Fischen aus Fließgewässern in Bq/kg FM

Radioaktive Stoffe in Fischen


2019 von knapp 3 Bq/kg FM auf Werte um 0,1 Bq/kg FM zurückgegangen (siehe Abbildung 10.1e), wobei der Maximalwert im Jahr 1987 wiederum dem Reaktorunfall von Tschernobyl geschuldet ist. Allerdings wurde in Fischen der Nordsee bereits vor dem Reaktorunfall von Tschernobyl eine spezifische ¹³⁷Cs-Aktivität von etwa 2 Bq/kg gemessen, weil ein Teil der Ableitungen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen durch die Nordsee transportiert wird [19]; insgesamt ist der Einfluss des Fallouts aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl wegen des raschen Abtransports der Radionuklide mit dem Wasser der Nordsee gering. Von 1988 bis Mitte der 1990er Jahre wurde in der Nordsee eine Aktivitätsabnahme verzeichnet, während die Messwerte der spezifischen ¹³⁷Cs-

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



Quelle: Johann Heinrich von Thünen-Institut

Aktivität in Fischen anschließend nahezu stagnierten. Die Abnahme über den gesamten Zeitraum ist im Wesentlichen mit der kontinuierlichen Verringerung der Ableitungen aus der englischen Wiederaufarbeitungsanlage Sellafield verbunden [18]. Seit der zweiten Hälfte der 1990er Jahre stagniert die spezifische ¹³⁷Cs-Aktivität, weil seitdem das ¹³⁷Cs, das vorher an das Sediment der Irischen See angelagert wurde, auf Grund der reduzierten Ableitungen wieder freigesetzt wird [25]. Dieses remobilisierte ¹³⁷Cs gelangt zusammen mit den Resten des sogenannten "globalen Fallouts" (siehe auch Kapitel "Radioaktive Stoffe in Nord- und Ostsee") mit den Meeresströmungen in die Nordsee und damit, angereichert um einen Faktor von etwa 100, in den dort lebenden Fisch.



Abbildung 10.2

Mittlere spezifische Aktivität von ¹³⁷Cs der Jahre 2005 bis 2018, 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.

Die ermittelte mittlere spezifische Aktivität von ¹³⁷Cs in Fischen der Ostsee ist mit bis zu 11 Bq/kg deutlich höher als jene der Nordsee (siehe Abbildung 10.1e). Grund dafür sind etwa 4700 TBq ¹³⁷Cs -Fallout aus dem Reaktorunfall von Tschernobyl [23]. Damit war und ist die Ostsee deutlich stärker von dem Reaktorunfall in Tschernobyl betroffen als die Nordsee. Im Vergleich zum Maximalwert hat sich die spezifische ¹³⁷Cs-Aktivität in der Ostsee bis zum Jahr 2019 mehr als halbiert. Der deutlich langsamere Anstieg, die starken Schwankungen wie auch die deutlich langsamere Abnahme haben 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 maximale spezifische ¹³⁷Cs-Aktivitäten knapp über 29 Bq/kg FM im Jahr 1991 im Fischfilet gefunden; im Jahr 2017 waren es nur noch maximal 6 Bq/kg FM. Im Gegensatz dazu wurden in der Kieler Bucht seit 1986 Maximalwerte bis 9 Bg/kg FM ermittelt, während diese aktuell etwa 2 Bg/kg FM betragen. Damit liegen die aktuellen Messwerte von Fischen aus der Kieler Bucht im Bereich der vor dem Reaktorunfall in Tschernobyl gemessenen Werte [20]. Abbildung 10.2 zeigt die jährlichen Mittelwerte der in Filets von Dorsch/Kabeljau, Wittling, Scholle, Flunder und Makrele ermittelten spezifischen Aktivitäten der Jahre 2005 bis 2018. Sie geben sowohl die unterschiedlichen Niveaus der spezifischen Aktivität von ¹³⁷Cs in Nordund Ostsee als auch die Verteilung der Cs-Werte innerhalb der Ostsee wieder.





Abbildung 10.3

Mittlere Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs in Wasser (in Bq/l; Daten des Bundesamtes für Seeschifffahrt und Hydrographie; siehe dazu BMU-Jahresbericht 2019 [52], Teil B, Kapitel 2.2.1) und der spezifischen ¹³⁷Cs-Aktivität in Dorschfilet mit und ohne Haut (in Bq/kg FM; eigene Messdaten) in drei Untersuchungsgebieten der Ostsee der Jahre 1990 bis 2019 (sowie daraus berechnete Konzentrationsfaktoren der Aufnahme in das Dorschfilet (in Bq/l / Bq/kg)

Konzentrationsfaktoren von ¹³⁷Cs in Dorschartigen aus der Ostsee

Über den Konzentrationsfaktor kann die Aufnahme radioaktiver Stoffe in den Fisch über die Menge radioaktiver Ableitungen abgeschätzt werden. Daher 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 der Aktivitätskonzentration im Wasser und der spezifischen Aktivität in Fisch vor, darf der Konzentrationsfaktor aus dem Verhältnis der spezifischen ¹³⁷Cs-Aktivität in Fisch (Bg/kg) zur ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration in Meerwasser berechnet werden. Dieser stationäre Fall ist in der Ostsee seit Anfang der 1990er Jahre gegeben. Abbildung 10.3 zeigt die Verläufe der mittleren Aktivitätskonzentration in Wasser und der mittleren spezifischen Aktivität in Fisch sowie die daraus berechneten Konzentrationsfaktoren in drei Gebieten der Ostsee (Kieler Bucht, Mecklenburger Bucht und Rügen/Arkonasee) im Zeitraum 1990 bis 2018. Die mittleren Konzentrationsfaktoren in Dorschartigen (Kabeljau und Wittling) betrugen zwischen etwa 90 und 300. Diese Schwankungsbreite ist geringer als jene, die Steele [24] zwischen 1978 und 1985 in Dorschfilet der Nordsee ermitteln konnte (8 bis 1100). Die mittleren Konzentrationsfaktoren im Zeitraum 1990 bis 2018 betragen für die Kieler Bucht 140, für die Mecklenburger Bucht 142 sowie 205 in der Arkonasee (Abbildung 10.3). Die in der Ostsee ermittelten mittleren Anreicherungsfaktoren sind damit höher als der Wert 100, den die IAEA als mittleren Anreicherungsfaktor für Fisch empfiehlt [21]. Dagegen sind die hier angegebenen Konzentrationsfaktoren in derselben Größenordnung wie sie Steele [24] in Dorschfilet aus der Nordsee ermittelte. Ähnlich den spezifischen Aktivitäten 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 einhergehenden 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 aber auch die spezifischen Aktivitäten in Fisch in ähnlicher Weise ändern. Ob Wanderungen der Fische, Beprobung unterschiedlicher Fischbestände (wie in der Arkonasee Vermischung des östlichen und westlichen Dorschbestandes der Ostsee) oder Süßwassereinbrüche für die kurzfristigen Schwankungen der ermittelten Konzentrationsfaktoren verantwortlich sind, wird zukünftig weiter zu evaluieren sein.

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 ¹³⁷Cs-Werte in Fischen aus der Ostsee sind auch 2018 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 [20] etwas größer als diejenige in Binnengewässern mit etwa 7 Jahren [17]. Dass auch die Abnahme in Binnengewässern relativ langsam erfolgt liegt daran, dass bis heute kontinuierlich ¹³⁷Cs aus den Böden der Wassereinzugsgebiete in die Gewässer eingetragen wird. 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 2019 wurde in den Binnenseen allerdings ein deutlicher Rückgang der mittleren spezifischen Aktivität von ¹³⁷Cs auf unter 0,5 Bq/kg FM festgestellt. Im Vergleich dazu war die Kontamination von Fischen aus Teichen und Fließgewässern nur etwa halb so groß. Die spezifischen ¹³⁷Cs-Aktivitäten in 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.

Ein wichtiger Parameter zur Einschätzung der aktuellen Kontaminationssituation ist zudem die Strahlenexposition der Bevölkerung, beispielsweise durch den Verzehr von Fisch und Produkten des Meeres. Diese wurde im Jahr 2010 für einen überdurchschnittlich hohen Verzehr von jährlich 90 kg Meeresfisch aus der Ostsee (im Mittel 8 Bq/kg FM für ¹³⁷Cs) mit einem Wert von etwa 10 µSv im Jahr angegeben [20]. Dieses entspricht weniger als 0,04% der mittleren natürlichen Strahlenexposition der Bevölkerung. Unter Verwendung der oben angegebenen Mittelwerte der Aktivitätskonzentration von ¹³⁷Cs 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 [22] 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 TRÜBE AUSSICHTEN FÜR FISCHE? MODELLIERUNG DER STRAHLUNGSEFFEKTE AUF FISCHAUGEN MITTELS MONTE-CARLO-SIMULATION

P. Nogueira, M.-O. Aust

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

Einführung

Für das Überleben der meisten Wildtierarten spielt ein gutes Sehvermögen die zentrale Rolle. Daher ist zu erwarten, dass mit dem Auftreten von Augenkrankheiten wie Grauer Star, bei denen das Sehvermögen abnimmt, auch die Fähigkeit Nahrung zu finden verloren geht [47].

Der strahleninduzierte Graue Star beim Menschen ist seit langem als eine wichtige Augenerkrankung dokumentiert [46]. Die Augenlinse gilt als eines der strahlenempfindlichsten menschlichen Gewebe. Mehrere epidemiologische Studien deuten darauf hin, dass die Schwelle für die Kataraktinduktion sehr niedrig sein kann oder es überhaupt keine Schwelle gibt [26,43]. Diese neuen Erkenntnisse motivierten die jüngsten Entwicklungen zu neuen Augenlinsenmodellen und Dosimeter für das menschliche Auge [27,49,43].

Erst in den vergangenen zehn Jahren wurden Studien zur Analyse des Zusammenhangs zwischen strahleninduziertem Grauen Star und der Belastung durch ionisierende Strahlung bei Wildtieren durchgeführt. Mousseau und Møller [41] untersuchten das Auftreten von Katarakten bei Vögeln aus der Sperrzone von Tschernobyl und fanden nicht nur eine erhöhte Häufigkeit von Katarakten, sondern auch einen starken Zusammenhang zwischen Organismenanzahl, Hintergrundstrahlung und Auftreten von Katarakten. Die Ergebnisse deuten auch darauf hin, dass ionisierende Strahlung durch die Erhöhung der Häufigkeit von Katarakten und anderen Strahlenexpositionseffekten die Organismenanzahl in den Regionen mit höheren Hintergrundstrahlungswerten verringert. In ähnlicher Weise fanden Lehmann et al. [40] auch ein erhöhtes Auftreten von Katarakten in den Augen von Rötelmäusen (Myodes glareolus), die von der ansässigen Bevölkerung in der Tschernobyl-Sperrzone gesammelt wurden.

Die Beta-Strahlung ist für die Augenlinse die gefährlichste Art ionisierender Strahlung, da sie in Luft eine Reichweite bis zu mehreren Metern aufweist und auf Grund ihrer lokalen Energiedeposition hohe lokale Dosen erzeugt. In der Luft wird sie leicht abgeschwächt, so dass ein Beta-Teilchen des ⁹⁰Sr mit seiner Energie von 0,546 MeV eine typische Reichweite von 180 cm hat. Im Wasser würde die typische Reichweite desselben Beta-Teilchens aber auf Grund des großen Wirkungsquerschnitts des Mediums auf 0,195 cm verringert.

Bereits im Jahr 1990 wurde in der Internationalen Strahlenschutzkommission (ICRP) die Annahme aus ICRP 26 [34] revidiert, dass durch einen ausreichenden Schutz des Menschen auch alle anderen Lebewesen geschützt sind. Dieses führte zur Einführung eines eigenen Strahlenschutzsystems für die Umwelt, um Arten individuell schützen zu können (ICRP 108, 2008b [36]). Zu diesem Zweck wurden Referenztiere und -pflanzen (RAPs) definiert. Diese waren Hirsch, Ratte, Ente, Biene, Regenwurm, Kiefer und Gras für die terrestrische sowie Forelle, Plattfisch, Krebs, Frosch und Seegras für die aguatische Umwelt. Alle Modelle wurden zur Berechnung der absorbierten Dosis und der entsprechenden Dosis-Konversionskoeffizienten für 75 Radionuklide verwendet. In den 1970er Jahren wurden aus einfachen ellipsoidischen Körpern die ersten anthropomorphen Modelle entwickelt. In ähnlicher Weise wurden auch die RAPS-Modelle mit diesen einfachen Formen entwickelt. Dieser vereinfachende Ansatz ist hinsichtlich der Einsparung von Rechenzeit und Arbeitszeit sehr effektiv, verringert jedoch die anatomische Genauigkeit der dosimetrischen Berechnungen. Nach Strahlenexposition kann dies im Falle einer Unterschätzung der erhaltenen Strahlendosis zu einem unzureichenden Schutz von Wildtieren führen. Bei einer Überschätzung der Dosis würden dagegen hohe monetäre Kosten für eine Sanierung der Umwelt anfallen, die nicht nur unnötig, sondern für die Wildtiere auch schädlicher sein kann als die Strahlung selbst.

Durch die zunehmende Leistung moderner Arbeitsplatzcomputer sind solche Beschränkungen aber nicht mehr notwendig, so dass auch einzelne Organe im Tiermodell simuliert werden können. Nachfolgend wird ein mathematisches Modell für ein Fischauge beschrieben und dieses in das Forellen-Modell der ICRP (siehe dazu ICRP 108 [36]) integriert. Mit diesem mathematischen Modell des Fischauges wurde die absorbierte Dosis in der Fischaugenlinse in einem externen Expositionsszenario einer Elektronenstrahlungsquelle berechnet, die homogen im umgebenden Wasser verteilt ist, wobei drei verschiedene Wasserzusammensetzungen verwendet wurden. Weiterführende Details sind zu finden in Nogueira et al. [44].





Quelle: Johann Heinrich von Thünen-Institut

Abbildung 11.1

Modell eines für die Simulation mittels MCNPX entwickelten Fischauges (links) im Vergleich zu einem allgemeinen Schema eines Fischauges (rechts), Hornhaut - rot; Vorderkammer - hellblau; Augenlinse - grün, Glaskörper - hellblau; Netzhaut und Aderhaut - orange; Sklera - rot; Haut - rot; Wasser - dunkelblau



Quelle: Johann Heinrich von Thünen-Institut

Abbildung 11.2

Koronalschnitt (links) und Querschnitt (rechts) eines MCNPX-Geometrieplots des in dieser Arbeit entwickelten Fischaugenmodells, integriert in das Referenzforellenmodell der ICRP (2008). Hornhaut - rot; Vorderkammer - hellblau; Augenlinse - grün, Glaskörper - hellblau; Netzhaut und Aderhaut - orange; Sklera rot; Haut - rot; Wasser - dunkelblau

Materialien und Methoden

Geometrie und Elementzusammensetzung

Die Geometrie des Modells basiert auf einem Fischaugen-Schema [31]. Mit Hilfe der allometrischen Beziehung von Devlin et al. [30] wurde der laterale Augendurchmesser für die ICRP-Referenzforelle mit einer Körperlänge von 50 cm ermittelt. Der Coho-Lachs-Augendurchmesser wurde auf Grund der begrenzten verfügbaren Informationen als Referenz für Forellen gewählt. Um die Abschwächung der Strahlung durch den Körper der Forelle zu simulieren, wurde das ICRP-Forellenmodell in MCNPX [45] implementiert und das Augenmodell auf beiden Seiten der approximierten Position des Forellenauges darin integriert.

Es wurden drei verschiedene Wasserzusammensetzungen verwendet:

- 1. reines Wasser
- 2. die mittlere Zusammensetzung des Salzwassers nach Castro und Huber [28] und

3. die mittlere Zusammensetzung des Flusswassers in Europa nach Holland [32].

In allen drei Fällen wurde eine Dichte des Wassers von 1 kg/dm³ verwendet.

Monte-Carlo-Simulationen

Die Monte-Carlo-Simulationen wurden mit dem Monte-Carlo-Partikeltransportcode MCNPX, Version 2.6 [45] durchgeführt. Es wurden sowohl Elektronen als auch Photonen simuliert, um die mögliche Erzeugung von Photonen aus Bremsstrahlung (Photonen, die durch die Abbremsung infolge Wechselwirkung mit Materie oder Richtungsänderung eines Elektrons entstehen) zu berücksichtigen. Um die Berechnungszeit zu begrenzen, wurde ein Energiegrenzwert von 10 keV für Elektronen und 1 keV für Photonen verwendet. Angesichts seiner Präzision und Genauigkeit [29,37] wurde der Elektronenenergie-Indizierungsalgorithmus im Integrated-Tiger-Series-Stil genutzt. Außerdem wurden die Standard MCNPX Querschnittsbibliotheken MCPLIB04 für Photonen und EL03 für Elektronen verwendet (Abbildungen 11.1 und 11.2).

Tabelle 4.1

Absorbierte Dosis für die Augenlinse, berechnet für 3 verschiedene Zusammensetzungen des umgebenden Wassers und die jeweilige statistische Unsicherheit der modellierten Werte (ausgedrückt als eine geschätzte Standardabweichung, geteilt durch den geschätzten Mittelwert)

Dosis pro Liter pro Elektron (pGy/l·Partikel ⁻¹)									
Energie (MeV)	reines Wasser	Unsicherheit (%)	Fluss- wasser	Unsicherheit (%)	Meerwasser	Unsicherheit (%)			
0,1	4,99·10 ⁻⁶	15,73	3,65·10 ⁻⁶	18,21	2,83·10 ⁻⁶	20,37			
0,2	1,44·10 ⁻⁵	9,15	1,59·10 ⁻⁵	8,78	1,45·10 ⁻⁵	9,31			
0,4	5,95·10 ⁻⁵	4,94	6,27·10 ⁻⁵	4,83	5,41·10 ⁻⁵	5,20			
0,5	9,38·10 ⁻⁵	4,71	1,02·10 ⁻⁴	4,51	9,37·10 ⁻⁵	4,57			
0,7	4,66·10 ⁻⁴	4,25	4,46·10 ⁻⁴	4,35	4,51·10 ⁻⁴	5,96			
1,0	3,02·10 ⁻³	2,41	2,97·10 ⁻³	2,43	2,90·10 ⁻³	3,85			
1,5	1,72·10 ⁻²	1,29	1,72·10 ⁻²	1,29	1,66·10 ⁻²	2,36			
2,0	4,93·10 ⁻²	0,88	4,89·10 ⁻²	0,88	4,82·10 ⁻²	1,79			
4,0	2,78·10 ⁻¹	0,63	2,74·10 ⁻¹	0,63	2,73·10 ⁻¹	1,02			

Ergebnisse und Diskussion

Um den Einfluss des umgebenden Wassers zu bewerten, wurde die Energiedosis, die auf die Fischaugenlinse wirkt, für Reinst-, Fluss- und Meerwasser in Tabelle 4.1 zusammengestellt. Diese werden nachfolgend hinsichtlich ihrer relativen Unterschiede verglichen. Beim Vergleich der adsorbierten Augenlinsendosis in Reinst- und Flusswasser wurden relative Unterschiede von 26% bzw. 10% für 0,1 MeV bzw. 0,2 MeV Elektronenenergie gefunden. Für 0,4 MeV und 0,5 MeV liegen die relativen Unterschiede unter 10% und für alle Energien über 0,5 MeV bei kleiner als 4%. In allen Fällen war der relative Unterschied kleiner als die statistische Unsicherheitsfortpflanzung der Messwerte von zwei Sigma und nur in zwei Fällen war sie höher als die Unsicherheit von einem Sigma. Eine relative Abweichung zwischen reinem Wasser und Meerwasser von 43% bzw. 10% wurde für 0,1 MeV bzw. 0,4 MeV gefunden. Bei allen anderen Energien lag die relative Abweichung unter 4%. Mit Ausnahme von 0,1 MeV liegen alle relativen Abweichungen unter der Ein-Sigma-Unsicherheit.

Weiterhin wurde die von der Augenlinse absorbierte Dosis in Fluss- und Meerwasser verglichen. Für Teilchenenergien von 0,1 MeV und 0,4 MeV betrugen die relativen Unterschiede etwa 23% bzw. 14%. Bei 0,2 MeV und 0,5 MeV reduzierten sich diese auf 9% bzw. 8%, und für Energien größer 0,7 MeV lag die relative Abweichung unter 4%. In allen Fällen war die relative Abweichung kleiner als die Zwei-Sigma-Unsicherheit und nur in drei Fällen lag sie über der Ein-Sigma-Unsicherheit.

Anwendungsfall: Strahlendosis in der Ostsee

Die Ostsee ist eines der weltweit am stärksten mit anthropogenen radioaktiven Stoffen kontaminierten Meere [20], weshalb die Anwendung des Modells besonders interessant ist. Daher wurden die neuen Modellergebnisse zur Berechnung der Beta-Teilchendosen von ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs (den beiden wichtigsten anthropogenen Radionukliden in der Ostsee [42]) auf die Augenlinse eines in der Ostsee lebenden Wildfisches über dessen gesamte Lebenszeit mit Hilfe der folgender Gleichung verwendet:

$$\mathbf{D}_A = \mathbf{A} \cdot \mathbf{g}_{\beta,\mathbf{r},\mathbf{T}} \cdot \mathbf{t}_{\mathbf{L}}$$

D_A - Lebens-Augen-Dosis, in µGy

A - Aktivität im umgebenden Wasser, in Bq/I

 $g_{\beta,r,T}$ - Dosiskoeffizient, der mit dem in dieser Arbeit entwickelten mathematischen Modell abgeschätzt wird, und

 \mathbf{t}_L - der durchschnittlichen Lebenszeit der betreffenden Fischart.

Für die nachfolgende Modellierung wurden folgende Werte für die einzelnen Parameter angenommen:

- durchschnittliche Aktivitätskonzentrationen für ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs in der südlichen Ostsee im Jahr 2010 von 0,008 Bq/l und 0,036 Bq/l [48],
- Dosiskoeffizienten von 1,5·10⁻⁷ μGy/l ·Partikel⁻¹ für ⁹⁰Sr und 6,0·10⁻⁶ μGy/l ·Partikel⁻¹ für ¹³⁷Cs, wobei die Ergebnisse dieser Arbeit interpoliert wurden (Tabelle 4.1) und
- eine Lebenserwartung von 6 Jahren vergleichbar wie für die Forelle (ICRP 108, 2008b [36]).

Mit Hilfe dieser Werte wurden Lebens-Strahlendosen auf die Augenlinse von 0,227 μ Gy für ⁹⁰Sr und 40,871 μ Gy¹³⁷Cs abgeschätzt.

Diese Werte sind im Vergleich zum gegenwärtig akzeptierten Schwellenwert von 0,5 Gy für strahleninduzierte Katarakte in der menschlichen Augenlinse relativ niedrig (ICRP 103 [35]). Allerdings vernachlässigen diese Werte die zusätzlichen Dosen aus der Gammastrahlung des ¹³⁷Cs ebenso wie die Strahlendosis durch natürliche Radionuklide, obwohl letztere als wesentlich höher angenommen wird [38].

Fazit

Unter Verwendung des Monte-Carlo-Codes MCN-PX wurden Berechnungen für Energien zwischen 0,1 MeV und 4 MeV durchgeführt. Die Ergebnisse wurden dann in Form von Dosiskoeffizienten dargestellt, die eine schnelle Abschätzung der Dosis für die Fischaugenlinse auf der Basis der Energie eines von einem Radionuklid emittierten Elektrons und der jeweiligen Aktivitätskonzentration im umgebenden Wasser ermöglichten. Dies wurde für die Dosisberechnung an einem in der südlichen Ostsee lebenden Fisch demonstriert.

Um den Einfluss der Zusammensetzung des umgebenden Wassers auf die erhaltene Dosis des Fischauges zu bewerten, wurde die absorbierte Dosis für drei verschiedene Wasserzusammensetzungen berechnet: Reinst-, Fluss- und Meerwasser. Im Allgemeinen wurden nur geringe relative Unterschiede zwischen den absorbierten Dosen in der Augenlinse bei unterschiedlichen Zusammensetzungen des umgebenden Wassers gefunden. Daher spielt die Zusammensetzung des Wassers für die absorbierte Betastrahlungs-Dosis der Augenlinse von Fischen nur eine geringe Rolle.

12 BODEN, PFLANZEN, FUTTERMITTEL, MILCH UND GESAMTNAHRUNG

G. Haase, T. Gil Haenelt, F. Ober, T. Vagt

Max Rubner-Institut, Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch Leitstelle für Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft (Leitselle E/F)

Boden, Pflanzen und Futtermittel

Die Wanderung der Radionuklide ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr in den Boden hinein erfolgt nur sehr langsam. Da beide Radionuklide eine lange Halbwertszeit aufweisen, verändert sich ihre spezifische Aktivität im Boden gegenwärtig von Jahr zu Jahr nur geringfügig. Gelegentliche stärkere Schwankungen der Messwerte an einem Ort gehen auf unterschiedliche Methoden der Probennahme zurück. Die Kontamination des Bodens mit ¹³⁷Cs war auch im Jahr 2019 durch die Deposition nach dem Tschernobyl-Unfall geprägt, während das ⁹⁰Sr zum überwiegenden Teil noch aus der Zeit der oberirdischen Kernwaffenversuche stammt. In Abbildung 12.2 und Abbildung 12.3 sind die Landesmittelwerte für die ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration in Ackerböden und die entsprechenden Werte für Böden, die als Weiden und Wiesen genutzt werden, dargestellt.

In den Vegetationsperioden 2017 bis 2019 wurden verschiedene Pflanzenproben γ -spektrometrisch gemessen. Im Vordergrund standen dabei Proben solcher Pflanzen, die als Futtermittel dienen, insbesondere Weide- und Wiesenbewuchs. Bq/l Der ¹³⁷Cs-Gehalt in Weide- und Wiesenbewuchs ist in Abbildung 12.5 dargestellt. In einigen Bundesländern werden Futtermittelrohstoffe überwacht. Diese Produktgruppe schließt ein: Mais und Maissilage, Futterrüben, Futtergetreide, Futterkartoffeln, Grünfutterpflanzen, Erbsen, Raps, Ölkuchen/Ölschrote, Sonnenblumen, Kraftfuttermischungen und Silage. Im Mittel liegen die Werte zwischen <0,2 und 0,9 Bq/kg TM für ¹³⁷Cs. Für Mais und Maissilage wird ein Maximalwert von 6,0 Bq/kg TM für ¹³⁷Cs angegeben.

Im Allgemeinen hat die Kontamination pflanzlichen Materials weiterhin abgenommen. Dies ist vor allem auf Tiefenwanderung in den Boden sowie den physikalischen Zerfall zurückzuführen. Allerdings führt wiederholtes Pflügen zu einer annähernd homogenen Verteilung atmosphärisch eingetragener Radionuklide bis zur Pflugschartiefe, dadurch ist theoretisch nur ein langsamer Wegtransport der Aktivität durch Oberflächenerosion von Bodenpartikeln einerseits und Transport in größere Tiefen an der unteren Grenzschicht der gepflügten Bodensäule andererseits zu erwarten.



Radioaktive Stoffe in Milch und Milchprodukten

Die Kontamination von Milch und Milchprodukten mit ¹³⁷Cs aus dem Kernwaffen- und Tschernobyl Fallout hatte bereits in den Vorjahren ein sehr niedriges Niveau erreicht. Derzeit vermindert sie sich von Jahr zu Jahr nur noch äußerst geringfügig (Abbildung 12.6). Die ⁹⁰Sr-Aktivitätskonzentration ist in den Jahren 2017 - 2019 auf extrem niedrigem Niveau ebenfalls nahezu konstant geblieben. Ändere störfallrelevante Radionuklide wie ¹³¹I und ¹³⁴Cs, die nach dem Tschernobyl-Unfall 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 ⁹⁰Sr-und ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentrationen der Milch für den Zeitraum von 1960 bis 2019. Weitere Informationen zu verschiedenen Milchprodukten geben Tabellen in den Jahresberichten zur Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung [50,51,52].

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 erfasst. Daraus resultiert eine Mittelung der Verzehrsmenge und der Zusammensetzung. Bei den Gesamtnahrungsproben handelt es sich um Tagesrationen für gesunde Erwachsene.

Tabellen über die spezifische Aktivität in Bq/kg FM (Feuchtmasse) für ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs für einige ausgewählte Lebensmittel sowie für Säuglingsund Kleinkindernahrung finden sich in den Jahresberichten über Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung [50,51,52].

Die mittlere tägliche ¹³⁷Cs-Aktivitätszufuhr einer Person über die Nahrung wird in Bq pro Tag und Person (Bq/d×p) ausgedrückt. Für die Jahre 2017 bis 2019 können diese Werte mit 0,21 und 0,22 Bq/(d×p) ermittelt werden und zeigen somit kaum eine Änderung zu den Vorjahren (Abbildung 12.4). Da in diese Ermittlung ein hoher Prozentsatz von Messwerten unterhalb der Nachweisgrenzen eingeht, wird der Wert der Aktivitätszufuhr überschätzt, was bei einer Interpretation des Wertes berücksichtigt werden muss.

In den Jahren 2018 und 2019 ergibt sich für ⁹⁰Sr ein Wert von <0,05 Bq/(d×p), allerdings gilt die gleiche Betrachtungsweise wie für ¹³⁷Cs, wobei ein wesentlich größerer Anteil der ⁹⁰Sr-Messwerte nahe oder unterhalb der Nachweisgrenze liegt.



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



Quelle:Bundesamt für Strahlenschutz Daten aus IMIS

Abbildung 12.2 Radioaktive Kontamination von Ackerböden mit ¹³⁷Cs in den Jahren 2017 bis 2019 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)



Abbildung 12.3 Radioaktive Kontamination von Weideböden mit ¹³⁷Cs in den Jahren 2017 bis 2019 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)



Abbildung 12.5 Radioaktive Kontamination von Weide- und Wiesenbewuchs mit ¹³⁷Cs in den Jahren 2017 bis 2019 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/kg TM, Anzahl der Messwerte in Klammern)



Abbildung 12.6 Radioaktive Kontamination von Rohmilch mit ¹³⁷Cs in den Jahren 2017 bis 2019 nach Messungen der Bundesländer (Mittelwerte in Bq/l, Anzahl der Messwerte in Klammern) - nur Routinemessprogramm

13 RINGVERSUCH MILCH 2019

G. Haase, F. Ober, Th. Vagt

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

Einleitung

Am Max Rubner-Institut (MRI), Bundesforschungsinstitut für Ernährung und Lebensmittel in Kiel, ist eine der Leitstellen des Bundes für die Überwachung der Umweltradioaktivität in Umweltproben angesiedelt. Die Leitstelle ist gemäß der Strahlenschutzverord-nung (StrlSchV) [59] für die Umweltbereiche Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft zuständig.

Zur Erfüllung der gesetzlichen Aufgaben gemäß Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) [60] und der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum integrierten Mess- und Informationssystem (AVV-IMIS) [58] führt die Leitstelle am MRI Vergleichsmessungen für die Messstellen der Bundesländer durch. Diese sind ein wichtiges Element zur Sicherstellung eines bundeseinheitlichen Qualitätsstandards. Die Messstellen der Bundesländer sind nach der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) [61] und der StrlSchV [59] dazu aufgerufen, an entsprechenden Vergleichsmessungen teilzunehmen. Allerdings steht die Teilnahme an den Ringversuchen des MRI seit jeher auch allen Interessierten im In- und Ausland offen, um die eigenen Leistungen zu prüfen, im Vergleich einordnen zu können und um die Einhaltung ihrer eigenen Qualitätsstandards zu dokumentieren.

Seit 1977 wurden von der Leitstelle insgesamt 26 Ringversuche durchgeführt. Historisch bedingt war am Standort Kiel das Umweltmedium Milch schon immer von besonderer Bedeutung. Aus diesem Grund wurden bereits 18 Ringversuche zum Umweltmedium Milch (Rohmilch, Frischmilch, Magermilch, Milchpulver, Milchasche) durchgeführt, wobei sich die jeweils betrachteten Radionuklide über die Zeit leicht verändert haben bzw. an die aktuellen Bedürfnisse (wissenschaftliche Fragestellungen, gesetzli-che Vorgaben, Störfallrelevanz etc.) angepasst wurden.

Im Rahmen des diesjährigen Ringversuches sollten die Aktivitätskonzentrationen der Gamma-Strahler ⁴⁰K, ¹³¹I, ¹³³Ba, ¹³⁴Cs und ¹³⁷Cs sowie die Aktivitätskonzentrationen der reinen Beta-Strahler ⁸⁹Sr und ⁹⁰Sr in Rohmilch bestimmt werden. Dabei war die Auswahl der in Ansatz gebrachten Mess- bzw. Analyseverfahren den Teilnehmern freigestellt.

Der Ringversuch zum Umweltmedium Milch wird von der Leitstelle Kiel derzeit in einem jährlichen Rhythmus durchgeführt und wurde im Herbst 2020 erneut von der Leitstelle angeboten und durchgeführt.

Organisation und Durchführung

Mit dem Schreiben vom 01.02.2019 war allen Laboratorien, von denen der Leitstelle bekannt war, dass sie γ -spektrometrische Messungen sowie ⁸⁹Sr und ⁹⁰Sr-Analysen durchführen bzw. durchzuführen haben, die Ankündigung der Ringanalyse mit einem Formblatt zur Anmeldung der Teilnahme bis zum 01.03.2019 zugeschickt worden.

Die Milchproben wurden (siehe Abschnitt 3) vom 06.05 - 08.05.2019 hergestellt und im Anschluss an die angemeldeten Teilnehmer per Post versendet. Mit den Proben erhielten die Teilnehmer ein Schreiben, in dem die Modalitäten der Ringanalyse mitgeteilt wurden.

Die Laboratorien konnten Messungen mit mehreren Detektoren durchführen, waren jedoch aufgefordert, mit jedem Detektor drei Einzelmessungen vorzunehmen. Die Ergebnisse waren mittels eines der Probe beiliegenden Formblattes der Leitstelle bis zum 30.06.2019 zurückzumelden.

Um einen Überblick über die Ausrüstung der einzelnen Laboratorien zu erhalten, wurden mit diesem Formblatt Angaben zu den Messgefäßen, den Detektoren und der für die Auswertung der Spektren eingesetzte Software erbeten. Für die Beta-Strahler ⁸⁹Sr und ⁹⁰Sr wurde zudem eine Kurzdarstellung der verwendeten radiochemischen Analyse erbeten. Es zeigte sich, dass eine Vielzahl von Analyseverfahren von den Teilnehmern zur Anwendung gebracht wurden.

Der Rücklauf der Ergebnisse war bis zum offiziellen Abgabezeitpunkt am 30.06.2019 erfreulich hoch. Schlussendlich ergaben sich Ergebnismeldungen von insgesamt 81 Laboratorien mit bis zu 120 Datensätzen für die γ -Spektrometrie. 34 bzw. 48 Laboratorien teilten Ergebnisse der β -Strahler ⁸⁹Sr bzw. ⁹⁰Sr mit insgesamt 44 bzw. 62 Datensätzen mit. Zusätzlich sei angemerkt, dass von einigen Laboratorien bis zu drei Datensätze für



Abbildung 13.1 Herkunft der Teilnehmer am Ringversuch

verschiedene Detektoren bzw. Geometrien übermittelt wurden.

Jedem Teilnehmer mit Ergebnismeldungen wurde ein anonymer Laborcode zugeordnet. In diesem Jahr haben insgesamt 57 nationale sowie 24 internationale Teilnehmer an dem Ringversuch teilgenommen. Unter den nationalen Teilnehmern waren 34 amtliche Landesmessstellen. In Abbildung 13.1 ist die Herkunft der einzelnen Teilnehmer graphisch aufbereitet dargestellt.

Um den Teilnehmern möglichst zeitnah eine erste Einschätzung und nützliche Hinweise für Ihre weitere analytische Arbeit zu geben, wurden die Ergebnisse in stark verkürzter Form und Darstellung im Rahmen einer Vorauswertung an die Teilnehmer per E-Mail versendet.

Probenaufbereitung und Messwerte der Leitstelle

Am 06.05.2019 hat das Versuchsgut des MRI in Schädtbek ca. 240 Liter Rohmilch zur Verfügung gestellt. Die Milch wurde nicht entfettet. Um die Aufrahmung des Milchfettes während des Transports und der Analysen zu reduzieren, wurde die Milch am 07.05.2019 im Milch-Technikum des MRI bei 36°C und 250/50 bar in zwei Stufen homogenisiert (siehe Abbildung 13.2 und Abbildung 13.3), wobei der durchschnittliche Fettkugeldurchmesser von 3,77 μ m auf 0,48 μ m reduziert wurde. Um einen mikrobiologischen Verderb der Milch zu unterdrücken, wurde der Milch Natriumazid (ca. 0,18 g/l) beigefügt.

Am 08.05.2019 wurden ca. 200 Liter homogenisierte Milch mit den γ -Strahlern ¹³¹I, ¹³³Ba, ¹³⁴Cs und ¹³⁷Cs sowie den reinen β -Strahlern ⁸⁹Sr und ⁹⁰Sr kontaminiert und in einem Tank mit Rührwerk vermischt. Nach einer Mischzeit von ca. 1,5 Stunden wurden acht Milchproben aus dem Tank genommen und γ -spektrometrisch vermessen, um die homogene Verteilung der Nuklide zu prüfen und sicherzustellen. Anschließend wurde die Milch in 140 Probenbehälter abgefüllt, in die vorbereiteten Postpäckchen verpackt, zur Post gefahren und an die angemeldeten Teilnehmer verschickt.

Für keine der genannten Radionuklide war im Vorfeld ein Sollwert für die Aktivität definiert worden. Die Aktivitäten waren der Leitstelle jedoch gut bekannt, da nach Aufbereitung und Kontaminierung des Probenmaterials nochmals sorgfältige Analysen durchge-führt wurden. Die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig konnte in diesem Jahr auf Grund von umfangreichen Umbaumaßnamen leider keine Referenzwerte zur Qualitätssicherung gemäß AVV-IMIS [58] bereitstellen.

Die Leitstelle Kiel hat auch selbst an dem Ringversuch teilgenommen. Die Ergebnisse der Messungen sind in der Tabelle 13.1 zusammengefasst. Bei der angegebenen Unsicherheit der Leitstelle handelt es sich um die einfache (k = 1) Unsicherheit gemäß DIN 11929:2011 [62]. Die Ergebnisse der γ -Nuklide sind, sofern notwendig, hinsichtlich der Summationseffekte mit GenieTM 2000 [63] korrigiert. Alle obenstehenden Messwerte sind auf den 01.05.2019 12:00 Uhr MEZ bezogen.



Rohmilch v. 07.05.2019

Quelle: Max Rubner-Institut

Abbildung 13.2 Fettkugeldurchmesser der Ursprungsmilch



1. (links) und 2. (rechts) Stufe der Homogenisierung

Tabelle 13.1 Messwerte der Leitstelle (MRI Kiel)

Radionuklid	Messwert
⁴⁰ K	50,3 ± 1,2
¹³¹	86,8 ± 2,1
¹³³ Ba	13,7 ± 0,4
¹³⁴ Cs	10,7 ± 0,2
¹³⁷ Cs	8,3 ± 0,1
⁸⁹ Sr	18,0 ± 0,6
⁹⁰ Sr	6,0 ± 0,4

Auswertung

Die Messergebnisse der Teilnehmer wurden in der Form für die Auswertung übernommen, wie sie mitgeteilt wurden, d. h. ohne Berücksichtigung der Tatsache, dass im Falle der γ -spektrometrischen Messungen zum Teil Korrekturen für die Summation vorgenommen wurden, zum Teil aber auch keine Korrekturen erfolgten. Auch wurde nicht nach verwendeter Methode bzw. Analyse differenziert, um den Teilnehmern zum einen größtmögliche Freiheiten zu gewähren, indem sie die Methode/Analyse verwenden können, die sie am besten beherrschen. Zum anderen sind auch möglichst vielfältige Analyseverfahren erwünscht, um ggf. systematische Unterschiede zwischen den Verfahren erkennen zu können.

Die Auswertung und Bewertung erfolgt analog zu dem Verfahren zum Ringversuch Boden 2019. Es wird an dieser Stelle daher auf das dortige Kapitel verwiesen.

Ergebnisse

In Tabelle 13.2 sind alle ermittelten Kenndaten des Ringversuchs in Anlehnung an die ISO 13528 [64] sowie der DIN ISO 5725 [65] übersichtlich für jedes betrachtete Radionuklid zusammengestellt. Eine vollständige tabellarische Auflistung aller Messwerte und deren Bewertung sowie die graphische Aufbereitung der Auswertung (z. B. S-Plots, Histogramme usw.) sind in dem vollständigen Abschlussbericht dargestellt, welcher den Teilnehmern am 14.05.2020 per E-Mail zugestellt worden ist. Die Ergebnisse sind dabei anonymisiert über dem jeweiligen Laborcode dargestellt.

In den Tabellen 13.3 und 13.4 sind die Ergebnisse in Klassen gemäß den empfohlenen Bewertungen der DIN 17043:2010 [66] zusammengefasst. Gemäß dem gesetzlichen Auftrag zur Durchführung von Ringversuchen zum Nachweis von Radioaktivität in Umweltproben zur Qualitätssicherung (siehe StrlSchV [59]) sind in diesen Tabellen auch die Ergebnisse der Landesmessstellen alleine dargestellt. Betrachtet man nur die Ergebnisse der Gamma-Messungen, so ist sowohl bei dem z-score als auch bei dem ζ -score (Betrachtung der angegeben Unsicherheit des Messergebnisses) tendenziell festzustellen, dass die Landesmessstellen geringfügig besser abschneiden. Dieses Ergebnis ist allerdings bedingt durch die geringen Teilnehmerzahlen mit Vorsicht zu genießen. Bei den Ergebnissen der β -Analysen für ⁸⁹Sr und ⁹⁰Sr lässt sich weder beim z-score noch beim ζ -score ein statistisch relevanter Unterschied zwischen den Leistungen der Landesmessstellen und den restlichen Teilnehmern ableiten.

Von 76 Laboratorien wurden insgesamt 119⁴⁰K-Aktivitäten mit insgesamt 351 Messwerten bestimmt. Von diesen 119 Datensatzmittelwerten liegen acht Werte von fünf verschiedenen Laboratorien außerhalb des Intervalls von ± 3 s*. Eine Erklärung für diese hohen Werte könnte darin bestehen, dass der Untergrund nicht korrekt subtrahiert wurde. Dieses Phänomen ist aus vorangegangenen Ringversuchen bei ⁴⁰K bekannt. Die Messung von ¹³¹I ist ähnlich wie das Ergebnis von ⁴⁰K ausgefallen. 78 Laboratorien haben 122 Datensätze mit insgesamt 360 Messwerten übermittelt. In diesem Fall liegen sechs Datensatzmittelwerte von fünf Laboratorien außerhalb von ± 3 s* und sind daher als nicht zufriedenstellend einzustufen. Bestätigt wird dies analog durch die ermittelten z-score Werte.

 133 Ba ist von 74 Laboratorien gemessen worden. Das Ergebnis ist als gut zu bezeichnen. Von den insgesamt 117 Datensatzmittelwerten lagen nur drei Werte von drei Laboratorien außerhalb von \pm 3 s*. Diese Messwerte werden zusätzlich auch durch die entsprechenden z-score Werte bestätigt. 134 Cs und 137 Cs sind von 78 Laboratorien gemessen worden, wobei jeweils 121 Datensätze mit 357 Messwerten zur Auswertung gekommen sind. Das Ergebnis für beide Isotope ist als sehr gut zu bezeichnen. Die Anzahl der eingereichten Messwerte sowie die Ergebnisse lassen darauf schließen, dass für diese Nuklide viele Erfahrungswerte vorliegen. Es wurden lediglich jeweils zwei Datensatzmittelwerte außerhalb von \pm 3 s^* gefunden.

Tabelle 13.2 Kenngrößen Ringversuch Milch 2019

Radionuklid	⁴⁰ K	¹³¹	¹³³ Ba	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	⁸⁹ Sr	⁹⁰ Sr
Anzahl an Laboratorien p:	76	78	74	78	78	34	48
Anzahl an Datensätzen i:	119	122	117	121	121	44	62
Anzahl an Messwerten N:	351	360	345	357	357	108	159
Robuster Mittelwert \bar{x}^* [Bq/l]:	50,3	90,4	14,0	10,8	8,6	17,9	5,4
Robuste Standardabweichung s* [Bq/l]:	2,7	4,2	0,7	0,5	0,3	2,7	0,8
Standardfehler des Mittelwertes u $(ar{ar{x}}^*)$ [Bq/l]:	0,3	0,5	0,1	0,1	0,03	0,5	0,1
Median [Bq/l]:	50,3	90,6	14,0	10,8	8,5	17,9	5,5
Minimum [Bq/l]:	29,6	65,4	11,2	7,8	7,5	11,1	1,8
Maximum [Bq/l]:	71,1	114,0	16,4	12,3	10,2	28,4	9,4
Spannweite [Bq/l]:	41,5	48,6	5,2	4,5	2,7	17,3	7,6
Wiederhol-Standardabweichung S _r [Bq/l]:	2,0	2,7	0,3	0,3	0,2	1,4	0,4
Wiederhol-Grenze r _{95%} [Bq/l]:	5,6	7,6	0,8	0,7	0,6	3,8	1,1
Wiederhol-Variationskoeffizient VK _r in %:	4,0	3,0	2,1	2,5	2,6	7,7	7,5
Vergleich-Standardabweichung S _R [Bq/l]:	4,8	6,0	0,8	0,6	0,4	3,0	1,1
Vergleich-Grenze R _{95%} [Bq/l]:	13,5	16,7	2,2	1,7	1,0	8,3	3,2
Vergleich-Variationskoeffizient VK _R in %:	9,6	6,6	5,5	5,6	4,3	16,5	20,9
Streubreite T (2 x S _R) [Bq/l]:	9,6	12,0	1,6	1,2	0,7	5,9	2,3

Während bis zu 78 Laboratorien Gammaspektren gemessen und ausgewertet haben, liegen nur von 34 Laboratorien ⁸⁹Sr bzw. von 48 Laboratorien ⁹⁰Sr-Ergebnisse vor. Offensichtlich sind viele der Teilnehmer nicht für die Strontium-Analytik eingerichtet oder scheuen den notwendigen hohen radiochemischen Aufwand für die Abtrennung. Für ⁸⁹Sr konnte nur ein Datensatzmittelwert außerhalb von ± 3 s* ermittelt werden und nur vier Ergebnisse sind als fragwürdig einzustufen. Die Analyse von ⁹⁰Sr bereitete mehr Probleme. Hier wurden vier Datensatzmittelwerte außerhalb des Intervalls von ± 3 s* sowie drei weitere Ergebnisse mit einem z-score 2 < |z| < 3 gefunden. Dies ist wahrscheinlich auf die Anwesenheit des zusätzlichen β-Strahlers ⁸⁹Sr zurückzuführen, welcher im Routinefall i. d. R. nicht nachweisbar ist.

Im Gegensatz zu den γ-Strahlern fällt auf, dass sich die Teilnehmer mit der Fehlerabschätzung bei den reinen β -Strahlern ⁸⁹Sr und ⁹⁰Sr deutlich schwerer taten. Dies liegt i. d. R in der notwendigen aufwendigen radiochemischen Analyse begründet und ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass auf eine vollständige Fehleranalyse z. B. nach GUM [67–69] oder nach DIN 11929 [62] verzichtet wird und nur der zählstatistische Fehler der Messung als Gesamt-Unsicherheit des Messergebnisses angegeben wird. Damit werden z. B. Unsicherheiten bei den einzelnen Analyse-Phasen (inkl. Typ B-Unsicherheiten) vernachlässigt. Auch wird im Fall von γ -Strahlern die Berechnung der charakteristischen Grenzen inkl. Fehlerrechnung nach DIN ISO 11929 [62] oftmals direkt vom verwendeten Analysetool (z. B. GenieTM 2000 [63]) erledigt. Dieser direkte Zugang ist zwar auf Grund

der Komplexität der notwendigen vollständigen Eingaben entsprechend aufwändig und auch fehleranfällig. Sind die Einstellungen allerdings einmal vorgenommen, so ist die Berechnung der charakteristischen Grenzen für den Anwender i. d. R. ohne weitere Schwierigkeiten und zusätzlichen Aufwand korrekt durchführbar.

Dies steht im Gegensatz zu der Unsicherheitsbetrachtung im Fall von analytischen Aufbereitungsverfahren, wie sie z. B. in diesem Fall für die ⁸⁹Srund ⁹⁰Sr-Analyse notwendig sind. Da diese Verfahren oftmals laborspezifisch sind, ist auch die notwendige Unsicherheitsberechnung sowie die Berechnung der charakteristischen Grenzen i. d. R. nicht generalisierbar und daher individuell z. B. mit UncertRadio [70] durchzuführen. Die Erfahrung zeigt jedoch, dass dieser erhöhte Aufwand leider oftmals nicht betrieben wird und die Unsicherheiten der Messergebnisse entweder geschätzt oder nur die zählstatistischen Fehler angegeben werden.

Tabelle 13.3

Verteilungen der z-score-Werte.	In Klammern sin	d nur die Landesn	nessstellen dargestellt
---------------------------------	-----------------	-------------------	-------------------------

Nuklid	z ≤ 2	2 < z < 3	z ≥ 3	ø z
⁴⁰ K	90,8 % (92,9 %)	2,5% (5,4 %)	6,7% (1,8 %)	1,0 (0,8)
¹³¹	94,3% (96,4 %)	0,8% (0,0 %)	4,9% (3,6 %)	0,9 (0,7)
¹³³ Ba	96,6% (98,2 %)	0,9% (0,0 %)	2,6% (1,8 %)	0,8 (0,7)
¹³⁴ Cs	94,2% (100,0 %)	4,1% (0,0 %)	1,7% (0,0 %)	0,8 (0,6)
¹³⁷ Cs	92,6% (94,6 %)	5,8% (3,6 %)	1,7% (1,8 %)	0,8 (0,6)
⁸⁹ Sr	88,6% (84,8 %)	9,1% (12,1 %)	2,3% (3,0 %)	0,9 (0,9)
⁹⁰ Sr	88,7% (90,2 %)	4,8% (4,9 %)	6,5% (4,9 %)	0,9 (0,9)

Tabelle 13.4

Verteilungen der ζ -score-Werte. In Klammern sind nur die Landesmessstellen dargestellt

Nuklid	ζ ≤ 2	2 < ζ < 3	ζ ≥ 3	ø z
⁴⁰ K	95,8% (96,4 %)	4,2% (3,6 %)	0,0% (0,0 %)	0,6 (0,6)
¹³¹	93,4% (91,1 %)	0,8% (1,8 %)	5,7% (7,1 %)	0,8 (0,8)
¹³³ Ba	90,6% (96,4 %)	4,3% (1,8 %)	5,1% (1,8 %)	1,0 (1,0)
¹³⁴ Cs	92,6% (98,2 %)	1,7% (0,0 %)	5,1% (1,8 %)	1,3 (0,7)
¹³⁷ Cs	94,2% (96,4 %)	2,5% (3,6 %)	3,3% (0,0 %)	0,8 (0,4)
⁸⁹ Sr	72,7% (69,7 %)	13,6% (15,2 %)	13,6% (15,2 %)	1,5 (1,5)
⁹⁰ Sr	75,8% (78,0 %)	8,1% (4,9 %)	16,1% (17,1 %)	1,9 (1,7)

14 RINGVERSUCH BODEN 2019

G. Haase, F. Ober, Th. Vagt

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

Einleitung

Zur Erfüllung der gesetzlichen Aufgaben gemäß Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) [60] und der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum integrierten Mess- und Informationssystem (AVV-IMIS) [58] führt die Leitstelle zur Überwachung der Umweltradioaktivität am Max Rubner-Institut (MRI), Bundesforschungsinstitut für Ernährung und Lebensmittel in Kiel, Vergleichsmessungen für die Messstellen der Bundesländer durch. Die Messstellen der Bundesländer sind nach der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) [58] und der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) [59] dazu aufgerufen an entsprechenden Vergleichsmessungen teilzunehmen. Allerdings steht die Teilnahme an den Ringversuchen des MRI historisch bedingt auch allen Interessierten im In- und Ausland offen, um die eigenen Leistungen prüfen und im Vergleich einordnen zu können.

Die Leitstelle am MRI ist zuständig für die Umweltbereiche Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft. Boden ist ein wichtiges Medium für die Kontamination mit einigen Radionukliden, wie z. B. ⁹⁰Sr und ¹³⁷Cs. Neben diesen Emittern sollten die Aktivitätskonzentrationen der Nuklide ⁴⁰K, ¹³³Ba und ⁶⁰Co sowie die der Alphastrahler ²³⁸Pu, ²³⁹Pu und ²⁴¹Am in dem Prüfboden gemessen werden. Bodenmessungen beinhalten auch immer eine Korrektur der Selbstabsorption, da die Dichte stark von 1 g/cm² abweicht. Zusätzlich sind für verschiedene Nuklide wie z. B. ¹³³Ba Summationskorrekturen notwendig.

Seit 1977 wurden von der Leitstelle in Kiel verschiedene Ringversuche angeboten und durchgeführt. Allerdings wurde nur bei zwei Ringversuchen das Medium Boden betrachtet. 2017 wurde daher nach langer Zeit der Ringversuch zum Boden wieder angeboten und fand regen Anklang. Aus diesem Grund wurde entschieden auch 2019 wieder einen entsprechenden Ringversuch anzubieten.

Organisation und Durchführung

Mit dem Schreiben vom 01.02.2019 war allen Laboratorien, von denen der Leitstelle bekannt war, dass sie γ -spektrometrische Messungen, ⁹⁰Sr, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu und ²⁴¹Am-Bestimmungen durchzuführen haben, die Ankündigung der Ringanalyse mit einem Formblatt zur Anmeldung der Teilnahme bis zum 14.02.2019 zugeschickt worden. Im Anschluss wurden die Proben hergestellt und am 31.3.2019 an die Teilnehmer per Post verschickt. Mit den Proben erhielten die Teilnehmer ein Schreiben, in dem die Modalitäten der Ringanalyse mitgeteilt wurden. Die Laboratorien konnten Messungen mit mehreren Detektoren durchführen, sollten jedoch mit jedem Detektor drei Einzelmessungen vornehmen, deren Ergebnisse mittels eines der Probe beiliegenden Formblattes der Leitstelle bis zum 31.05.2019 mitzuteilen waren.

Um einen Überblick über die Ausrüstung der Laboratorien zu erhalten, wurden mit diesem Formblatt Angaben zu den Messgefäßen, den Detektoren und der für die Auswertung der Spektren eingesetzten Software erbeten.

Der Rücklauf der Ergebnisse war bis zum 31.05.2019 erfreulich hoch. Zu diesem Zeitpunkt lagen von 57 Laboratorien die Ergebnisse vor. Bis zum 10.06.2019 erhöhte sich die Anzahl auf insgesamt 60 Ergebnismeldungen mit bis zu 100 Datensätzen für die Gammaspektrometrie, wobei von einigen Laboratorien bis zu drei Datensätze für verschiedene Detektoren bzw. Geometrien angegeben wurden. 34 Laboratorien teilten ⁹⁰Sr-Ergebnisse mit insgesamt 36 Datensätzen mit. Für die Alpha-Strahler ²³⁸Pu, ²³⁹Pu und ²⁴¹Am wurden 23, 22 und 33 Datensätze eingereicht.

An dem Ringversuch haben 60 Teilnehmer teilgeommen, darunter 29 Landesmessstellen, 17 weitere inländische Laboratorien (z. B. Universitäten und Firmen) sowie auch 14 ausländische Laboratorien.

Probenaufbereitung und Messwerte der Leitstelle

Der eingesetzte Untersuchungsboden besteht aus einem sandigen Lehm (sL), der auf der Versuchsstation Schädtbek, welche dem MRI angegliedert ist, entnommen wurde. Es wurden 500 kg Boden vorgesiebt und vorgetrocknet, um anschließend in das MRI transportiert zu werden. Da der Boden nur grob vorgesiebt (Korngrößen = 1 cm) und getrocknet war, wurde das Material an der Luft weiter getrocknet und mit Hilfe eines umgerüsteten Betonmischers stark zerkleinert. Um eine homogene Verteilung der Korngrößen zu erreichen, wurde anschließend mit 1 mm Maschenweite gesiebt. Etwa 250 kg grober Boden wurde heraus gesiebt und verworfen. Von den restlichen 250 kg Versuchsmaterial wurden 119 kg mit den entsprechenden Standardlösungen versetzt, um eine gut messbare Aktivität des ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ¹³³Ba, ⁹⁰Sr, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu und ²⁴¹Am zu erhalten. Im ersten Schritt wurden die Standardlösungen mit 2 kg Boden in einem Taumler vermischt. Im zweiten Schritt wurde der markierte Boden mit 117 kg unmarkiertem Material in einem modifizierten Betonmischer durchmischt und homogenisiert. Die Homogenität der dotierten Proben wurde durch Gamma-Messungen sichergestellt.

Für keine der genannten Aktivitäten war ein Sollwert vorgegeben. Die Aktivitäten waren der Leitstelle jedoch gut bekannt, da nach Aufbereiten des Probenmaterials nochmals sorgfältige Analysen durchgeführt wurden.

Die Leitstelle am MRI in Kiel hat auch selbst an dem Ringversuch teilgenommen. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 14.1 zusammengefasst. Bei der angegebenen Unsicherheit der Leitstelle handelt es sich um die einfache (k = 1) Unsicherheit gemäß DIN 11929:2011 [62]. Die Ergebnisse der Gamma-Nuklide sind hinsichtlich der Selbstabsorptions- und Summationseffekte mit Genie 2000 bzw. einer eigenen Monte-Carlo-Software [71], [72] korrigiert. Beide Korrekturen führen zu einem Gesamtkorrekturfaktor mit einer Größenordnung von ca. 9,3 - 22,7 %.

Alle obenstehenden Messwerte sind, wie diejenigen in den nachfolgen Ergebnistabellen und Graphiken, auf den 01.01.2019 12:00 MEZ bezogen.

Radionuklid	Messwert in [Bq/kg]
⁴⁰ K	499,5 ± 10,5
⁶⁰ Co	55,8 ± 0,8
¹³³ Ba	25,8 ± 0,9
¹³⁷ Cs	51,7 ± 0,6
⁹⁰ Sr	16,4 ± 1,2
²³⁸ Pu	294,7 ± 40,2
²³⁹ Pu	8,2 ± 1,5
²⁴¹ Am	9,7 ± 0,8

Tabelle 14.1 Messwerte der Leitstelle (MRI Kiel)

Auswertung

Die Messergebnisse der Teilnehmer wurden in der Form in den Rechner übernommen, wie sie mitgeteilt wurden, d. h. ohne Berücksichtigung der Tatsache, dass im Falle der gammaspektrometrischen Messungen zum Teil Korrektionen für die Selbstabsorption bzw. die Summation vorgenommen wurden, zum Teil aber auch keine Korrektionen erfolgten. Auch wurde nicht nach verwendeter Methode bzw. Analyse differenziert, um den Teilnehmern zum einen größtmögliche Freiheiten zu gewähren und sie die Methode/ Analyse verwenden können, die sie am besten beherrschen. Zum anderen sind auch möglichst vielfältige Analyseverfahren erwünscht, um ggf. systematische Unterschiede zwischen den Verfahren ermitteln zu können. Daher ist eine Normalverteilung der Messergebnisse auch nicht unbedingt zu erwarten.

Zur besseren Vergleichbarkeit und Übersicht über die Verteilungen der Messergebnisse wurden für jedes Nuklid verschiedene grafische (Histogramm mit Kerndichte, Quantil-Quantil (Q-Q)-Diagramm) und mathematische Test auf Normalverteilung (D'Agostino-Pearson[73], [74], Shapiro-Wilk [75], Anderson-Darling [76]) durchgeführt, wobei jeweils nur Datensatzmittelwerte \bar{x}_i mit einem zscore Wert |z| < 3 (siehe unten, Formel (1)) berücksichtigt wurden. Nur für ⁴⁰K bzw. für ⁶⁰Co konnten Hinweise auf eine Abweichung zur Normalverteilung ermittelt werden. Im Fall von ⁴⁰K ist deutlich zu erkennen, dass die Verteilung rechtsschief ist (siehe Abbildung 14.1 und Abbildung 14.2). Tendenziell sind viele Messergebnisse als zu hoch, aber einige auch als deutlich zu niedrig anzusehen. Dies ist wahrscheinlich auf Schwierigkeiten bei der individuellen laborspezifischen

Korrektur des Hintergrundes zurückzuführen, die bei ⁴⁰K immer wieder zu Schwierigkeiten führt.



Abbildung 14.1 Histogramm und normalisierte Kerndichte ⁴⁰K

Leichte Abweichungen zur Normalverteilung, wie z. B. im Fall von ⁹⁰Sr, liegen wahrscheinlich in der komplexen chemischen Aufbereitung und zum anderen an der geringen Datensatzzahl mit nur 36 Datensatzmittelwerten \bar{x}_i begründet.

Die Messergebnisse wurden grundsätzlich gemäß den Vorgaben der DIN 17043 [66], die wiederum auf die Ausführungen der DIN ISO 13528 [77], [64] verweist, ausgewertet und analysiert. Wie beschrieben besteht ein Datensatz im Regelfall aus drei Messwerten, aus denen der Datensatzmittelwert \bar{x}_i berechnet wurde. Da ein Labor mehrere Datensätze *i*, z. B. durch Messungen mit verschiedenen Detektoren oder durch mehrere Analyseverfahren, übermittelt haben könnte, können einem Laborcode daher auch mehrere Datensatzmittelwerte \bar{x}_i zugeordnet sein.

In den sogenannten S-Plots werden für jedes Radionuklid alle Messwerte sowie die Datensatzmittelwerte \bar{x}_i über dem anonymisierten Laborcode dargestellt. Dies ist beispielhaft für ⁴⁰K in Abbildung 14.3 dargestellt. Zusätzlich sind die robusten Standardabweichungen (siehe unten) der Datensatzmittelwerte $\pm 2 \ s^*$ und $\pm 3 \ s^*$ sowie die erweiterte Unsicherheit U (Erweiterungsfaktor k = 2) des ermittelten Gesamtmittelwertes \bar{x}^* eingezeichnet.

Den Empfehlungen der DIN 17043:2010 [66] folgend wurde zur Minimierung des Einflusses von Ausreißern gemäß den Ausführungen der DIN ISO 13528 [64] der robuste Gesamtmittelwert \bar{x}^* aller Datensatzmittelwerte \bar{x} , und die robuste Standardabweichung s* sowie der einfache Standardfehler $u(\bar{x}^*)$ des robusten Mittelwerts mit Hilfe von Algorithmus A berechnet. Zur Beurteilung der Leistung der Teilnehmer wurden die für jeden Datensatzmittelwert \bar{x}_i der z-score und der ζ -score berechnet. Da, wie ursprünglich geplant, von der PTB in diesem Jahr keine Referenzwerte zur Verfügung gestellt werden konnten, wurde gemäß den Empfehlungen der DIN ISO 13528 [64] bzw. der z-score auf den o.g. robusten Gesamtmittelwert \bar{x}^* und die robuste Standardabweichung \bar{x}^* des jeweiligen Radionuklides bezogen. Dieser berechnet sich für den Mittelwert \bar{x}_i des i-ten Datensatzes gemäß der folgenden Formel (1):

$$z_{i} = \frac{(\bar{x}_{i} - \bar{x}^{*})}{s^{*}}$$
(1)



Abbildung 14.2 Quantil-Quantil-Plot ⁴⁰K

Quelle: Max Rubner-Institut

Die Beurteilung erfolgt nach dem Bewertungsschema der DIN 17043:2010 [66] gemäß dem folgenden Schema:

|z| ≤ 2 zufriedenstellendes Ergebnis

2 < |z| < 3 fragwürdiges Ergebnis

 $|z| \ge 3$ nicht zufriedenstellendes Ergebnis Werte, die außerhalb des ± 3 s* Intervalls liegen (dies entspricht einem $|z| \ge 3$), können als nicht zufriedenstellendes Ergebnis betrachtet werden. Ein Wert zwischen ± 2 s* und ± 3 s* beschreibt ein fragwürdiges Ergebnis und stellt gemäß DIN 17043:2010 [66] ein Warnsignal dar.

Der ζ -score bezieht die von den Teilnehmern übermittelte einfache Gesamtunsicherheit des Datensatzmittelwertes $u(\bar{x}_i)$ sowie die ermittelte einfache Unsicherheit des Gesamtmittelwertes $u(\bar{x}^*)$ in die Bewertung mit ein. Er berechnet sich für den Mittelwert \bar{x}_i des i-ten Datensatzes gemäß der folgenden Formel (2):

$$\zeta_i = \frac{(\bar{x}_i - \bar{\bar{x}}^*)}{\sqrt{u(\bar{x}_i)^2 + u(\bar{\bar{x}}^*)^2}}$$
(2)

Die Beurteilung erfolgt analog nach den oben dargestellten Kriterien für den z-score. Ein ungünstiger ζ-score kann verschiedene Ursachen haben. So kann ein ungünstiger ζ -score auf eine große Abweichung des jeweiligen Datensatzmittelwertes \bar{x}_i vom robusten Gesamtmittelwert \bar{x}^* , auf eine Unterschätzung der vom Teilnehmer berichteten Gesamtunsicherheit $u(\bar{x}_i)$ des Datensatzmittelwertes \bar{x}_i oder aber auch auf eine Kombination von beiden hinweisen. Insbesondere bei der Fehleranalyse radiochemischer Analysen wird von der Leitstelle auf den Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM) [67], [68], [69] bzw. die DIN 11929:2011 [62] verwiesen. Diese geben Vorschläge und Vorgaben zur vollständigen Fehleranalyse (inkl. der Beachtung von Typ B-Unsicherheiten) im Allgemeinen und im Fall von ionisierender Strahlung.

Die Beurteilungen sollen den Teilnehmern dazu dienen, ihre eigene Arbeit zu verifizieren und zu überprüfen und ggf. zu verbessern. Daher wurde beschlossen, kein globales Kriterium für ein Durchfallen oder Bestehen dieses Ringversuches zu definieren. Die Teilnehmer sind dazu aufgerufen, bei einem eventuellen fragwürdigen oder nicht zufriedenstellenden Ergebnis in einem der Teilbereiche die jeweilige Ursache zu ermitteln und einzuordnen sowie im Anschluss ggf. Maßnahmen (z. B. im Rahmen ihrer jeweiligen Qualitätssicherung) abzuleiten.

Tabelle 14.2 Kenngrößen Ringversuch Boden 2019

Radionuklid	⁴⁰ K	⁶⁰ Co	¹³³ Ba	¹³⁷ Cs	²³⁸ Pu	⁹⁰ Sr	²³⁹ Pu	²⁴¹ Am
Anzahl an Laboratorien p	58	58	58	59	34	22	21	27
Anzahl an Datensätze i	100	100	100	101	36	23	22	33
Anzahl an Messwerten N	295	295	294	298	100	67	63	97
Robuster Mittelwert \bar{x}^* [Bq/kg]	486,8	53,9	23,2	47,6	15,1	315, 8	9,5	11,9
Robuste Standardabweichung s* [Bq/kg]	26,1	2,6	1,6	2,3	3,1	16,1	1,1	1,6
Standardfehler des Mittelwertes u(\bar{x}^*) [Bq/kg]	3,3	0,3	0,2	0,3	0,7	4,2	0,3	0,4
Median [Bq/kg]	482,6	53,9	23,2	47,7	15,6	314, 0	9,2	11,7
Minimum [Bq/kg]	394,0	45,2	4,5	34,6	7,4	247, 0	5,4	7,9
Maximum [Bq/kg]	696,5	68,2	32,6	61,7	22,9	361, 0	14,2	19,9
Spannweite [Bq/kg]	302,5	23,0	28,1	27,2	15,5	114, 0	8,8	12,0
Wiederhol-Standardabweichung S _r [Bq/kg]	13,7	0,7	0,9	0,8	1,2	11,4	0,8	0,9
Wiederhol-Grenze r _{95%} [Bq/kg]	38,4	2,0	2,5	2,3	3,4	32,1	2,2	2,5
Wiederhol-Variationskoeffizient VK_r in $\%$	2,8	1,3	3,8	1,7	8,0	3,6	8,3	7,4
Vergleich-Standardabweichung S _R [Bq/ kg]	36,6	3,3	2,3	3,2	3,3	20,8	1,4	1,9
Vergleich-Grenze R _{95%} [Bq/kg]	102,6	9,1	6,6	9,0	9,1	58,4	3,8	5,3
Vergleich-Variationskoeffizient VK_R in %	7,5	6,0	10,1	6,7	21,6	6,6	14,3	15,8
Streubreite T (2 x S _R) [Bq/kg]	73,3	6,5	4,7	6,4	6,5	41,7	2,7	3,8

Ergebnisse

In Tabelle 14.2 sind alle ermittelten Kenndaten des Ringversuchs in Anlehnung an die DIN ISO 13528 [64] in Verbindung mit der DIN ISO 5725-2 [65] übersichtlich für jedes Radionuklid zusammengestellt.

Von 58 Laboratorien wurden insgesamt 100 40 K-Aktivitäten mit insgesamt 295 Messwerten bestimmt. Von diesen 100 Datensatzmittelwerten liegen sechs Werte von fünf verschiedenen Laboratorien außerhalb des gewählten Intervalls von ± 3 s*.

Viele Messwerte liegen zu hoch, wobei sich dies ebenfalls in den z- und ζ -score Werten wiederspiegelt. Eine Erklärung für diese hohen Werte könnte darin bestehen, dass die Korrektur des Untergrundes Probleme bereitet.

Die Messung von ⁶⁰Co ist sehr zufriedenstellend ausgefallen. 58 Laboratorien haben 100 Datensätze mit insgesamt 295 Messwerten übermittelt. In diesem Fall liegen nur drei Datensatzmittelwerte von zwei Laboratorien außerhalb von \pm 3 s^* und sind daher als nicht zufriedenstellend einzustufen.

 133 Ba ist ebenfalls von 58 Laboratorien gemessen worden. Das Ergebnis ist ebenfalls als gut zu bezeichnen. Von den insgesamt 100 Datensatzmittelwerten lagen nur zwei Werte außerhalb von ± 3 s*.

 137 Cs ist von 59 Laboratorien gemessen worden, wobei 101 Datensätze mit 298 Messwerten zur Auswertung gekommen sind. Das Ergebnis für 137 Cs ist als gut zu bezeichnen. Vier Datensatzmittelwerte wurden außerhalb von ± 3 *s** gefunden.

Während bis zu 59 Laboratorien Gammaspektren gemessen und ausgewertet haben, liegen nur von 34 Laboratorien Ergebnisse der ⁹⁰Sr-Analyse vor. Offensichtlich sind viele der Teilnehmer nicht für die ⁹⁰Sr-Analytik eingerichtet oder scheuen den hohen radiochemischen Aufwand für die chemische Aufbereitung. Im Gegensatz zu den Ergebnissen vorangegangener Ringanalysen sind die Ergebnisse dieses Jahres als deutlich verbessert einzustufen. Kein Messwert liegt außerhalb von ± 3 s^* . Daher konnte auch kein z-score Wert $|z| \ge 3$ ermittelt werden und nur zwei Ergebnisse sind als fragwürdig einzustufen. Allerdings ist die relative Streubreite weiterhin sehr hoch, was aber prinzipbedingt auf die Komplexität der radiochemischen Aufbereitung zurückzuführen ist.

Bei den Alpha-Emittern ²³⁸Pu, ²³⁹Pu und ²⁴¹Am wurden noch weniger Ergebnisse als für ⁹⁰Sr übermittelt. Dies ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass überhaupt nur wenige Laboratorien in der Lage sind, die aufwendigen radiochemischen Analysen durchzuführen. Für ²³⁸Pu und ²⁴¹Am lag nur jeweils ein Datensatzmittelwert außerhalb von ± 3 s*. Für ²³⁹Pu konnte wie bei ⁹⁰Sr kein Datensatzmittelwert mit einem z-score Wert $|z| \ge 3$ gefunden werden. Insgesamt sind die Ergebnisse der α -Analyse als überaus positiv zu betrachten.

Im Gegensatz zu den γ -Strahlern fällt auf, dass sich die Teilnehmer mit der Fehlerabschätzung bei den α - und β -Strahlern deutlich schwerer tun. Dies liegt hauptsächlich an der aufwendigen radiochemischen Analyse und ist i. d. R darauf zurückzuführen, dass auf eine vollständige Fehleranalyse z. B. nach GUM oder nach DIN 11929 [62] verzichtet und nur der zählstatistische Fehler angegeben wird. Damit werden z. B. Unsicherheiten bei den einzelnen Analysephasen (inkl. Typ B-Unsicherheiten) vernachlässigt. Die Leitstelle empfiehlt daher jedem Labor, sich mit den oben genannten Normen auseinanderzusetzen und ggf. Ihre Fehleranalyse anzupassen.



Abbildung 14.3 S-Plot ⁴⁰K Quelle: Max Rubner-Institut

Ringversuch Boden 2019

15 RADIOAKTIVE STOFFE IN ABWASSER, KLÄRSCHLAMM UND ABFÄLLEN

P. Hofmann, K. Schmidt, C. Wittwer

Bundesamt für Strahlenschutz

Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Abfälle und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen (Leitstelle H)

Radioaktive Stoffe in Abfällen

Abfälle fallen bei vielen häuslichen, kommunalen und gewerblichen einschließlich industriellen Tätigkeiten an. Bevor ein Teil dieser Abfälle auf einer Deponie gelagert werden kann, muss aus abfallrechtlicher Sicht geprüft werden, ob eine vorherige Behandlung (z. B. thermische Verwertung von Hausmüll, Kompostierung organischer Abfälle) oder eine Rückführung der Stoffe (z. B. Bauschutt, Glas, Metallschrott) oder einzelner Bestandteile in den Stoffkreislauf möglich ist. Demnach schließt in diesem Kontext der Begriff "Abfälle" sowohl die Abfälle zur Beseitigung als auch die wiederzuverwertenden Reststoffe gemäß Kreislaufwirtschaftsgesetz mit ein. Bei der Überwachung der Umweltradioaktivität durch die amtlichen Messstellen der Länder (§ 162 Strl-SchG) werden nur solche Abfälle berücksichtigt, die von radioökologischer Bedeutung sein können. In diesem Zusammenhang werden entsprechend des Routinemessprogramms (nach AVV-IMIS) in Deutschland Proben folgender Medien untersucht:

- 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.

Im Wesentlichen werden an diesen Medien gammaspektrometrische Untersuchungen (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁴⁰K) vorgenommen. Im Sickerwasser und in oberflächennahem Grundwasser von Deponien wird darüber hinaus auch Tritium bestimmt.

Tabellen mit Messwerten von ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K, ¹³¹I und Tritium (³H) in den überwachten Medien sind exemplarisch für das Jahr 2017 im Jahresbericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" des BMU [50] enthalten.

Tritium im Sickerwasser bzw. oberflächennahen Grundwasser von Hausmülldeponien stammt vorwiegend aus Altlasten der Uhren- und Gerätefertigung. Die Konzentrationsbereiche von Tritium in den untersuchten Proben lagen in den Jahren 2017 bis 2019 zwischen 0,88 und 430 Bq/l, die Mediane bei 18 bzw. 20 Bq/l. In 38 % der untersuchten Proben von Hausmülldeponien wurden in den Berichtsjahren 2017 bis 2019 ¹³⁷Cs nachgewiesen. Die Aktivitätskonzentrationen lagen zwischen 0,0028 Bq/l und 0,2 Bq/l; die Größenordnung der berechneten Mediane blieb mit <0,047 Bq/l (2017), 0,043 Bq/l (2018) und <0,036 Bq/l (2019) relativ unverändert.

In einem Teil der Abfall- und Reststoffproben konnte das in der Nuklearmedizin angewandte Nuklid ¹³¹I, vereinzelt auch ^{99m}Tc und ¹¹¹In, nachgewiesen werden. Für ¹³¹I reichen die Messwerte beispielsweise für das Medium Flugasche/Filterstaub von 0,37 Bq/kg TM bis 310 Bq/kg TM in den Jahren 2017 bis 2019. Die dazugehörigen Mediane sind jedoch vergleichbar niedrig und stabil mit <1,1 Bq/kg TM bzw. <1,2 Bq/kg TM. Für die spezifischen Aktivitäten des natürlich vorkommenden Nuklids ⁴⁰K wurden in diesem Zeitraum für Flugasche/Filterstaub Messwerte im Bereich von 260 Bq/kg TM bis 6200 Bq/kg TM übermittelt.

Für ⁶⁰Co liegen die Aktivitätskonzentrationen in den Abfall- und Reststoffproben mit einer Ausnahme ausschließlich unterhalb der geforderten Nachweisgrenze von 5 Bq/kg TM. In einer Reststoffprobe aus der Verbrennungsanlage Mannheim wurde ein tatsächlicher Messwert für ⁶⁰Co mit 0,24 Bq/kg TM und einer Nachweisgrenze von 0,30 Bq/kg TM im Berichtsjahr 2018 gefunden.

Der Gehalt von ¹³⁷Cs in Reststoffen und Abfällen stammt weiterhin im Wesentlichen aus dem Fallout nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahr 1986. 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. Da eine regionale Abhängigkeit auf Grund der geringen Menge an Datenpunkten im südlichen Raum jedoch nicht valide zu stützen ist, werden in der Auswertung nur die Daten des gesamten Bundesgebietes betrachtet. Die Mediane für Flugasche/ Filterstaub aus Verbrennungsanlagen lagen in den Jahren 2017, 2018 und 2019 bei 16 Bq/kg TM, 17 Bq/kg TM und 14 Bq/kg TM. Für eine Probe aus dem Berichtsjahr 2019 wurde ein Messwert für das kurzlebige¹³⁴Cs mit

1,21 Bq/kg TM und einer Nachweisgrenze von 0,63 Bq/kg TM übermittelt. Ursachen für das singuläre Auftreten konnten in Rücksprache mit der zuständigen Messstelle nicht gefunden werden.

Die Untersuchung des Kompostes ergab für ¹³⁷Cs spezifische Aktivitäten zwischen 1,3 Bg/kg TM und 34 Bg/kg TM in dem zu betrachtenden Berichtszeitraum. Zur radiologischen Beurteilung des Kompostes aus Kompostierungsanlagen ist anzumerken, dass dieser im Gegensatz zur landwirtschaftlichen Nutzung des Klärschlammes vorzugsweise im Gartenbaubereich (Gärtnereien, Baumschulen, Parkanlagen usw.) verwendet wird. Inwiefern dieser zusätzlich aufgebrachte Kompost zu einer signifikanten Erhöhung der ¹³⁷Cs-Aktivität führt, hängt von unterschiedlichen Faktoren ab. Die Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung (2001) gibt unabhängig von Bodentyp und Pflanze einen Transferfaktor für ¹³⁷Cs von 0,05 an. Vorausgesetzt, eine Pflanze würde auf einem Boden nur bestehend aus dem maximal mit ¹³⁷Cs angereicherten Kompost von 34 Bq/kg TM angepflanzt werden, so würde das nach § 47 StrlSchV zu einer Aktivitätskonzentration in der Pflanze von bis zu 1,7 Bq/kg FM führen. Berechnet man die Dosis anhand der maximal aufgenommenen Aktivitätskonzentration von 1,7 Bq/kg FM in der Pflanze (Annahme: Wurzelgemüse, Kartoffel, Säfte, mittlere Verzehrsraten) für die Altersgruppe <1 a und den Erwachsenen (>17 a) würde man Werte von 3,2 µSv/a und 3,6 µSv/a erhalten, welche um Größenordnungen unterhalb des Dosisgrenzwertes von 1 mSv/a liegen. Somit würde die Nutzung des Kompostes bzw. der Verzehr des angebauten Produktes keine gesundheitliche Gefährdung für die Bevölkerung darstellen.

Radioaktive Stoffe in Abwasser und Klärschlamm

Im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität nach dem StrlSchG werden gereinigte kommunale Abwässer (Klarwässer) aus den Abläufen der Kläranlagen und die bei der biologischen Abwasserreinigung in Kläranlagen anfallenden Klärschlämme untersucht. Die Messwerte für Klärschlämme beziehen sich dabei 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 oder Faulschlämme. Abwässer und Klärschlämme sind radioökologisch von besonderer Bedeutung, da sich in der Umwelt befindliche künstliche und natürliche Radionuklide dort sehr stark anreichern können. Das Routinemessprogramm sieht die

Überwachung von etwa 90 Abwasserreinigungsanlagen in Deutschland vor. Vorwiegend erfolgen gammaspektrometrische Untersuchungen (¹³⁷Cs, ¹³¹I, ⁶⁰Co,⁴⁰K, ^{99m}Tc). Darüber hinaus werden über radiochemische Verfahren die Aktivitäten von ⁹⁰Sr sowie Plutonium- und Uranisotopen bestimmt.

In Tabelle 15.1 sind die ausgewerteten Daten der amtlichen Messstellen der Bundesrepublik Deutschland für die Berichtsjahre 2017 bis 2019 zusammengestellt (60 Co, 137 Cs, 40 K, 131 I, 90 Sr sowie 234 U, 235 U und 238 U). Angegeben werden jeweils die Gesamtanzahl der untersuchten Proben, die Anzahl der untersuchten Proben mit dem Ergebnis kleiner Nachweisgrenze (NWG) sowie der kleinste und größte bestimmte tatsächliche Messwert. Um einen besseren Überblick über die Entwicklung der Datenlage zu erhalten, ist zusätzlich der für jedes Berichtsjahr berechnete nuklidspezifische Median in der Tabelle dokumentiert. Für dessen Kalkulation wird das Ergebnis kleiner Nachweisgrenze gleichrangig mit dem Zahlenwert der Nachweisgrenze wie ein tatsächlicher Messwert berücksichtigt. Für die Daten aus dem Jahr 2017 wird zusätzlich auf den bereits veröffentlichten Jahresbericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung" des BMU [50] verwiesen.

Die Radionuklide ⁴⁰K, ²³⁴U, ²³⁵U und ²³⁸U sind natürliche Bestandteile des Bodens und damit geogenen Ursprungs. Die Gehalte in Abwasser und Klärschlamm variieren in Abhängigkeit von regionalen geologischen Gegebenheiten. Die ermittelten Aktivitätskonzentrationen bzw. spezifischen Aktivitäten von ⁴⁰K, ²³⁴U, ²³⁵U und ²³⁸U aus den Jahren 2017 und 2019 sind miteinander vergleichbar und stimmen auch mit den Ergebnissen der vorangegangenen Jahre gut überein.

In einem Teil der Abwasser- und Klärschlammproben wurden Anwendernuklide, wie das hauptsächlich in der Nuklearmedizin eingesetzte ¹³¹I, festgestellt, in Einzelfällen auch ^{99m}Tc, ¹¹¹In und ¹⁷⁷Lu. Die Messwerte für ¹³¹I im Klärschlamm lagen in dem zu betrachtenden Berichtszeitraum zwischen 0,53 Bq/kg TM und 3400 Bq/kg TM; die Mediane sind mit 23 Bq/kg TM bzw. 24 Bq/kg TM vergleichbar. In vereinzelten Klärschlammproben der Anlagen Hamburg-Köhlbrandhöft, Arnsberg und München I wurden im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 auch Messwerte für die Plutoniumisotope ²³⁸Pu und ^{239/240}Pu übermittelt. Der höchste Plutoniummesswert im zu betrachtenden Berichtszeitraum wurde in einer Klärschlammprobe der Anlage München I mit 1,2 Bq/kg TM für ^{239/240}Pu bestimmt. Von den während der Zeit der atmosphärischen Kernwaffenversuche von 1945 bis etwa 1980 und des Kernkraftwerkunfalls in Tschernobyl 1986 mit dem Fallout in die Umwelt gelangten Spalt- und Aktivierungsprodukten sind in den Abwässern und Klärschlämmen nur noch die langlebigen Leitnuklide ¹³⁷Cs und ⁹⁰Sr nachweisbar. Das kurzlebi-gere Cäsiumisotop ¹³⁴Cs (Halbwertzeit ca. 2 Jahre) war bis 2010 dagegen nicht mehr nachzuweisen. Infolge der Havarien mehrerer Reaktoren des Atomkraftwerks in Fukushima Daiichi im Jahr 2011 wurden in einigen wenigen Klärschlammproben auch wieder Spuren von ¹³⁴Cs nachgewiesen (Maximalwert 2011: 1,4 Bq/kg TM). Mit einer Ausnahme im Berichtsjahr 2018 wurde allerdings in allen anderen Jahren seit 2012 kein ¹³⁴Cs mehr in Klärschlammproben bestimmt.

Im Berichtszeitraum 2017 bis 2019 lagen im Abwasser die Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs zu 99 % unterhalb der bei den Messungen erreichten Nachweisgrenzen. Als Nachweisgrenze im Abwasser werden im Routinemessprogramm 0,1 Bq/l bezogen auf ⁶⁰Co gefordert. Die wenigen für ¹³⁷Cs ermittelten Messwerte lagen in den zu betrachtenden Berichtsjahren zwischen 0,0015 Bq/l und 0,065 Bq/l. In ca. 50 % der Abwasserproben wurde ⁹⁰Sr nachgewiesen. Alle übermittelten Messwerte liegen aber unter der geforderten Nachweisgrenze für die ⁹⁰Sr-Bestimmung von 0,1 Bq/l des Routinemessprogramms.

In den untersuchten Klärschlämmen variiert die Höhe der ¹³⁷Cs-Kontamination auf Grund des regional unterschiedlichen Eintrags deutlich. Als Folge von starken Niederschlägen Anfang Mai 1986 östlich bzw. südlich der Linie Radolfzell – Eichstätt – Regensburg – Zwiesel treten in diesen Gebieten auch heute die höchsten spezifischen Aktivitäten auf. Gemäß dieser Trennlinie sind die Werte in der Tabelle 15.1 für die nördliche und die südliche Bundesrepublik zusätzlich aufgeschlüsselt. Die Maximalwerte der spezifischen Aktivitäten (Jahresmittelwerte) zeigten 2017 bis 2019 - wie in den Vorjahren - die Klärschlämme aus der Kläranlage Tannheim (Baden-Württemberg) mit 23 Bq/kg TM, 31 Bq/kg TM und 21 Bq/kg TM, wobei es festzuhalten gilt, dass im Jahr 2000 der Jahresmittelwert für ¹³⁷Cs in dieser Kläranlage noch 140 Bq/ kg TM betrug.

Der zeitliche Verlauf der Jahresmittelwerte für die ¹³⁷Cs-Gehalte der Klärschlämme der einzelnen Bundesländer (Jahresmittelwerte) seit 2012 ist in Abbildung 15.1 dargestellt. Die bisherige Tendenz zur Abnahme der Kontamination der Klärschlämme ist nur noch schwach ausgeprägt. Diese Entwicklung ist auch in den höher kontaminierten Gebieten wie z. B. im südlichen Bayern zu erkennen. Lag im Jahr 1988 der ¹³⁷Cs-Jahresmittelwert noch bei 970 Bq/kg TM, so schwanken die spezifischen Aktivitäten im Klärschlamm seit 2007 zwischen 6 Bq/kg TM und 20 Bq/kg TM. Auf Grund dieses inzwischen erreichten sehr niedrigen Niveaus der spezifischen Aktivität der Klärschlämme sind die zu beobachtenden Schwankungen hauptsächlich durch die messtechnisch bedingten Unsicherheiten und die natürliche Heterogenität der Proben erklärbar.

Zur Einordnung und Bewertung der ermittelten Klärschlammkontamination kann die landwirtschaftliche Nutzung der Klärschlämme betrachtet werden. Wird z. B. Klärschlamm mit einer spezifischen Aktivität von etwa 31 Bq/kg TM (höchster Jahresmittelwert der Kläranlage Tannheim in den zu betrachtenden Berichtsjahren 2017 bis 2019) in einer Menge von 0,5 kg auf einer Fläche von einem Quadratmeter innerhalb von drei Jahren (Werte gemäß Klärschlammverordnung) ausgebracht, entspricht dies einer mittleren jährlichen Aktivitätszufuhr von etwa 5 Bq/m^{2 137}Cs. Dies bedeutet bei einer für das Einzugsgebiet entsprechenden Kläranlage typischerweise vorhandenen Flächenkontamination von ca. 15000 Bq/m² ¹³⁷Cs eine jährliche Aktivitätszufuhr in den Boden von weniger als 0,05 %. Hierbei ist aber anzumerken, dass eine solche Aufstockung des ¹³⁷Cs-Inventars durch den radioaktiven Zerfall des bereits im Boden befindlichen Inventars in der Höhe von 2,3 % pro Jahr um ein Vielfaches kompensiert wird.



Abbildung 15.1 Der zeitliche Verlauf der Kontamination von Klärschlamm mit ¹³⁷Cs in Bq/kg Trockenmasse (Ländermittelwerte)

Tabelle 15.1 Allgemeine Überwachung von Abwasser und Klärschlamm 2017 - 2019

Lond	Nublid	Anzahl		Minimal-	Maximal-	u 1		
Land	Νυκπα	gesamt	<nwg< th=""><th>wert¹</th><th>wert¹</th><th></th><th>Median</th><th></th></nwg<>	wert ¹	wert ¹		Median	
			20	17-2019		2017	2018	2019
Abwasser aus Klä	ranlagen,	Ablauf (B	Sq/I)					
Deutschland	⁴⁰ K	1153	490	0,14	8,3	<0,81	<0,9	0,93
gesamt	⁶⁰ Co	1153	1153	-	-	<0,026	<0,032	<0,032
	¹³¹	1029	676	0,0066	1,8	<0,085	0,092	<0,099
	¹³⁷ Cs	1153	1147	0,0015	0,065	<0,022	<0,032	<0,03
	⁹⁰ Sr	210	106	0,0008	0,098	0,0064	<0,0098	0,0079
	²³⁴ U	197	75	5,7E-05	0,079	<0,0043	<0,0044	0,0047
	²³⁵ U	202	172	1,5E-05	0,0032	0,0011	<0,001	<0,002
	²³⁸ U	198	76	3,3E-05	0,57	<0,0035	0,0035	<0,0036
Klärschlamm (Bq/I	(g TM)							
Deutschland	⁴⁰ K	1085	17	23	1600	120	120	120
gesamt	⁶⁰ Co	1084	1084	-	-	<0,78	<0,7	<0,58
	¹³¹	1007	123	0,53	3400	23	24	24
	¹³⁷ Cs	1085	269	0,27	37	1,7	1,6	1,6
	⁹⁰ Sr	187	28	0,4	5,2	<1,1	1,2	1,2
	²³⁴ U	179	0	4,7	280	39	26	44
	²³⁵ U	227	48	0,29	20	2,0	2,4	2,1
	²³⁸ U	231	0	4,1	250	39	37	39
Deutschland	⁶⁰ Co	991	991	-	-	<0,77	<0,65	<0,55
(Nord ²)	¹³⁷ Cs	992	267	0,27	33	1,5	1,5	1,5
	⁹⁰ Sr	179	27	0,4	5,2	1,1	1,2	1,2
Deutschland	⁶⁰ Co	93	93	-	-	<1,3	<1,4	<0,92
(Süd ³)	¹³⁷ Cs	93	2	1,4	37	11	7,7	7,4
	⁹⁰ Sr	8	1	0,55	22,4	2,7	3,6	2,2

1) Der angegebene Median berücksichtigt das Messergebnis "<NWG" so, als wäre ein tatsächlicher Messwert gleich der NWG erhalten worden.

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

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

16 ARZNEIMITTEL UND DEREN AUSGANGSSTOFFE SOWIE BEDARFSGEGENSTÄNDE

E. Kabai, A. Poppitz-Spuhler

Bundesamt für Strahlenschutz

Leitstelle für Arzneimittel und deren Ausgangsstoffe sowie Bedarfsgegenstände (Leitstelle I)

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 ¹³⁷Cs, einem Falloutbestandteil der oberirdischen Kernwaffenversuche sowie des Reaktorunfalls von Tschernobyl.

Im Jahr 2018 wurden Proben ausgewählter pflanzlicher Ausgangsstoffe für Arzneimittel aus verschiedenen Herkunftsländern stichprobenartig untersucht. Die Ergebnisse der spezifischen Aktivitäten von ¹³⁷Cs und ⁴⁰K in der Trockenmasse (TM) der Probe sind in Tabelle 16.1 zusammengefasst.

Die spezifischen Aktivitäten des Radionuklids ¹³⁷Cs 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 56 Bq/kg (TM) bei schwarzem Bitterklee aus Polen und Werten unterhalb der Nachweisgrenze, wie z. B. bei Johanniskraut aus Serbien. Die spezifischen Aktivitäten des natürlich vorkommenden Radionuklids ⁴⁰K schwanken entsprechend dem Kaliumgehalt der untersuchten Pflanzenproben, da das Element Kalium von Natur aus einen festen Anteil an ⁴⁰K enthält. Zudem wird der Gehalt dieses Elements in der Pflanze geregelt und hängt nur in geringem Maß von den Gegebenheiten im jeweiligen Anbaugebiet ab. Die Aktivitäten von ⁴⁰K lagen mit maximal rund 2100 Bq/kg (TM) bei (Gewürz-)Paprika und minimal 73 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 2019 ist in Abbildung 16.1dargestellt.

Abbildung 16.2 gibt den zeitlichen Verlauf der spezifischen Aktivitäten von Bitterkleeblättern aus Polen und der Ukraine für die Jahre 2005 bis 2018 wieder und Abbildung 16.3 zeigt die spezifischen Aktivitäten von Gänsefingerkraut aus mitteleuropäischen Ländern für die Jahre 2000 bis 2019. Für die in den Abbildungen16.1 bis 16.3 fehlenden Jahre waren Proben mit einer Angabe des Ursprungslandes nicht erhältlich.



Tabelle 16.1

Sŗ	pezifische Aktivitäten	von ¹³⁷ Cs und	⁴⁰ K in ausgewählten	Arzneimittelpflanzer	n für das Jahr 2018
----	------------------------	---------------------------	---------------------------------	----------------------	---------------------

Artikel	Ursprungsland	⁴⁰ K [Bq/kg (TM)]	¹³⁷ Cs [Bq/kg (TM)]					
Basilikumblätter, gerebelt	Ägypten	1000	< NWG*: 0,6					
Bitterklee, Bio, geschnitten	Polen	700	56					
Bohnenkraut, gerebelt	Polen	1300	< NWG*: 0,6					
Brennnesselblätter, geschnitten	Mazedonien	1300	0,9					
Brombeerblätter, geschnitten	Albanien	1400	12					
Carrageenmoos, geschnitten	Frankreich	540	< NWG*: 0,3					
Chilis gemahlen, Cayennepfeffer	China	1700	< NWG*: 0,7					
Fenchel, bitter, ganz	Bulgarien	300	< NWG*: 0,4					
Flohsamen, schwarz, ganz	Polen	230	< NWG*: 0,3					
Grüner Tee, Sencha	China	480	< NWG*: 0,4					
Island Moos, geschnitten	Rumänien	73	41					
Johanniskraut, geschnitten	Serbien	350	< NWG*: 0,3					
Kamillenblüten, ganz	Kroatien	1800	< NWG*: 0,9					
Kümmel	Litauen	330	< NWG*: 0,8					
Mateblätter, geschnitten	Brasilien	440	< NWG*: 0,3					
Melissenblätter, Feinschnitt	Serbien	1000	2,5					
Paprika, edelsüß, gemahlen	Spanien	910	< NWG*: 0,3					
Paprika, edelsüß, gemahlen	Bulgarien	2100	< NWG*: 3,8					
Pfeffer, schwarz, ganz	Brasilien	440	< NWG*: 0,5					
Pfefferminzblätter, geschnitten	Polen	900	< NWG*: 0,8					
Rotbuschtee, Feinschnitt	Südafrika	170	< NWG*: 0,7					
Salbeiblätter, ganz	Bosnien-Herzego- wina	1000	1,6					
Schwarzer Tee, Earl Grey	China	630	< NWG*: 0,2					
Thymian, gerebelt	Polen	510	< NWG*: 0,6					
NWG* - Nachweisgrenze								



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Abbildung 16.1 Spezifische Aktivitäten von ¹³⁷Cs und ⁴⁰K in Island Moos überwiegend aus mittel- und osteuropäischen Ländern für die Jahre 2000 bis 2019



Abbildung 16.2

Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz

Spezifische Aktivitäten von ¹³⁷Cs und ⁴⁰K in Bitterkleeblättern aus Polen für die Jahre 2005 bis 2014 und 2018 sowie aus der Ukraine für die Jahre 2015 und 2016



Quelle: Bundesamt für Strahlenschutz




ANHANG

LITERATUR

- [1] 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
- [2] Drung D, Krause C, Becker U, Scherer H, Ahlers FJ: Ultrastable low-noise current amplifier: A novel device for measuring small electric currents with high accuracy. Review of Scientific Instruments 86, 024703, 2015
- [3] Kossert K, Nähle O, Takacs M: Determination of the activity of ²²⁵Ac and of the half-lives of ²¹³Po and ²²⁵Ac. Applied Radiation and Isotopes 156,109020, 2020
- [4] Kossert K, Nähle O: Determination of the activity and half-life of ²²⁷Th. Applied Radiation and Isotopes: 145: 12-18, 2019
- [5] Takacs M, Kossert K: Half-life determination of ²¹³Bi and ²⁰⁹Pb by means of Cherenkov counting and detection with a Nal detector. Applied Radiation and Isotopes: 167: 1-6, 2020
- [6] Broda R, Cassette P, Kossert K: Radionuclde metrology using liquid scintillation counting. Metrologia 44: 36-52, 2007
- [7] Kossert K, Mougeot X: The importance of the beta spectrum calculation for accurate activity determination of 63Ni by means of liquid scintillation counting. Applied Radiation and Isotopes 101: 40-43, 2015
- [8] Loidl M, Beyer J, Bockhorn L et al.: Beta spectrometry with metallic magnetic calorimeters in the framework of the European EMPIR project MetroBeta. Applied Radiation and Isotopes: 153: 1-6, 2019
- [9] Ranitzsch P, Arnold D, Beyer J et al.: MetroMMC: Electron-capture spectrometry with cryogenic calorimeters for science and technology. Journal of Low Temperature Physics: 199: 441-450, 2020
- [10] Barber D: Expectation Correction for Smoothed Inference in Switching Linear Dynamical Systems, Journal of Machine Learning Research, 2006
- [11] "Natürliche radioaktive Stoffe wir (ge)brauchen sie", StrahlenschutzPraxis, Heft 1/2017. Herausgeber Fachverband für Strahlen-

schutz, TÜV Media GmbH, Köln, ISSN 0947-434 X

- [12] Masson O, Steinhauser G et al.: Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017, www.pnas.org/ cgi/doi/10.1073/pnas.1907571116
- [13] Zok D, Sterba JH, Steinhauser G: Chemical and radioanalytical investigations of 106Ru-containing air filters from Vienna in fall 2017: searching for stable element anomalies. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 318:415-421, 2018 https://doi.org/10.1007/ s10967-018-6132-6
- [14] Hopp T, Zok D, Kleine Th, Steinhauser G: Nonnatural ruthenium isotope ratios of the undeclared 2017 atmospheric release consistent with civilian nuclear activities. NATURE COMMUNICATIONS (2020) 11:2744, 2020 https://doi.org/10.1038/s41467-020-16316-3
- [15] Cooke MW, Botti A, Zok D, Steinhauser G, Ungar, KR: Identification of a chemical fingerprint linking the undeclared 2017 release of ¹⁰⁶Ru to advanced nuclear fuel reprocessing. www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/ pnas.2001914117
- [16] Verordnung zum Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV 2001) vom 20. Juli 2001 (BGBI. I S. 1714) zuletzt geändert am 24. Februar 2012 (BGBI. I S. 212), gültig bis 2018
- [17] Kanisch G: Effektive ¹³⁷Cs-Halbwertzeiten in Fischen aus Binnenseen und Fließgewässern und ¹³⁷Cs-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
- [18] Aarkrog A: Input of anthropogenic radionuclides into the World Ocean. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography 50/ 17-21, 2597-2606, 2003
- [19] Dahlgaard H: Transfer of European coastal pollution to the arctic: Radioactive tracers. Marine Pollution Bulletin 31/1-3: 3-7, 1995

Literatur

- [20] HELCOM: Thematic assessment of radioactive substances in the Baltic Sea 2011-2015. Baltic Sea Environmental Proceedings 151, 2018
- [21] Internationale Atomenergiebehörde (IAEA): Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. Technical reports series 422, ISSN 0074-1914, 2004
- [22] 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
- [23] 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
- [24] Steele AK: Derived concentration factors for caesium-137 in edible species of North Sea fish. Marine Pollution Bulletin 21/12: 591-594, 1990
- [25] Hunt J, Leonard K, Hughes L: Artificial radionuclides in the Irish Sea from Sellafield: remobilisation revisited. Journal of Radiological Protection 33/2: 261-279, 2013
- [26] Ainsbury EA, Bouffler SD, Dorr W, Graw J, Muirhead CR, Edwards AA, Cooper J:. Radiation cataractogenesis: a review of recent studies. Radiation research 172: 1-9, 2009
- [27] Behrens R, Dietze G, Zankl M: Dose conversion coefficients for electron exposure of the human eye lens. Phys Med Biol 54, 4069-4087, 2009
- [28] Castro P, Huber ME: Marine Biology. New York: McGraw-Hill, 2010
- [29] Chibani O, Li XA: Monte Carlo dose calculations in homogeneous media and at interfaces: A comparison between GEPTS, EGSnrc, MCNP, and measurements. Medical Physics 29: 835-847, 2002
- [30] Devlin RH, Vandersteen, WE, Uh M, Stevens ED: Genetically modified growth affects allometry of eye and brain in salmonids. Canadian Journal of Zoology 90: 193-202, 2012
- [31] Fish, T.a.P., Fish, Tanks and Ponds, 2012
- [32] Holland HD: The chemistry of the atmosphere and oceans. Wiley, 1978

- [33] ICRP 107: Nuclear Decay Data for Dosimetric Calculations. ICRP Publication 107. Ann. ICRP 38, 2008
- [34] ICRP 26: Recommendations of the ICRP, ICRP Publication 26. Pergamons Press, Oxford, UK,1977
- [35] ICRP 103: Recommendations of the International Commission of Radiological Protection, in: Elsevier (Ed.), International Commission on Radiological Protection, 2007
- [36] ICRP 108: Environmental Protection the Concept and Use of Reference Animals and Plants, 2008
- [37] Jeraj R, Keall PJ, Ostwald PM: Comparisons between MCNP, EGS4 and experiment for clinical electron beams. Physics in Medicine and Biology 44: 12, 1999
- [38] Kanisch G, Aust MO: Does the Fukushima NPP disaster affect the caesium activity of North Atlantic Ocean fish? Biogeosciences(10):5399-5410, 2013
- [39] Kumar D, Lim JC, Donaldson PJ: A link between maternal malnutrition and depletion of glutathione in the developing lens: a possible explanation for idiopathic childhood cataract? Clinical & experimental optometry 96: 523-528, 2013
- [40] Lehmann P, Boratyński Z, Mappes T: Mousseau TA: Møller AP: Fitness costs of increased cataract frequency and cumulative radiation dose in natural mammalian populations from Chernobyl. Scientific reports 6, 19974, 2016
- [41] Mousseau TA: Møller AP: Elevated Frequency of Cataracts in Birds from Chernobyl. PLOS ONE 8, e66939, 2013
- [42] Nielsen SP, Bengtson P, Bojanowsky R, Hagel P, Herrmann J, Ilus E, Jakobson E, Motiejunas S, Panteleev Y, Skujina A, Suplinska M: The radiological exposure of man from radioactivity in the Baltic Sea. The Science of the total environment 237-238. 133-141,1999
- [43] Nogueira P, Zankl M, Schlattl H, Vaz P: Dose conversion coefficients for monoenergetic electrons incident on a realistic human eye model with different lens cell populations. Phys Med Biol 56: 6919-6934, 2011
- [44] Nogueira P, Hiller M, Aust MO: Monte Carlo simulation of dose coefficients for a fish eye lens model exposed to monoenergetic electrons. J Environ Radioact 199-200:7-15, DOI:10.1016/j.jenvrad.2018.12.021, 2019

- [45] Pelowitz, D.B., 2008. MCNPX User's Manual, LA-CP-07-1473, Version 2.6.0
- [46] Rohrschneider W: Studies on the formation and the morphology of Rontgen-radiation cataract in humans. Arch f Augenh 106, 221-254 in German, 1932
- [47] Wall AE, Richards RH: Occurrence of cataracts in triploid Atlantic salmon (Salmo salar) on four farms in Scotland. The Veterinary record 131: 553-557, 1992
- [48] Zalewska T, Suplińska M: Anthropogenic radionuclides 137Cs and 90Sr in the southern Baltic Sea ecosystem. Oceanologia 55: 485-517, 2013
- [49] Landauer 2016: VISION for your eye only!, www.landauer.eu
- [50] Bericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2017", Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU), Bonn http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2020041421601
- [51] Bericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2018", Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU), Bonn http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2021011124821
- [52] Bericht "Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung - Jahresbericht 2019", Hrsg: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU), Bonn in Vorbereitung
- [53] Beyermann M, Hofmann P, Witter C: Leitfaden zur Untersuchung und Bewertung von radioaktiven Stoffen im Trinkwasser bei der Umsetzung der Trinkwasserverordnung. Empfehlung von BMUB, BMG, BfS, UBA, und den zuständigen Landesbehörden sowie DVGW und BDEW. Hrsg.: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB), Bonn, 2017, http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2017020114224
- [54] BMG: Trinkwasserverordnung in der Fassung der Bekanntmachung 10. März 2016. BGBI. Teil I Nr. 12: S. 459-491, 2016
- [55] LfU: Strahlenhygienischer Jahresbericht 2017. Allgemeine Umweltradioaktivität und Umgebungsüberwachung der kerntechnischen Anlagen in Bayern. Augsburg, 2018
- [56] Beyermann M, Bünger T, Gehrcke K, Obrikat D: Strahlenexposition durch natürliche Radio-

nuklide im Trinkwasser in der Bundesrepublik Deutschland. BfS-SW-Bericht, BfS SW 06/09, Salzgitter, 2009, http://nbn-resolving.de/ urn:nbn:de:0221-20100319945

- [57] www.ti.bund.de/de/fi/arbeitsbereiche/meeresumwelt/leitstelle-umweltradioaktivitaet-in-fisch/ uncertradio/
- [58] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS) vom 13. Dezember 2006 (BAnz. 2006, Nr. 244a)
- [59] Verordnung zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzverordnung StrlSchV) vom 29. November 2018 (BGBI. I S. 2034, 2036), geändert durch Artikel 1 der Verordnung vom 20. November 2020 (BGBI. I S. 2502)
- [60] Gesetz zum Schutz vor der schädlichen Wirkung ionisierender Strahlung (Strahlenschutzgesetz StrlSchG) vom 27. Juni 2017 (BGBI. I S. 1966), zuletzt geändert durch Artikel 2b des Gesetzes vom 18. November 2020 (BGBI. I S. 2397)
- [61] Länderausschuss für Atomkernenergie: Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI), 2015
- [62] DIN Deutsches Institut für Normung e.V.: DIN ISO 11929:2011-01. Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen. Beuth Verlag GmbH, Berlin, 2011, doi: 10.31030/1714556
- [63] Mirion: Genie™ 2000. Gamma Analysis Software
- [64] Internationale Organisation für Normung: ISO 13528 - 2015-08. Statistische Verfahren für Eignungsprüfungen durch Ringversuche, Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparison, 2015, Internet: https://www.beuth.de/de/norm/iso-13528/240487596
- [65] DIN Deutsches Institut für Normung e.V.: DIN ISO 5725-2:2002-12. 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 Techni-

sches Korrigendum 1:2002). Beuth Verlag GmbH, Berlin, 2002, doi: 10.31030/9264532

- [66] DIN Deutsches Institut für Normung e.V.: DIN EN ISO/IEC 17043:2010-05. Konformitätsbewertung - Allgemeine Anforderungen an Eignungsprüfungen. Beuth Verlag GmbH, Berlin, 2010, doi: 10.31030/1558950
- [67] Joint Committee for Guides in Metrology: Evaluation of measurement data - Supplement 1 to the GUM. JCGM 101:2008. International Bureau of Weights and Mea-sures, 2008, Internet: https://www.bipm.org/en/publications/guides/gum.html
- [68] Joint Committee for Guides in Metrology: Guide to the expression of uncertainty in measurement. JCGM 100:2008. International Bureau of Weights and Measures, 2008, Internet: https://www.bipm.org/en/publications/ guides/gum.html
- [69] Joint Committee for Guides in Metrology: Evaluation of measurement data - Supplement 2 to the GUM. JCGM 102:2011. International Bureau of Weights and Measures, 2011, Internet: https://www.bipm.org/en/publications/guides/gum.html
- [70] Kanisch G: UncertRadio. Software zur Berechnung charakteristischer Grenzen nach ISO 11929 für Messungen der Aktivität, 2020
- [71] Haase G, Tait D, Wiechen A: Monte Carlo simulation of several gamma-emitting source and detector arrangements for determining corrections of self-attenuation and coincidence summation in gamma-spectrometry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 329 (3), 483-492, 1993, doi: 10.1016/0168-9002(93)91284-T

- [72] Haase G, Tait D, Wiechen A: Application of a new Monte Carlo method for deter-mination of summation and self-attenuation corrections in gamma spectrometry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 336 1-2, 206-214, 1993, doi: 10.1016/0168-9002(93)91099-9
- [73] D'Agostino RB: An Omnibus Test of Normality for Moderate and Large Size Samp-les. Biometrika 58 (2), 341, 1971, doi: 10.2307/ 2334522
- [74] D'Agostino R, Pearson ES: Tests for Departure from Normality. Empirical Results for the Distributions of b 2 and Vb 1. Biometrika 60 (3), 613, 1973, doi: 10.2307/2335012
- [75] Shapiro SS, Wilk MB: An Analysis of Variance Test for Normality (Complete Samples). Biometrika 52 3/4, 591, 1965, doi: 10.2307/ 2333709
- [76] Stephens MA: EDF Statistics for Goodness of Fit and Some Comparisons. Journal of the American Statistical Association 69 (347), 730-737, 1974, doi: 10.1080/ 01621459.1974.10480196
- [77] DIN Deutsches Institut für Normung e.V.: DIN ISO 13528:2005-09. Statistische Verfahren für Eignungsprüfungen durch Ringversuche, 2005
- [78] Bericht der Vergleichs- und Eignungsprüfung doi: http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0221-2019121120815, 2019
- [79] Beck et al.: The measurement accuracy of passive radon instruments, Radiation Protection Dosimetry 158:1, 59-67, doi: 10.1093/ rpd/nct182, 2014



VERWENDETE ABKÜRZUNGEN

AtG	Atomgesetz	KIT	Karlsruher Institut für Technolo-
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift	KKW	Kernkraftwerk
BfG	Bundesanstalt für Gewässerkun-	MRI	Max Rubner-Institut
	de	Ν	Zahl der Einzelmessungen
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz	n.n.	nicht nachgewiesen / nachweisbar
BGA	Bundesgesundheitsamt		Naturally Occurring Padioactivo
BGBI	Bundesgesetzblatt	NONW	Material
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz. nukleare Sicherheit	NWG	Nachweisgrenze
	und Verbraucherschutz	ODL	Ortsdosisleistung
BSH	Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie	РТВ	Physikalisch-Technische Bundes- anstalt
/d·p	pro Tag und Person	Rβ	Rest-Beta-Aktivität
DAkkS	Deutsche Akkreditierungsstelle	RöV	Röntgenverordnung
DWD	Deutscher Wetterdienst	RMP	Routinemessprogramm
ENORM	Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material	REI	Richtlinie zur Emissions- und Im- missionsüberwachung kerntech-
EURATOM	Europäische Gemeinschaft für		nischer Anlagen
	Atomenergie	RSK	Reaktor-Sicherheitskommission
EUROMET	Organisation der metereologi- schen Staatsinstitute in Europa	SSK	Strahlenschutzkommission
FM	Frischmasse	StrSchV	Strahlenschutzverordnung
Gα	Gesamt-Alpha-Aktivität	StrlSchG	Strahlenschutzgesetz
Gβ	Gesamt-Beta-Aktivität	tSIE	Transformed Spectral Index
HWZ	Halbwertszeit	ТМ	Trockenmasse
IAR	Institut für Atmosphärische Ra-	UBA	Umweltbundesamt
	dioaktivität (heute: Fachbereich für Strahlenschutz und Umwelt)	UNSCEAR	Wissenschaftliches Komitee der Vereinten Nationen über die Wir-
ICRP	Internationale Strablonschutzkommission		kung von atomarer Strahlung
ICRU	Internationale Kommission für radiologische Einheiten	VOAS	Verordnung über die Gewährleis- tung von Atomsicherheit und Strahlenschutz
IMIS	Integriertes Mess- und	WAA	Wiederaufarbeitungsanlage
	Informationssystem	ZdB	Zentralstelle des Bundes zur
KFÜ	Kernkraftwerks- Fernüberwachungssystem		Überwachung der Umweltradio- aktivität

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
к-40, ⁴⁰ к	Kalium	β⁻, γ	1,3 x 10 ⁹ a	natürlich
Mn-54, ⁵⁴ Mn	Mangan	ε, γ	312,2 d	
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	3	107 d	Uran-Spaltprodukt
Y-90, ⁹⁰ Y	Yttrium	β-	64 h	Uran-Spaltprodukt
Тс-99, ⁹⁹ Тс	Technetium	β-	213000 a	
Tc-99 m, ^{99m} Tc	Technetium	R	6,01 h	Verwendung in der Medizin
Ag-108m, ^{108m} Ag	Silber	β⁻, γ, Ιγ	250 d	
Sb-125, ¹²⁵ Sb	Antimon	β-	2,7582 a	
Te-132, ¹³² Te	Tellur	β-	3,20 d	
I-129, ¹²⁹ I	bol	β ⁻ , γ	1,57x10 ⁷ a	
I-131, ¹³¹ I	bol	β ⁻ , γ	8,02 d	Uran-Spaltprodukt
I-132, ¹³² I	bol	β ⁻	2,295 h	
I-133, ¹³³ I	Jod	β-	20,8 h	

EIGENSCHAFTEN DER IM TEXT ERWÄHNTEN RADIONUKLIDE

Radionuklid	Element	Strahlungsart	Halbwertszeit	Bemerkungen
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
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	
Lu-177, ¹⁷⁷ Lu	Lutetium	β-, γ	6,647 d	Verwendung in der Nuklear- medizin
TI-201, ²⁰¹ TI	Thallium	ε, R	73,1 h	
TI-202, ²⁰² TI	Thallium	ε, γ	12,2 d	
TI-208, ²⁰⁸ TI	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

Radionuklid	Element	Strahlungsart	Halbwertszeit	Bemerkungen
Th-228, ²²⁸ Th	Thorium	α, γ	1,9 a	Thorium-Zerfallsreihe
Th-230, ²³⁰ Th	Thorium	α	7,54 x 10 ⁴ a	Uran-Radium-Zerfallsreihe
Th-232, ²³² Th	Thorium	α	1,4 x 10 ¹⁰ a	Thorium-Zerfallsreihe
Th-nat, Th _{nat}	Thorium			
U-234, ²³⁴ U	Uran	α	2,45 x 10 ⁵ a	
U-235, ²³⁵ U	Uran	α, R	7,04 x 10 ⁸ a	
U-238, ²³⁸ U	Uran	α	4,47 x 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 x 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	
	a- Alphastrahli	ing		

 α = Alphastrahlung β ⁻= Betastrahlung

γ= Gammastrahlung

ε= Elektroneneinfang R= Röntgenstrahlung

 β^+ = Positronenstrahlung



|--|

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 Kilo- gramm (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
Еха	E	10 ¹⁸
Peta	Р	10 ¹⁵
Tera	т	10 ¹²
Giga	G	10 ⁹
Mega	М	10 ⁶
Kilo	k	10 ³
Hekto	h	10 ²
Deka	da	10 ¹

Präfix	Kurzbezeichnung	Faktor
Dezi	d	10 ⁻¹
Zenti	с	10 ⁻²
Milli	m	10 ⁻³
Mikro	μ	10 ⁻⁶
Nano	n	10 ⁻⁹
Piko	р	10 ⁻¹²
Femto	f	10 ⁻¹⁵
Atto	а	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

Fachbegriff	Erläuterung
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 Verunreini- gungen
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, Augenlinsent- rübung (siehe auch stochastisch)
Dosis	Siehe Energiedosis und Äquivalentdosis
Effektive Dosis	Summe der gewichteten mittleren Äquivalentdosen in den einzel- nen 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
Fallout	Aus der Atmosphäre auf die Erde in Form kleinster Te116ilchen 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 Bestrah- lung 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)
Ionisierende Strahlen	Elektromagnetische- oder Teilchenstrahlen, welche die Bildung von Ionen bewirken können (z.B. Alphastrahlen, Betastrahlen, Gammastrahlen, Röntgenstrahlen)
In-situ-Messung	Messung im Freien mit mobilen Messeinrichtungen (Feldmes- sung)

Fachbegriff	Erläuterung
Isotop	Atomart eines chemischen Elements mit gleichen chemischen Eigenschaften (gleicher Ordnungszahl), aber verschiedener Mas- senzahl
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 charakteri- sierte 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 Anwen- dung der Einheiten im Strahlenschutzmesswesen ist durch die Ausführungsverordnung zum Gesetz über Einheiten im Messwe- sen vom 13.12.1985 (BGBI.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 vari- iert, 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 100 Abwasser 30, 33, 35, 100–101 Ackerböden 83 Actinium-225 8, 18 Actinium-227 25 Aerosole 31 Aktivitätsnormale 18 Alpha-Strahler 33 Americium-241 9, 50 Arzneimittel 105 atomrechtliche Genehmigungsverfahren 30

В

Berlin 45 Beryllium-7 39, 45, 52 - 53 Binnengewässer 52 - 53, 56, 76 Binnenseen 71, 76 Bismut-213 18 Bismut-214 37 Blei-2010 25 Blei-209 18 Blei-210 24, 45, 63 Blei-214 37 Boden 81 Bundesamt für Gewässerkunde 52 Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie 64 Bundesamt für Strahlenschutz 25, 37, 43, 61, 87,93 Bundesforschungsanstalt für Ernährung und Lebensmittel 81 Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit 35

С

Cadmium-109 23 Cäsium-134 65 , 102 , 115 Cäsium-137 9 – 12 , 37 , 39 , 43 , 45 , 50 , 52 – 54 , 56 , 61 – 68 , 71 , 74 – 76 , 80 – 86 , 100 – 103 , 105 – 106 , 108 , 115 Cäsiums-137 107 Cobalt-58 52 , 55 Cobalt-60 12 , 23 , 52 – 53 , 55 , 61 – 62 , 100 – 101

D

Deutsche Bucht 65 Deutscher Wetterdienst 37 , 43 , 45 , 50 Donau 57 -58

E

Edelgase 31 effektive Dosis 35, 38, 44, 51 Elbe 57–58 Emissionsüberwachung 35, 61 Ems 57, 59 EU-Berichterstattung 37 Europium-154 23 Europium-155 23

F

Fallout 65, 76 Fische 71, 77 Fischteiche 71 Fließgewässer 54, 71, 76 Flusswasser 79 Fortluft 30-31, 35 Futtermittel 81

G

Genehmigungswert 31, 35 Gesamtnahrung 82 Grauer Star 77 Grundwasser 61–62, 100

IMIS 37

н

Immissionsüberwachung 61 Indium-111 12, 101 Iod-131 9, 12, 31, 33, 37, 49, 52, 55–56, 82, 100–101, 104, 114

J

Johann Heinrich von Thünen-Institut 71, 77

Κ

Kalium-40 10, 12, 45, 52 - 53, 56, 61, 100 -101, 104-108 Katarakt 77 Kernkraftwerk 31, 33, 35–36 Biblis 31 Brokdorf 32 Brunsbüttel 31 Emsland 32 Grafenrheinfeld 31 Grohnde 32 Gundremmingen 31 Isar 31 Krümmel 31 Neckarwestheim 31 Philippsburg 31-32 Stade 31 Unterweser 31 kerntechnische Anlagen 35 Kernwaffenteststoppabkommen 43 Kernwaffenversuche 65 Klärschlamm 100-103

Sachverzeichnis

120

Kohlenstoff-14 31 Krypton-85 43

L

La Hague 64 –65 Lutetium-177 12 , 55 –56 , 101

Μ

Main 59 Mangan-54 50 , 55 Max-Rubner-Institut 81 Meerwasser 64 , 79 –80 Milch 82 Monte-Carlo-Simulation 77 , 79 Mosel 57 –60 Mutual Recognition Arrangement 18

Ν

Neckar 59 -60 Niederschlag 37 -39, 42, 50 Nordsee 64 -65, 71, 76

0

Oberflächenerosion 81 Oberflächenwasser 52 – 58, 62, 64 Offenbach 45 Ostsee 64, 66, 71, 74, 76, 80

Ρ

Pflanzen 81 Physikalisch-Technische Bundesanstalt 18, 37, 43, 45 Plutenium-238 101 Plutenium-239/240 101 Plutonium(239+240) 9, 45 Plutonium-238 22, 45 Plutonium-240 22 Plutonium-240 22 Plutonium-210 63 Polonium-212 22 Polonium-213 18 Polonium-214 21 Polonium-218 21 Probenentnahme 42

Q

Qualitätsmanagement 18

R

Radium-224 22 Radium-226 19, 21, 25, 63 Radium-228 25, 63 Radon-222 8, 13, 19, 21, 25, 63 Referenzmaterialien 23 REI 61 Rhein 57–60 Rohmilch *81* , Rubidium-85 Ruthenium-106 *9* –*10* , *24* , Ruthenium-131

S

Saar 57 Säuglingsnahrung 82 Schwebstoff 52, 54–56 Sediment 52, 68 Selen-79 114 Sellafield 64–65 Spurenanalyse 43 Stromerzeugung 31, 36 Strontium-85 50 Strontium-90 9–12, 39, 45–46, 52, 54, 56, 61-62, 66, 68, 70, 77, 80–82, 101–102, 104

Τ

Technetium 12, 55, 101 Tellur-132 114 Thorium-227 8, 18 Thorium-228 19, 22, 25 Thorium-229 22 Thorium-232 25, 52 -53, 56 Trinkwasser 56, 61 -63Tritium 31, 33, 52 -54, 56, 61 -62, 100 Tschernobyl 64 -66, 76, 81

U

Umgebungsüberwachung 62 Uran-232 22 Uran-233 22 Uran-234 45 -46, 63, 101, 104 Uran-235 25, 45 -46, 53, 56, 101, 104 Uran-238 10, 25, 45 -46, 52 -53, 56, 61, 63, 101 Uranbergbau 53 Urannuklide 39

W

Weideböden 84 Weser 58 Wiesenbewuchs 81, 85

Х

Xenon 43 Xenon-131m 43 Xenon-133 43 Xenon-133m 43 Xenon-135 43

Υ

Yttrium-88 114 Yttrium-90 114

Sachverzeichnis