

Radionuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr in Getreidekörnern und deren Verteilung in Mehlfraktionen

M. Werteker, M. Friedrich und F. Schönhofer

Distribution of Radionuclides ^{137}Cs and ^{90}Sr in different fractions of flour and whole wheat kernels

1. Abnahme der Aktivität von Radionukliden nach der Katastrophe von Tschernobyl

Ende April 1986 – unmittelbar nach dem Unfall im Atomkraftwerk Tschernobyl – wurden landwirtschaftlich genutzte Böden in Österreich vor allem durch ^{131}I (25900–185000 Bq/m²), ^{134}Cs (1850–18500 Bq/m²), ^{137}Cs (3700–37000 Bq/m²) und ^{90}Sr (185–1850 Bq/m²) belastet (BURTSCHER, 1986). Genauere Werte sind neueren Publikationen zu entnehmen. Im Mai 1986 betrug demnach die mittlere Flächenkontamination Österreichs mit ^{137}Cs 21000 Bq/m² (UMWELTBUNDESAMT und BMGK, 1996). Die Kontamination ist sehr inhomogen über das Bundesgebiet verteilt und wurde wesentlich durch die meteorologischen Verhältnisse unmittelbar nach der Reaktorkatastrophe beeinflusst. Eine positive Korrelation der ^{137}Cs -Kontamination mit der zwischen 29. 4. und 2. 5. 1986 gefallenen

Niederschlagsmenge konnte nachgewiesen werden (GERZABEK et al., 1994). Die Aufnahme von Radionukliden durch die Blätter war nur für die Ernte 1986 von Bedeutung. In späteren Jahrgängen hatten nur mehr die im Boden verbliebenen Ablagerungen Einfluß auf die Radionuklidgehalte von Ernteprodukten. Wegen seiner kurzen Halbwertszeit von 8,04 Tagen verlor ^{131}I rasch an Bedeutung, sodaß in weiterer Folge nur mehr die Gehalte an ^{137}Cs und ^{90}Sr untersucht wurden.

In den ersten Jahren nach der Katastrophe kam dem ^{137}Cs der Hauptanteil an der verbliebenen Radioaktivität in Lebens- und Futtermitteln zu. Das Isotop ^{134}Cs hat eine Halbwertszeit von nur 2 Jahren und zeigt das gleiche physiologische Verhalten wie ^{137}Cs , sodaß die meisten einschlägigen, veröffentlichten Studien mit ^{137}Cs durchgeführt wurden. Die Aktivität von ^{137}Cs in Getreide sank im Zeitraum von einem Jahr nach dem Unfall auf 3–6 % des

Summary

The activity of ^{90}Sr in cereals has diminished to 0,31 Bq/kg, or similar like before the accident of Chernobyl and the one of ^{137}Cs has decreased to less than 0,16 Bq/kg in 1995. These traces are usually detected by γ -spectrometry and the application of measuring times of up to 200.000 sec. The level of ^{90}Sr -activity is mainly influenced by the traces of the bomb-fallout in the 50th and 60th. The concentration of ^{90}Sr in the flour fractions and in bran is correlated directly with the ash-content ($r = 0,92$).

Key words: Chernobyl, isotopes, cereals, flour, actual situation.

Zusammenfassung

Die Aktivität von ^{90}Sr in Getreide ist 1995 auf 0,31 Bq/kg und somit auf einen Wert wie in der Zeit vor dem Reaktorunfall in Tschernobyl abgesunken, jene von ^{137}Cs im allgemeinen auf eine Höhe von weniger als 0,16 Bq/kg. Diese Spuren werden üblicherweise durch hochauflösende γ -Spektrometrie und die Anwendung von Meßzeiten bis zu 200.000 sec nachgewiesen. Die Höhe der ^{90}Sr -Aktivität ist hauptsächlich durch Spuren nach dem Bomben-Fall-Out aus den Fünfziger- und Sechzigerjahren bestimmt. Die Konzentration von ^{90}Sr in Mehlfraktionen und Kleie ist direkt mit dem Aschengehalt korreliert ($r = 0,92$).

Schlagworte: Tschernobyl, Isotopen, Getreide, Mehl, derzeitige Situation.

Anfangswertes ab. Bei der Ernte 1986 lag die Durchschnittsaktivität bei 10 Bq/kg. 1987 wurde nur mehr ein Wert von ungefähr 0,8 Bq/kg gefunden und 1993 nur mehr 0,2 Bq/kg (MÜCK, 1995). Der Rückgang von ^{137}Cs wurde nicht nur durch seine physikalische Halbwertszeit, sondern auch durch Fixierung insbesondere in Tonmineralen des Bodens bewirkt (D'SOUZA et al., 1980). Seine Pflanzenverfügbarkeit kann allgemein als niedrig bezeichnet werden (HAUNOLD et al., 1986).

^{90}Sr leistet, wie aus den eingangs angeführten Zahlenwerten hervorgeht, nur einen vergleichsweise geringen Beitrag zur Radioaktivität des Bodens. Sr zeigt ein ähnliches Verhalten wie Ca. Es wird in den meisten Fällen fester als Ca an den Boden gebunden und wird im Vergleich zu Cs leichter aufgenommen (HORAK, 1986; NISHITA et al., 1965). Ein größerer Teil des Isotops ^{90}Sr bleibt längerfristig für die Pflanze verfügbar. Die ^{90}Sr Aktivität in den Pflanzen nimmt langsamer ab als die von ^{137}Cs . Während die Aufnahme von ^{90}Sr durch die Pflanze relativ leicht erfolgt, ist dessen Beweglichkeit innerhalb der Pflanze jedoch eher gering. Nur ein geringer Teil des ^{90}Sr wird daher in die Samen und Körner der Pflanze transportiert (ANDERSEN, 1971; BUKOVAC et al., 1965).

Bei der Ernte 1986 wurde über 0,55 Bq $^{90}\text{Sr}/\text{kg}$ bei Weizen aus den am meisten kontaminierten Gebieten berichtet. Bereits 1987 sank die ^{90}Sr Aktivität in Getreide aus den verschiedensten Regionen Österreichs auf 0,066 bis 0,29 Bq/kg (MÜCK et al., 1988). Diese Werte liegen im Bereich der Hintergrundaktivität, die bereits vom radioaktiven Fall-Out der Atombombenversuche in den Jahren 1950 bis 1970 stammt.

2. Ziel der Untersuchungen

Nach dem Unfall von Tschernobyl wurde der Gehalt an Radionukliden in Getreide genauso überwacht wie in vielen anderen Lebensmitteln. Durch die vorliegenden Untersuchungen sollte bestätigt werden, daß die Gehalte an Radionukliden gering sind und noch weiter abnehmen. 1994 betrug die Ingestionsdosis durch Radioaktivität in Österreich 1,4 % des Wertes von 1986, ^{137}Cs und ^{90}Sr machten nur 1,9 % der durch natürliche Radionuklide wie ^{14}C und ^{40}K verursachten Ingestionsdosis aus (MÜCK, 1995).

Wichtiger als die Gehalte an Radionukliden in ganzen Getreidekörnern scheinen jedoch die in Getreideprodukten insbesondere in Mehl zu sein. Es besteht nach wie vor ein

Informationsmangel über die Verteilung der Fall-Out-Produkte in diesen Materialien. Diese Studie soll versuchen, einiges an Information über die Verteilung von ^{137}Cs und ^{90}Sr an Hand der 10 Jahre nach dem Unfall von Tschernobyl noch vorhandenen Spuren dieser Isotopen zu rekonstruieren.

3. Material und Methoden

Zu den Messungen wurden Getreideproben der Ernte 1995 von Weizen, Roggen und Gerste (Winter- und Sommerarten) aus Fuchsenbigl (I), Großnondorf (II), Schönfeld (III), Zwettl (IV), Grabenegg (V), Freistadt (VI), Lambach (VII), Gleisdorf (VIII), Hörzendorf (IX) und Rinn (X) herangezogen. Die Standorte I-IX sind Versuchsstationen des Bundesamtes und Forschungszentrums für Landwirtschaft. X ist die Landesanstalt für Pflanzenzucht und Samenprüfung in Rinn (Tirol). Im Rahmen der Vermahlungsversuche wurden von Weizen aus vier ausgewählten Standorten (I, V, VI, und VII) Mehle hergestellt. Die Getreidemuster wurden durch Mischen mehrerer landwirtschaftlich bedeutender Sorten hergestellt. Für die Vermahlungsversuche mit den Proben aus Fuchsenbigl (I) wurde eine Mischung aus den Sorten Capo, Renan, Perlo und Agron verwendet. Von den anderen Stationen (V, VI, und VII) wurden Ikarus, Justus, Herzog, Hubertus und Renan zu einem Muster für den Mahlversuch zusammengefaßt. Bei den Sommerweizen wurde mit einer Mischung von Remus, Star, Nandu, Erwin und Turbo gearbeitet. Bei jedem Mahlversuch wurden etwa 10 kg Getreide auf einer Bühler-Laboratoriumswalzenmühle MLU 202 vermahlen. Dabei wurden 6 Mehlfraktionen (B1-B3, C1-C3) und zwei Kleiefraktionen erhalten. Die beiden Kleiefraktionen wurden vereinigt und auf der Kleieschleuder aschereiches Schleudermehl hergestellt.

Der Aschegehalt des Schleudermehles und der Mehlfraktionen wurde nach ICC-Standard Nr. 104 bestimmt.

Zur Durchführung der Radioaktivitätsmessungen an der Bundesanstalt für Lebensmitteluntersuchung und -forschung mußte wegen der geringen Radioaktivitätswerte jeweils die Asche der gesamten Menge einer Mehlfraktion verwendet werden. ^{137}Cs wurde durch γ -Spektrometrie und ^{90}Sr durch Flüssigszintillationsspektrometrie gemessen. Wegen der geringen Aktivitäten mußten die Meßzeiten für ^{90}Sr auf 60.000 sec und für ^{137}Cs auf 200.000 sec ausgedehnt werden. Zur Abtrennung von ^{90}Sr wurde eine Methode der Internationalen Atomenergieorganisation (IAEA, 1989) angewandt.

4. Ergebnisse

4.1 Radionuklidgehalt in Getreide

Die ⁹⁰Sr Aktivitäten des Durchschnittes aller Getreidearten (Weizen, Roggen, Gerste) der Ernte 1995 an den Standorten I bis X lagen zwischen 0,13 Bq/kg und 0,49 Bq/kg (Tab. 1). Die Mittelwerte über die verschiedenen Versuchstandorte nach Arten getrennt ergeben folgende Werte: Winterweizen 0,27 Bq/kg, Sommerweizen 0,29 Bq/kg, Winterroggen 0,31 Bq/kg, Sommergerste 0,35 Bq/kg. Die Unterschiede zwischen den Getreidearten sind nicht signifikant und liegen zum Teil im Bereich des Standardfehlers der Meßmethode.

4.2 Radionuklidgehalt in Mehlfraktionen

Tabelle 1: Durchschnittliche ⁹⁰Sr-Aktivität des Getreides an verschiedenen Standorten [Bq/kg]

Table 1: Average ⁹⁰Sr-activity of cereals in different locations [Bq/kg]

Standort	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X
⁹⁰ Sr-Akt.	0,13	0,11	0,28	0,30	0,25	0,45	0,35	0,25	0,43	0,49

In den Mehlfraktionen waren die ¹³⁷Cs-Aktivitäten teilweise zu niedrig für exakte Messungen, aber es kann deutlich gesehen werden, daß deren größter Teil in der Kleie vorhanden ist, gefolgt von dem Teil, der im Schleudermehl lokalisiert ist (Tab. 2).

Die ⁹⁰Sr-Aktivität (Tab. 3) ist direkt mit dem Aschegehalt der Mehlfraktionen korreliert. Es wurde ein Korrelationskoeffizient $r = 0,92$ berechnet. Die ⁹⁰Sr-Aktivität in Bq/kg (Y) errechnet sich nach der gefundenen Regressionsgleichung aus dem Aschegehalt in Prozent in der Trockensubstanz (X) wie folgt:

$$Y = 0,2032 X - 0,1006$$

Diese Gleichung wurde aus den Aschegehaltswerten und den dazugehörigen ⁹⁰Sr-Aktivitäten von Winterweizen und Sommerweizen aus Lambach sowie von Winterweizen aus Fuchsenbigl errechnet. Aus der graphischen Darstellung des Zusammenhanges zwischen Aschegehalt und ⁹⁰Sr-Aktivität (Abb. 1) kann entnommen werden, daß sich Unterschiede in der ⁹⁰Sr-Kontamination des Gesamtkornes durchaus auch in einer unterschiedlichen Aktivität der Asche der einzelnen Mehlfraktionen niederschlägt, sodaß die oben angeführte Regressionsgleichung vor allem als Richtlinie für eine Schätzung der Größenordnung des

Tabelle 2: ¹³⁷Cs-Aktivität in Mehlfraktionen, Kleie und im ganzen Korn [Bq/kg]

Table 2: ¹³⁷Cs-activity in flour fractions, bran and whole kernels [Bq/kg]

Fraktion	Standort					
	I	V	V	VI	VII	VII
	WW	SW	WW	WW	SW	WW
Korn	< 0,2	< 0,11	< 0,15	0,112	0,32*	0,1
Kleie	< 0,63	< 0,43	< 0,45	0,31*	0,62*	< 0,33
Schleudermehl	< 0,17	< 0,25	< 0,11	< 0,18	0,34*	< 0,1
B-1	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	< 0,32	< 0,11
B-2	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	0,07*	< 0,11
B-3	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.
C-1	n. b.	n. b.	n. b.	< 0,15	0,05*	< 0,12
C-2	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	< 0,2	< 0,14
C-3	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.

SW = Sommerweizen, WW = Winterweizen, n. b. = nicht bestimmt

Römische Ziffern der Standortangaben siehe Text

* Standardmeßfehler >= 50 % des Meßwertes

Tabelle 3: Aschegehalt und ⁹⁰Sr-Aktivität in Mehlfraktionen von Winter- und Sommerweizen aus Lambach und Fuchsenbigl

Table 3: Ash-content and ⁹⁰Sr-Activity in flour fractions of winter- and spring wheat from Lambach and Fuchsenbigl

Mehlfraktion	WW-Lambach		SW-Lambach		WW-Fuchsenbigl	
	% Asche	Bq/kg	% Asche	Bq/kg	% Asche	Bq/kg
B-1	0,57	0,0933	0,68	0,1153	0,51	0,037
B-2	0,58	0,0847	0,57	0,1016	0,48	0,0349
B-3	0,73	0	0,81	0	0,66	0
C-1	0,49	0,0739	0,49	0,0653	0,40	0,0285
C-2	0,57	0,0872	0,64	0,1006	0,53	0,0432
C-3	0,82	0	0,93	0	1,07	0
Schleudermehl	2,16	0,3028	3,09	0,1285	2,86	0,1937
Kleie	6,68	1,0436	6,59	1,3826	6,62	0,5526
Getreidekorn	1,97	0,2308	2,24	0,4601	1,78	0,1367

Zusammenhanges zwischen Aschegehalt und ⁹⁰Sr-Aktivität der Mehlfraktionen heranzuziehen ist.

Entsprechend den beim Vermahlungsprozeß anfallenden Teilmengen der einzelnen Mehl- und Kleiefractionen und unter Berücksichtigung von deren Aschegehalten ergibt sich, daß zwei Drittel der Aktivität in der Kleie zu finden

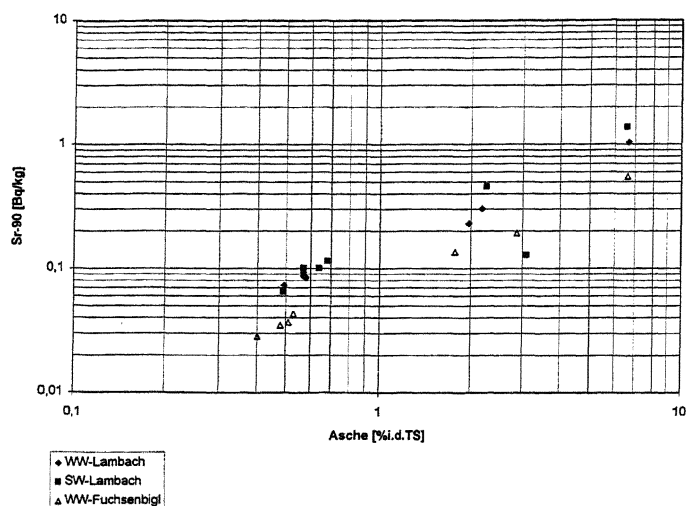


Abbildung 1: ^{90}Sr -Aktivität – Aschegehalt
Figure 1: ^{90}Sr -activity – Ash-content

sind, obwohl nur 20 % des Gewichtes auf diese Fraktion entfallen. Nur etwa 20 % der Aktivität sind in den Fraktionen mit niedrigem Aschegehalt lokalisiert, die mehr als 70 % des Gewichtes der beim Vermahlen erzeugten Produkte ausmachen. Die ^{90}Sr -Aktivität in diesen Produkten lag zwischen 0,02 und 0,1 Bq/kg. In der Kleie wurden etwa die zehnfachen Werte gefunden.

5. Interpretation der Ergebnisse

Die Untersuchung weist Spuren von Radionukliden in der Folge des radioaktiven Fall-Outs nach der Katastrophe von Tschernobyl nach. Dies trifft insbesondere auf die Untersuchungen der ^{137}Cs Aktivität zu, da in der Zwischenzeit die Aktivität von ^{90}Sr auf Werte wie vor dem Jahr 1986 abgesunken ist, die eigentlich nur mehr durch die Atombomben-Versuche der Fünfziger- und Sechzigerjahre verursacht werden, sodaß in diesem Fall nicht mehr von einer Folge des 10 Jahre zurückliegenden Reaktorunfalles gesprochen werden kann. Als Resultat der leichten Aufnahme in die Pflanze einerseits und der geringen Beweglichkeit innerhalb der Pflanze, das bedeutet durch den geringeren Transfer von ^{90}Sr in die Getreidekörner, andererseits (MÜCK et al., 1988) konnte im Durchschnitt bei dem in die Versuche einbezogenen Getreide der Ernte 1995 nur mehr eine ^{90}Sr -Aktivität von 0,31 Bq/kg festgestellt werden, der Durchschnittswert für Weizen betrug 0,28 Bq/kg. Diese Ergebnisse unterscheiden sich nur in unsignifikantem Ausmaß

von Werten der Ernte 1994. Der Beitrag der ^{137}Cs - und ^{90}Sr -Aktivität in der Nahrung betrug 1994 nur weniger als 1,9 % der Gesamtgestion an natürlichen Radionukliden. Dies ist nicht nur auf die Halbwertszeit der Radionuklide zurückzuführen, sondern auch darauf, daß Getreide 1986 nicht so stark kontaminiert wurde wie andere Nahrungsmittelrohstoffe (MÜCK et al., 1988). Die Aktivitäten waren 1995 so gering, daß die Messungen der Radioaktivitäten in der vorliegenden Studie nur durch extrem verlängerte Meßzeiten möglich waren.

Die Werte, die erhalten wurden, bestätigen, daß nur noch eine völlig vernachlässigbare Belastung der Bevölkerung durch Radioaktivität in den Nahrungsmitteln nach dem Ereignis von Tschernobyl vorhanden ist.

Die Resultate betreffend die Verteilung von Radionuklidspuren in Mehlfraktionen sind von Bedeutung speziell für die Prävention bei eventuellen zukünftigen Nuklearunfällen mit hoher Umweltbelastung. Die aktuelle Konzentration von Radionukliden in Getreide war sowohl bei der unmittelbar dem Unfall folgenden Ernte 1986 als auch in weiterer Folge bei weitem zu niedrig, um etwaige Warnungen oder Empfehlungen für das Konsumverhalten bei Getreideprodukten geben zu müssen. Sogar in der Kleie war die Belastung viel zu gering, um irgend einen Einfluß auf die menschliche Gesundheit zu haben. Aber aus den Ergebnissen kann als Hinweis für die Zukunft abgeleitet werden, daß bei der Verarbeitung von Getreide nach starker radioaktiver Belastung des Bodens nach einem Unfall mit ähnlichem Verlauf wie jenem von Tschernobyl und zu einem ähnlichen Zeitpunkt im Ablauf des Vegetationsjahres, Mehlfraktionen mit niedrigerem Aschegehalt für die weitere Verarbeitung zu Nahrungsmitteln zu bevorzugen sind, um die Belastung der Bevölkerung auf einem möglichst geringen Niveau zu halten. In solch einem speziellen Fall könnte es von Vorteil sein, den Konsum von Vollkornprodukten und diätetischen Nahrungsmitteln mit einem erhöhten Kleieanteil einzuschränken.

Allgemein kann es aber als Vorteil von Getreideprodukten hervorgehoben werden, daß sie durch radioaktiven Fall-Out in Fällen, die in ihren Ursachen und in ihrem zeitlichen Verlauf im Bezug auf das Vegetationsgeschehen ähnlich gelagert sind wie jener von Tschernobyl im Jahr 1986, im Vergleich zu anderen Nahrungsmitteln nur wenig kontaminiert sind (FRIEDRICH und SCHÖNHOFER, 1994). Dies wird vor allem durch die vergleichsweise geringe Konzentration von ^{90}Sr im Boden und dessen geringe Beweglichkeit innerhalb der Pflanze bewirkt (ANDERSEN, 1971; BUKOVAC et al., 1965). Bei ^{137}Cs bewirkt die starke Fixie-

rung im Boden – speziell in Lehmböden – und die schlechte Pflanzenverfügbarkeit, daß nur minimale Konzentrationen im Korn auftreten (D'SOUZA et al., 1980).

Literatur

- ANDERSEN, A. J. (1971): The Uptake and Distribution of Strontium in Oat as Influenced by the Time of Supply. *Soil Science* 111, 379–381.
- BUKOVAC, M. J., S. H. WITTEWITZ and H. B. TUKEY (1965): Aboveground Plant Parts as a Pathway for Entry of Fission Products into the food Chain with Special Reference to Sr 89–90 and Cs-137. In E. B. FOWLER (ed.): *Radioactive Fallout, Soils, Plants, Food, Man*. Elsevier, New York.
- BURTSCHER, A. (1986): Personal Communications. Zit. in E. HAUNOLD, O. HORAK und M. GERZABEK.
- D'SOUZA, T. J., E. FANIGART and R. KIRCHMANN (1980): Effects of Clay Mineral Type and Organic Matter on the Uptake of Radiocaesium by Pasture Plants. *Studiecentrum voor Kernenergie, BLG 538*, Oct. 1980.
- FRIEDRICH, M. und F. SCHÖNHOFER (1994): Strontium-90 in Lebensmitteln aus Österreich 1986–1990. *Radioaktivitätsmessungen in Österreich 1990 und 1991. Beiträge Strahlenschutz, Forschungsberichte des BMGSK Sekt. III*, 1994.
- FRIEDRICH, M., C. KRÁLIK, F. SCHÖNHOFER und M. WERTEKER (1997): Strontium in Getreideproben des Jahres 1994. *Radioaktivitätsmessungen in Österreich 1994 und 1995. Beiträge Strahlenschutz, Forschungsberichte des BKA Sekt. VI*, 1997.
- GERZABEK, M., S. ALGADER, W. LOIBL und M. SUDA (1994): Erhebung der ^{137}Cs -Bodenkontamination – Erstellung einer Österreichkarte. OEFZS-A3095.
- HAUNOLD, E., O. HORAK und M. GERZABEK (1986): Umweltaktivität und ihre Auswirkung auf die Landwirtschaft. I. Das Verhalten von Radionukliden in Boden und Pflanze. OEFZS-4369, LA163/86, August 1986.
- HORAK, O. (1986): Der Reaktorunfall in Tschernobyl und seine Auswirkung auf die österreichische Landwirtschaft. OEFZS-4372, LA167/86, September 1986.
- IAEA (1989): *Methods for Radiochemical Analysis of Strontium*. In: *Measurement of Radionuclides in Food and the Environment. A Guidebook. Annex II, Technical Report Series No. 295*. International Atomic Energy Agency, Wien, 1989.
- MÜCK, K. (1995): Langzeitfolgedosis nach großräumiger Kontamination. *Seibersdorf Report. Exemplar 34*, Nov. 1995.
- MÜCK, K., S. STREIT, F. STEGER und K. MAYR (1988): Der Dosisbeitrag von Strontium-90 zur Ingestionsdosis nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl. OEFZS-4452, ST-157/88, Juni 1988.
- NISHITA, H., E. M. ROMNEY and K. H. LARSON (1965): Uptake of Radioactive Fission Products by Plants. In E. B. FOWLER (ed.): *Radioactive Fallout, Soils, Plants, Foods*. Elsevier, New York.
- UMWELTBUNDESAMT (UBA) und BMGK (1996): *Cäsiumbelastung der Böden Österreichs – 2. erweiterte Auflage*. UBA-Monographie Band 60, Wien.

Anschrift der Verfasser

Dipl.-Ing. Dr. Manfred Werteker, Bundesamt und Forschungszentrum für Landwirtschaft, Spargelfeldstraße 191, A-1226 Wien.

Manfred Friedrich und **Dr. Franz Schönhofer**, Bundesanstalt für Lebensmitteluntersuchung und -forschung, Kinderspitalgasse 15, A-1090 Wien.

Eingelangt am 28. Juni 1997

Angenommen am 6. August 1997