

Die Auswaschung von ^{60}Co , ^{137}Cs und ^{226}Ra im Lysimeterversuch

M. H. Gerzabek, K. Mück, F. Steger und S. M. Algader

Leaching of ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{226}Ra in lysimeter experiments

1. Einleitung

Die Beurteilung der Mobilität von Schadstoffen in unserer Umwelt hat in letzter Zeit wesentlich an Bedeutung gewonnen. Während bestimmte Schadstoffpfade, wie z. B. der Boden-Pflanze Transfer für einige Elemente relativ gut untersucht sind, wurden andere Pfade in der Vergangenheit aufgrund der aufwendigen Versuchsmethodik vernachlässigt. Dazu gehört der wichtige Prozeß der Migration im Bodenprofil und der nachfolgenden Auswaschung in das Grundwasser. Bilanzierungsrechnungen weisen gerade bei diesem Prozeß die größten Unsicherheiten auf (vgl. z. B. HORAK et al., 1994).

Für Radionuklide sind zwar relativ viele Arbeiten über das Migrationsverhalten publiziert (COUGHTREY and THORNE, 1983; SCHIMMACK und BUNZL, 1992), wobei insbesondere nach dem Tschernobyl-Unfall zahlreiche Daten ermittelt wurden (BUNZL et al., 1989; GIANI et al.,

1987; MEISEL et al., 1991; SCHIMMACK et al., 1989; SHAW und WANG, 1996; STREBL et al., 1996), diese wurden allerdings zumeist aus Profiluntersuchungen gewonnen, Messungen unmittelbar im Sickerwasser sind wesentlich seltener bzw. wurden in Säulenexperimenten ermittelt (SCHIMMACK und BUNZL 1992). Insbesondere sind uns dazu bis dato für österreichische Verhältnisse keine Daten bekannt. Für Radionuklide, die normalerweise nicht in der Natur vorkommen und somit für Erhebungsuntersuchungen im Freiland nicht in Frage kommen, sind entweder relativ praxisferne K_d -Wert-Bestimmungen und Säulenexperimente im Labor oder praxisnähere Lysimeteruntersuchungen im Freiland denkbar.

Im vorliegenden Fall wurden Lysimeterversuche mit monolithischen Bodenkörpern und vier verschiedenen österreichischen Böden ausgewählt. Dies hat den Vorteil, daß sowohl Auswaschungsraten als auch Boden-Pflanze Transferfaktoren und das in Abhängigkeit verschiedener

Summary

The present report describes the first results obtained from lysimeter experiments started in 1990. The lysimeter plant consists of twelve soil monoliths from four different sites (three replicates each). Since 1990 the following agricultural crops were grown: endive, corn, winterwheat, mustard, sugar beet and potato.

Gravitational water ranged from 3.9 % to 18.3 % of precipitation plus irrigation water, calculated as half years average values excluding the first six month of operation. The two Cambisols on sediments exhibited a mean percentage of app. 10 %. The Dystric Cambisol on silicate rock and the Gleysol showed average values of 20 %.

In 1990 the top layers (20 cm) were contaminated with three radionuclides. The leaching of the contaminants ^{60}Co , ^{137}Cs and ^{226}Ra differed distinctly between the elements. The lowest leaching rates were observed for ^{137}Cs , followed by ^{60}Co . The ^{226}Ra -concentrations in the gravitational water were clearly highest of all. However, the comparison of the $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ ratios in deep soil layers and in gravitational water showed that the ^{226}Ra measured in the leachate originates from the natural contents in the subsoil and not from the artificial ^{226}Ra contamination of the topsoil. The mobility of the artificial radionuclides decreased therefore in the following order: $^{60}\text{Co} > (^{226}\text{Ra}) > ^{137}\text{Cs}$.

Key words: Austrian soils, leaching, lysimeter, radionuclides.

Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht umfaßt die ersten Ergebnisse der 1990 in Betrieb genommenen Lysimeteranlage des Forschungszentrums Seibersdorf. Die Anlage besteht aus zwölf monolithisch entnommenen Bodenkörpern von vier verschiedenen Standorten (3 Wiederholungen). Seit 1990 wurden folgende landwirtschaftliche Kulturen angebaut: Winterendivie, Mais, Winterweizen, Gelbsenf, Zuckerrübe und Kartoffel.

Die Sickerwasserbildung lag, unter Ausschluß der Daten des ersten Halbjahres, in den ersten drei Versuchsjahren im Halbjahresdurchschnitt zwischen 3,9 % und 18,3 % der gesamten zugeführten Wassermenge. Die beiden Lockersedimentbraunerden zeigten eine mittlere Sickerwasserbildung von rund 10 %, die silikatische Felsbraunerde und der trockengefallene Gley einen Wert von etwa 20 %.

Die Auswaschung der drei 1990 in den Oberboden eingebrachten Radionuklide ^{60}Co , ^{137}Cs und ^{226}Ra zeigte große Unterschiede. Die geringsten Auswaschraten wurden für ^{137}Cs , gefolgt von ^{60}Co beobachtet. Die ^{226}Ra -Aktivitätskonzentrationen in den Sickerwässern waren am größten. Durch den Vergleich der Konzentrationsverhältnisse von $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ im Unterboden und im Sickerwasser konnte allerdings festgestellt werden, daß der überwiegende Teil des im Sickerwasser nachgewiesenen ^{226}Ra aus dem natürlichen Inventar des Unterbodens und nicht von der künstlichen Kontamination des Oberbodens stammt. Es ergibt sich daher folgende Reihung der Auswaschungsraten aus dem kontaminierten Oberboden: $^{60}\text{Co} > (^{226}\text{Ra}) > ^{137}\text{Cs}$.

Schlagerworte: Auswaschung, Lysimeter, österreichische Böden, Radionuklide.

Bodeneigenschaften im Zuge einer landwirtschaftlichen Fruchtfolge untersucht werden können. Freilanduntersuchungen zum Cs-Transfer Boden-Pflanze nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl bestätigen die hohe Variabilität der Cäsiumaufnahme durch die Pflanze, bedingt durch Bodenunterschiede und somit auch die unterschiedliche Mobilität im Boden (GERZABEK et al., 1990; GERZABEK et al., 1992).

In der vorliegenden Arbeit werden die Ergebnisse der Migrationsuntersuchungen von ^{137}Cs , ^{60}Co und ^{226}Ra in der Lysimeteranlage des Österreichischen Forschungszentrums Seibersdorf der ersten drei Versuchsjahre vorgestellt. In einer weiteren Publikation wird der Boden-Pflanze Transfer für verschiedene landwirtschaftliche Kulturpflanzen behandelt werden.

2. Material und Methoden

2.1 Lysimeter

Die Auswahl der Versuchsböden (vier Böden, drei Wiederholungen) erfolgte nach der Häufigkeit des Vorkommens von Bodentypen in der Nähe möglicher Endlagerstandorte. Aufgrund der Erhebungsergebnisse (GERZABEK und HORAK, 1990) wurden folgende Bodentypen für die Lysimeteranlage beprobt: Felsbraunerde (Kristallin), trockengefallener Gley (Kristallin), kalkfreie Lockersedimentbraunerde, kalkhaltige Lockersedimentbraunerde. Die entsprechende Bezeichnung der Böden nach dem FAO-System

wäre Dystric Cambisol, Dystric Gleysol (trockengefallen), Dystric Cambisol, Eutric Cambisol. 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 Entnahme der zwölf Bodenmonolithen (1 x 1 x 0,75 m) erfolgte in den Jahren 1989 und 1990.

Im Zuge der Entnahme der Bodenmonolithe wurden Analysenproben aus drei Tiefen gezogen (0–20 cm, 20–40 cm, 40–75 cm). Den Feinboden zog man nach der Bestimmung des Skelettanteils zur chemischen Analyse heran, wobei die Bodenproben nach österreichischen Standardmethoden (BLUM et al., 1989) auf Nähr- und Schadstoffgehalte, pH-Wert, Humusgehalt, Kalkgehalt und Korngrößenzusammensetzung untersucht wurden. Die Untersuchung der Wasserleitfähigkeit wurde vom Bundesamt für Wasserwirtschaft durchgeführt. Die für die weiteren Interpretationen wichtigen Daten sind aus der Tabelle 1 ersichtlich. Die Schadstoffanalysen, die genauen Profilbeschreibungen und die Ergebnisse der bodenphysikalischen Untersuchungen können bei GERZABEK et al. (1991) nachgelesen werden.

Boden I

Boden I ist eine kalkhaltige Lockersedimentbraunerde mit guter Ertragsfähigkeit und hoher Wasserdurchlässigkeit und einem geringen Skelettanteil (Tabelle 1). Die Bodenkenndaten weisen diesen Boden als schwach alkalischen, kalkreichen, schwach humosen, lehmigen Schluff aus. Die

Kationenverhältnisse am Sorptionskomplex sind ausgewogen.

Boden II

Es handelt sich um eine kalkfreie Lockersedimentbraunerde aus feinem Kolluvium und Quartärsedimenten mit mäßigem bis hohem Skelettanteil. Die Texturanalyse weist den Boden als schluffigen Sand aus. Die Bodenreaktion ist sauer und die Versorgung mit extrahierbarem Kalium und Magnesium ist extrem niedrig (Tabelle 1).

Boden III

Diese Felsbraunerde auf Silikatgestein hat einen hohen bis sehr hohen Grobanteil und ist daher vermutlich für Wasser stark durchlässig. Der Versuchsboden ist als kalkfreier mittelhumoser lehmiger Sand mit saurer Reaktion einzustufen (Tabelle 1). Die Kaliumversorgung ist hoch, die Phosphorversorgung niedrig und die Magnesiumgehalte sind ausreichend.

Boden IV

Der vierte Boden ist ein aktuell trockengefallener Gley

aus altem silikatischem Verwitterungsmaterial mit mäßigem bis hohem Grobanteil (Tabelle 1). Der Boden kann als stark humoser, saurer Schluff (0–40 cm) bzw. lehmiger Sand (40–75 cm) eingestuft werden. Die Phosphor- und Kaliumversorgung ist sehr niedrig, die Magnesiumversorgung sehr hoch (Tabelle 1).

2.2 Versuchsdurchführung

2.2.1 Einbringung der Radionuklide

Definierte Volumina der konzentrierten Radionuklidlösungen, deren Aktivitäten auf einem HPGe-Detektor mit 30 % relativer Ansprechwahrscheinlichkeit zuvor bestimmt worden waren, wurden in ca. 500 ml aqua dest übergeführt und damit eine gesiebte (< 2 mm) Teilmenge des jeweiligen Versuchsbodens von ca. 1 kg gesättigt. Nach der Trocknung bei ca. 105° C erfolgte die Vermahlung des kontaminierten Bodens mittels Achatplanetenmühle. Der gesamte Oberboden (0 bis 20 cm) des jeweiligen Lysimetergefäßes wurde in einen 1 m³ fassenden Zwangsmischer eingebracht und mit der kontaminierten Teilmenge gemischt. Die mit die-

Tabelle 1: Analysendaten der vier Lysimeterböden
Table 1: Characteristics of the four experimental soils in the lysimeter

Parameter	Boden I			Boden II			Boden III			Boden IV		
	0–20cm	20–40cm	40–75cm	0–20cm	20–40cm	40–75cm	0–20cm	20–40cm	40–75cm	0–20cm	20–40cm	40–75cm
pH _{CaCl2}	7,5	7,6	7,8	4,6	5,2	5,3	5,1	4,7	4,7	5,9	4,9	5,0
% Feinkies	0,7	0,4	0,2	11,9	12,1	11,2	11,2	15,8	13,0	17,5	17,2	31,1
% Mittel- und Grobkies	0,4	0,7	0,0	6,1	9,2	9,7	20,8	44,4	29,1	0,5	1,2	24,0
% Sand	17	16	14	48	48	44	61	62	62	24	32	59
% Schluff	65	66	71	43	43	47	27	29	30	62	55	29
% Ton	18	18	15	9	9	9	12	9	8	14	13	12
% Humus	1,5	1,1	0,3	2,4	1,2	1,1	2,6	0,9	0,6	5,2	2,7	0,7
%CaCO ₃	18,3	22,5	40,0	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
mgK ₂ O/100g ¹⁾	11,7	2,3	< 2	< 2	< 2	< 2	34,9	24,5	11,8	5,2	7,3	12,5
mgP ₂ O ₅ /100g ¹⁾	16,2	8,3	0,5	6,6	3,7	3,3	7,1	< 2,0	< 2,0	3,8	< 2,0	< 2,0
mVal Ca/100g ²⁾	12,3	12,1	9,6	4,1	2,6	2,1	5,9	6,0	6,5	15,7	4,4	4,0
mVal Mg/100g ²⁾	1,5	1,3	0,90	0,18	0,08	0,04	1,3	1,3	1,5	3,4	1,8	2,0
mVal K/100g ²⁾	0,4	0,2	0,1	0,05	0,04	0,05	1,4	0,86	0,38	0,17	0,21	0,34
mVal Na/100g ²⁾	0,1	0,1	0,1	0,07	0,05	0,06	0,09	0,07	0,10	0,35	0,16	0,14
Wasserleitfähigkeit m/d ³⁾		0,64	0,65		1,80	0,56		0,54	0,33		0,056	0,52
Wasserleitfähigkeit m/d ⁴⁾		3,7·10 ⁻¹	9,4·10 ⁻²		2,8·10 ⁻¹	2,6·10 ⁻¹		1,1·10 ⁻¹	6,0·10 ⁻²		3,8·10 ⁻²	
		(0)	(0)		(0)	(0)		(0)	(0)		(0)	
		9,1·10 ⁻³	6,9·10 ⁻³		1,4·10 ⁻²	7,7·10 ⁻³		1,5·10 ⁻²	2,0·10 ⁻²		1,3·10 ⁻³	6,1·10 ⁻³
		(26,8)	(30,1)		(24,5)	(35,3)		(26,2)	(24,4)		(29,1)	(33,3)
		2,8·10 ⁻³	5,0·10 ⁻³		2,6·10 ⁻³	5,5·10 ⁻³		3,9·10 ⁻³	7,4·10 ⁻³		1,1·10 ⁻³	5,1·10 ⁻⁴
		(40,5)	(44,6)		(43,8)	(47,8)		(46,3)	(35,7)		(45,2)	(51,0)
		6,8·10 ⁻⁴	2,1·10 ⁻³		9,3·10 ⁻⁴	2,4·10 ⁻³		7,2·10 ⁻⁴	1,2·10 ⁻³		7,0·10 ⁻⁴	2,8·10 ⁻⁴
		(72,6)	(81,0)		(78,1)	(82,0)		(78,4)	(74,0)		(75,6)	(82,7)
		3,0·10 ⁻⁴	1,2·10 ⁻³		6,2·10 ⁻⁴	1,9·10 ⁻³		3,5·10 ⁻⁴	6,2·10 ⁻⁴		3,4·10 ⁻⁴	1,9·10 ⁻⁴
		(109,0)	(119,2)		(114,4)	(118,8)		(116,9)	(113,3)		(114,6)	(120,8)
		1,2·10 ⁻⁴			3,2·10 ⁻⁴	5,9·10 ⁻⁴		1,1·10 ⁻⁴	1,8·10 ⁻⁴		6,5·10 ⁻⁵	5,0·10 ⁻⁵
		(256,3)			(265,7)	(260,3)		(267,0)	(270,5)		(270,5)	(269,3)

¹⁾ CAL- oder DL-Werte ²⁾ BT-Methode ³⁾ Wasserleitfähigkeit im gesättigten Zustand ⁴⁾ Wasserleitfähigkeit als Funktion des Druckpotentials in mbar (in Klammer)

ser Methode erzielte Homogenität der Einbringung ist zufriedenstellend, was durch die niedrigen Standardabweichungen der Mittelwerte von jeweils drei getrennt gezogenen Proben von 0 bis 9% (im Mittel ca. < 5 %) dokumentiert wird (GERZABEK et al., 1991).

Die Grundgehalte der in den Böden enthaltenen Radionuklide, d. h. die Aktivitätskonzentration der im Boden vorhandenen Radionuklide vor der Einbringung der zusätzlichen Aktivitäten sind ebenfalls aus Tabelle 2 zu entnehmen. Die mittleren zugesetzten Aktivitätsmengen pro Gefäß betragen $588,0 \pm 30,8$ kBq ^{137}Cs , $687,9 \pm 40,7$ kBq ^{60}Co und $79,0 \pm 8,5$ kBq ^{226}Ra . Die daraus resultierenden mittleren Aktivitätskonzentrationen in den einzelnen Oberböden (0–20cm) nach der Kontaminierung sind aus Tabelle 2 ersichtlich. Die Unterschiede der verschiedenen Aktivitätskonzentrationen in den Oberböden ergeben sich aus der Kontamination eines definierten Bodenvolumens mit unterschiedlicher Lagerungsdichte. Zusätzlich zu den ^{137}Cs -Kontaminationswerten finden sich in Tabelle 2 auch die Beiträge des ^{137}Cs -Fallout aus dem Reaktorunfall in Tschernobyl und den Kernwaffentests. Verglichen mit dem Aktivitätsgehalt in den Böden vor der Einbringung, liegt der Gehalt an ^{137}Cs bei etwa dem 20–50fachen der Konzentration verursacht durch den Tschernobylfallout und die oberirdischen Kernwaffentests. ^{60}Co ist im Boden üblicherweise – außer bei künstlichen Kontaminationen – nicht nachweisbar. Die Kontamination wurde so gewählt, daß die Bestimmung des Boden-Pflanze Transfers leicht möglich ist, ohne eine radiologische Gefährdung darzustellen. Der

Tabelle 2: Mittlere ^{137}Cs -, ^{60}Co - und ^{226}Ra -Konzentrationen (Bq/kg) in den Oberböden (0–20 cm) der vier Lysimeterböden nach der künstlichen Kontaminierung

Table 2: Mean ^{137}Cs -, ^{60}Co - and ^{226}Ra -concentrations (Bq/kg) in topsoils (0–20 cm) of the four investigated soils after artificial contamination

Boden	n = 3		
	$^{137}\text{Cs}^{1)}$	^{60}Co	$^{226}\text{Ra}^{2)}$
LYS I	2301 ± 51 (54 ± 6)	2652 ± 67 (n.n.)	341 ± 18 (46 ± 3)
LYS II	2445 ± 254 (182 ± 82)	2668 ± 282 (n.n.)	350 ± 61 (24 ± 4)
LYS III	2143 ± 147 (158 ± 10)	2302 ± 177 (n.n.)	322 ± 14 (60 ± 7)
LYS IV	3972 ± 272 (278 ± 33)	4281 ± 306 (n.n.)	535 ± 83 (51 ± 7)

¹⁾ Zahlen in Klammer geben die Grundaktivität durch den Tschernobylfallout und die oberirdischen Kernwaffenversuche an.

²⁾ Zahlen in Klammer geben die natürlichen Ausgangsgehalte an.

künstliche ^{226}Ra -Gehalt in den Oberböden liegt etwa eine Größenordnung über dem natürlichen Gehalt. Wegen der hohen Radiotoxizität dieses Radionuklids wurde diese Limitierung bei der Kontamination gewählt, obwohl dadurch Schwierigkeiten bei der Auswertung der Radiumauswaschung in Kauf genommen werden mußten.

2.2.2 Bestimmung der Sickerwassermengen

Die Wasserdynamik der Lysimeteranlage wurde jeweils für sechsmonatige Perioden ermittelt (27. 8. 1990–11. 3. 1991; 12. 3. 1991–26. 8. 1991, 27. 8. 1991–2. 3. 1992; 3. 3. 1992–15. 9. 1992; 16. 9. 1992–4. 3. 1993; 5. 3. 1993–1. 9. 1993). 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. Somit konnte den Sickerwassermengen die Gesamtzufuhr gegenübergestellt werden. Vernachlässigt man die unterschiedlichen durchschnittlichen Anfangswassergehalte der Bodenprofile, die in den Monolithen aufgrund der zunächst fehlenden Instrumentierung nicht gemessen werden konnten, läßt sich als Differenz grob die Evapotranspiration abschätzen. Zur Information seien an dieser Stelle die angebauten Kulturen angeführt: Winterendivie (1990), Mais (1991), Winterweizen (1991/1992), Gelbsenf (*Sinapis alba*, 1992), Zuckerrübe (1993). Die mittleren Erträge betragen 13.618 kg/ha (Maiskorn), 3.791 kg/ha (Winterweizenkorn), 26.519 kg/ha (Gelbsenf, Frischsubstanz) und 50.864 kg/ha (Zuckerrübe).

2.3 Radionuklidmessungen

Die bereits vorhandene Radioaktivität (^{226}Ra , ^{60}Co , ^{137}Cs) der Versuchsböden und die Aktivität nach der künstlichen Kontamination wurde gammaspektrometrisch bestimmt. Das verwendete Gammaskpektrometer besteht aus einem HP-Germaniumdetektor mit 30 % relativer Effizienz in low-level-Ausführung (Kupferkappe, U-Anordnung etc.) in einer schweren Abschirmung, bestehend aus 10 cm Altblei und 5 cm Elektrolytkupfer angeordnet in einem low-level-Meßraum, dessen Wände aus ausgesuchtem aktivitätsarmen Beton mit ca. 30 cm Wandstärke bestehen. ^{137}Cs wurde über die Gammalinie 661,6 keV, ^{60}Co über die Linien 1173,2 und 1332,5 keV bestimmt. ^{226}Ra wurde

sowohl direkt über die eigene 185 keV-Linie als auch – wesentlich empfindlicher – über dessen Folgeprodukte ²¹⁴Bi und ²¹⁴Pb (609 und 351 keV) bestimmt. Dazu wurden die Proben in ein dicht abschließendes Gefäß verbracht und unter Abschluß drei Wochen gelagert, sodaß ²²⁶Ra mit den Tochterprodukten im radioaktiven Gleichgewicht war. Die Aktivitätsbestimmung der Tochterprodukte erfolgte nach einer Lagerzeit von 3 Wochen.

Die Nachweisgrenze nach ÖNORM S5250 (Fehler 1. und 2. Art von je 0,05) betrug in allen Fällen bei 50000 s Meßzeit ca. 0,6 bis 1 Bq/kg Boden.

Wesentlich schwieriger gestalteten sich die Aktivitätsbestimmungen in den Durchflüssen. Wegen der zu erwartenden, viel geringeren Aktivitätskonzentrationen mußte eine vergleichsweise aufwendige Probenahme und Aufbereitung durchgeführt werden. Um eine ausreichend niedrige Nachweisgrenze zu erreichen, wurden die Durchflüsse von jeweils sechs Monaten gesammelt und bis zur nahezu trockenen Lösung (< 100 ml) eingengt. Dazu verwendete man pro Lysimetergefäß zwei 5000 ml Kunststoffbechergläser, in denen die ausgetretene Bodenlösung in einem speziell für diesen Zweck adaptierten Trockenschrank (zusätzliche Absaugvorrichtung, um der Kondenswasserbildung im Innenraum vorzubeugen) bei 60–70° C eingengt wurde.

Die eingengte Bodenlösung wurde dann gemeinsam mit den darin ausgefallenen Feststoffen in ein Quarzröhrchen übergeführt. Wegen der stark unterschiedlichen Rückstandsvolumina wurden Glasröhrchen mit zwei verschiedenen Durchmessern verwendet; für kleinere Probevolumina bis zu 10 ml eines mit einem Innendurchmesser von 13 mm, für die größeren Probevolumina solche mit einem Innendurchmesser von 19 mm. Die Glasröhrchen wurden nach Befüllung dicht abgeschweißt, um einen vollständigen Einschluß des Radons im Meßbehälter sicherzustellen. Die zugeschweißten Glasröhrchen wurden über einen Zeitraum von mindestens 3 Wochen vor der Messung gelagert. Dadurch war ²²²Rn (Halbwertszeit 3,83 d) und damit auch die Tochterprodukte ²¹⁴Bi und ²¹⁴Pb praktisch im radioaktiven Gleichgewicht mit ²²⁶Ra, dessen Aktivitätsgehalt in der Probe zu bestimmen war. Die Messung des Radiumgehaltes erfolgte über die Messung der Gammalinien der Folgeprodukte, die eine wesentlich höhere Emissionswahrscheinlichkeit aufweisen als die intensivste Gammalinie von ²²⁶Ra. Dadurch konnte die Nachweisgrenze um etwa einen Faktor 20 verbessert werden. Die nach drei Wochen sehr geringen Abweichungen vom radioaktiven Gleichgewicht ($\tau = \text{unendlich}$) wurden entsprechend der Funktion $1 - e^{-\lambda t}$ korrigiert.

Die Probenröhrchen wurden auf dem gleichen 30 % HPGe-Detektor im low-level-Meßraum gemessen. Die Röhrchen befanden sich dabei in einer parallelen Position, seitlich direkt neben dem Detektor, so daß eine optimale Ansprechwahrscheinlichkeit und damit minimale Nachweisgrenze gegeben war. Bei einer Meßzeit von 50000 s betrug die Nachweisgrenze etwa 0,1 Bq ⁶⁰Co, 0,1 Bq ¹³⁷Cs bzw. 0,2 Bq ²²⁶Ra in der Probe. Dies entspricht je nach gesammelter Menge und Bodenlösung einer Konzentration von 2–6 mBq/l Aktivität im Sickerwasser (4–12 mBq/l ²²⁶Ra), bzw. einer insgesamt pro Halbjahr in die Bodenlösung übergetretenen Aktivität von 0,1 – 0,3 Bq ⁶⁰Co bzw. ¹³⁷Cs oder 0,2 Bq ²²⁶Ra.

3. Ergebnisse und Diskussion

3.1 Sickerwassermengen

Die Wasserdynamik der ersten sechs Halbjahre des Lysimeterbetriebes ist in den Tabellen 3 und 4 dargestellt. Bei der

Tabelle 3: Niederschlagssummen (mm) und Gießmengen (mm) pro Halbjahr

Table 3: Precipitation (mm) and irrigation (mm) during the investigated six month periods

Halbjahr	Niederschlag	Gießmenge	Gesamtmenge
1 (27. 8. 90–11. 3. 91)	218,8	0	218,8
2 (12. 3. 91–26. 8. 91)	367,4	150	517,4
3 (27. 8. 91–2. 3. 92)	198,1	35	233,1
4 (3. 3. 92–15. 9. 92)	232,4	50	282,4
5 (16. 9. 92–4. 3. 93)	222,7	0	222,7
6 (5. 3. 93–1. 9. 93)	215,0	180	395,0

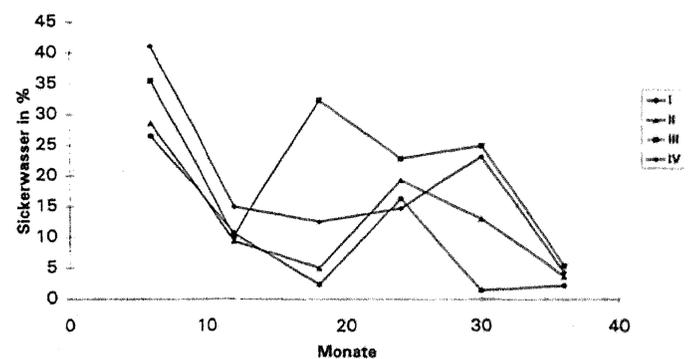


Abbildung 1: Sickerwasseranfall in Prozent der aufgebrachtten Gesamtmenge (Niederschlag + Gießwasser); I: kalkhaltige Lockersedimentbraunerde, II: kalkfreie Lockersedimentbraunerde, III: Felsbraunerde auf Silikatgestein, IV: trockenengefällener Gley

Figure 1: Seepage water in percent of the sum of precipitation and irrigation; I: Eutric Cambisol, II: Dystric Cambisol, III: Dystric Cambisol, IV: Dystric Gleysol (drained)

Tabelle 4: Sickerwassermengen und errechnete Evapotranspiration der Halbjahre 1 bis 6 in mm
 Table 4: Seepage water and calculated evapotranspiration for the half years periods 1 to 6 in mm

Boden	Halbjahr 1		Halbjahr 2		Halbjahr 3		Halbjahr 4		Halbjahr 5		Halbjahr 6	
	DF	ET										
I	57,9 ± 6,8	160,9 ± 6,8	55,5 ± 13,0	461,9 ± 13,0	5,3 ± 3,0	227,8 ± 3,0	46,0 ± 10,5	236,4 ± 10,5	3,2 ± 5,5	219,5 ± 5,5	8,7 ± 15,0	386,3 ± 15,0
II	62,6 ± 11,7	156,2 ± 11,7	48,8 ± 11,2	468,6 ± 11,2	11,7 ± 16,1	221,4 ± 16,1	54,4 ± 6,0	228,0 ± 6,0	29,0 ± 16,5	193,7 ± 16,5	14,7 ± 2,3	380,3 ± 2,3
III	77,6 ± 16,4	141,2 ± 16,4	53,0 ± 13,6	464,4 ± 13,6	75,5 ± 2,0	157,6 ± 2,0	64,3 ± 5,5	218,1 ± 5,5	55,4 ± 4,4	167,3 ± 4,4	21,2 ± 7,2	378,8 ± 7,2
IV	90,0 ± 35,1	128,8 ± 35,1	77,5 ± 25,0	439,6 ± 25,0	29,2 ± 12,0	203,9 ± 12,0	41,6 ± 1,8	240,8 ± 1,8	51,5 ± 2,0	171,2 ± 2,0	17,0 ± 16,5	378,0 ± 16,5

DF ... Durchfluß

ET ... Evapotranspiration

GD_{5%} (Halbjahre) = 16,6 l DurchflußGD_{5%} (Böden) = 16,9 l Durchfluß

Durchsicht der Daten fällt die große Variabilität zwischen den Wiederholungen der vier Versuchsböden auf. Dies ist auf die monolithische Bodenentnahme zurückzuführen. Strenggenommen können die drei Monolithe eines Standortes nicht als echte Wiederholungen angesehen werden. Diesem Nachteil der monolithischen Bodenentnahme steht der Vorteil der offensichtlich geringen Zeitspanne der Einstellung eines Gleichgewichtszustandes gegenüber. Betrachtet man z. B. den Sickerwasseranfall der gesamten auf die Lysimeter aufgetragenen Wassermenge (Abbildung 1), wird deutlich, daß nur im ersten Halbjahr ein ungewöhnlich starker Durchfluß festzustellen war. Bereits ab dem zweiten Halbjahr wurden Werte in Größenordnungen beobachtet, wie sie dann auch in weiterer Folge auftraten. Die mittlere halbjährige Sickerwassermenge lag, unter Ausschluß der Daten des ersten Halbjahres, zwischen 3,9 % (6. Halbjahr) und 18,3 % (4. Halbjahr). Als Mittel über alle sechs Halbjahre ergibt sich ein Prozentsatz von 15,7 %.

Über den hier betrachteten dreijährigen Versuchszeitraum war ein deutlich unterschiedliches Verhalten der vier Versuchsböden zu beobachten. Die beiden Lockersedimentbraunerden (I und II) zeigten einen Sickerwasseranteil von rund 10 %, die silikatische Felsbraunerde und der trockengefallene Gley über ähnlichem Untergrund einen Wert von etwa 20 %. Betrachtet man die bodenphysikalischen Kennwerte (Tabelle 1), läßt sich dieses Verhalten eigentlich in einfacher Weise nicht erklären. So ist z. B. die Wasserleitfähigkeit im gesättigten Zustand bei den Böden I und II höher als bei den Böden III und IV. Auch die Wasserleitfähigkeit im ungesättigten Zustand weist nicht in die beobachtete Richtung. Ein weiterer Erklärungsansatz wäre die Abhängigkeit der Transpiration von der Trockensubstanzproduktion auf den verschiedenen Lysimetern. Der Versuch der Herstellung einer linearen Beziehung zwischen der gesamten Trockensubstanzproduktion der Lysimetergefäße und der gesamten Evapotranspiration während der

Versuchsperiode schlägt mit einem Korrelationskoeffizient von $r = 0,0304$ fehl. Als einziger Erklärungsansatz bietet sich der Skelettanteil der Böden an, der ja, insbesondere im Falle größerer Skelettbestandteile (mehrere cm) kaum in die Ergebnisse der bodenphysikalischen Analysen einfließt. Boden III, der die höchsten Sickerwassermengen aufweist, hat den weitaus größten Anteil an Mittel- und Grobkies (> 6,3 mm, Tabelle 1), Boden IV besteht in einer Tiefe von 40–75 cm zu einem Viertel aus Mittel- und Grobkies. Ganz allgemein muß allerdings festgehalten werden, daß die in diesem Versuch benutzte Lysimeteranlage nicht primär für die Erstellung einer Wasserbilanz konzipiert wurde. Insbesondere die Profilmächtigkeit von 75 cm, die sich aus den für mögliche Endlagerstandorte relevanten Bodentypen ergab, ist für den pannonischen Klimaraum eher gering und kann in Kombination mit dem aus strahlenschutztechnischen Gründen nur 0,5 m breiten Bewuchsmantel zu Abweichungen von der natürlichen Situation führen (KLAGHOFER, 1991, KLAGHOFER und STENITZER, 1984).

3.2 Radionuklidauswaschung

Die Ergebnisse der Aktivitätskonzentrationen im Sickerwasser sind in der Tabelle 5 wiedergegeben. Generell kann festgestellt werden, daß die Aktivitätskonzentrationen im Sickerwasser sehr gering sind. Für ¹³⁷Cs wurde trotz der aufwendigen Probenvorbereitung und Aufkonzentration in fast allen Fällen nicht einmal die Nachweisgrenze überschritten. Dies kann auch als Nachweis dienen, daß es zu keinen oder nur zu extrem geringen Randeffekten (preferential flow) in den Lysimetergefäßen mit Verlagerung kontaminierter Bodenkolloide, sogar im ersten Durchflußhalbjahr, kam. Nimmt man z. B. den wahren Wert der ausgewaschenen ¹³⁷Cs-Aktivität bei der halben Nachweisgrenze an, könnten im Gefäß IV/3, das den höchsten Wert im ersten Halbjahr aufweist, maximal 58 mg des kontaminierten Oberbodens ausgewaschen worden sein. Bezieht man

diese Menge auf die Sickerwassermenge, ergibt sich ein theoretischer Bodenaustrag von maximal 1,17 mg/l bei der unwahrscheinlichen Annahme eines ausschließlich partikulären Transports. Man kann also annehmen, daß die in Tabelle 5 angegebenen Werte der Verlagerung aller untersuchten Radionuklide im überwiegend gelösten oder komplexierten Zustand entsprechen.

Die Unterschiede zwischen den Nukliden erwiesen sich erwartungsgemäß als wesentlich größer als zwischen den Versuchsböden. Die Aktivitätskonzentrationen im Sickerwasser (Tabelle 5) für ²²⁶Ra : ⁶⁰Co : ¹³⁷Cs verhielten sich unter Berücksichtigung der Auswertung der ersten sechs Durchflußhalbjahre wie 100 : 23 : < 4,9, wobei bei dieser Berechnung die unterschiedlichen Radionuklidgehalte im Boden noch unberücksichtigt blieben. Dieses sehr deutliche Ergebnis läßt sich auf das unterschiedliche Bindungsverhalten der Radionuklide im Boden und die natürlichen Aktivitätsgehalte zurückführen. ¹³⁷Cs wird in mineralischen Böden zum größten Teil in Tonmineralen gebunden (GERZABEK et al., 1992). Die chemische Ähnlichkeit zu Kalium erlaubt dem Cs das Einwandern in Tonmineralzwischenräumen, wodurch sich die geringe Mobilität ergibt. Cobalt liegt bei pH-Werten unter 5 als Co²⁺-Ion in der Bodenlösung vor, bei steigenden pH-Werten nimmt der Anteil löslicher organischer Komplexe zu und erreicht bei pH-Werten von über 6 mehr als 90 % (SCHEFFER und SCHACHTSCHABEL, 1989). Cobalt-Adsorption kommt vor allem bei Eisen- und Manganoxiden vor, wobei auch Okklusionen im Inneren von Oxiden bekannt sind (SCHEFFER und SCHACHTSCHABEL, 1989). Die im Vergleich zum Cäsium wesentlich höheren Verlagerungen von Cobalt gehen jedoch höchstwahrscheinlich darauf zurück, daß die bei einwertigen Kationen beobachtete starke Fixierung

durch einige Tonminerale, bei zweiwertigen Kationen nicht möglich ist (SCHIMMACK und BUNZL, 1992). Die relativ höchsten Cobalt-Verlagerungen zeigten die Böden III und I (Abbildung 2). Die hohen Auswaschungsraten von Boden III können durch den größten Sickerwasseranfall im Vergleich zu allen anderen Versuchsböden (Abbildung 1) bedingt sein, da die Aktivitätskonzentrationen im Sickerwasser gegenüber den Böden II und IV kaum erhöht sind. Teilchentransport, wie er von TOROK et al. (1990) beobachtet wurde, kann dabei nur eine geringe Rolle spielen, da in diesem Fall auch die ¹³⁷Cs-Verlagerung eine signifikante wäre. Es ist daher sowohl bei den zwischen Co und Cs unterschiedlichen Radionuklidkonzentrationen im Sickerwasser, als auch bei den Bodenunterschieden, die für Co beobach-

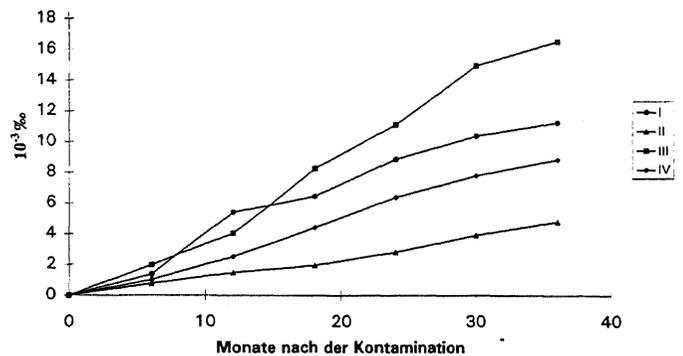


Abbildung 2: Summenkurven der ⁶⁰Co-Auswaschung für die ersten 36 Monate nach der Kontaminierung der Lysimeteroberböden. I: kalkhältige Lockersedimentbraunerde, II: kalkfreie Lockersedimentbraunerde, III: Felsbraunerde auf Silikargestein, IV: trockengefallener Gley

Figure 2: Cumulative ⁶⁰Co-leaching during the first 36 month after the artificial contamination of the topsoils. I: Eutric Cambisol, II: Dystric Cambisol, III: Dystric Cambisol, IV: Dystric Gleysol (drained)

Tabelle 5: Aktivitätskonzentrationen im Sickerwasser in mBq/l
Table 5: Activity concentrations in seepage water (mBq/l)

Boden	1. Halbjahr			2. Halbjahr			3. Halbjahr			4. Halbjahr			5. Halbjahr			6. Halbjahr		
	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co
I	83 ± 15	<2	18 ± 6	105 ± 19	<4	55 ± 14	106 ± 11	<20	179 ± 64	52 ± 23	<6	40 ± 23	343	54	342	71	<7	72
II	75 ± 32	<3	9 ± 2	180 ± 19	<3	10 ± 2	305 ± 163	<18	49 ± 41	273 ± 102	<4	16 ± 3	316 ± 261	<10	41 ± 38	172 ± 67	<10	42 ± 2
III	196 ± 95	<3	16 ± 0	254 ± 61	<5	25 ± 3	121 ± 88	<5	35 ± 21	103 ± 25	<3	29 ± 2	141 ± 43		45 ± 18	110 ± 44	<12	45 ± 13
IV	272 ± 14	<3	8 ± 1	532 ± 503	<7	15 ± 6	317 ± 4	<10	48 ± 14	127 ± 71	<5	32 ± 5	190 ± 116	<4	19 ± 6	164 ± 138	<19	118 ± 154

⁶⁰Co: GD_{5%} (Halbjahre) = 47 mBq/l
²²⁶Ra: GD_{5%} (Halbjahre) = 128 mBq/l

GD_{5%} (Böden) = 38 mBq/l
GD_{5%} (Böden) = 101 mBq/l

tet wurden, von Transport in gelöster oder komplexierter Form auszugehen. Die hohen Cobalt-Verlagerungen im Boden I entziehen sich derzeit einer schlüssigen Erklärung.

Radium als Erdalkalielelement sollte sich generell im Boden relativ mobil verhalten. Vergleicht man allerdings die als „beste Schätzwerte“ veröffentlichten K_d -Werte von Radium mit jenen von Cobalt und Cäsium, läßt sich diese Vermutung nicht aufrechterhalten (IAEA, 1994). In sandigen Böden wird ein K_d -Wert für Radium von etwa 490 l/kg (Lehm: 36000, Ton: 9000) angenommen, jener für Cäsium wird mit 270 l/kg (Lehm: 4400, Ton: 1800) und jener für Cobalt mit 60 l/kg (Lehm: 1300, Ton: 540) angegeben. Nach KABATA-PENDIAS und PENDIAS (1984) reichert sich Radium in der Tonfraktion an. Darüber hinaus kann das zweiwertige Kation stark an Hydroxide des Mangan und Eisen gebunden werden. Das bedeutet aber, daß Radium im Boden eher weniger mobil ist.

Die vorliegenden relativ hohen Aktivitätsmengen im Sickerwasser scheinen dem zu widersprechen. Allerdings muß im Falle des Radiums beachtet werden, daß im gesamten Boden ein vorgegebener natürlicher Gehalt an ^{226}Ra zu finden ist, der in den Oberböden im Mittel 12% der zuge-setzten Aktivität ausmacht. Da ähnliche Aktivitätskonzentrationen auch im Unterboden und insbesondere auch in dem der Sickerwasserentnahme nächsten Bodenhorizont gegeben sind, sind ein Großteil der im Sickerwasser gefundenen ^{226}Ra -Mengen auf die Auswaschung von natürlichem ^{226}Ra aus den unteren Bodenschichten und nicht auf eine Verlagerung von ^{226}Ra aus dem kontaminierten Oberboden durch die dazwischen liegenden Schichten zurückzuführen.

Um diese Frage zu klären, wurde das Verhalten des zweiten im Boden vorkommenden Radiumisotops ^{228}Ra betrachtet. Dieses aus dem ^{232}Th -Zerfall stammende Radio-

nuklid ist chemisch identisch und sollte sich daher im Boden gleich wie ^{226}Ra verhalten. Da es im Oberboden nicht künstlich zugefügt wurde, kann ein Auftreten im Sickerwasser nur auf das natürlich vorkommende Radionuklid zurückgeführt werden. Zu diesem Zweck wurde das Verhältnis der beiden natürlich vorkommenden Radium-Isotope ^{226}Ra und ^{228}Ra betrachtet. ^{228}Ra steht mit seinem kurzlebigen Tochternuklid ^{228}Ac (Halbwertszeit: 6,13 h) im Gleichgewicht und wird über dieses bestimmt, man kann daher unmittelbar die $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ac}$ -Verhältnisse heranziehen. Da davon auszugehen ist, daß sich die beiden natürlichen Radiumisotope im Boden gleich verhalten und ^{228}Ac (^{228}Ra) nur aus natürlichen Quellen stammen kann, da der Oberboden nur mit ^{226}Ra kontaminiert wurde, kann aus der Ermittlung der Verhältnisse in den verschiedenen Bodenhorizonten sowie im Sickerwasser auf die Quelle des Radiums im Sickerwasser geschlossen werden. Das mittlere $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ac}$ -Verhältnis in den Unterböden wurde mit $1,05 \pm 0,30$ ermittelt. Im Sickerwasser beträgt das Verhältnis $1,19 \pm 0,18$. Vom statistischen Standpunkt ist somit kein Unterschied der beiden Isotopenverhältnisse gegeben. Dies bestätigt die Annahme, daß das ^{226}Ra im Sickerwasser praktisch ausschließlich aus dem natürlichen ^{226}Ra im Unterboden und nicht aus der Kontamination des Oberbodens stammt. Würde man dennoch unter Heranziehung des $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ac}$ -Verhältnisses im Oberboden von $9,01 \pm 3,82$ den Anteil von ^{226}Ra im Sickerwasser aus dem Oberboden abschätzen, ergäbe sich ein mittlerer Wert von 1,76 %.

Bezieht man die halbjährlichen Auswaschungsverluste auf die jeweiligen Radionuklidgehalte im Oberboden (Tabelle 6), berechnet man also Frachten im Sinne prozentueller Anteile die durch das Sickerwasser insgesamt aus dem Oberboden ausgewaschen wurden, zeigt auch bei dieser

Tabelle 6: Anteil der Radioaktivität im Sickerwasser relativ zur Gesamtaktivität im Oberboden ($10^{-3}0/00$)

Table 6: Portion of activity in seepage water relative to the total activity in topsoils ($10^{-3}0/00$)

Boden	1. Halbjahr		2. Halbjahr		3. Halbjahr		4. Halbjahr		5. Halbjahr		6. Halbjahr		n = 3
	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co	^{137}Cs	^{60}Co	
I	<0,19	1,37 ± 0,30	<0,36	4,04 ± 0,45	<0,20 ¹⁾	1,04 ± 0,90 ¹⁾	<0,41	2,42 ± 0,98	0-0,79 ²⁾	0-4,54 ²⁾	0 - <0,29 ²⁾	0 - 0,87 ²⁾	
II	<0,28	0,77 ± 0,18	<0,24	0,71 ± 0,25	<0,30 ¹⁾	0,48 ± 0,43 ¹⁾	<0,36 ¹⁾	0,86 ± 0,76 ¹⁾	<0,30	1,09 ± 0,23	<0,23	0,88 ± 0,14	
III	<0,42	1,98 ± 0,41	<0,46	2,06 ± 0,39	<0,58	4,21 ± 2,65	<0,34	2,87 ± 0,20	<0,43	3,83 ± 1,38	<0,51	1,56 ± 0,91	
IV	<0,39	1,01 ± 0,49	<0,72	1,52 ± 0,40	<0,43	1,88 ± 0,27	<0,34	1,97 ± 0,38	<0,29	1,41 ± 0,36	<0,23	1,05 ± 0,53	

¹⁾ Durchfluß nur in zwei der drei Lysimeter
 ^{60}Co : $\text{GD}_{5\%}$ (Halbjahre) = $1,07 \cdot 10^{-3}0/00$

²⁾ Durchfluß nur in einem der drei Lysimeter
 $\text{GD}_{5\%}$ (Böden) = $0,76 \cdot 10^{-3}0/00$

Betrachtungsweise ^{60}Co die höchsten Werte. Die mittleren Auswaschungsraten für ^{60}Co und ^{137}Cs betragen $1,80 \cdot 10^{-3} \text{ ‰}$ bzw. $< 0,35 \cdot 10^{-3} \text{ ‰}$. Das Verhältnis von $^{60}\text{Co} : ^{137}\text{Cs}$ ist somit $100 : < 19$. Die aus dem Isotopenverhältnis von ^{226}Ra zu ^{228}Ac abgeschätzte mittlere Auswaschungsrate für ^{226}Ra aus dem Oberboden ist $1,58 \cdot 10^{-3} \text{ ‰}$, sie liegt somit näher zu jener des ^{60}Co als zu jener des ^{137}Cs . Allerdings muß an dieser Stelle nochmals betont werden, daß es sich dabei um einen rechnerischen Wert handelt, der mit großen Unsicherheiten behaftet ist. Betrachtet man ^{60}Co , das sehr gut auswertbar ist (Abbildung 2, Tabelle 6), erkennt man, wie auch bei der Betrachtung der Konzentrationen im Sickerwasser, sowohl statistisch signifikante zeitliche Fluktuationen, als auch signifikante Bodenunterschiede. Die höchsten absoluten Aktivitätsverluste wurden im Boden III beobachtet, gefolgt von den Böden I, IV und II, wobei die endgültige Erklärung der Ursachen der Unterschiede weiterer Untersuchungsjahre bedarf. Weder die Form der Summenkurve der ^{60}Co -Auswaschung, noch die festgestellten Aktivitätsmengen deuten auf einen erfolgten Durchbruch der aufgebrauchten Aktivität hin, sondern auf ständige geringste Verluste gelöster oder komplexierter Substanzen. Ein Durchbruch der Aktivität durch den 55 cm mächtigen nichtkontaminierten Unterboden wäre allerdings auch kaum zu erwarten. Errechnet man für den ungünstigsten Fall, jenen eines Sandbodens (z. B. Boden III) mit Hilfe des von der IAEA angegebenen K_d -Wertes von 60 l/kg für ^{60}Co die mittlere Migrationsgeschwindigkeit, so ergibt sich ein Wert von weniger als 1 cm pro Jahr. Ein Durchbruch wäre somit erst nach mehr als 55 Jahren zu erwarten, eine Zeitspanne, die im Falle des ^{60}Co mehr als 10 Halbwertszeiten entspricht. Dies bedeutet, daß die Aktivität bis zu diesem Zeitpunkt praktisch nicht mehr vorhanden wäre.

4. Schlußfolgerung

Zusammenfassend kann festgehalten werden, daß die Auswaschung der drei untersuchten Radionuklide, trotz der künstlichen Kontamination der Oberböden mit leicht löslichen Salzen, nur in äußerst geringen Mengen erfolgt. Es gibt keine Anzeichen für ein Durchbrechen der Radionuklide nach drei Versuchsjahren. Die höchste Mobilität zeigte erwartungsgemäß ^{60}Co . Die halbjährlich ausgewaschene Menge liegt bei durchschnittlich $1,6 \cdot 10^{-3} \text{ ‰}$ des Oberbodengehaltes. Die deutlich größeren ausgewaschenen Mengen an ^{226}Ra sind zum Großteil, wenn auch nicht zur Gänze, auf den Austrag von natürlichem ^{226}Ra aus dem

Unterboden zurückzuführen. Die niedrigste Auswaschung wurde für ^{137}Cs festgestellt. Sie liegt in der Regel unter der Nachweisgrenze von $0,35 \cdot 10^{-3} \text{ ‰}$ des Gehalts im Oberboden. Die ausgetragenen Mengen an ^{60}Co hängen sowohl mit den bodenchemischen Eigenschaften der Lysimeter, als auch mit dem Bodenwasserhaushalt zusammen. Endgültige Aussagen erfordern jedoch weitergehende Versuche, wie etwa Desorptionsversuch im Labor kombiniert mit tonmineralogischen Untersuchungen.

Danksagung

Die vorgestellten Untersuchungen wurden aus Mitteln der Technologieprogrammförderung des BMWFK unterstützt, wofür hier ausdrücklich gedankt wird. Die Autoren bedanken sich bei Univ.-Prof. D. I. Dr. Eduard Klaghofer und D. I. Dr. E. Stenitzer für die kritische Durchsicht des Manuskriptes und die wertvollen Diskussionsbeiträge.

5. Literatur

- BLUM, W. E. H., H. SPIEGEL und W. W. WENZEL (1989): Bodenzustandsinventur; Konzeption, Durchführung und Bewertung. 1. Auflage, Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft, Wien.
- BUNZL, K., W. SCHIMMACK, K. KREUTZER und R. SCHIERL (1989): The migration of fallout ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{106}Ru from Chernobyl and of ^{137}Cs from weapons testing in a forest soil. Z. Pflanzenernähr. Bodenkd. 152, 39–44.
- COUGHTREY, P. J. and M. C. THORNE (1983): Radionuclide distribution and transport in terrestrial and aquatic ecosystems. A critical review of data. Bände 1–3, Balke-ma, Rotterdam.
- GERZABEK, M. H. (1990): Eine einfache Vorrichtung zur Entnahme monolithischer Bodenkörper. Die Bodenkultur 41, 283–288.
- GERZABEK, M. H. und O. HORAK (1990): Die Lysimeteranlage des Österreichischen Forschungszentrums Seibersdorf. OEFZS-Bericht-4531.
- GERZABEK, M. H., O. HORAK und K. MÜCK (1990): Cs-137 soil-to-plant transfer studies and their implications on parameter used in the Austrian version of ECOSYS. In: G. DESMET, P. NASSIMBENI and M. BELLI (Eds.): Transfer of radionuclides in natural and semi-natural environments. Elsevier Applied Science, 611–618.
- GERZABEK, M. H., O. HORAK, C. ARTNER und K. MÜCK

- (1991): Untersuchung des Radionuklidtransfers im System Boden-Pflanze. OEFZS-Bericht-4568.
- GERZABEK, M. H., S. A. MOHAMAD and K. MÜCK (1992): Cs-137 in soil texture fractions and its impact on Cs-137 soil-to-plant transfer. *Comm. Soil Sci. Plant Anal.* 23, 321–330.
- GIANI, L., H. GEBHARDT, W. GUSY und H. HELMERS (1987): Verhalten einiger radioaktiver Nuklide (freigesetzt durch den Reaktorunfall in Tschernobyl) in typischen Böden Norddeutschlands. *Z. Pflanzenernähr. Bodenkd.* 150, 103–107.
- HORAK, O., S. ECKER, P. HERGER und E. BENETKA (1994): Ermittlung und Bewertung von Basisdaten zur Bilanzierung umweltrelevanter Schwermetalle in landwirtschaftlich genutzten Böden. OEFZS-Bericht-A-3211.
- IAEA (1994): Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments. International Atomic Energy Agency, Technical Reports Series No. 364.
- KABATA-PENDIAS, A. and H. PENDIAS (1984): Trace elements in soils and plants. CRC Press, Boca Raton.
- KLAGHOFER, E. und E. STENITZER (1984): Zur Frage der Bestimmung des Wasserbedarfes von Pflanzenbeständen aus Lysimetermessungen. *Z. f. Kulturtechnik und Flurbereinigung* 25, 6–11.
- KLAGHOFER, E. (1991): Bodenphysikalische Aspekte bei der Erfassung von gelösten Stoffen mit Hilfe von Lysimetern. In: Bericht über die Gumpensteiner Lysimeter-tagung „Art der Sickerwassergewinnung und Ergebnisinterpretation“, Gumpenstein, 19–23.
- MEISEL, S., M. H. GERZABEK and H. K. MÜLLER (1991): Influence of plowing on the depth distribution of various radionuclides in the soil. *Z. Pflanzenernähr. Bodenkd.* 154, 211–215.
- SCHEFFER, F. und P. SCHACHTSCHABEL (1989): Lehrbuch der Bodenkunde. 12. Auflage, Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart.
- SCHIMMACK, W., K. BUNZL and L. ZELLES (1989): Initial rates of migration of radionuclides from the Chernobyl fallout in undisturbed soils. *Geoderma* 44, 211–218.
- SCHIMMACK, W. and K. BUNZL (1992): Transport of ^{85}Sr , ^{60}Co , ^{65}Zn and ^{109}Cd in two forest soils, as observed in undisturbed soil columns. *Radiochimica Acta* 58/59, 297–303.
- SHAW, G. and X. WANG (1996): Caesium and plutonium migration in forest soils of the Chernobyl 30 km zone. *Mitt. Österr. Bodenkd. Gesell.* 53, 27–34.
- STREBL, F., M. H. GERZABEK, V. KARG and F. TATARUCH (1996): ^{137}Cs -migration in soils and its transfer to roe deer in an Austrian forest stand. *Sci. Total Environ.* 181, 237–247.
- TOROK, J., L. P. BUCKLEY and B. L. WOODS (1990): The separation of radionuclide migration by solution and particle transport in soil. *J. Contam. Hydrol.* 6, 185–203.

Anschrift der Verfasser

Univ.-Doz. Dr. Martin H. Gerzabek, Dr. Safah M. Algader und Dr. Ferdinand Steger, Bereich Lebenswissenschaften, Dr. Konrad Mück, Bereich Verfahrenstechnik, Österreichisches Forschungszentrum Seibersdorf Ges.m.b.H., A-2444 Seibersdorf.

Eingelangt am 7. März 1996

Angenommen am 24. April 1996