

# Ergebnisse einer siebenjährigen Lysimeterstudie zur Quantifizierung der Mobilität von Radionukliden im System Boden-Wasser-Pflanze

M.H. GERZABEK, F. STREBL und B. TEMMEL

## Abstract

The results of seven years lysimeter experiments (twelve soil monoliths, four soil types) to determine the uptake of  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{226}\text{Ra}$  into agricultural crops and the leaching behaviour are presented. The mobility of the artificial radionuclides in soil profiles decreased in the following order:  $^{60}\text{Co} > ^{226}\text{Ra} > ^{137}\text{Cs}$ . Total median values of soil-plant transfer factors (dry matter basis) for the three radionuclides decreased from  $^{226}\text{Ra}$  (0.068 kg kg<sup>-1</sup>) to  $^{137}\text{Cs}$  (0.043 kg kg<sup>-1</sup>) and  $^{60}\text{Co}$  (0.018 kg kg<sup>-1</sup>). The physical and chemical properties of the experimental soils resulted in significant differences in transfer factors or fluxes between the investigated soils for  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{226}\text{Ra}$ , but not for  $^{60}\text{Co}$ . Differences in transfer between plant species and plant parts are distinct, with graminaceous species showing 5.8 and 15 times lower values for  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  than dicyledonean species. In model calculations radionuclide losses through the different pathways (physical decay, leaching, plant uptake and removal) were quantified.

## 1. Einleitung

Die Mobilität von Radionukliden in der Umwelt hängt in hohem Maße von deren Verhalten im Boden ab. Für ein österreichisches Waldgebiet konnte gezeigt werden, daß der Boden auf längere Zeit die wichtigste Senke für Radiocäsium darstellt (STREBL et al., 1999). Daraus ergibt sich aber auch, daß insbesondere mittel- und langfristige der Boden die wichtigste Quelle für den Eintritt von Radionukliden in die Nahrungskette darstellt. Dabei kommt der Wurzelaufnahme, und somit dem Boden-Pflanze Transfer die größte Bedeutung zu, potentiell kann auch die Auswaschung in das Grundwasser eine Gefahr darstellen.

In den letzten ca. 30 bis 40 Jahren wurde eine Vielzahl von Boden-Pflanze Transferfaktoren ermittelt. Allerdings ist die Datenbasis nur für einige wenige Radionuklide, die entweder während des Kernwaffenfallout bzw. nach dem Tschernobyl Unfall von Bedeutung waren, konsistent und statistisch abgesichert. Für eine regionalisierte Prognose reichen diese Datensätze aufgrund der großen standort- und pflanzenartenspezifischen Variation (IAEA, 1994) nicht aus. Die vorliegende Arbeit beschreibt die Ergebnisse von siebenjährigen Lysimeteruntersuchungen, die zum Ziel hatten (i) neben dem gut untersuchten Radionuklid  $^{137}\text{Cs}$  auch Nuklide, die in einem radioaktiven Endlager Bedeutung hätten ( $^{60}\text{Co}$  und  $^{226}\text{Ra}$ ) zu berücksichtigen, (ii) die österreichischen Standortverhältnisse und Kulturpflanzen einzubeziehen und (iii) einige grundsätzliche Daten bezüglich Tiefenverlagerung der genannten Radionuklide zu liefern. In der vorliegenden Arbeit gehen wir zusätzlich auf ein einfaches Modell zur Quantifizierung der Radionuklidflüsse ein.

## 2. Material und Methoden

Die Auswahl der Versuchsböden (vier Böden, drei Wiederholungen) erfolgte nach der Häufigkeit des Vorkommens von Bodentypen in der Nähe möglicher Endlagerstandorte. Aufgrund der Erhebungsergebnisse wurden folgende Bodentypen für die Lysimeteranlage beprobt: Felsbraunerde (Kristallin), trockengefallener Gley (Kristallin), kalkfreie Lockersedimentbraunerde, kalkhaltige Lockersedimentbraunerde. Die monolithische Entnahme und die eigens für diesen Zweck konstruierte Vorrichtung ist an anderer Stelle ausführlich beschrieben (GERZABEK, 1990). Die bauliche Errichtung der Anlage und die Entnah-

me der zwölf Bodenmonolithen (1 x 1 x 0,75 m) erfolgte in den Jahren 1989 und 1990. 1990 erfolgte die künstliche Kontamination der Oberböden durch Einbringung der Radioaktivität in eine Teilmenge (1 kg) jedes Oberbodens. Nach der Trocknung und Vermahlung des kontaminierten Bodens wurde der gesamte Oberboden (0 bis 20 cm) des jeweiligen Lysimetergefäßes in einen 1 m<sup>3</sup> fassenden Zwangsmischer eingebracht und mit der kontaminierten Teilmenge gemischt. Die Grundgehalte der in den Böden enthaltenen Radionuklide, d.h. die Aktivitätskonzentration der im Boden vorhandenen Radionuklide vor der Einbringung der zusätzlichen Aktivitäten sind aus *Tabelle 1* zu entnehmen. Die mittleren zugesetzten Aktivitätsmengen pro Gefäß betragen  $588,0 \pm 30,8$  kBq  $^{137}\text{Cs}$ ,  $687,9 \pm 40,7$  kBq  $^{60}\text{Co}$  und  $79,0 \pm 8,5$  kBq  $^{226}\text{Ra}$ . Die daraus resultierenden mittleren Aktivitätskonzentrationen in den einzelnen Oberböden (0 - 20cm) nach der Kontaminierung sind aus *Tabelle 1* ersichtlich. Die Wasserdynamik der Lysimeteranlage wurde jeweils für sechsmonatige Perioden ermittelt. Dazu wurden einerseits die Sickerwassermengen unter Berücksichtigung etwaiger zusätzlicher Probenentnahmen zu anderen Analysenzwecken aufsummiert, um den Sickerwasseranfall zu errechnen. Andererseits wurden die Tagesniederschlagssummen aus den Aufzeichnungen der Wetterstation des Forschungszentrums Seibersdorf zu Sechsmonatswerten zusammengefaßt und um etwaige Bewässerungsmengen erweitert. Die angebauten Kulturen waren: Winterdivie (1990), Mais (1991), Winterweizen (1991/1992), Gelbsenf (*Sinapis alba*, 1992), Zuckerrübe (1993), Kartoffel (1994), Pferdebohne (1995) und Weidelgras (1996). Die mittleren Erträge (g Trockensubstanz pro m<sup>2</sup>) betragen 34

**Autoren:** Univ.-Doz. Dipl.-Ing. Dr. Martin H. GERZABEK, Mag. Dr. Friederike STREBL und Ing. Brigitta TEMMEL, Österreichisches Forschungszentrum Seibersdorf Ges.m.b.H., A-2444 SEIBERSDORF

**Tabelle 1: Charakteristika der Lysimeterböden (0-20 cm Tiefe)**

| Parameter  | Boden 1      | Boden 2     | Boden 3      | Boden 4      |
|--|--------------|-------------|--------------|--------------|
| pH (CaCl <sub>2</sub> )  | 7.5          | 4.6         | 5.1          | 5.9          |
| Sand : Schluff : Ton (%)   | 17 : 65 : 18 | 48 : 43 : 9 | 61 : 27 : 12 | 24 : 62 : 14 |
| Illit (in % des Tons)  | 69           | 59          | 42           | 28           |
| Humus (%)  | 1.5          | 2.4         | 2.6          | 5.2          |
| CaCO <sub>3</sub> (%)  | 18.3         | < d.l.      | < d.l.       | < d.l.       |
| Ca <sub>exch</sub> (BaCl <sub>2</sub> ) (mmolÄqu. 100g <sup>-1</sup> ) | 12.3         | 4.1         | 5.88         | 15.7         |
| Mg <sub>exch</sub> (BaCl <sub>2</sub> ) (mmolÄqu. 100g <sup>-1</sup> ) | 1.5          | 0.18        | 1.26         | 3.44         |
| K <sub>exch</sub> (BaCl <sub>2</sub> ) (mmolÄqu. 100g <sup>-1</sup> )  | 0.4          | 0.05        | 1.35         | 0.17         |
| Na <sub>exch</sub> (BaCl <sub>2</sub> ) (mmolÄqu. 100g <sup>-1</sup> ) | 0.1          | 0.07        | 0.09         | 0.35         |
| hydr. Leitfähigkeit, gesättigt (m d <sup>-1</sup> )                    | 0.64         | 1.80        | 0.54         | 0.06         |
| <sup>137</sup> Cs nach Kontamination (Bq kg <sup>-1</sup> )            | 2301±51      | 2445±254    | 2143±147     | 3972±272     |
| <sup>137</sup> Cs von Tschernobyl (Bq kg <sup>-1</sup> )               | 54±6         | 182±82      | 158±10       | 278±33       |
| <sup>60</sup> Co nach Kontamination (Bq kg <sup>-1</sup> )             | 2652±67      | 2668±282    | 2302±177     | 4281±306     |
| <sup>60</sup> Co Grundgehalt (Bq kg <sup>-1</sup> )                    | < d.l.       | < d.l.      | < d.l.       | < d.l.       |
| <sup>226</sup> Ra nach Kontamination (Bq kg <sup>-1</sup> )            | 341±18       | 350±61      | 322±14       | 535±83       |
| <sup>226</sup> Ra natürlicher Hintergrund (Bq kg <sup>-1</sup> )       | 46±3         | 24±4        | 60±7         | 51±7         |

< d.l. unter der Nachweisgrenze

**Tabelle 2: Errechnete Verlustraten (d<sup>-1</sup>) durch Auswaschung für die vier Lysimeterböden und die drei Radionuklide (geometrischer Mittelwert ± Standardabweichung, n = 8 - 12)**

| Nuklid            | Auswaschungsverlust vom Bodengesamtgehalt; Werte x 10 <sup>-9</sup> (d <sup>-1</sup> ) |              |             |             |
|-------------------|--|--------------|-------------|-------------|
|                   | Boden 1  | Boden 2      | Boden 3     | Boden 4     |
| <sup>137</sup> Cs | 1.16 ± 0.39  | 0.93 ± 0.13  | 1.43 ± 0.28 | 1.52 ± 0.22 |
| <sup>226</sup> Ra |  | 11.71 ± 2.06 |             |             |
| <sup>60</sup> Co  | 14.6 ± 3.59  | 6.46 ± 2.23  | 14.6 ± 2.81 | 9.70 ± 2.43 |

(Endivie), 1159 (Mais Korn), 326 (Winterweizen Korn), 308 (Gelbsenf), 259 (Zuckerrübe), 96 (Kartoffelknollen), 271 (Pferdeböhrne, Körner) und 296 (Weidelgras).

Die Vegetationsproben wurden ofengetrocknet und vermahlen und in luftdicht verschließbare Marinellibecher eingebracht. Die Aktivitätskonzentrationen (<sup>226</sup>Ra, <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs) wurden gammaspektrometrisch bestimmt und bei <sup>60</sup>Co und <sup>137</sup>Cs auf den Tag der Kontamination der Böden zerfallskorrigiert.

Die gemessenen Daten wurden als Basis zur Errechnung von täglichen Auswaschungsverlusten, Boden-Pflanze Transferfaktoren [(Bq kg<sup>-1</sup> Pflanzentrockensubstanz) / (Bq kg<sup>-1</sup> trockenem Boden)] und Aufnahme-raten von Radionukliden (RN) in die Pflanze verwendet. Letztere Daten wurden unter Berücksichtigung eines exponentiellen Biomassezuwachses wie folgt errechnet:

$$f_{sp} = \frac{-LN(1 - loss_{soil-plant})}{t}$$

wobei

$loss_{soil-plant}$  = RN Aktivität in der Pflanze (Bq) / gesamte RN Aktivität (Boden + Pflanze (Bq))

RN Aktivität in der Pflanze = Ertrag (g) x RN-Gehalt (Bq/g)

t = Zeit (s, Sekunden)

$f_{sp}$ : RN-Fluß vom Boden in die Pflanze (s<sup>-1</sup>)

### 3. Ergebnisse und Diskussion

Bezüglich der Auswaschungsverluste (Tabelle 2) zeigte sich, daß sich die drei 1990 in den Oberboden eingebrachten Radionuklide <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs und <sup>226</sup>Ra deut-

lich unterscheiden. Die geringsten Auswaschraten wurden für <sup>137</sup>Cs, gefolgt von <sup>60</sup>Co beobachtet. Die ursprünglich festgestellten <sup>226</sup>Ra-Aktivitätskonzentrationen in den Sickerwässern waren am größten. Durch den Vergleich der Konzentrationsverhältnisse von <sup>226</sup>Ra/<sup>228</sup>Ra im Unterboden und im Sickerwasser konnte allerdings festgestellt werden, daß der überwiegende Teil des im Sickerwasser nachgewiesenen <sup>226</sup>Ra aus dem natürlichen Inventar des Unterbodens und nicht von der künstlichen Kontamination des Oberbodens stammt. Dies ist in Tabelle 2 bereits berücksichtigt. Es ergibt sich daher folgende Reihung der Auswaschraten aus dem kontaminierten Oberboden: <sup>60</sup>Co > <sup>226</sup>Ra > <sup>137</sup>Cs. Die Unterschiede zwischen den Böden sind zumeist kleiner als jene zwischen den Radionukliden.

Eine vollständige Darstellung der Boden-Pflanze Transferfaktoren aus GERZABEK et al. (1998) ist ersichtlich. Die Gesamtmedianwerte der Boden-Pflanze Transferfaktoren bzw. Aufnahme-raten der drei Radionuklide nahm von <sup>226</sup>Ra zu <sup>137</sup>Cs und <sup>60</sup>Co ab (Abbildung 1). Die unterschiedlichen Bodencharakteristika führten bei den Nukliden <sup>137</sup>Cs und <sup>226</sup>Ra zu statistisch signifikanten Differenzen, was allerdings für <sup>60</sup>Co nicht zutraf. Den Radiocäsiumtransfer verminderten steigende pH-Werte, Tongehalte, „pflanzenverfügbare“ Kalium- und Phosphorgehalte und Kaliumgesamtgehalte. Diese Ergebnisse sind durchaus erwartungsgemäß und streichen einmal mehr die Be-

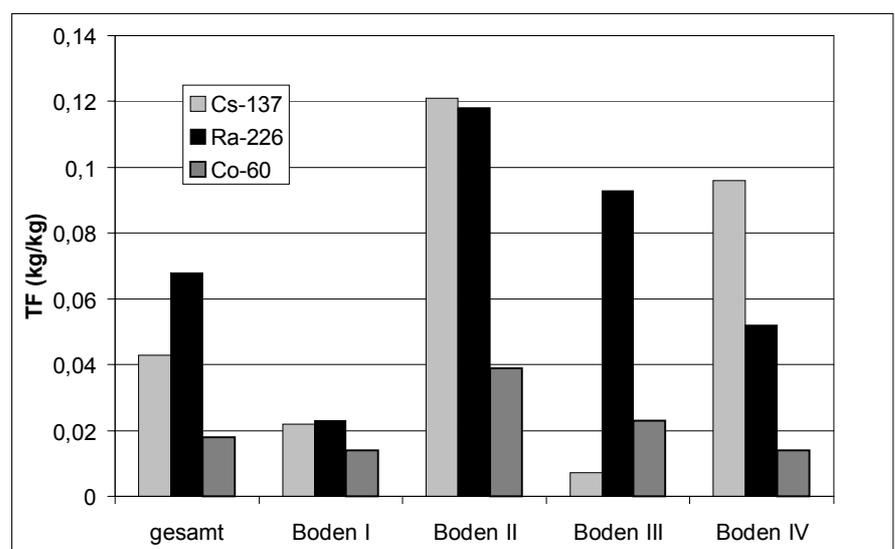


Abbildung 1: Medianwerte von Transferfaktoren Boden-Pflanze für die vier Lysimeterböden (n = 13, für das Gesamtmedium: n = 149)

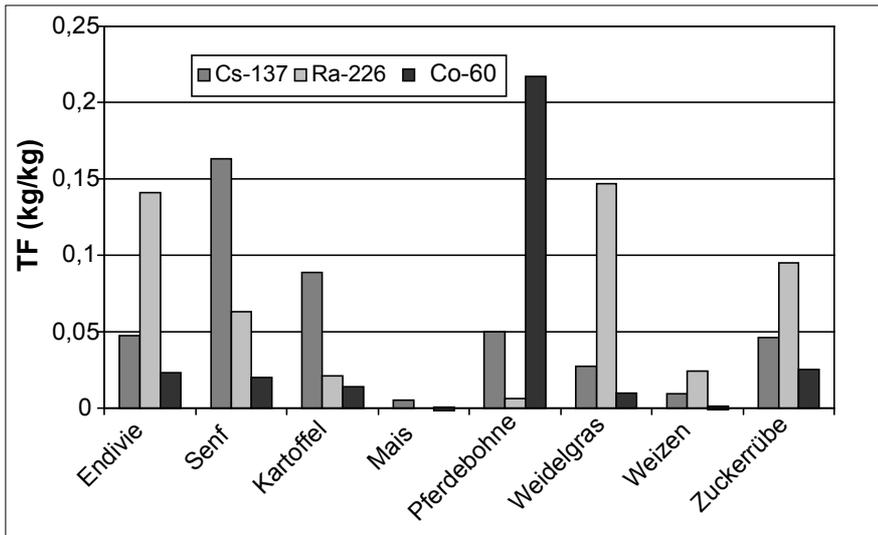


Abbildung 2: Medianwerte der Transferfaktoren für verschiedene Kulturpflanzen (nur Ertragsorgane, n = 12)

Tabelle 3: Radionuklid - Aufnahmeraten verschiedener Kulturpflanzen und jährliche Radionuklid - Ernteentzüge

|             | Aufnahmeraten (s <sup>-1</sup> )<br>(alle Werte x 10 <sup>-11</sup> ) |                   |                  | Ernteentzug<br>(Bq m <sup>-2</sup> in der Vegetationsperiode) |                   |                  |
|-------------|---|-------------------|------------------|---|-------------------|------------------|
|             | <sup>137</sup> Cs   | <sup>226</sup> Ra | <sup>60</sup> Co | <sup>137</sup> Cs   | <sup>226</sup> Ra | <sup>60</sup> Co |
| Endivie     | 0.07  | 0.16              | 0.03             | 7,2   | 2,4               | 4,2              |
| Gelbsenf    | 5.20  | 1.34              | 0.47             | 203   | 6,9               | 19,9             |
| Kartoffel   | 1.05  | 0.42              | 0.24             | 47,5  | 7,4               | 29,8             |
| Maiskorn    | 0.63  | 0.02              | 0.02             | 668   | 254               | 233              |
| Pferdebohne | 1.60  | 0.23              | 6.06             | 157   | 10,2              | 227              |
| Weidelgras  | 0.17  | 0.84              | 0.09             | 20,7  | 10,3              | 14,6             |
| Weizenkorn  | 0.25  | 0.67              | 0.03             | 59,7  | 45,3              | 3,6              |
| Zuckerrübe  | 1.29  | 4.25              | 1.19             | 355   | 74,2              | 133              |

deutung der pflanzenphysiologischen Ähnlichkeit von Cs und K heraus. Der Radiumtransferfaktor wurde signifikant vermindert durch steigende pH-Werte, Ton- und Schluffgehalte, Ca-Gehalte (gesamt und austauschbar) und austauschbare Mg-Gehalte der Böden. Auch hier zeigt sich die Bedeutung der chemischen Ähnlichkeit von Ra und Ca für die Pflanzenaufnahme. Besonders deutlich sind die Unterschiede der Transferfaktoren zwischen den Kulturarten, wobei die monokotylen Pflanzen im Durchschnitt eine 5,8 bis 15 fach geringere Radionuklidaufnahme zeigen als dikotyle (Abbildung 2). Dies gilt insbesondere für Cäsium und Cobalt, kaum für Radium. Es kann zusammenfassend gesagt werden, daß der <sup>137</sup>Cs- und <sup>226</sup>Ra-Transfer stark von Bodeneigenschaften und Pflanzenarten abhängt, bei <sup>60</sup>Co sind pflanzen-spezifische Faktoren die wesentliche Streuungsursache. Leguminosen scheinen besonders viel Co aufzunehmen (siehe Pferdebohne, Abbildung 2), was auf des-

sen Rolle als Bestandteil von Vitamin B12 und somit im Stickstofffixierungs-metabolismus zurückgeführt werden kann. Die Berechnung der Aufnahmeraten berücksichtigt neben der Expositionszeit auch den Biomassezuwachs der Pflanz-

zen während der Vegetationsperiode, die Ergebnisse stellen daher eine physiologisch basierte Kennzahl dar. In Abhängigkeit vom Bodentyp schwanken die Mediane der Aufnahmeraten zwischen 0,17 und 2,34 x 10<sup>-11</sup> s<sup>-1</sup> für <sup>137</sup>Cs, zwischen 0,46 und 1,85 x 10<sup>-11</sup> s<sup>-1</sup> für <sup>226</sup>Ra und zwischen 0,21 und 0,28 x 10<sup>-11</sup> s<sup>-1</sup> für <sup>60</sup>Co. Bei Ausschluß pflanzenabhängiger Streuungsursachen ist die Bedeutung des Bodentyps für die Höhe der Cobaltaufnahme somit nicht mehr ersichtlich. Durch die hohen Unterschiede in der Biomasseproduktion ist die Aufnahme allerding kein aussagekräftiger Indikator für die jährlichen Radionuklid-Ernteentzüge aus dem Boden, die Werte der untersuchten Kulturpflanzen (als Wert für die Summe von Ertragsorganen und Stroh) sind im rechten Teil der Tabelle 3 zusammengefaßt.

Trotz der hohen jährlichen Biomasseproduktion von Mais (2,4 kg Stroh und 1,2 kg Körner) und dem damit verbundenen Radionuklidaustrag sind die jährlichen Verluste verglichen mit dem vorhandenen Bodeninventar sehr gering (siehe Abbildung 3), eine Boden-sanierung im Rahmen normaler landwirtschaftlicher Praxis erscheint daher unter österreichischen Verhältnissen in mittelfristigen Zeiträumen nicht sinnvoll, dagegen weisen die bodentypischen Unterschiede der Radionuklidausträge auf das hohe Potential bodenverbessernder Gegenmaßnahmen zur Verminderung der Kontamination von Lebensmitteln im Anlaßfall hin. Die Kombination der verschiedenen Verlustpfade, Ernteaus-trag, Bodenaus-

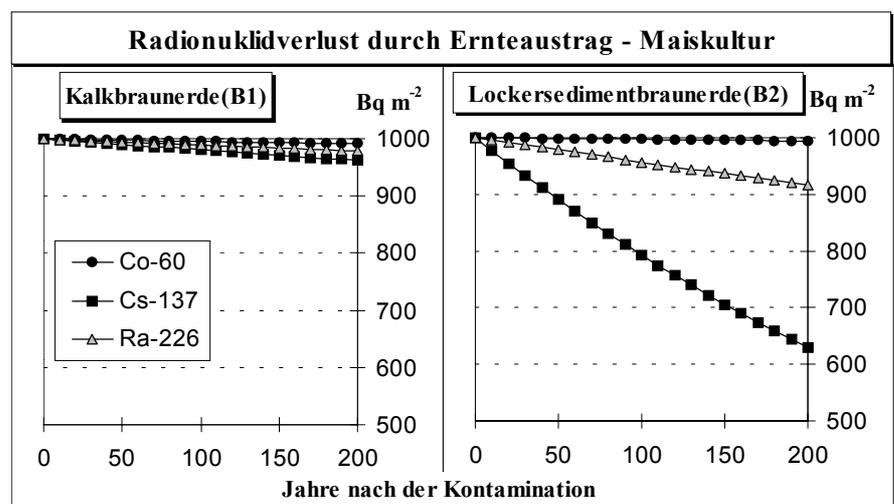


Abbildung 3: Erwartete Abnahme des Radionuklid-Bodeninventars durch Ernteentzug am Beispiel von Mais für unterschiedliche Bodentypen

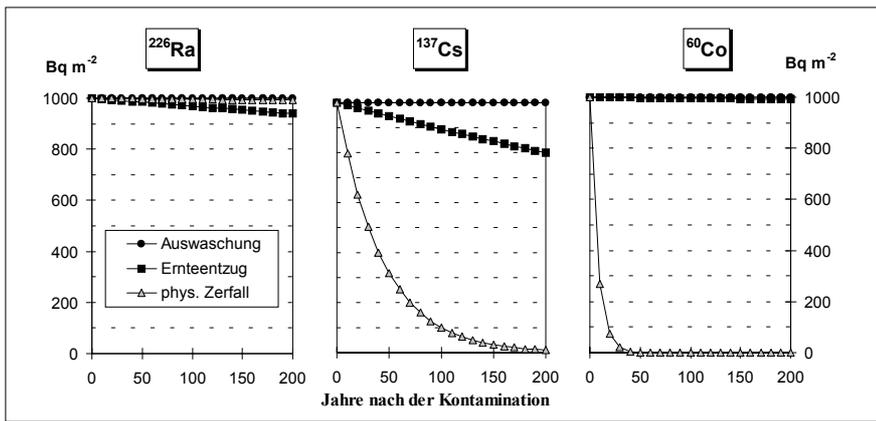


Abbildung 4: Abschätzung der jährlichen Beiträge der Verlustpfade Auswaschung, Ernteentzug und physikalischer Zerfall zur Verminderung des Radionuklid-Bodeninventars

schung und physikalischer Zerfall veranschaulicht deren unterschiedliche

Relevanz für die drei untersuchten Radionuklide. Im Falle von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$  ist

der physikalische Zerfall weitaus der wichtigste Verlustpfad. Nur bei  $^{226}\text{Ra}$  übersteigen die - ebenfalls geringfügigen - Ernteentzüge die Verluste durch Zerfall.

#### 4. Literatur

- GERZABEK, M.H., 1990: Eine einfache Vorrichtung zur Entnahme monolithischer Bodenkörper. Die Bodenkultur 41, 283-288.
- GERZABEK, M.H., F. STREBL und B. TEMMEL, 1998: Plant uptake of radionuclides in lysimeter experiments. Environmental Pollution 99, 93-103.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 1994: Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments. International Atomic Energy Agency, Technical Reports Series No.364.
- STREBL, F., M.H. GERZABEK, P. BOSSEW und K. KIENZL, 1999: Distribution of radiocaesium in an Austrian forest stand. The Science of the Total Environment 226(1): 75-83.