

# **Tiefenverteilung von Radionukliden in Fichtenwald- und Hochmoorböden**

Von der Fakultät für Geowissenschaften, Geotechnik und Bergbau  
der Technischen Universität Bergakademie Freiberg

genehmigte

## **DISSERTATION**

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.),

vorgelegt

von Dipl.-Ing. (FH) Nanette Christine Schleich

geboren am 31. Dezember 1968 in Köln

Gutachter: Prof. Dr. Jörg Matschullat, Freiberg  
Prof. Dr. Sepp Unterricker, Freiberg  
Prof. Dr. Gregor Zibold, Weingarten  
Prof. Dr. Ludwig Zöller, Bayreuth

Tag der Verleihung: 28. Juli 2006



# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Motivation und Zielstellung</b>	<b>1</b>
<b>2 Radionuklide in der Umwelt</b>	<b>3</b>
2.1 Natürliche Radionuklide	3
2.2 Kosmogene Radionuklide	6
2.3 Künstliche Radionuklide	8
<b>3 Methodik</b>	<b>15</b>
3.1 Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie	15
3.1.1 Grundlagen	15
3.1.2 Charakteristika der verwendeten Meßplätze mit Low-level- $\gamma$ -Spektrometern	21
3.1.3 Auswertung und Korrekturen	34
3.1.4 $\gamma$ -spektrometrisch untersuchte Radionuklide	40
3.2 Ergänzende Untersuchungsmethoden	44
3.2.1 Plutoniumanalysen ( $^{238}\text{Pu}$ und $^{239,240}\text{Pu}$ )	44
3.2.2 Geo- und pedochemische Untersuchungen	45
3.2.3 Palynologische Untersuchungen	46
3.2.4 Altersbestimmung von Moorböden mittels $^{14}\text{C}$ -Datierung	47
3.3 Entnahme, Charakterisierung und Aufbereitung der Proben	49
3.3.1 Profilaufnahme und Bodenansprache	49
3.3.2 Waldboden und Fichtennadeln	51
3.3.3 Moorboden und moorbildende Vegetation	53
3.3.4 Regen- und Moorwasser	56
3.3.5 Staubfilter	57
3.3.6 Bestimmung des pH-Werts in Boden- und Wasserproben	57
<b>4 Auswahlkriterien und Charakterisierung der Untersuchungsgebiete</b>	<b>59</b>
<b>5 Messungen zum atmosphärischen Eintrag von Radionukliden</b>	<b>65</b>
5.1 Eintrag mit dem Niederschlag	65
5.2 Äolischer Eintrag	69
5.3 Eintrag künstlicher Radionuklide durch den Tschernobyl-Unfall	73
<b>6 Waldbodenprofile: Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>77</b>
6.1 Tiefenverteilungen der Radionuklide in den Fichtenwaldböden	77
6.1.1 Die Waldstandorte im Osterzgebirge: Holzhau, Nassau 1 und Nassau 2	78
6.1.2 Der Vergleichsstandort in Süddeutschland: Eggwald	91
6.2 Einflußgrößen der Tiefenverteilungen von Radionukliden in Fichtenwaldböden	95
<b>7 Moorbodenprofile: Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>127</b>
7.1 Tiefenverteilungen der Radionuklide in den Hochmoorböden	127
7.1.1 Die Hochmoorstandorte im Erzgebirge: Georgenfelder Hochmoor, Schwarze Heide und Kleiner Kranichsee	128
7.1.2 Der Vergleichsstandort im Hochharz: Radauer Born	144
7.2 Einflußgrößen der Tiefenverteilungen von Radionukliden in Hochmoorböden	147
7.3 Die Verwendung der Radionuklide in der Moorstratigraphie	172
<b>8 Zusammenfassung</b>	<b>185</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>191</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>193</b>
<b>Anhang</b>	
<b>Danksagung</b>	





# 1 Motivation und Zielstellung

Nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl am 26.4.1986 wurden an vielen Forschungseinrichtungen und Hochschulen umfangreiche Forschungsprogramme initiiert bzw. vorhandene Programme erweitert, mit dem Ziel der Erfassung des qualitativen und quantitativen Eintrags von künstlichen Radionukliden (im folgenden RN genannt) in die Umwelt, ihrer Verbreitung in unterschiedlichen Ökosystemen und Nahrungsketten sowie ihrer Wirkungen im menschlichen Organismus (Aarkrog 1988a; SAAS 1988b; Bunzl et al. 1989a; Cambray et al. 1989; Hötzl et al. 1989; Simopoulos 1989; BfS 1992b; Lindner et al. 1994; Ehlken u. Kirchner 1996; UNSCEAR 2000). Besonderes Augenmerk wurde hierbei auf langlebige RN wie  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  gelegt (Gellermann et al. 1992; Kaminski et al. 1994; Aarkrog et al. 1995). Neben der Notwendigkeit, von der RN-Deposition ausgehende Gefahren für den Menschen einschätzen zu können (z. B. Dosisabschätzungen in Gudiksen et al. 1989; BfS 1992a; NEA 1996; Eisenbud u. Gesell 1997; UNSCEAR 2000), stellen die eingebrachten RN zudem Tracer dar, anhand derer das Wanderungs- und Akkumulationsverhalten sowohl der entsprechenden Substanzen als auch vergleichbarer Elemente und ihrer Komplexe im Ökosystem untersucht werden können (Bunzl et al. 1989b; Dörr u. Münnich 1989; Kirchner u. Baumgartner 1992; Robbins et al. 1992; Bürmann et al. 1994; Wauters et al. 1994; Hird et al. 1995; Passeck et al. 1995). Anwendungen liegen beispielsweise in der Bestimmung von Bodenerosions- und Sedimentakkumulationsraten bzw. des Alters von Sedimenten mittels  $^{137}\text{Cs}$  (Petersen et al. 1990; Ritchie u. McHenry 1990; Lindner et al. 1993; Albrecht et al. 1998) und der Berechnung von RN-Transferfaktoren Boden–Pflanze bzw. Boden–Tier (z. B. Reh-fleisch) (Konoplev et al. 1993; Lindner et al. 1994; Wirth et al. 1994; Lux et al. 1995). Die genauen Transport- und Verteilungsmechanismen vieler RN in atmosphärischen, terrestrischen und aquatischen Systemen sind jedoch oft noch weitgehend unbekannt (Warner u. Harrison 1993; Choppin 1999; Hölgye u. Malý 2000; UNSCEAR 2000); dieses geht auch aus zahlreichen älteren und neueren Arbeiten zu dem häufig analysierten Cäsium und dessen Verhalten in der Natur hervor (De Brouwer et al. 1994; Brandt 1998; Dumat u. Staunton 1999; Bunzl et al. 2000; Loftis et al. 2002; Kruyts et al. 2004; Baeza et al. 2005; Stemmer et al. 2005).

Entsprechende Untersuchungen auf die RN der natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und Tochternuklide) und kosmogene RN (z. B.  $^7\text{Be}$ ) auszuweiten, ermöglicht es, vielfältige Migrationsmechanismen in Böden und Transferprozesse über die Vegetation zu betrachten (z. B. vergleichende Untersuchungen der  $^{137}\text{Cs}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Verteilung in Waldböden in Dörr u. Münnich 1991). In der Literatur liegt allerdings nur eine relativ geringe Zahl von Publikationen zu umfassenderen Analysen, d. h. einer Vielzahl sowohl künstlicher als auch natürlicher und/oder kosmogener RN in ein- und demselben System bzw. einander benachbarten Systemen, vor – darunter Untersuchungen der RN-Aktivitätskonzentrationen in bodennaher Luft, z. B. Langzeituntersuchungen von Hötzl et al. (1983), Perkins et al. (1989) und Winkler (1997), des Partikeltransports in fließenden Gewässern (Bonniwell et al. 1999), der räumlichen RN-Verteilungen in oberflächennahen Böden, z. B. in Sachsen (Barthel et al. 1995), und der Aktivitäten in Boden-, Sediment- und Vegetationsproben (Roos et al. 1994; Godoy et al. 1998; Kirchner u. Dailland 2002; Baeza et al. 2005).

Eine sehr gut geeignete Methode zur hochempfindlichen Messung von RN in Boden- und Pflanzenmaterial stellt hierbei die  $\gamma$ -Spektrometrie dar (Verplancke 1992; Twomey u. Keyser 1994; Schleich et al. 1995, 1997). Ein breites Spektrum natürlicher und künstlicher RN kann in einer ein- bis dreitägigen Messung qualitativ und quantitativ erfaßt werden. Eine anschließende Verwendung des Probenmaterials für andere Untersuchungsmethoden ist möglich, da die Proben vorbereitend nur getrocknet und eventuell zerkleinert oder gesiebt werden.

Wesentliches Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, anhand der RN-Tiefenverteilungen in Fichtenwald- und Hochmoorböden Erkenntnisse zum Migrationsverhalten der jeweiligen Nuklide zu gewinnen, um in Folge sowohl den Stofftransport in den Böden als auch die Bodenbildungsprozesse besser zu verstehen. Darüber hinaus soll geprüft werden, inwieweit sich die verschiedenen RN zur Datierung bzw. zeitlichen Markierung von Moorbodenschichten und damit zur Verwendung in der Moorstrati-

graphie eignen.

Schwerpunktmäßig wurden Profile von Böden exponierter Lagen nahe des Erzgebirgskamms untersucht. Als Vergleichsstandorte wurden ein Hochmoor des Nationalparks Harz (Niedersachsen) und ein Fichtenwald in Oberschwaben (Baden-Württemberg) ausgewählt. Ein wichtiges Kriterium für die Positionierung der einzelnen Probennahmestellen war neben besonders exponierten Kammlagen zur besseren Erfassung des atmosphärischen Eintrags auch die Wahl von in der näheren und fernen Vergangenheit weitgehend (anthropogen) unbeeinflussten Standorten, um ungestörte Profile mit geringer Beeinflussung des Stofftransportes zu gewährleisten. Zudem wurde bei den Fichtenwaldböden auf eine dicke organische Auflage ausgeprägter Horizontierung und bei den Hochmoorböden auf eine große Mächtigkeit des Torfkörpers geachtet. Besonderer Wert wurde darüber hinaus auf die bodenkundlich korrekte Horizontierung der Waldböden und eine möglichst feine Unterteilung der Horizonte bei der Probennahme gelegt. Die Hochmoorprofile wurden im oberen Bereich ebenfalls so weit untergliedert als probennahmetechnisch ausführbar, und es wurden zusätzliche Beprobungen mit Moorkammerbohrern in maximal erreichbare Tiefe durchgeführt.

Die gewählten Standorte sollten die  $\gamma$ -spektrometrische Messung möglichst vieler natürlicher, kosmogener und künstlicher RN ermöglichen; dieses Ziel wurde auch bei der Festlegung der Meßdauer und bei der Auswertung verfolgt. Für einige RN des Tschernobyl-Fallouts wie  $^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 2.06$  a) und  $^{125}\text{Sb}$  ( $T_{1/2} = 2.76$  a) bestand einerseits im Zeitraum dieser Arbeit eine letzte Chance einer einigermaßen sicheren Bestimmung. Auf der anderen Seite ermöglichten die mehr als zehn Jahre, welche seit dem Eintrag 1986 vergangen waren, Aussagen zum RN-Wanderungsverhalten in den jeweiligen Ökosystemen.

Während in der Literatur zahlreiche Untersuchungen zum Verhalten von  $^{137}\text{Cs}$  in mehr oder weniger ungestörten oder anthropogen genutzten Böden zu finden sind, existieren nur wenige vergleichbare Arbeiten zu Nukliden wie  $^{125}\text{Sb}$ . Sehr gering ist zudem die Zahl entsprechender Analysen sowohl an Hochmoorprofilen im speziellen als auch allgemein an Bodenprofilen jeglicher Art des Harzes oder des Erzgebirges. Letzteres ist sicherlich u. a. darin begründet, daß die Erfassung und Sanierung der Altlasten der SDAG WISMUT, d. h. von den Betrieben, Abraumhalden und Absetzbecken des Uranerzbergbaus (SSK 1993; Wismut 2003), nach der Wende ein erstes dringliches Problem darstellten, hinter dem die Untersuchung natürlicher Ökosysteme zurückstand. Umfassende radioökologische Studien der erzgebirgischen Wald- und Moorböden sind somit, auch zu Vergleichszwecken, überfällig.

Nach einer Charakterisierung der untersuchten RN sowie ihrer Quellen und Eintragspfade in der Umwelt (Kap. 2) werden in der vorliegenden Arbeit grundlegende Prinzipien der verwendeten Meß- und Analysetechnik dargelegt. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der am Institut für Angewandte Physik der TU Bergakademie Freiberg (TU BAF) durchgeführten Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie (Kap. 3.1). Neben weiteren verwendeten Untersuchungsmethoden (Kap. 3.2), z. B. zur Analyse von Plutoniumisotopen, sind die Verfahren zur Entnahme und Aufbereitung der Umweltproben zusammengestellt (Kap. 3.3). Eine allgemeine Einführung in die Untersuchungsgebiete und Beprobungslokalitäten (Kap. 4) geht der Ergebnisdarstellung voran. Auf der Basis der Messungen zum atmosphärischen Eintrag (Kap. 5) und den Resultaten der Bodenprofiluntersuchungen (Kap. 6.1 u. Kap. 7.1) werden Transportpfade und Migrationsmechanismen der verschiedenen RN in den Böden diskutiert; hierbei werden Fichtenwald- und Hochmoorböden getrennt betrachtet (Kap. 6.2 u. Kap. 7.2). Die Möglichkeiten der Datierung bzw. zeitlichen Markierung von Moorbodenschichten mittels mobiler RN werden erörtert (Kap. 7.3).

## 2 Radionuklide in der Umwelt

Die in der Umwelt nachweisbaren RN unterscheiden sich in Bildung und Herkunft, den qualitativen und quantitativen Eintragspfaden, den eingetragenen Mengen und Aktivitäten sowie in ihren chemischen und physikalischen Eigenschaften. Während natürliche und kosmogene RN ihren Ursprung in der Natur selbst, d. h. im Kosmos bzw. auf der Erde, haben, sind von den künstlich produzierten RN einige Isotope ursprünglich überhaupt nicht in der Natur vorhanden (z. B.  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ). Andere RN wiederum entstammen sowohl natürlichen als auch künstlichen Quellen (z. B.  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ).

Die in der vorliegenden Arbeit  $\gamma$ -spektrometrisch untersuchten RN sowie jene, welche nach radiochemischer Aufbereitung  $\alpha$ -spektrometrisch oder mittels Beschleunigermassenspektrometrie analysiert wurden, werden im folgenden bezüglich ihrer Herkunft und der wesentlichen Eintragspfade charakterisiert. Dabei sind i. allg. nur Quellen aufgeführt, welche zu nachweisbaren RN-Konzentrationen in den untersuchten Proben beigetragen haben. Auf die physikalischen Charakteristika und den Nachweis der RN wird in Kap. 3 eingegangen. Als Basisliteratur für die folgenden Abschnitte dienten u. a. Kalthren (1984), Knoll (1989), Ivanovich u. Harmon (1992), Firestone u. Shirley (1996), Stolz (1996), Eisenbud u. Gesell (1997) sowie Pfennig et al. (1998).

### 2.1 Natürliche Radionuklide

Von den etwa 340 in der Natur vorkommenden Nukliden sind über 70, hauptsächlich die der schwersten Elemente, radioaktiv. Dabei handelt es sich um primordiale RN und deren Folgeprodukte sowie kosmogene RN. Die schwersten primordialen RN  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  stellen die Muttersubstanzen der drei **natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen** dar, welche 46 natürliche RN enthalten (Anhang A).

Die Elemente U, Th und auch K wurden auf Grund ihres inkompatiblen geochemischen Charakters bei der Bildung der Erdkruste durch Differentiation des Erdmantels in den Gesteinen der Erdkruste angereichert (Rösler u. Lange 1975; Seim u. Tischendorf 1990; Rösler 1991; Wedepohl 1995). Das durchschnittliche Th/U-Verhältnis (Gehalte in mg/kg) in den Krustengesteinen beträgt etwa 3.8 (Rogers u. Adams 1969; Taylor u. McLennan 1985; Wedepohl 1995; Eisenbud u. Gesell 1997; Gallet et al. 1998). Die Konstanz des Verhältnisses in vielen verschiedenen Ergußgesteinstypen weist darauf hin, daß diese beiden Elemente während magmatischer Prozesse kaum fraktioniert wurden. In der oxidierten Zone der terrestrischen Verwitterungszone dagegen können U und Th in unterschiedlicher Weise mobilisiert werden. Th wird weitestgehend in unlöslichen, beständigen Mineralen transportiert oder auf der Oberfläche von Tonmineralen adsorbiert. Im Gegensatz dazu kann sich U entweder als Komplex-Ion in Lösung bewegen oder wie Th in einer sorbierten Phase oder Geröllphase (Rogers u. Adams 1969; Gascoyne 1992). Entsprechenden Fraktionierungsprozessen ist beispielsweise die Beobachtung zuzuschreiben, daß in feinkörnigen Sedimentgesteinen mit abnehmendem Alter das mittlere Th/U-Verhältnis von ca. 4.0 (3000 ... 3700 Ma) auf ca. 5.1 ( $\leq$  600 Ma) ansteigt (Taylor u. McLennan 1985).

Zur durchschnittlichen chemischen Zusammensetzung der Erdkruste (Clarkewerte) findet sich in der Literatur eine große Anzahl an Werten, welche über unterschiedliche Verfahren bestimmt wurden. Die Literaturangaben beziehen sich auf die gesamte Erdkruste, die obere kontinentale Kruste oder auch nur einige Krustenbereiche und stimmen, von einigen Ausnahmen abgesehen, in ihren Größenordnungen und wesentlichen Tendenzen überein (Rösler u. Lange 1975; Seim u. Tischendorf 1990; Rösler 1991). Für regionale geologische Einheiten ( $> 1000 \text{ km}^2$ , z. B. Erzgebirge mit  $7500 \text{ km}^2$ ) können regionale Clarkewerte angegeben werden (Pälchen et al. 1987). Diese Werte können deutlich von den weltweiten Werten abweichen, wie Abb. 1 zeigt. In der Abbildung sind die mittleren Gehalte von  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  in ausgewählten Gesteinstypen Sachsens (d. h. der Gesteinstypen der hier beprobten Gebiete im Erzgebirge) den arithmetischen Mittelwerten der sächsischen Gesteine und den Clarkewerten der oberen kontinentalen Erdkruste gegenübergestellt.

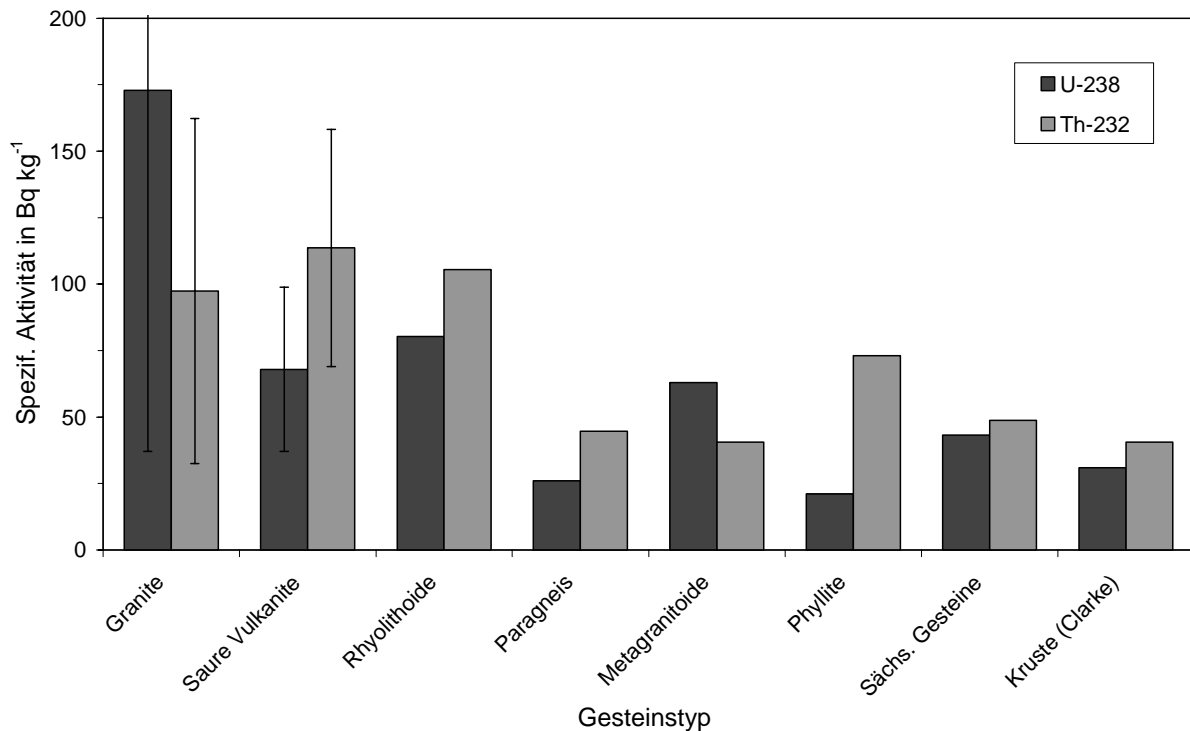


Abb. 1: Mittlere spezifische  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Aktivitäten<sup>1)</sup> in ausgewählten Gesteinstypen Sachsens<sup>2)</sup> (d. h. der Gesteinstypen der hier beprobten Gebiete im Erzgebirge: Granite, Saure Vulkanite, Rhyolithoide, Paragneis, Metagranitoide, Phyllite) im Vergleich zu den arithmetischen Mittelwerten für sächsische Gesteine und den Clarkewerten der oberen kontinentalen Erdkruste (Daten nach Wedepohl 1995 und Kardel 1996)

<sup>1)</sup> Der Umrechnung von mg/kg in Bq/kg liegen die spezifischen Aktivitäten der Nuklide und ihre Isotopenhäufigkeiten in der Natur zugrunde: Natürliches Th setzt sich zu 100 % aus  $^{232}\text{Th}$ , natürliches U zu 99.27 % aus  $^{238}\text{U}$  und zu 0.72 % aus  $^{235}\text{U}$  zusammen (Firestone u. Shirley 1996; Pfennig et al. 1998). 1 mg/kg U bzw. Th entsprechen somit 12.35 Bq  $^{238}\text{U}$ /kg Gestein bzw. 4.057 Bq  $^{232}\text{Th}$ /kg Gestein.

<sup>2)</sup> Für die Darstellung der Gesteine Sachsens nach Kardel (1996) sind der jeweilige arithmetische Mittelwert sowie die Standardabweichung, sofern vorhanden, angegeben, da nicht zu allen Gesteinstypen entsprechende Medianwerte vorliegen. Die Datenkollektive für Paragneis und Phyllite umfassen jeweils nur  $n = 5$  Stichproben, die anderen hier aufgeführten Gesteinstypen weisen einen Stichprobenumfang  $n$  von mindestens 20 (Saure Vulkanite) bis maximal 328 (Rhyolithoide) auf (Kardel 1996).

Im Vergleich zu  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  weisen deren Tochternuklide kurze Halbwertszeiten auf. Ihre Konzentrationen in einem geologischen System sind sowohl von der Konzentration des jeweiligen Mutternuklids abhängig als auch von der Zeit, die vergangen ist, seit das System von Nuklidmigration abgeschlossen wurde. In einem abgeschlossenen System ist spätestens  $1.5 \cdot 10^6$  a nach seiner Bildung (d. h. sechs Halbwertszeiten des langlebigsten  $^{238}\text{U}$ -Tochternuklids  $^{234}\text{U}$ ,  $T_{1/2} = 2.5 \cdot 10^5$  a) ein Dauer-gleichgewicht (säkulares Gleichgewicht) hergestellt, d. h. die Aktivitäten der Mutter- und Tochternuklide sind gleich. In den meisten geologischen Einheiten, sei es an der Oberfläche oder oberflächennah, kommt es jedoch zur RN-Migration infolge physikalischer oder chemischer Prozesse (Kubach u. Weigel 1977; Szöghy u. Kish 1978; Megumi 1979; Gascoyne 1992; Osmond u. Ivanovich 1992; Bunzl et al. 1994b; Ribeiro et al. 2001). Durch selektive An- und/oder Abreicherungen einzelner Nuklide einer Zerfallsreihe können somit radioaktive Ungleichgewichte entstehen. Radon beispielsweise, gasförmiges Zerfallsprodukt aller drei Zerfallsreihen, kann aus einem Vorkommen poröser Struktur diffundieren und dadurch ein Ungleichgewicht zwischen den vorangehenden und nachfolgenden Nukliden verursachen. Ein weiterer Grund für Ungleichgewichte kann der Verlust eines Folgenuklids aufgrund seiner größeren Löslichkeit in Wasser sein (z. B. Radium unter entsprechenden Voraussetzungen, vgl.

Kubach u. Weigel 1977). Viele Töchter des Th und U sind jedoch zu kurzlebig, um merklich von ihren unmittelbaren Müttern fraktioniert zu werden. Bei vernachlässigbarer Diffusion des  $^{222}\text{Rn}$  beispielsweise ist Gleichgewicht zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und dem Folgenuklid  $^{210}\text{Pb}$  zu erwarten, da die vier Zwischenprodukte nur Halbwertszeiten von Minuten oder Bruchteilen von Sekunden aufweisen (Anhang A). Längerlebige RN wie  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$  und  $^{226}\text{Ra}$  dagegen werden in der Verwitterungszone häufig von ihren Mutternukliden fraktioniert und können sich in geologischen Einheiten oder im Grundwasser anreichern (Kubach u. Weigel 1977; Gascoyne 1992; Osmond u. Ivanovich 1992; Bunzl et al. 1994b; Ribeiro et al. 2001).

Tabelle 1: Literaturangaben jährlicher  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamtdepositionsraten in  $\text{Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$

Ort	Jahr	Deposition $\text{Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$	Proben <sup>1)</sup>	Zitat
Mittelschweden	1962–68	$63 \pm 11$	Flechten (beprobte 1961–69)	Persson 1970
Skandinavien	–	$56 \pm 19$	Sediment- und Torfprofile; geschätzter Wert für die vergangenen $150 \pm 20$ a	El-Daoushy 1986a, 1986b
Westeuropa	–	$100 \pm 50$	(keine Angabe)	H. Dörr 1989, zitiert in Gellermann et al. 1992
Hokkaido, Japan	1970/71	250 ... 470	atmosphärische Deposition	Fukuda u. Tsunogai 1975
Tokai, Japan	1987	150	atmosphärische Deposition	Matsunaga et al. 1995
	1988	157		
Japan	–	180 ... 430	Bodenprofile (beprobte 1976–80)	Kurata u. Tsunogai 1986
Colorado, USA	–	270	Bodenprofile	Moore u. Poet 1976
Norfolk, Virginia, USA	1983	130	atmosphärische Deposition	Todd et al. 1989
	1984	140		
Australien	1964–70	20 ... 120	atmosphärische Deposition	J. Bonnyman u. J. Molina-Ramos 1971, zitiert in Krishnaswami u. Lal 1978
Neuseeland	1968–74	20 ... 150	atmosphärische Deposition	Turekian et al. 1977; Krishnaswami u. Lal 1978
Südshetlandinseln, Antarktische Peninsula	–	$18 \pm 5$	Flechten, Moose (beprobte 1989)	Roos et al. 1994
Ostantarktis	1985/86	$3.1 \pm 0.3$	Schnee	Nijampurkar u. Rao 1993
	–	$2.2 \pm 0.8$	Eisprofil (beprobte 1985/86)	
polare Regionen (Grönland, Antarktis)	–	< 20	Schnee- und Eisprofile (beprobte 1960–64)	verändert nach Crozaz et al. 1964 und Crozaz u. Langway 1966
Südpol	–	ca. 2	Schnee- und Eisprofile (beprobte 1962)	verändert nach Crozaz et al. 1964
kontinentale Gebiete	–	< 220	berechneter Eintragswert	Krishnaswami u. Lal 1978; El-Daoushy 1988
gemäßigte Klimazone der Nordhalbkugel	–	90 ... 330	aus Literaturwerten (atmosphärische Deposition) berechnete Eintragswerte	Moore u. Poet 1976
kontinentale Gebiete		130 ... 330		
ozeanische Gebiete		90 ... 170		

<sup>1)</sup> Sämtliche Proben atmosphärischen Eintrags umfassen sowohl nasse als auch trockene Deposition.

Als Folgenuklid des gasförmigen  $^{222}\text{Rn}$  wird  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22.3$  a) sowohl über den geologischen Untergrund des jeweiligen Standorts als auch aus der Atmosphäre eingetragen. Das atmosphärische  $^{210}\text{Pb}$  wird durch Freisetzung, d. h. Emanation und anschließender Exhalation, des  $^{222}\text{Rn}$  aus kontinentalen gletscher- und permafrostfreien Gebieten gebildet. Ein geringer Prozentsatz des  $^{222}\text{Rn}$  (bezüglich der Exhalationsrate, d. h. pro Flächeneinheit) stammt aus anderen terrestrischen Quellen und den Ozeanen (Broecker et al. 1967; Wilkening u. Clements 1975; Turekian et al. 1977; Robbins 1978; El-Daoushy 1988).

Die Folgeprodukte des Rn (Pb, Bi, Po etc.) lagern sich an Aerosole der Atmosphäre an, deren Durchmesser größtenteils  $\leq 0.3 \mu\text{m}$  ist (Lockhart et al. 1965; Martell u. Moore 1974). Nach einer kurzen Aufenthaltszeit in der Atmosphäre – in der Literatur mit einigen Tagen bis zu mehreren Wochen angegeben (Francis et al. 1970; Poet et al. 1972; Moore et al. 1973; Gavini et al. 1974; Martell u. Moore 1974; Robbins 1978; Graustein u. Turekian 1986) – gelangt  $^{210}\text{Pb}$  durch trockene und nasse Deposition auf die Erdoberfläche. Die globale atmosphärische Verteilung des  $^{210}\text{Pb}$  wird von troposphärischen Einflüssen dominiert (Bhandari et al. 1970; Poet et al. 1972; Krishnaswami u. Lal 1978; El-Daoushy 1988; Todd et al. 1989; Winkler 1997). Der Anteil des rein trocken deponierten  $^{210}\text{Pb}$  beträgt dabei i. allg. weniger als 10 %, kann aber auch deutlich über diesem Wert liegen (Turekian et al. 1977; Olsen et al. 1985; Todd et al. 1989). Bildung und Eintrag des  $^{222}\text{Rn}$  und des  $^{210}\text{Pb}$  werden stark durch meteorologische Bedingungen beeinflusst und unterliegen saisonalen Variationen: Maxima des  $^{210}\text{Pb}$ -Flusses wurden in den Wintermonaten und Minima im Sommer beobachtet (Peirson et al. 1966; Fukuda u. Tsunogai 1975; Rangarajan et al. 1986; Perkins et al. 1989; Winkler 1997). Die Abhängigkeit der  $^{210}\text{Pb}$ -Depositionsraten von der geographischen Lage und der Größe der umgebenden, produzierenden Landmassen spiegelt sich deutlich in den Literaturwerten wider (Tabelle 1). Den gelisteten Werten liegen Messungen der  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten in Schnee-, Eis- und Bodenprofilen, Moosen und Flechten oder der atmosphärischen Deposition (naß und trocken) zugrunde.

Dieser zusätzliche, von der natürlichen Zerfallsreihe über die Mobilität des  $^{222}\text{Rn}$  abgekoppelte Eintrag an  $^{210}\text{Pb}$  bewirkt vor allem in der Vegetation, den organischen Bodenhorizonten und Gewässern starke Ungleichgewichte des  $^{210}\text{Pb}$  zu den Mutternukliden (Oldfield et al. 1979; El-Daoushy 1988; Dörr u. Münnich 1991; Schleich et al. 1995, 2000; Turner u. Delorme 1996). In undurchlässigem Festgestein kann idealerweise von radioaktivem Gleichgewicht innerhalb der  $^{238}\text{U}$ -Reihe ausgegangen werden (Szöghy u. Kish 1978; Gascoyne 1992; Osmond u. Ivanovich 1992); die Konzentration des  $^{210}\text{Pb}$  ist somit prinzipiell vom Gesteinstyp abhängig (vgl. U-Gehalte unterschiedlicher Gesteine in Wedepohl 1995 und Kardel 1996). In Abhängigkeit von Bodenmerkmalen wie Gefüge, Zusammensetzung und Feuchte steigt  $^{222}\text{Rn}$  aus dem Unterboden in den Bodenhohlräumen (Risse, Poren, Röhren) auf, so daß sich in bestimmten Bodenbereichen atmosphärisch und geogen bedingte  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen addieren.

Der Zerfall des primordialen RN  $^{40}\text{K}$  ( $T_{1/2} = 1.28 \cdot 10^9 \text{ a}$ ) führt direkt zu den stabilen Nukliden  $^{40}\text{Ca}$  und  $^{40}\text{Ar}$ . In natürlichem Kalium ist  $^{40}\text{K}$  mit einer Isotopenhäufigkeit von 0.0117 % enthalten (Firestone u. Shirley 1996; Pfennig et al. 1998). Das Alkalimetall K macht etwa 2.8 % der oberen Erdkruste aus und gehört geochemisch gesehen zu den Hauptelementen. In Böden liegt der Gehalt an Gesamt-K meist im Bereich 0.2 ... 3.3 % K (entspricht einer spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivität von ca. 60 ... 1000 Bq/kg), in Natriumböden beträgt er bis zu 6.7 % K ( $^{40}\text{K}$ : ca. 2100 Bq/kg) (Wedepohl 1971, 1995; Schachtschabel et al. 1992; Eisenbud u. Gesell 1997).

## 2.2 Kosmogene Radionuklide

Kosmogene RN, wie z. B.  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$  und  $^{22}\text{Na}$ , werden hauptsächlich in den höheren Schichten der Atmosphäre laufend durch Kernreaktionen zwischen sekundären Neutronen der primären kosmischen Strahlung und atmosphärischen Komponenten wie  $^{14}\text{N}$ ,  $^{16}\text{O}$  und  $^{40}\text{Ar}$  erzeugt (Perkins u. Nielsen 1965; Lal u. Peters 1967). Ihre Halbwertszeiten sind kurz im Vergleich zu denen der primordialen RN.

Das natürlich vorkommende **Berylliumisotop**  $^7\text{Be}$  ( $T_{1/2} = 53.3 \text{ d}$ ) entsteht in der Stratosphäre durch Spallationsreaktionen kosmischer Strahlung mit  $^{14}\text{N}$  und  $^{16}\text{O}$ . Laut Arnold u. Al-Salih (1955) bilden sich direkt nach der  $^7\text{Be}$ -Produktion in der Atmosphäre die Spezies  $\text{BeO}$ , und möglicherweise auch  $\text{Be}(\text{OH})_2$ . Durch Oberflächenkondensation wird  $^7\text{Be}$  schließlich mit Aerosolen ( $\varnothing \leq 1 \mu\text{m}$ ) assoziiert (Lal u. Peters 1967; Crecelius 1981; Bondietti u. Brantley 1986; Papastefanou et al. 1995). Das RN gelangt sowohl durch trockene als auch nasse Deposition zur Erdoberfläche, wobei davon ausgegangen wird, daß  $^7\text{Be}$  im Niederschlag (v. a. bei niedrigen pH-Werten) hauptsächlich in gelöster Form vorliegt (Thor u. Zutshi 1958; Anderson et al. 1960; Olsen et al. 1985; Gaffney et al. 1994). Die Aufenthaltsdauer in der Stratosphäre wird mit bis zu etwa einem Jahr angegeben, die in der Troposphäre wird mit

wenigen Tagen bis zu mehreren Wochen diskutiert (Murayama 1964; Perkins u. Nielsen 1965; Moore et al. 1973; Bleichrodt 1978; Todd et al. 1989; Hötzl et al. 1991).

Saisonale Schwankungen der  $^7\text{Be}$ -Aktivitätskonzentrationen in der Atmosphäre und der bodennahen Luft werden u. a. verursacht durch einen periodischen Luftaustausch zwischen Stratosphäre und Troposphäre, Variationen der vertikalen Durchmischungsrate innerhalb der Troposphäre, den Transport von Luftmassen von mittleren zu höheren bzw. niederen Breitengraden und Variationen der Regenfallrate (Schumann u. Stoeppler 1963; Feely et al. 1989; Talpos u. Cuculeanu 1997). Darüber hinaus erkennen z. B. Hötzl et al. (1991), Papastefanou et al. (1995) und Koch u. Mann (1996) in ihren Untersuchungen eine Korrelation der  $^7\text{Be}$ -Produktionsrate mit dem 10–11jährigen Sonnenzyklus (vgl. Perkins u. Nielsen 1965; Lal u. Peters 1967). Minimale stratosphärische  $^7\text{Be}$ -Konzentrationen sind von Oktober bis Dezember, maximale Konzentrationen in den Monaten Mai und Juni zu beobachten (Dutkiewicz u. Husain 1985). Im allgemeinen findet sich in der bodennahen Luft ebenfalls ein Konzentrationsminimum im Herbst/Winter und ein Maximum im Frühjahr/Sommer (Schumann u. Stoeppler 1963; Murayama 1964; Dibb 1989; Todd et al. 1989; Bachhuber u. Bunzl 1992; Matsunaga et al. 1995; Papastefanou et al. 1995; Winkler 1997). Dabei beträgt der Anteil des rein trocken deponierten  $^7\text{Be}$  meist  $< 10\%$  (Brown et al. 1989; Todd et al. 1989; Wallbrink u. Murray 1994).

Ein Vergleich jährlicher  $^7\text{Be}$ -Gesamtdepositionsraten aus der Literatur ist in Tabelle 2 zusammengestellt; weitere Angaben sind z. B. in Wallbrink u. Murray (1994) aufgeführt. Ein direkter Zusammenhang der  $^7\text{Be}$ -Depositionsraten mit dem Breitengrad ist i. allg. nicht erkenntlich, allerdings können beobachtete Variationen teilweise mit den entsprechenden lokalen jährlichen Niederschlagshöhen erklärt werden (Thor u. Zutshi 1958; Murayama 1964; Wallbrink u. Murray 1994).

Tabelle 2: Literaturwerte jährlicher  $^7\text{Be}$ -Gesamtdepositionsraten in  $\text{kBq}/(\text{m}^2 \text{ a})$

Ort	Jahr	Deposition $\text{kBq}/(\text{m}^2 \text{ a})$	Proben <sup>1)</sup>	Zitat
Regensburg, Deutschland	1988 1989	$1.4 \pm 0.1$ $1.0 \pm 0.1$	atmosphärische Deposition	Bachhuber u. Bunzl 1992
München, Deutschland	1975–82	$0.55 \dots 1.3$ ( $\bar{\varnothing} 0.90$ )	atmosph. Dep.	Hötzl et al. 1983
Jülich, Deutschland	1975–82	$0.93 \dots 1.3$ ( $\bar{\varnothing} 1.1$ )	atmosph. Dep.	Hötzl et al. 1983
Thessaloniki, Griechenland	1987–93	$0.5 \dots 1.2$ ( $\bar{\varnothing} 0.78$ )	atmosph. Dep.	Papastefanou et al. 1995
Norfolk, Virginia, USA	1983 1984	2.0 2.2	atmosph. Dep.	Todd et al. 1989
Tokai, Japan	1987 1988	1.6 1.7	atmosph. Dep.	Matsunaga et al. 1995
Canberra, Australien	1988/89	$1.0 \pm 0.1$	atmosph. Dep.	Wallbrink u. Murray 1994
Ostantarktis	1985/86	$0.7 \pm 0.1$	Schnee	Nijampurkar u. Rao 1993

<sup>1)</sup> Sämtliche Proben atmosphärischen Eintrags umfassen sowohl nasse als auch trockene Deposition.

Das radioaktive **Kohlenstoffisotop**  $^{14}\text{C}$  liegt in der Umwelt ursprünglich als natürlich gebildetes RN mit einer Halbwertszeit von 5730 a vor. Es entsteht kosmogen in der unteren Stratosphäre bei einer durch sekundäre thermische Neutronen der Höhenstrahlung an Stickstoffkernen ausgelösten (n,p)-Reaktion. Die jährliche  $^{14}\text{C}$ -Gesamtproduktion beträgt dabei etwa  $1.4 \cdot 10^{15}$  Bq (Eisenbud u. Gesell 1997; Hebert 1997). Zusammen mit den stabilen Kohlenstoffisotopen  $^{12}\text{C}$  und  $^{13}\text{C}$  (Isotopenhäufigkeit 98.9 % bzw. 1.1 %) gelangt das  $^{14}\text{C}$  als gasförmiges  $\text{CO}_2$  zur Erdoberfläche. Seit 1954 produzierten oberirdische thermonukleare Kernwaffentests zusätzliches  $^{14}\text{C}$ , welches das natürliche Gleichgewicht stört (De Vries 1958; Broecker u. Walton 1959; Nydal 1966; Nydal et al. 1971). Der Eintrag des Fallout ( $> 2 \cdot 10^{17}$  Bq; Tabelle 3) wird aufgrund der relativ langen Halbwertszeit des  $^{14}\text{C}$  auch in Zukunft die Konzentration in der Umwelt dominieren (vgl. Kap. 3.2.4).

Ein weiteres kosmogenes RN,  $^{22}\text{Na}$ , entsteht durch Spallationsreaktionen sekundärer Neutronen mit atmosphärischem  $^{40}\text{Ar}$ . Da  $^{22}\text{Na}$  wie  $^7\text{Be}$  – im Gegensatz zu  $^{14}\text{C}$  – an Aerosole der Atmosphäre angela-

gert ist und seine physikalische Halbwertszeit ( $T_{1/2} = 2.60 \text{ a}$ ) in der Größenordnung der mittleren Aufenthaltszeiten von Aerosolen in der Stratosphäre liegt, eignet sich das Nuklid sehr gut als atmosphärischer Tracer zur Untersuchung von Vermischungs- und Zirkulationsprozessen (Perkins u. Nielsen 1965; Lal u. Peters 1967; Bhandari et al. 1970; Mishra et al. 1980; Tokuyama u. Igarashi 1998). Eine Bestimmung des  $^7\text{Be}/^{22}\text{Na}$ -Verhältnisses kann saisonale Variationen deutlich machen, welche durch den Transport stratosphärischer Luft in die Troposphäre und jahreszeitenabhängige Aufenthaltszeiten geprägt werden. Auch bei atmosphärischen Kernwaffentests wurde  $^{22}\text{Na}$  durch  $^{23}\text{Na}(n,2n)^{22}\text{Na}$ -Reaktionen freigesetzt; aufgrund der vergleichsweise kurzen Halbwertszeit ist dieser Eintrag jedoch heutzutage nicht mehr nachweisbar (Perkins et al. 1964; Perkins u. Nielsen 1965; Perkins et al. 1989; Tokuyama u. Igarashi 1998).

Die 1975/76 und 1992/93 in Japan anhand von Niederschlagsmessungen bestimmten täglichen bzw. jährlichen  $^{22}\text{Na}$ -Depositionsraten lagen um etwa vier Größenordnungen unter denen des  $^7\text{Be}$  (Hasebe et al. 1981; Tokuyama u. Igarashi 1998), wobei die Deposition im Sommer nochmals um eine Größenordnung geringer war als die im Winter (Tokuyama u. Igarashi 1998). In der vorliegenden Arbeit konnten diese sehr geringen  $^{22}\text{Na}$ -Konzentrationen in den untersuchten Umweltproben i. allg. nicht nachgewiesen werden. Detektierbar war  $^{22}\text{Na}$  allerdings in Filterstaubproben, welche der Belüftungsanlage der Mensa der TU BAF entstammten (z. B. in einer Probe des Zeitraums September 1995 bis April 1996).

## 2.3 Künstliche Radionuklide

Herkunftsquellen, Eintragspfade und Quantitäten der künstlich erzeugten und in die Umwelt eingetragenen RN unterscheiden sich sehr stark (Kathren 1984; Warner u. Harrison 1993; Eisenbud u. Gesell 1997). Eine große Anzahl an RN wurde in über 500 oberirdischen **Kernwaffentests** seit Ende der 40er Jahre freigesetzt (Carter u. Moghissi 1977; Perkins u. Thomas 1980; UNSCEAR 2000). Insgesamt 502 nukleare und thermonukleare atmosphärische Tests der Länder USA, UdSSR, UK, Frankreich und China konnten im Zeitraum 1945–80 verzeichnet werden (ausgenommen sogenannte „safety tests“ und zwei Nuklearwaffeneinsätze Ende des Zweiten Weltkriegs in Japan) (UNSCEAR 2000). Die geschätzte Gesamtmenge detonierten Kernspaltungs- und Kernfusionsmaterials beträgt 440 Mt TNT-Äquivalent, darunter 189 Mt Kernspaltungsmaterial (UNSCEAR 2000). Die maximale Anzahl an Tests, welche zudem die höchste Energiefreisetzung erzielten, wurde 1962 durchgeführt (Carter u. Moghissi 1977; UNSCEAR 2000).

In mittleren oder höheren Breitengraden in die untere Stratosphäre eingebrachte RN werden generell im darauffolgenden Frühjahr in maximalen Konzentrationen in die Troposphäre transferiert. Deshalb führten die zahlreichen oberirdischen Testserien 1961/62 (USA, UdSSR) zu einem Maximum der Aktivitäten längerlebiger RN in der Atmosphäre im Frühjahr 1963 (Kuroda et al. 1960; Klement 1965; Hötzl et al. 1983; Perkins et al. 1989; BfS 1992a). So wurden beispielsweise in Westeuropa 1962–65 etwa 70 % der  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtdeposition aus den Kernwaffentests eingetragen, 50 % allein 1963/64 (Bachhuber et al. 1982).

Je nach Explosionshöhe und Sprengkraft der Kernwaffen werden radioaktive Partikel unterschiedlicher Durchmesser und Zusammensetzung in die nähere Umgebung der oberirdischen Explosion, die Troposphäre und sogar die Stratosphäre geschleudert. Im allgemeinen verteilt sich der troposphärische Fallout in der Zeit nach der Zündung der Kernwaffe bandförmig über den Breitengrad der Detonation, der stratosphärische wird über mehrere Monate bis zu Jahre hinweg weltweit deponiert (Machta et al. 1956; Klement 1965; Peterson 1970; Holloway u. Hayes 1982; Perkins et al. 1989). Beim Wiedereintritt in die Troposphäre findet eine Verbindung mit nichtnuklearem Material, z. B. durch chemische Reaktionen, statt. In der bodennahen Luft liegt der stratosphärische Fallout mit Partikeln eines Durchmessers von  $0.3 \dots 1.0 \mu\text{m}$  assoziiert vor (Klement 1965; Lockhart et al. 1965).

Ein Großteil der atmosphärischen Kernwaffentests wurde in der nördlichen Hemisphäre durchgeführt. Da der stratosphärisch-troposphärische Austausch von Luftmassen bevorzugt in den mittleren Breiten stattfindet und aufgrund der spezifischen troposphärischen Zirkulationsmuster wurden RN



längerer Halbwertszeiten, wie  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$ , verstärkt in den mittleren Breiten der Nordhemisphäre deponiert (Harley 1980; Perkins et al. 1989; UNSCEAR 2000).

Reine Kernspaltungswaffen enthalten als Spaltmaterial  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  oder auch  $^{233}\text{U}$ . Bei den primär freigesetzten radioaktiven Spaltprodukten handelt es sich um über 200 Isotope von ca. 35 Elementen (vgl. Spaltausbeutekurven), von denen viele sehr kurze Halbwertszeiten aufweisen (z. B.  $^{96}\text{Sr}$ ,  $T_{1/2} = 1.0\text{ s}$ ) (Katcoff 1960; Klement 1965; James et al. 1991; Pfennig et al. 1998). Die wichtigsten Spaltprodukte längerer Halbwertszeiten sind  $^{106}\text{Ru}$  (1 a),  $^{90}\text{Sr}$  (29 a) und  $^{137}\text{Cs}$  (30 a).  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  können heutzutage immer noch in der Umwelt nachgewiesen werden (Perkins et al. 1989; BfS 1992a; Aarkrog et al. 1995; Ehlken u. Kirchner 1996; Irlweck et al. 1999). Neben den Spaltprodukten werden auch höhere Aktiniden durch Neutronenaktivierung produziert. Weitere RN entstehen durch Neutronenaktivierung nichtradioaktiver Elemente der Kernwaffe (z. B.  $^{60}\text{Co}$ ) und, je nach Zündungsort, der Atmosphäre (z. B.  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  und  $^{39}\text{Ar}$ ), dem Meerwasser oder dem Boden (z. B.  $^{45}\text{Ca}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  und  $^{54}\text{Mn}$ ) (Klement 1965; Hötzel et al. 1983; Kathren 1984; Perkins et al. 1989; Shapiro et al. 1993; Eisenbud u. Gesell 1997). Die durch oberirdische Kernwaffentests freigesetzten Aktivitäten einiger ausgewählter RN sind in Tabelle 3 aufgeführt. Die niedrigsten Emissionswerte entstammen ausnahmslos der aktuellsten Publikation UNSCEAR (2000).

Tabelle 3: Durch oberirdische Kernwaffentests freigesetzte Aktivitäten ausgewählter RN

Nuklid	Emission $10^{15}\text{ Bq}$	Zitat
$^{14}\text{C}$	210 ... 360	Eisenbud u. Gesell 1997; UNSCEAR 2000
$^{90}\text{Sr}$	620 ... 1300	Gudiksen et al. 1989; UNSCEAR 2000
$^{106}\text{Ru}$	12200	UNSCEAR 2000
$^{125}\text{Sb}$	740	UNSCEAR 2000
$^{134}\text{Cs}$	< 1.5	Gudiksen et al. 1989
$^{137}\text{Cs}$	950 ... 1500	Kathren 1984; Gudiksen et al. 1989; UNSCEAR 2000
$^{238}\text{Pu}$	0.28 ... 0.37	Hardy et al. 1973; Harley 1980; Kathren 1984; Eisenbud u. Gesell 1997
$^{239,240}\text{Pu}$	11 ... 15	Hardy et al. 1973; Bennett 1978; Harley 1980; Perkins u. Thomas 1980; UNSCEAR 2000
$^{241}\text{Pu}$	140 ... 360	Bennett 1978; Perkins u. Thomas 1980; UNSCEAR 2000

Vergleichsweise regionaler, hauptsächlich auf den europäischen Raum, doch nicht weniger folgenreich, wirkte sich der **Reaktorunfall von Tschernobyl**, UdSSR, am 26.4.1986 aus. Als Folge mehrerer Explosionen im Reaktorkern eines der vier graphitmoderierten Siedewasserreaktoren vom Typ RBMK in diesem Kernkraftwerk und anschließendem Brand des Graphitmoderators wurden variierende Anteile der beim Reaktorbetrieb eingesetzten bzw. erzeugten RN (d. h. Kernbrennstoff sowie Spalt- und Aktivierungsprodukte) über einen Zeitraum von mehr als zehn Tagen freigesetzt (Hohemser et al. 1986a; Lindner u. Recknagel 1988; Gudiksen et al. 1989; Appleby u. Luttrell 1993; Krüger et al. 1996; NEA 1996; UNSCEAR 2000). Die emittierte Radioaktivität gelangte durch thermischen Auftrieb anfangs in Höhen von 1000 ... 2000 m – den unteren Bereich der Troposphäre – und konnte so von großräumigen Luftströmungen über weite Teile Europas verteilt werden (vgl. auch Modellierungen in Brandt 1998).

Insgesamt wurden etwa 3.5 % des gesamten radioaktiven Inventars des Reaktors zum Zeitpunkt des Unfalls freigesetzt. Diese Emission umfaßte 100 % der Edelgase  $^{85}\text{Kr}$  und  $^{133}\text{Xe}$ , bis zu 60 % der J- und Te-Isotope und 20 ... 40 % der Isotope des Cs. Die Freisetzunganteile der Sr- und Ba-Isotope betrugen 4 ... 6 %, die der Ru- und Ce-Isotope sowie der Transurane wurden mit ca. 3.5 % angegeben (Krüger et al. 1996; NEA 1996). Die Inventare einiger ausgewählter RN des Reaktors in Tschernobyl zum Zeitpunkt des Unfalls und deren freigesetzte Aktivitäten sind in Tabelle 4 zusammengestellt. Die Angaben der zugrundeliegenden Referenzen (Krüger et al. 1996; NEA 1996) und die in UNSCEAR (2000) zusammengestellten Literaturwerte zum Quellterm des Tschernobyl-Unfalls (aus Publikationen

bis 1996), wie auch die in Kirchner u. Noack (1988), Gudiksen et al. (1989) sowie U. Wahl (1987) und C. Hohenemser (1988), zitiert in Lindner u. Recknagel (1988) aufgeführten Werte stimmen generell relativ gut überein. Eine Ausnahme stellt das  $^{106}\text{Ru}$ -Reaktorinventar dar, für das in einigen Veröffentlichungen (vgl. UNSCEAR 2000) ein um den Faktor 2.5 kleinerer Wert als der hier tabellierte angegeben wird.

Das bei der Explosion und in der Folgezeit emittierte radioaktive Material wurde in den ersten Tagen von einer Luftströmung über Weißrußland, den Nordosten Polens und die Ostsee hinweg nach Skandinavien transportiert. In Südschweden wurden die Emissionen erstmalig am 28.4.1986 früh morgens detektiert (Devell et al. 1986). Am 30.4.1986 erreichten Luftmassen, die drei Tage zuvor Tschernobyl passiert hatten, das 1600 km entfernt gelegene Süddeutschland. Die an der Nordseite der Alpen durch starke Regenfälle und Gewitter in – im Vergleich zu anderen Gebieten – hohen Konzentrationen deponierten RN spiegelten somit die Emissionsverhältnisse dieses Zeitraums wider (Hohenemser et al. 1986a, 1986b; Hötzl et al. 1987; Lindner u. Recknagel 1988; Brandt 1998). In anderen Regionen Deutschlands wurde die Radioaktivität in geringeren Konzentrationen eingetragen (König et al. 1986; Denschlag et al. 1987; Dörr u. Münnich 1987b; SAAS 1987a, 1987b; BGA 1991; BfS 1992a; De Cort et al. 1998). Die jeweiligen meteorologischen Bedingungen stellten einen wesentlichen Grund für die teilweise starken lokalen Unterschiede der Deposition dar.

Nuklid	Inventar $10^{15}$ Bq	Emission $10^{15}$ Bq
$^{90}\text{Sr}$	200	ca. 10
$^{106}\text{Ru}$	2100	> 73
$^{125}\text{Sb}$	19	2.9
$^{134}\text{Cs}$	180	ca. 54
$^{137}\text{Cs}$	280	ca. 85
$^{238}\text{Pu}$	1	0.035
$^{239}\text{Pu}$	0.85	0.03
$^{240}\text{Pu}$	1.2	0.042
$^{241}\text{Pu}$	170	ca. 6
$^{241}\text{Am}$	0.14	0.0049

Tabelle 4: Die Inventare ausgewählter RN des Reaktors in Tschernobyl zum Zeitpunkt des Unfalls und die emittierten Aktivitäten (NEA 1996; Werte für  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  aus Krüger et al. 1996)

**Weitere Quellen künstlicher Radioaktivität**, wie die atmosphärischen Emissionen der britischen Wiederaufbereitungsanlage Sellafield und die Einleitung radionuklidhaltiger Abwässer der Anlage in die Irische See (Harley 1980; Livens u. Baxter 1988; Kershaw et al. 1990; Appleby u. Luttrell 1993), sind für die untersuchten Gebiete ohne bzw. nur von untergeordneter Bedeutung. Dies gilt auch für verschiedene Unfälle, welche vorwiegend lokale Kontaminierung verursachten, wie z. B. den Reaktorunfall im heutzutage Sellafield genannten Windscale, UK, 1957 (Gudiksen et al. 1989; Appleby u. Luttrell 1993; Harrison et al. 1993) und den Absturz eines mit vier Nuklearwaffen bestückten US-amerikanischen Langstreckenbombers B-52 nahe Thule, Grönland, 1968 (Hanson 1975; Harley 1980; Aarkrog et al. 1997).

Zu den durch Kernwaffenexplosionen in die Umwelt freigesetzten Spaltprodukten gehören die **Rutheniumisotope**  $^{103}\text{Ru}$  ( $T_{1/2} = 39.3$  d) und  $^{106}\text{Ru}$  ( $T_{1/2} = 1.02$  a) bzw. das  $^{106}\text{Ru}$ -Tochter nuklid **Rhodium**  $^{106}\text{Rh}$  ( $T_{1/2} = 29.8$  s) (Edvarson et al. 1959; Anderson et al. 1960; Kuroda et al. 1965; Hötzl et al. 1983). Da beide Ru-Isotope relativ kurzlebig sind, können die durch die oberirdische Kernwaffentests eingetragenen Aktivitäten heutzutage nicht mehr detektiert werden (vgl. Perkins et al. 1989; Robison u. Noshkin 1999; UNSCEAR 2000). Bei normalem Betrieb eines KKW verbleibt das Spaltprodukt Ru im Kernbrennstoff. Im Tschernobyl-Reaktor jedoch bildete schnelle Oxidation flüchtige Oxide wie  $\text{RuO}_4$ , welche dann zu Aerosolen oder sog. „hot particles“ aus z. T. nahezu reinem Ru kondensierten

(Devell et al. 1986; Denschlag et al. 1987; Santschi et al. 1988; Perkins et al. 1989; Shapiro et al. 1993; Jaracz et al. 1995). Der geometrisch gemittelte aerodynamische Durchmesser der Partikel in atmosphärischen Aerosolen, die Ru mittrugen, lag bei  $< 1 \mu\text{m}$  (Jost et al. 1986; Kauppinen et al. 1986; Denschlag et al. 1987; Shapiro et al. 1993). Das  $^{103}\text{Ru}/^{106}\text{Ru}$ -Aktivitätsverhältnis im Tschernobyl-Fallout (April 1986) betrug etwa 4.5 (Hohenemser et al. 1986b; Cambray et al. 1987; Hötzl et al. 1987; Aarkrog 1988b). In den hier untersuchten Umweltproben konnte aufgrund der seit dem Tschernobyl-Unfall verstrichenen Zeit, sofern überhaupt, nur noch  $^{106}\text{Ru}$  nachgewiesen werden.

Ebenfalls als Spaltprodukt entstand **Antimon**  $^{125}\text{Sb}$  im Tschernobyl-Reaktor (kumulative Spaltausbeute bzw. Isobarenausbeute bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen: 0.028 %) und wurde als Folge des Unfalls freigesetzt (Sadasivan u. Mishra 1986; Cambray et al. 1987; Hötzl et al. 1987; Papastefanou et al. 1988). Beim Transport war  $^{125}\text{Sb}$ , wie andere leicht flüchtige Nuklide, vollständig an Aerosole gebunden (vgl. Hohenemser et al. 1986a; Denschlag et al. 1987; Lindner u. Recknagel 1988). Die Kernwaffentests führten ebenfalls zur Bildung von  $^{125}\text{Sb}$  (Anderson et al. 1960; Edvarson u. Löw 1960; Kauranen 1964; Perkins et al. 1964; Kuroda et al. 1965; Koranda u. Martin 1973; Noshkin et al. 1975). Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit ( $T_{1/2} = 2.76 \text{ a}$ ) ist das durch Nuklearwaffenexplosionen global verteilte  $^{125}\text{Sb}$ , im Gegensatz zu dem des Tschernobyl-Unfalls, in der Umwelt jedoch nicht mehr nachweisbar (vgl. Robison u. Noshkin 1999; UNSCEAR 2000; s. Langzeituntersuchungen der  $^{125}\text{Sb}$ -Aktivitätskonzentrationen in bodennaher Luft in Hötzl et al. 1983 und Perkins et al. 1989).

Die beiden  $\gamma$ -spektrometrisch erfaßbaren Isotope des **Cäsiums**,  $^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 2.06 \text{ a}$ ) und  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30.1 \text{ a}$ ), wurden aus unterschiedlichen Quellen emittiert. Während  $^{134}\text{Cs}$  hauptsächlich als Folge des Tschernobyl-Unfalls freigesetzt wurde ( $^{134}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ), entstammt  $^{137}\text{Cs}$  sowohl den Kernwaffentests ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ) als auch dem Reaktorunfall ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ). Im Reaktor und auch bei Kernwaffendetonationen wird  $^{137}\text{Cs}$  als Spaltprodukt gebildet (Edvarson u. Löw 1960; Kuroda et al. 1965; Hötzl et al. 1983; Kirchner u. Noack 1988; Shapiro et al. 1993). Da  $^{137}\text{Cs}$  langlebigstes Zwischenprodukt der Isobarenreihe  $A = 137$  und Mutternuklid des stabilen Endprodukts  $^{137}\text{Ba}$  ist, entspricht die kumulative Spaltausbeute des Nuklids praktisch der Isobarenausbeute (6.24 % bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen) (James et al. 1991; Pfennig et al. 1998). Im Gegensatz zu  $^{137}\text{Cs}$  kann  $^{134}\text{Cs}$  nicht als sekundäres Spaltprodukt durch sukzessive  $\beta^-$ -Zerfälle der Isobarenreihe  $A = 134$  gebildet werden, da diese Spaltkette mit dem stabilen Nuklid  $^{134}\text{Xe}$  endet, sondern nur als primäres Spaltprodukt und damit nur zu einem verschwindend kleinen Prozentsatz; bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen beispielsweise beträgt die unabhängige Spaltausbeute des  $^{134}\text{Cs}$  nur etwa  $2 \cdot 10^{-5} \%$  (James et al. 1991; Pfennig et al. 1998). Im Reaktor entsteht  $^{134}\text{Cs}$  somit praktisch kaum als Spaltprodukt, sondern hauptsächlich durch Neutroneneinfang des Spaltprodukts  $^{133}\text{Cs}$ , dem stabilen Endprodukt der Isobarenreihe  $A = 133$  (vgl. Cambray et al. 1987; Kirchner u. Noack 1988; Shapiro et al. 1993). Bei einer Kernwaffendetonation läuft die Kettenreaktion so schnell ab, daß auch dieser Bildungsweg für das  $^{134}\text{Cs}$  kaum möglich ist. Dies erklärt die wesentlich geringeren Freisetzungsmengen des  $^{134}\text{Cs}$  durch die Kernwaffentests (Tabelle 3; Krieger u. Groche 1960; Palmer u. Perkins 1963; Perkins et al. 1964; Gudiksen et al. 1989; Perkins et al. 1989). Cäsium, das wie Sb ein leicht flüchtiges Element ist, wurde im Tschernobyl-Fallout mit Aerosolen assoziiert transportiert und deponiert, deren geometrisch gemittelter aerodynamischer Durchmesser bei  $< 1.0 \mu\text{m}$  lag (Jost et al. 1986; Kauppinen et al. 1986; Denschlag et al. 1987; Hirose u. Sugimura 1990; Shapiro et al. 1993). Das  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis im Tschernobyl-Fallout betrug etwa 1.9 (Kap. 5.3 u. Tabelle 19).

Die **Europiumisotope**  $^{154}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 8.59 \text{ a}$ ) und  $^{155}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 4.76 \text{ a}$ ) lagen im Kernbrennstoffmaterial des Tschernobyl-Reaktors in Form von Oxiden vor. Da Eu nicht flüchtig ist, wurde das Element als Folge des Unfalls hauptsächlich über Brennstofffragmente („hot particles“) freigesetzt (Jaracz et al. 1995).  $^{155}\text{Eu}$  wird sowohl als Spaltprodukt als auch durch Neutroneneinfang des  $^{154}\text{Eu}$  gebildet.  $^{154}\text{Eu}$  dagegen entsteht hauptsächlich durch Neutroneneinfang des  $^{153}\text{Eu}$ . Die  $\beta^-$ -Zerfallskette entlang der Isobaren mit der Nukleonenzahl  $A = 154$  endet mit dem stabilen Nuklid  $^{154}\text{Sm}$ , so daß  $^{154}\text{Eu}$  nicht gebildet werden kann; die unabhängige Spaltausbeute des  $^{154}\text{Eu}$  ist vernachlässigbar klein (bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen in der Größenordnung von  $1 \cdot 10^{-7} \%$ ) (James et al. 1991;

Pfennig et al. 1998). Das  $^{155}\text{Eu}/^{154}\text{Eu}$ -Aktivitätsverhältnis im Tschernobyl-Reaktorkern betrug zum Zeitpunkt des Unfalls etwa 1.5 (zerfallskorrigiert 1996: etwa 0.8) (Jaracz et al. 1995; Lux et al. 1995; Zheltonozhsky et al. 2001). Die aus dem globalen Fallout der Kernwaffentests stammenden Aktivitäten der beiden Eu-Isotope (Kuroda et al. 1965; Aarkrog u. Lippert 1967; Koranda u. Martin 1973; Zheltonozhsky et al. 2001) sind heutzutage in der Umwelt nicht mehr nachweisbar (vgl. Noshkin et al. 1975; Hötzl et al. 1983; Perkins et al. 1989; Robison u. Noshkin 1999).

In der Umwelt finden sich verschiedene **Plutoniumisotope** künstlichen Ursprungs (vgl. Kap. 3.2.1). In Kernreaktoren werden  $^{238}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 87.7$  a),  $^{239}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 2.41 \cdot 10^4$  a),  $^{240}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 6.56 \cdot 10^3$  a) und  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 14.4$  a) durch multiplen Neutroneneinfang aus den U-Isotopen oder dem  $^{239}\text{Pu}$  des Kernbrennstoffs produziert (Harley 1980; Shapiro et al. 1993; Eisenbud u. Gesell 1997). Als Folge des Reaktorunfalls in Tschernobyl konnten sowohl in Europa als auch in weiter entfernten Gebieten der nördlichen Hemisphäre, z. B. in Japan (Hirose u. Sugimura 1990), kurzzeitig erhöhte  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationen in der bodennahen Umgebungsluft bzw. dem Niederschlag gemessen werden (Camplin et al. 1986; König et al. 1986; Thomas u. Martin 1986; Cambray et al. 1987; Hötzl et al. 1987; Aarkrog 1988b; Lindner u. Recknagel 1988; Cambray et al. 1989). In Süddeutschland betrug die maximale  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentration in Luft  $2.6 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (Beprobungszeitraum 30.4.–15.5.1986), im Vergleich zu einem Jahresmittelwert 1985 von  $< 0.01 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (Rosner et al. 1997). Ein in Dänemark beprobter Luftfilter (Mai 1986) ergab Konzentrationen von  $(2.8 \pm 0.2) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  ( $^{238}\text{Pu}$ ) und  $(6.5 \pm 0.8) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  ( $^{239,240}\text{Pu}$ ), zudem konnte ein Wert von  $(620 \pm 40) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  für  $^{241}\text{Pu}$  bestimmt werden (Holm 1988). Für den Zeitraum 27.–28.4.1986 wurde hier eine mittlere  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentration in Luft von  $51 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  gemessen (Aarkrog 1988a). Erhöhte  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationen in der bodennahen Luft konnten auch in der ehemaligen DDR (SAAS 1987a, 1988b) und der ehemaligen Tschechoslowakei (Hölgge u. Filgas 1987) nachgewiesen werden; u. a. aufgrund wesentlich kürzerer Beprobungsintervalle von nur wenigen Stunden betrugen die Maximalwerte  $410 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (SAAS 1987a) bzw.  $140 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (Hölgge u. Filgas 1987). Eine hohe Fraktionierung der refraktären Elemente (Zr, Ce, Aktiniden) relativ zum flüchtigen Cs (Bezugsnuklid:  $^{137}\text{Cs}$ ) während des atmosphärischen Transports und der Deposition (Denschlag et al. 1987; Hötzl et al. 1987; Aarkrog 1988a, 1988b) führte z. B. in Westeuropa zum Eintrag vergleichsweise niedriger Pu-Aktivitäten. Folglich bewirkte der Tschernobyl-Fallout nur eine sehr geringe Erhöhung des schon vorhandenen, durch die Kernwaffentests eingetragenen Bodeninventars, im süddeutschen Raum (München-Neuherberg) für  $^{239,240}\text{Pu}$  etwa 0.05 % (Hötzl et al. 1987). Die Aktiniden, welche nahezu ausschließlich als Bestandteil von Kernbrennstoffpartikeln emittiert wurden (d. h. hauptsächlich mit Partikeln vergleichsweise großer Durchmesser), wurden generell in größerer Nähe zum Unfallort deponiert als flüchtigere Falloutkonstituenten (Cambray et al. 1987; Aarkrog 1988a, 1988b; Hirose u. Sugimura 1990; Ivanov et al. 1994; UNSCEAR 2000).

Bei Nuklearexplosionen können im Prinzip dieselben Isotope  $^{238}\text{Pu}$  ...  $^{241}\text{Pu}$  mittels schneller Neutronen aus den Waffenmaterialien  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{238}\text{U}$  gebildet werden. Zudem gelangt ein (z. T. sehr hoher) Prozentsatz der ursprünglich im Waffenmaterial vorliegenden Pu-Isotope, welche im Verlauf der Explosion weder gespalten noch durch Kernreaktionen umgewandelt wurden, in die Umwelt (Diamond et al. 1960; Miyake et al. 1970; Harley 1980; Perkins u. Thomas 1980; Shapiro et al. 1993). Der Anteil des  $^{238}\text{Pu}$  am Kernwaffenfallout ist gering und wird in der Literatur mit  $< 4$  % der Aktivität des  $^{239,240}\text{Pu}$  angegeben (Krey 1967; Miyake et al. 1970; Hardy et al. 1973; Holm 1988; Perkins et al. 1989). Zusätzlich wurden bei dem Absturz eines Navigationssatelliten (SNAP-9A) in der südlichen Hemisphäre im Jahr 1964 etwa  $0.63 \cdot 10^{15}$  Bq  $^{238}\text{Pu}$  freigesetzt (List et al. 1966; Krey 1967; Hardy et al. 1973), knapp doppelt soviel wie durch die Kernwaffentests insgesamt (vgl. Tabelle 3). Aufgrund des relativ geringen Austausches stratosphärischer Luftmassen zwischen der Nord- und Südhalbkugel (Krey u. Krajewski 1970; Kathren 1984; Perkins et al. 1989) wurden nur etwa 20 % der  $^{238}\text{Pu}$ -Aktivität in nördlichen Breitengraden deponiert (Krey 1967; Hardy et al. 1973; Hanson 1975). Als Folge des Unfalls konnten auch in der nördlichen Hemisphäre stark erhöhte  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätsverhältnisse in Luftfilter- und Depositionsproben gemessen werden (Miyake et al. 1970; Perkins u. Thomas 1980; Perkins et al. 1989). Das Verhältnis in der kumulativen Deposition in der Umwelt stieg jedoch ver-

gleichsweise geringfügig an, z. B. laut Hardy et al. (1973) in 40° ... 60° nördlicher Breite um den Faktor 1.5 (vgl. Kap. 6.2).

**Americium**  $^{241}\text{Am}$  ( $T_{1/2} = 432$  a), Tochternuklid des  $^{241}\text{Pu}$ , gelangte nur zu einem sehr geringen Prozentsatz direkt durch die Kernwaffentests in die Umwelt (Livingston et al. 1975; Noshkin et al. 1975; Krey et al. 1976; Livingston u. Bowen 1976; Perkins et al. 1989). Vor allem bei der Detonation von Nuklearwaffen hoher Sprengkraft wird ein Großteil des freigesetzten  $^{241}\text{Pu}$  erst während der Explosion gebildet; höhere Neutronenflüsse vergrößern dabei prinzipiell den Anteil der Pu-Isotope höherer Nukleonenzahlen im Fallout (Krey et al. 1976; Bennett 1978; Beasley et al. 1998). Das  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Massenverhältnis betrug laut Krey et al. (1976) in Waffenplutonium, d. h. „weapons grade“-Plutonium mit ca. 93 %  $^{239}\text{Pu}$  (Livingston et al. 1975; Sula et al. 1991; DOE 1997), typischerweise nur 0.006, im Fallout direkt nach der Detonation (von Kernwaffen hoher Sprengkraft) dagegen 0.015. Im Fallout der verschiedenen Testserien variierte dieses Verhältnis teilweise stark (Livingston et al. 1975; Bennett 1978; Perkins u. Thomas 1980; Koide u. Goldberg 1981; Kelley et al. 1999). Somit stammt das heutzutage in der Umwelt nachweisbare  $^{241}\text{Am}$  nahezu ausschließlich aus dem Zerfall des durch Kernwaffenexplosionen freigesetzten  $^{241}\text{Pu}$ . Die  $^{241}\text{Pu}$ -Gesamtaktivität in der Umwelt übersteigt die des  $^{239,240}\text{Pu}$  (Tabelle 3), so daß die Neubildung von  $^{241}\text{Am}$  („Einwachsen“) nicht zu vernachlässigen ist (Livingston et al. 1975; Bennett 1978; Koide u. Goldberg 1981; Holm 1988; Perkins et al. 1989). Laut extrapolierter Schätzwerte wird das Maximum des kernwaffenbürtigen  $^{241}\text{Am}$ -Bodeninventars etwa im Jahr 2035 erreicht, bei einem  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätsverhältnis von ca. 0.4 (Livingston et al. 1975; Krey et al. 1976; Bennett 1978). Diese Prognose sollte durch den Fallout der letzten, Ende der 70er Jahre von der Volksrepublik China durchgeführten oberirdischen Nuklearwaffentests nur unwesentlich beeinflusst werden (vgl. Bennett 1978; Hötzel et al. 1983). Zur Vereinfachung werden in der vorliegenden Arbeit sowohl das ursprünglich eingetragene als auch das nachgebildete  $^{241}\text{Am}$  als kernwaffenbürtig bezeichnet.

Beim Betrieb von Kernreaktoren entsteht  $^{241}\text{Am}$  durch mehrfachen Neutroneneinfang als Nebenprodukt (vgl. Ivanov et al. 1994; Krüger et al. 1996). Dies und die zuvor erwähnten Fraktionierungsprozesse (s. Abschnitt Plutonium) führten dazu, daß die als Folge des Tschernobyl-Unfalls freigesetzten und über weite Teile Europas verteilten  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten im Vergleich zu denen anderer Nuklide sehr gering waren (Tabelle 4) und somit nur in Einzelfällen in der bodennahen Umgebungsluft bzw. dem Niederschlag nachgewiesen wurden (König et al. 1986; Cambray et al. 1987; Aarkrog 1988b; Simopoulos 1989). Dennoch wurden in Roskilde (Dänemark; 27.–28.4.1986) und Lowestoft (UK; 2.5.1986) mittlere  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitätskonzentration in Luft von 5.2  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  bzw. 2.5  $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$  bestimmt (Camplin et al. 1986; Aarkrog 1988a), und auch im  $\gamma$ -Spektrum eines in Athen (Griechenland; 6.5.1986) beaufschlagten Staubfilters konnte  $^{241}\text{Am}$  nachgewiesen werden (S.E. Simopoulos, National Technical University of Athens, pers. Mitt. 1995). Im Vergleich zu den von den Kernwaffentests herrührenden  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten im Boden wird der Beitrag durch Tschernobyl in Westeuropa als vernachlässigbar angesehen, wie z. B. 1990 durchgeführte Untersuchungen an Grasland- und Fichtenwaldbodenproben verdeutlichen (Bunzl et al. 1992, 1994a). Laut Ivanov et al. (1994) wird die maximale  $^{241}\text{Am}$ -Aktivität, aufgrund des *in-situ*  $^{241}\text{Pu}$ -Zerfalls in der Umgebung, im Jahr 2059 erreicht werden (d. h. 73 a nach dem Tschernobyl-Unfall) und wird 40 mal höher sein als die im April/Mai 1986 direkt in die Atmosphäre eingetragene Aktivität; dies ist insbesondere für Gebiete stärkerer Kontamination mit Aktiniden, v. a. in größerer Nähe zum Unfallort, von Bedeutung.



### 3 Methodik

Um spezifische Aussagen zur vertikalen Verteilung von RN in Bodenhorizonten und -schichten treffen zu können, ist einerseits eine gewissenhafte Entnahme des Bodenmaterials nötig, andererseits eine sehr empfindliche Meßtechnik. Eine geeignete Methode zur zerstörungsfreien Messung kleinster  $\gamma$ -Aktivitäten in Umweltproben stellt die Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie dar. In der vorliegenden Arbeit wurden die in der Bodenkunde üblichen Beprobungs- und Anspracheverfahren angewendet und den zu beprobenden Böden angepaßt. Um trotz sehr feiner Unterteilung der Bodenprofile die für  $\gamma$ -spektrometrische Untersuchungen nötigen Probenmengen zu erhalten, wurden die zu Beginn der Arbeit bekannten Probennahmeverfahren weiterentwickelt und verfeinert. Zur Entnahme von Moorwasserproben konnte eine praktikable Beprobungstechnik entwickelt und getestet werden. Um die in den Umweltproben enthaltenen RN identifizieren und ihre Konzentrationen bestimmen zu können, waren mehrtägige Messungen mittels Low-level- $\gamma$ -Spektrometern nötig. Vom Befüllen der Probenbehälter mit den getrockneten Bodenproben bis zur Bestimmung der Aktivitäten einzelner RN sind verschiedene Problemstellungen zu beachten (z. B. die radondichte Befüllung der Behälter) und unterschiedliche Korrekturen vorzunehmen (z. B. die der Schwächung der  $\gamma$ -Strahlung im Probenmaterial selbst). Sowohl zu der Methodik der Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie und den Beprobungstechniken als auch zu ergänzend angewandten Untersuchungsmethoden wie Plutoniumanalysen werden im folgenden Grundlagen und Vorgehensweise erläutert.

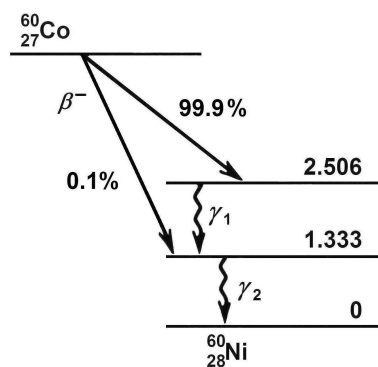
#### 3.1 Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie

##### 3.1.1 Grundlagen

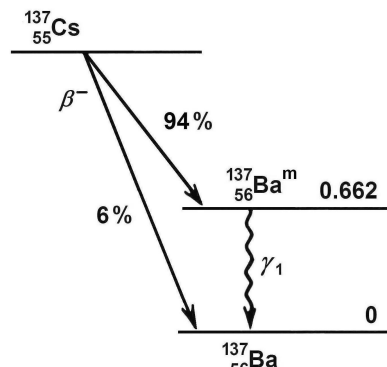
Aufgabe der  $\gamma$ -Spektrometrie ist es,  $\gamma$ -Strahlung emittierende RN zu identifizieren und ihre Konzentration im untersuchten Material zu bestimmen. Im vorliegenden Kapitel werden grundlegende Prinzipien der  $\gamma$ -Spektrometrie erläutert. Schwerpunkt stellen dabei die in dieser Arbeit verwendeten  $\gamma$ -Strahlungsdetektoren dar. Betrachtungen zu weiteren Meßplatzspezifika und den Erfordernissen der Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie sind in den nachfolgenden Kapiteln zu finden. Als Basisliteratur wurden u. a. Debertin u. Helmer (1988), Hering et al. (1989), Knoll (1989), Gilmore u. Hemingway (1995) und Stolz (1996) sowie die Datensammlungen Firestone u. Shirley (1996) und Pfennig et al. (1998) verwendet. Genauere Angaben zu den bisherigen Arbeiten im Bereich Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie am Institut für Angewandte Physik der TU BAF können z. B. Hebert et al. (1986), Unterricker et al. (1989) und Preusse u. Unterricker (1994) sowie den unveröffentlichten Dissertationen Kim (1987) und Preuß (1993) entnommen werden.

Während die instrumentelle Detektion geladener Teilchen (z. B.  $\alpha$ -Teilchen) auf der direkten Ionisierung und Anregung des Detektormaterials beruht, liegen dem Nachweis der ungeladenen  $\gamma$ -Strahlung verschiedene Arten von Wechselwirkungen zugrunde, bei denen die  $\gamma$ -Strahlungsenergie auf Elektronen des Detektormaterials übertragen wird, welche ihrerseits Atome ionisieren und anregen (indirekt ionisierend). Nach einer radioaktiven Kernumwandlung eines Nuklids, z. B. einem  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Zerfall, verbleibt der Folgekern oft in einem angeregten Energiezustand. Durch einen spontanen  $\gamma$ -Übergang, z. B. unter Aussendung eines  $\gamma$ -Quants, kann der angeregte Atomkern seine Energie abgeben und in den Grundzustand zurückkehren. Die resultierende  $\gamma$ -Strahlung ist charakteristisch für das Nuklid und ermöglicht seine Identifizierung.

Als Beispiel für ein RN mit nur einer charakteristischen  $\gamma$ -Energie (monoenergetisch) zeigt Abb. 2 das Zerfallsschema des  $^{137}\text{Cs}$ . Das Cs-Isotop geht mit einer Häufigkeit von 94 % in einen metastabilen isomeren Zustand des Bariums über ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ , Lebensdauer  $\tau = 2.55$  min). Beim Übergang in den Grundzustand wird ein  $\gamma$ -Quant der Energie 662 keV emittiert; mit einer Häufigkeit von 10 % findet zudem ein strahlungsloser Übergang statt (innere Konversion). Beim Zerfall des  $^{60}\text{Co}$  dagegen wird der Grundzustand des  $^{60}\text{Ni}$  nach Aussendung zweier  $\gamma$ -Quanten in Form einer Kaskade erreicht ( $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskadenzerfall; weitere Beispiele:  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{152}\text{Eu}$ ).



$\gamma_1$ : 1.173 MeV  $\gamma$  (100%)  
 $\gamma_2$ : 1.333 MeV  $\gamma$  (100%)



$\gamma_1$ : 0.662 MeV  $\gamma$  (85%)

Abb. 2: Zerfalls-  
schemata der RN  
 $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$   
(verändert nach  
Knoll 1989)

Durchdringen die freiwerdenden  $\gamma$ -Quanten Materie, hier das jeweilige Detektormaterial, so können sie mit den enthaltenen Atomen auf verschiedene Weise wechselwirken (dies gilt auch für Röntgenquanten entsprechender Energie). Die drei wichtigsten Wechselwirkungsprozesse sind der Photoeffekt, die Comptonstreuung und die Paarbildung (Abb. 3).

Trifft ein  $\gamma$ -Quant auf ein fest gebundenes Elektron der Atomhülle (bevorzugt K- und L-Schalen), dessen Bindungsenergie geringer ist als die des  $\gamma$ -Quants, so wird das Elektron herausgeschlagen und das Atom ionisiert (**Photoeffekt**, PE). Die entstandene Lücke kann durch ein Elektron einer höheren Schale der Atomhülle aufgefüllt und die dabei freiwerdende Energie in Form charakteristischer Röntgenstrahlung abgegeben werden (Röntgenfluoreszenzstrahlung).

Mit zunehmender Energie wird die **Comptonstreuung** (Comptoneffekt, CE) wahrscheinlicher, bei der das  $\gamma$ -Quant nur einen Teil seiner Energie auf ein praktisch freies Elektron äußerer Schalen überträgt. Nach dem Zusammenstoß fliegen das gestreute  $\gamma$ -Quant und das Rückstoßelektron, weitestgehend den Gesetzmäßigkeiten des elastischen Stoßes folgend, in verschiedene Richtungen auseinander. Im Falle kompletter Rückwärtsstreuung des einfallenden  $\gamma$ -Quants (Streuwinkel  $\theta = 180^\circ$ ) ist der Energieverlust maximal, es wird jedoch nicht die gesamte Energie des  $\gamma$ -Quants auf das Elektron übertragen.

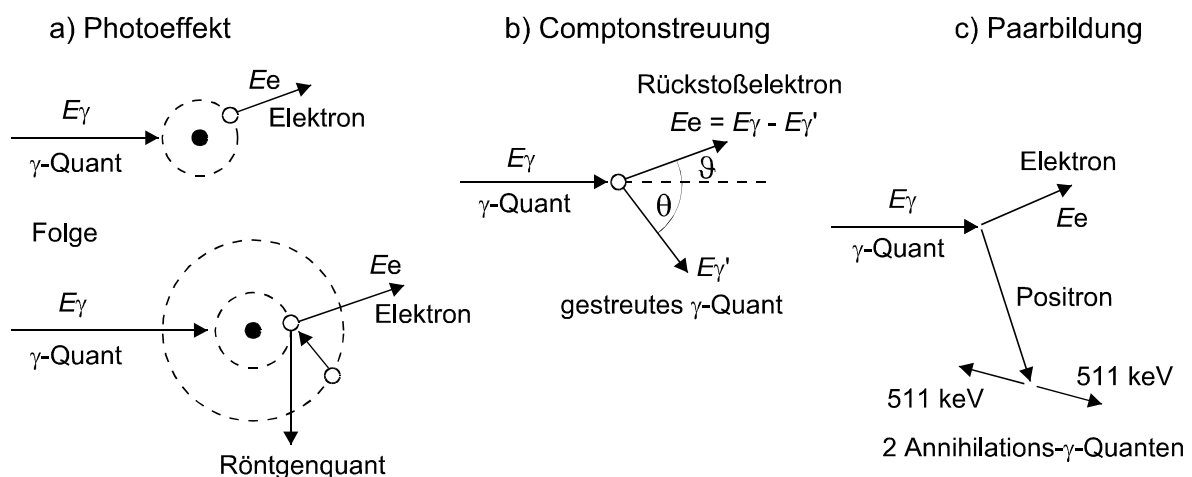


Abb. 3: Schematische Darstellung möglicher Wechselwirkungen zwischen  $\gamma$ -Quanten und Atomen



$\gamma$ -Energien größer der doppelten Ruheenergie eines Elektrons ( $E_\gamma > 1.022 \text{ MeV}$ , i. allg.  $> 10 \text{ MeV}$ ) ermöglichen im Coulombfeld eines Atomkerns die Umwandlung des  $\gamma$ -Quants in ein Elektron-Positron-Paar (**Paarbildung**, PB). Das Positron wird innerhalb eines Zeitraums von etwa 1 ns auf thermische Energien abgebremst und zusammen mit einem weiteren Elektron vernichtet (Positronenannihilation), wobei zwei Photonen der Energie 511 keV emittiert werden. Vom Wechselwirkungsmaterial absorbiert wird zunächst nur die kinetische Energie des Elektron-Positron-Paares ( $E_\gamma - 2m_e c^2$ ).

Die durch genannte Wechselwirkungen gebildeten Elektronen geben ihre kinetische Energie an das Detektormaterial in Form weiterer Ionisationen (Bildung von Elektron-Loch-Paaren) und von Bremsstrahlung ab. Die Gesamtmenge gebildeter Elektron-Loch-Paare ist der vom  $\gamma$ -Quant auf die Elektronen übertragenen Energie proportional. Vergleicht man die von den interessierenden RN emittierten  $\gamma$ -Energien zwischen 40 keV und 1500 keV (z. B.  $^{210}\text{Pb}$ , 46.5 keV, und  $^{40}\text{K}$ , 1461 keV) mit den zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares nötigen Energien in typischen Detektormaterialien von z. B. etwa 3 eV für Si und Ge, so wird deutlich, welche große Anzahl von Elektronen ein  $\gamma$ -Quant theoretisch auslösen kann.

Im Falle von Halbleiterdetektoren werden diese Elektronen in einer Schicht erzeugt, die arm an frei beweglichen Ladungsträgern ist, und damit die Leitfähigkeit des Halbleiters vergrößert. Legt man ein elektrisches Feld an, so können die gebildeten Ladungsträger an Elektroden gesammelt und in elektrische Ladungsimpulse umgewandelt werden. Vor- und Hauptverstärker verstärken die Impulse, ein nachgeschalteter Vielkanalanalysator sortiert sie nach Impulshöhen (Kanäle). Im resultierenden Impulshöhen- bzw.  $\gamma$ -Spektrum, werden die Impulsraten über den zugehörigen Impulshöhen, welche den absorbierten  $\gamma$ -Energien entsprechen, aufgetragen.

Im Detektormaterial sollte folglich ein möglichst großer Anteil der Energie einfallender  $\gamma$ -Quanten absorbiert werden. Welche Parameter demnach bei der Materialauswahl zu beachten sind, zeigt sich deutlich am Zusammenhang zwischen den einzelnen Wechselwirkungsprozessen und der Gesamtschwächung von  $\gamma$ -Strahlung in Materie. Entsprechend des Schwächungsgesetzes hängt die Schwächung der Intensität  $I$  eines schmalen Strahlungsbündels durch Materie sowohl von der Schichtdicke  $x$  des Materials ab als auch vom jeweiligen linearen Schwächungskoeffizienten  $\mu$  (in  $\text{m}^{-1}$ ):

$$I(x) = I(0) \cdot e^{-\mu \cdot x} = I(0) \cdot e^{-\frac{\mu}{\rho} \cdot d} \quad \text{mit} \quad d = \rho \cdot x \quad (1)$$

Da  $\mu$  mit der Absorberdichte  $\rho$  variiert, ist die Verwendung des Massenschwächungskoeffizienten  $\mu^* = \mu/\rho$  (in  $\text{m}^2 \text{ kg}^{-1}$ ) in der Praxis nützlicher (Flächenmasse  $d$  in  $\text{kg m}^{-2}$ ). Dieser wiederum ist dem Gesamtwirkungsquerschnitt  $\sigma$  proportional (Avogadrokonstante  $N_A$ , molare Masse  $M$ ):

$$\mu^* = \frac{\mu}{\rho} = \frac{N_A}{M} \cdot \sigma \quad (2)$$

Der Gesamtwirkungsquerschnitt  $\sigma$  ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit der Wechselwirkung eines  $\gamma$ -Quants spezifischer Energie mit dem jeweiligen Material. Er errechnet sich nach

$$\sigma = \sigma_{\text{PE}} + \sigma_{\text{CE}} + \sigma_{\text{PB}} \quad (3)$$

aus den Wirkungsquerschnitten der einzelnen Wechselwirkungen:

$$\sigma_{\text{PE}} \sim Z^5 \cdot E_\gamma^{-3.5}, \quad \sigma_{\text{CE}} \sim Z \cdot E_\gamma^{-1}, \quad \sigma_{\text{PB}} \sim Z^2 \quad (4)$$

Für eine einfallende  $\gamma$ -Strahlung der Energie  $E_\gamma$  und ein absorbierendes Material der Ordnungszahl  $Z$  geben die jeweiligen Wirkungsquerschnitte Auskunft über die Wahrscheinlichkeit, mit der die einzelnen Wechselwirkungen stattfinden.

Entsprechend ergibt sich der totale lineare Schwächungskoeffizient  $\mu$  (bzw. Massenschwächungskoeffizient  $\mu^*$ ) aus der Addition der Koeffizienten der drei Wechselwirkungsprozesse:

$$\mu = \mu_{\text{PE}} + \mu_{\text{CE}} + \mu_{\text{PB}} \quad (5)$$

Beispielhaft ist der Verlauf von  $\mu = f(E_\gamma)$  für Ge in Abb. 4 zu finden. Es zeigt sich deutlich, daß der Photoeffekt für Energien  $E_\gamma < 0.1$  MeV und der Comptoneffekt für  $E_\gamma \approx 1$  MeV dominiert. Paarbildung tritt erst ab  $E_\gamma > 1.022$  MeV auf und wird für  $E_\gamma > 10$  MeV wesentlich. Tabellarische Werte für  $\mu^* = f(Z, E)$  können z. B. Hubbell (1982) und Debertin u. Helmer (1988) entnommen werden.

Um die Vorteile hoher Ordnungszahl und großer Dichte des Detektormaterials für den Nachweis von  $\gamma$ -Strahlung zu nutzen, wird heutzutage im Falle von Halbleiterdetektoren Ge ( $Z = 32$ ) dem Si (14; hauptsächlich für Röntgendetektoren benutzt) vorgezogen. Für Szintillationsdetektoren finden Materialien wie NaJ(Tl) ( $Z_J = 53$ ) oder  $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$  (BGO, Bismutgermanat;  $Z_{\text{Bi}} = 83$ ) Verwendung.

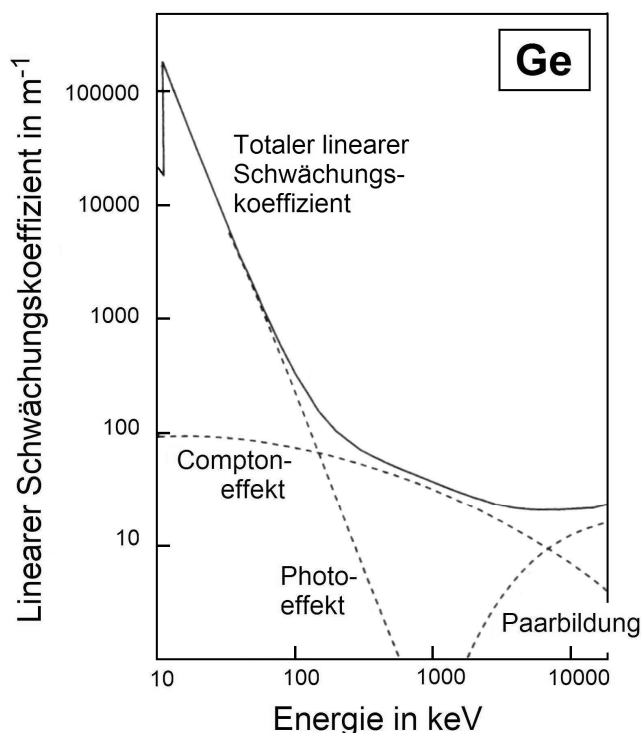


Abb. 4: Linearer Schwächungskoeffizient  $\mu$  für Germanium in Abhängigkeit von der Photonenenergie (nach Gilmore u. Hemingway 1995)

In einem – als Gedankenspiel theoretisch angenommenen – unendlich großen Detektor würde einfallende  $\gamma$ -Strahlung einer definierten Energie jeweils vollständig absorbiert und einzig in Form der entsprechenden Vollenergielinie (auch Linie oder „Photopeak“ bzw. Peak genannt) im  $\gamma$ -Spektrum abgebildet. In den  $\gamma$ -Spektren realer Detektoren überlagern sich jedoch Linien und Kontinua. Letztere können z. B. durch unvollständig absorbierte oder aus der Umgebung des Detektors eingestreute  $\gamma$ -Quanten erzeugt werden. Am Beispiel des  $\gamma$ -Spektrums einer  $^{137}\text{Cs}$ -Punktquelle in Abb. 5 sind sowohl die Vollenergielinie als auch das Kontinuum unvollständiger Absorption durch Comptonstreuung, dessen maximal absorbierte Energie als Comptonkante bezeichnet wird, der Rückstreupic (verursacht durch Comptonstreuung in der Umgebung des Detektorkristalls, z. B. in der Abschirmung) und der Bereich mehrfacher Comptonstreuung zu sehen. Zudem enthält das Spektrum die  $K_\alpha$ - und  $K_\beta$ -Röntgenlinien des Bariums.

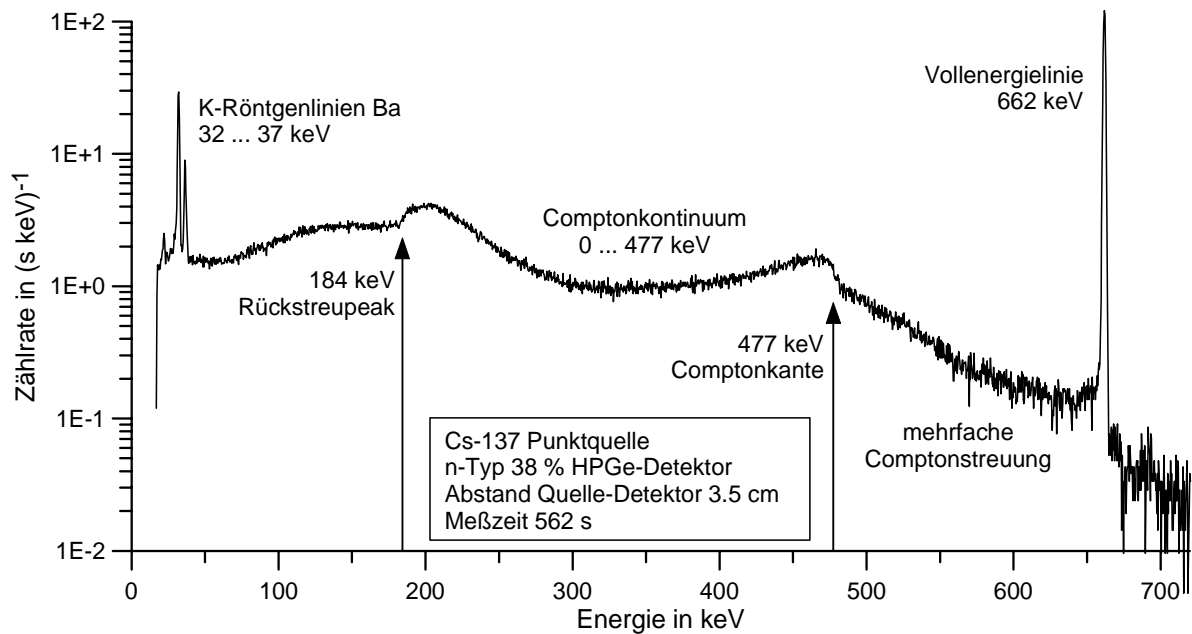


Abb. 5: Spektrum eines  $^{137}\text{Cs}$ -Punktpräparats, gemessen auf einem coaxialen n-Typ 38 % HPGe-Detektor (eigene Messung)

Ein RN kann über eine Vollenergielinie identifiziert werden, die aus einer seiner charakteristischen  $\gamma$ -Energien resultiert. Die Aktivität des RN, d. h. die Intensität der eingefallenen  $\gamma$ -Strahlung, ist der Peakfläche pro Zeit (Peakrate) proportional. Die Fähigkeit eines Detektors,  $\gamma$ -Energien in Form von Peaks abzubilden, wird durch die energieabhängigen Parameter Energieauflösung und Detektoreffektivität charakterisiert (zur Definition und Bestimmung von Detektorcharakteristika s. IEEE 1987).

Unter der **Energieauflösung** versteht man die bei der jeweiligen Energie produzierte Peakbreite, auch (Peak)Halbwertbreite („full width at half maximum“ = FWHM) genannt. In der Praxis wird die Energieauflösung bei einer bestimmten Energie in keV FWHM angegeben, obwohl sie per Definition eigentlich eine dimensionslose Größe darstellt ( $\Delta E/E$ , in % angegeben). Positiv auf die Auflösung wirkt es sich u. a. aus, wenn möglichst geringe Energien zur Bildung eines Elektron-Loch-Paares im Detektormaterial benötigt und damit pro  $\gamma$ -Quant möglichst viele Elektron-Loch-Paare erzeugt werden.

Die (absolute) **Detektoreffektivität**  $\eta(E_\gamma)$  („Efficiency“, Effizienz, Nachweiswahrscheinlichkeit) ist definiert als das Verhältnis der Anzahl registrierter Zählereignisse (Zählimpulse, „Counts“) eines Vollenergiepeaks (d. h. abzüglich des Untergrunds) zur Anzahl der von der Quelle emittierten  $\gamma$ -Quanten entsprechender Energie (und somit eine Funktion von  $Z$ ). Zu Vergleichszwecken verschiedener Detektoren untereinander dient die relative Detektoreffektivität (in %), das Verhältnis der Detektoreffektivität bei einer festgelegten Energie, i. allg. 662 keV oder 1333 keV, zu der eines  $3'' \times 3''$  ( $76 \times 76 \text{ mm}^2$ ) NaJ(Tl)-Szintillatorkristalls bei einer Distanz Quelle-Detektor von 25 cm (IEEE 1987).

Eine gute Energieauflösung ermöglicht nicht nur die Trennung eng benachbarter Peaks, sondern auch die Detektion schwacher Quellen diskreter Energien in einem breiten Kontinuum. Detektoren mit gleicher Effektivität resultieren in gleichen Peakflächen, die mit guter Auflösung jedoch produzieren einen schmalen, hohen Peak, der sich aus dem statistischen Rauschen des Kontinuums erhebt. Somit eignen sich Ge-Detektoren trotz der im Vergleich zu NaJ(Tl)-Detektoren (v. a. im Bereich größerer Energien) niedrigeren Effektivität aufgrund ihrer höheren Energieauflösung – bei einer  $\gamma$ -Energie von

662 keV typischerweise um 1.5 keV FWHM ( $\Delta E/E = 0.2\%$ ) im Gegensatz zu etwa 45 keV (7 %) (Preuße 1993; vgl. Werte zu Detektorcharakteristika in Debertin u. Helmer 1988 und Knoll 1989) – wesentlich besser für die Detektion schwacher Aktivitäten oder die Identifizierung von  $\gamma$ -Energien in komplexen Spektren (vgl. Abb. 6). Um die für NaJ(Tl)-Detektoren üblichen Effektivitäten zu erreichen, müßten allerdings große und damit sehr teure Ge-Kristalle verwendet werden.

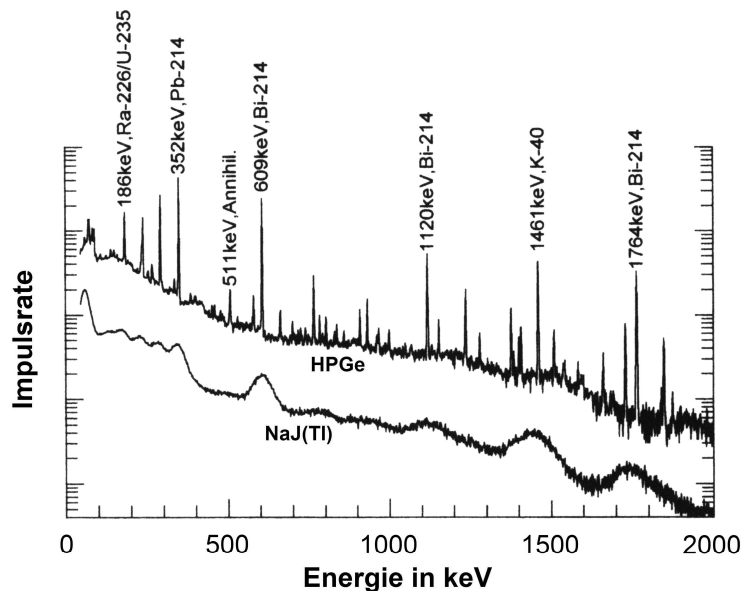


Abb. 6: Vergleich der  $\gamma$ -Spektren einer Bodenprobe, gemessen mit einem NaJ(Tl)-Szintillationszähler und einem HPGe-Halbleiterdetektor (nach Stolz 1996)

In Abhängigkeit von sowohl Probenmenge und -beschaffenheit als auch den zu messenden RN, deren  $\gamma$ -Energien und Aktivitätskonzentrationen, ist zwischen unterschiedlich geeigneten Detektorbauformen zu wählen. Detektoren aus hochreinem Ge („high-purity Ge“ = HPGe) sind als Planar-, Bohrloch- oder Koaxial-Detektoren, sowie als p- oder n-Typ ausgeführt. Für die in vorliegender Arbeit hauptsächlich untersuchten Bodenproben, welche sehr geringe Aktivitätskonzentrationen aufweisen, jedoch meist in ausreichend großen Probenmengen vorliegen, ist die koaxiale Konfiguration am besten geeignet, da die Verwendung sog. Marinellibecher-Probenbehälter mit einem Füllvolumen von bis zu 1 L möglich ist.

Die Typenbezeichnungen „p“ und „n“ beziehen sich auf die jeweilige (ungewollt und zufällig entstehende) „Verunreinigung“ des vierwertigen Ge-Materials mit dreiwertigen Atomen wie Ga(Illium) oder B(or) (positive Akzeptoren mit Löchern als Majoritätsladungsträgern) bzw. fünfwertigen Atomen wie Arsen (As) oder P(hosphor) (negative Donatoren mit Elektronen als Ladungsträgern). n-Typ HPGe-Detektoren weisen im Vergleich zu p-Typ-Ausführungen eine wesentlich bessere Effektivität im Energiebereich  $< 100$  keV auf. Sie sind somit wesentlich besser zum Nachweis von RN niedriger  $\gamma$ -Energien wie z. B.  $^{210}\text{Pb}$  (46.5 keV),  $^{241}\text{Am}$  (59.5 keV) und  $^{234}\text{Th}$  (63.3 keV) geeignet. Deshalb wurde neben dem schon vorhandenen Meßplatz mit p-Typ Detektor noch ein Meßplatz mit n-Typ Detektor in Betrieb genommen (s. Kap. 3.1.2). Nachteile des n-Typs sind die aufgrund des komplizierteren Herstellungsverfahrens höheren Kosten und ein stärkeres Potential für „true coincidence summing“-Probleme (Summenkoinzidenz; Zählverluste in der Vollenergielinie sowie Summenpeakbildung infolge gleichzeitig absorbierten  $\gamma$ -Quanten aus Kaskadenzerfällen).

### 3.1.2 Charakteristika der verwendeten Meßplätze mit Low-level- $\gamma$ -Spektrometern

Während der Durchführung der vorliegenden Arbeit verfügte das Institut für Angewandte Physik der TU BAF über drei  $\gamma$ -Spektrometer, welche sich u. a. in Detektortyp und -ausführung, der Abschirmungsart und den verwendeten Materialien unterschieden. Für die hier diskutierten Untersuchungen an Umweltproben konnte Meßkapazität der zwei in Tabelle 5 beschriebenen Low-level-Meßplätze genutzt werden. Sämtliche Angaben im folgenden Kapitel beziehen sich auf die Konfiguration der Meßplätze im Zeitraum der durchgeführten Messungen. Auf die Charakteristika des  $\gamma$ -Spektrometers mit koaxialem n-Typ 38 % HPGe-Detektor (N38) wird im folgenden detaillierter eingegangen (Abb. 8). Weitere Eigenschaften des Meßplatzes mit koaxialem p-Typ 36 % HPGe-Detektor (P36) sind Preuße (1993) und Preusse u. Unterricker (1994) zu entnehmen (Abb. 10). Ein drittes  $\gamma$ -Spektrometer, ein koaxialer p-Typ 25 % HPGe-Detektor, wurde nur für einige hier nicht im Detail vorgestellte Messungen benutzt.

Die Verwendung verschiedener Probenbehälter (Tabelle 6) – zylindrischer Aluminiumdosen (WD) und speziell für koaxiale Detektoren gestalteter Marinellibecher (MB; Abb. 7) – erfordert passive Abschirmungen, welche auf die jeweils resultierende Probe-Detektor-Geometrie zugeschnitten sind (Tabelle 5).

Tabelle 5: Charakteristika der verwendeten Low-level-Meßplätze mit HPGe-Detektoren (für den Zeitraum der hier durchgeführten Untersuchungen)

	Meßplatz N38	Meßplatz P36
<b>Detektor</b>		
Hersteller / Modell	EG&G Ortec / Gamma X	EG&G Ortec
Kristall (Abmessungen)	HPGe ( $\varnothing$ 58.4 mm, L 70.7 mm)	HPGe ( $\varnothing$ 57.5 mm, L 67.4 mm)
Bauform	koaxial	koaxial
Typ	n-Typ	p-Typ
Kristallhalterung	2 mm Kryal (hochreines Al)	Kupfer
Endkappe	2 mm Kryal	1.27 mm Magnesium
Abstand Endkappe–Kristall	3 mm	k. A.
Totschicht	0.3 $\mu$ m inaktives Ge	k. A.
<b>Detektorparameter</b> (bei 1333 keV, $^{60}\text{Co}$ )		
Rel. Detektoreffektivität	38 %	36 %
Energieauflösung	1.92 keV FWHM	1.9 keV FWHM
Peak-zu-Compton-Verhältnis <sup>1)</sup>	57.3	k. A.
<b>Meßplatz</b>		
Standort	Kellerlabor	2. Obergeschoß
Passive Abschirmung (von außen nach innen)	100 mm Bolidenblei 20 mm aktivitätsarmes Blei 2 mm Elektrolytkupfer (4 mm Plexiglas) 40 mm Elektrolytkupfer (WD) bzw. 13 mm Eisen (Stahl; MB)	70 mm gewöhnliches Blei <sup>2)</sup> 40 mm aktivitätsarmes Blei <sup>3)</sup> 20 mm Quecksilber <sup>4)</sup> 40 mm Elektrolytkupfer (WD) bzw. 5 mm Elektrolytkupfer (MB)
Aktive Abschirmung	–	Antikoinzidenzabschirmung
Reduktion des $^{222}\text{Rn}$ -Eintrags	Rückführung des verdampften Stickstoffs in den Detektorraum	Kompakte Bauweise mit geringen Hohlräumen

k. A. keine Angabe

<sup>1)</sup> Verhältnis zwischen der Maximalamplitude im Vollenergiepeak ( $^{60}\text{Co}$ : 1333 keV) und der mittleren Amplitude des Comptonkontinuums ( $^{60}\text{Co}$ : per Definition für den Bereich 1040 ... 1096 keV) (IEEE 1987)

<sup>2)</sup> „Ziegelblei“, im Strahlenschutz verwendet, ca.  $10^4$  Bq  $^{210}\text{Pb}$ /kg (Preuße 1993)

<sup>3)</sup> „Koreablei“, ca. 140 Bq  $^{210}\text{Pb}$ /kg (Preuße 1993)

<sup>4)</sup> doppelt destilliert, in  $^{60}\text{Co}$ -armen Edelstahlbehältern (Preuße 1993)

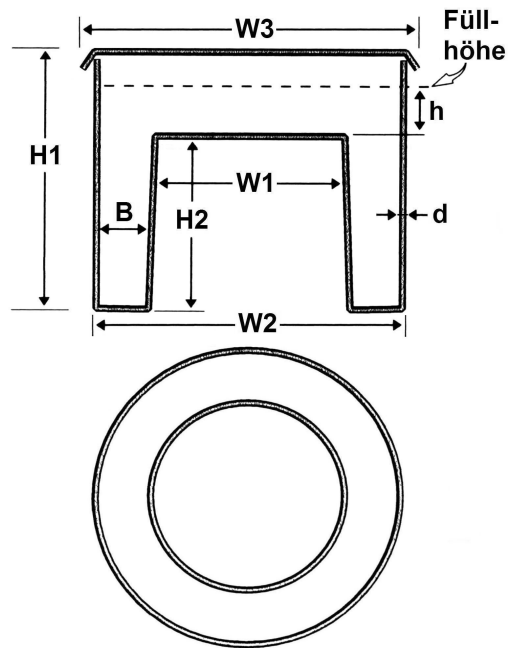


Abb. 7: Schematische Darstellung des verwendeten Marinellibechers (Charakteristika s. Tabelle 6; verändert nach Gilmore u. Hemingway 1995 und H. Margraf, QSA Global, pers. Mitt. 2006; vgl. IEEE 1987)

Tabelle 6: Charakteristika der Probenbehälter

	Marinellibecher <sup>1)</sup> (MB; Abb. 7)		Dose („Wurstdose“ WD)	
Ungefähre Abmessungen (mm)	H1	107	∅	72
	H2	68	H <sup>3)</sup>	25
	h <sup>2)</sup>	max. 30		
	W1	76		
	W2	114		
	W3	118		
	B	15		
	d	2		
Volumen (mL)	nominal 450 <sup>2)</sup>		ca. 80 <sup>4)</sup>	
Material	Polyethylen		Aluminium	
Radondichte <sup>4)</sup>	möglich		gewährleistet	

<sup>1)</sup> Amersham, Marinellibecher VZ-1267/1, Typ QCR13

<sup>2)</sup> Bei Standardbefüllung entspricht h ~ B; gewählt wurden Füllhöhen h von max. 30 mm.

<sup>3)</sup> Max. Befüllung ca. 20 mm; überstehender Rand wird zum Verschließen benötigt.

<sup>4)</sup> s. Kap. 3.1.4

Standort des seit 1996 für  $\gamma$ -spektrometrische Untersuchungen an Umweltproben verwendeten Meßplatzes N38 ist ein Kellerlabor des Instituts für Angewandte Physik. Abb. 8 zeigt die schematische Darstellung des Meßplatzes. Kernstück ist der koaxiale n-Typ 38 % HPGe-Detektor der Firma EG&G Ortec. Die äußere passive Abschirmung (Von Gahlen, zylindrische Abschirmkammer (Toplander) mit zweiteiligem Schiebedeckel, Modell VG-BB-98/19/S-100/20-2/4) besteht aus 100 mm Bolidenblei ( $30 \pm 3 \text{ Bq } ^{210}\text{Pb/kg}$ ) und 20 mm aktivitätsarmem Blei ( $7 \text{ Bq } ^{210}\text{Pb/kg}$ ) sowie einer Innenauskleidung aus 2 mm Elektrolytkupfer. Die vom Hersteller an der Innenwandung angebrachte 4 mm dicke Plexiglasschicht dient der leichteren Dekontaminierbarkeit des Detektorraums. In der hier verwendeten Meßplatzkonfiguration mit zusätzlichen, auf die jeweilige Probe-Detektor-Geometrie zugeschnittenen inneren Abschirmungen bewirkt die Kunststoffschicht keine Verbesserung der Abschirmung. Zur Abdeckung von oben wurde eine zusätzliche Piacrylabdeckung unter dem beweglichen Deckel angebracht. Werden MB als Probenbehälter verwendet, so kommt die in Abb. 8 dargestellte, Detektor und Probe eng umschließende, 13 mm dicke Eisenabschirmung (Stahl) zum Einsatz. Für WD liegen passende Einsätze aus 40 mm dickem Elektrolytkupfer vor. Es wurde eine Stickstoffspülung der Probenkammer konstruiert, wobei der verdampfte Stickstoff (Rn-frei) über einen Kunststoffschlauch aus dem Dewar in den Innenraum der äußeren Abschirmung geleitet wird.

Sowohl die passive Abschirmung als auch die Gasspülung des Detektorraums dienen einer Reduzierung des Nulleffekts (NE). Im Gegensatz dazu ist der Meßplatz P36 mit einer aktiven Abschirmung ausgestattet und benötigt keine Stickstoffspülung, da aufgrund der kompakten Bauweise kaum Hohlräume vorliegen. Im folgenden wird dargelegt, welche Kriterien der Wahl der vorliegenden Abschirmungen zugrunde lagen und wie die Resultate bezüglich der Reduzierung des Nulleffekts einzuordnen sind.



Linien und Kontinua im Nulleffekt. Die Verdrängung der Rn-haltigen Luft aus dem Meßraum – z. B. durch eine Gasspülung der Probenkammer, Evakuierung des Detektorraums und anschließende Befüllung mit Flaschenstickstoff oder eine kompakte Bauweise im Bereich Detektor-Probe-Abschirmung – reduziert diesen Nulleffektanteil (Liguori et al. 1983; Malm et al. 1984; Heusser 1986, 1991; Verplancke 1992).

Bei der Auswahl der hier verwendeten **Detektor- und Abschirmmaterialien** wurde auf möglichst geringe Kontamination durch RN geachtet. Eine Zielstellung für den n-Typ Detektor war der effiziente Nachweis von RN niedriger Energien im Bereich 30 ... 100 keV, somit mußte z. B. auf geringe  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten der Pb-Abschirmung Wert gelegt werden (s. u.).

Die Wirksamkeit einer **passiven Abschirmung** basiert in erster Linie auf der Schwächung der einfallenden Umgebungsstrahlung durch geeignete Materialien. Entsprechend G.. (1) ... (4) eignen sich hierzu Stoffe hoher Ordnungszahl und großer Dichte, wie z. B. Bi ( $Z = 83$ ), Pb (82), Hg (80). Pb weist neben hohem  $Z$  zudem den Vorteil guter Verfügbarkeit bei geringen Kosten auf und wird daher bevorzugt als Abschirmungsmaterial verwendet. Wie Gl. (1) zeigt, steigt die Schwächung mit zunehmender Dicke eines Materials. Zur Abschirmung gegen Umgebungsstrahlung haben sich Pb-Stärken von 100 ... 150 mm als ideal erwiesen (Malm et al. 1984; Verplancke 1992; Preuß 1993). Eine darüber hinaus gehende Verstärkung der Pb-Abschirmung ist aus folgendem Grund nicht zu empfehlen. Kosmische Myonen können durch Wechselwirkungen mit den Abschirm- und Detektormaterialien, hier mit Pb-Atomkernen, thermische und schnelle Neutronen (und auch Rn) produzieren, welche wiederum durch Wechselwirkungen mit weiteren Atomkernen sog. **neutroneninduzierte Linien** im Spektrum erzeugen, wie z. B. 66.7 keV ( $^{73\text{m}}\text{Ge}$ ), 579.2 keV ( $^{207}\text{*Pb}$ ) oder 669.6 keV ( $^{63}\text{*Cu}$ ) (\* = angeregter Zustand; vgl. Abb. 9) (Verplancke 1992; Heusser 1993; Preuß 1993). Die Neutronenerzeugungsrate durch Myonen ist aufgrund hoher Ordnungszahl und großer Dichte im Abschirmmaterial selbst höher als im Außenraum, somit sollte die Abschirmung nach der Regel „so stark wie nötig und so dünn wie möglich“ dimensioniert werden (Heusser 1986, 1996; Da Silva et al. 1995).

In den zu normalem, kommerziellem Pb verarbeiteten Bleierzen sind Spuren von  $^{238}\text{U}$  und damit auch von dessen Folger, dem **radioaktiven Pb-Isotop  $^{210}\text{Pb}$** , enthalten. Im Rahmen der chemischen und metallurgischen Reinigung des Erzes kann  $^{210}\text{Pb}$  nicht abgetrennt werden und verbleibt somit im Endmaterial (typischer Wert  $> 500 \text{ Bq } ^{210}\text{Pb/kg Pb}$ ; Verplancke 1992).  $^{210}\text{Pb}$  emittiert  $\gamma$ -Quanten der Energie 46.5 keV, sein **Tochternuklid  $^{210}\text{Bi}$**  produziert über  $\beta^-$ -Zerfall einen weiteren unerwünschten Beitrag zum Nulleffekt in Form eines Bremsstrahlungskontinuums ( $E_{\beta\text{max}} = 1162.7 \text{ keV}$ ). Somit ist bei der Auswahl des Pb auf aktivitätsarmes Material mit niedrigen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten von  $< 50 \text{ Bq } ^{210}\text{Pb/kg Pb}$  zu achten (Verplancke 1992). Für Low-level-Meßplätze kommt entweder Pb aus besonders aktivitätsarmen, verunreinigungsfrei verarbeiteten Erzen oder „altes“ Pb, dessen Alter hoch (z. B.  $> 200 \text{ a}$ ) im Vergleich zur Halbwertszeit des Pb ist, in Frage (Brodzinski et al. 1990; Mouchel u. Wordel 1996). Allerdings sind diese Bleisorten teuer und, im Falle des „alten“ Pb, oft nicht in großen Mengen verfügbar (z. B. Pb gesunkener Galeonen). Aus diesem Grund setzt sich die Pb-Abschirmung häufig aus Bleisorten unterschiedlicher Qualität zusammen, wobei minderwertigeres Pb nach außen gesetzt wird (z. B. 15 mm altes Pb mit  $< 10 \text{ Bq/kg } ^{210}\text{Pb}$  und 85 mm Bolidenblei mit  $50 \text{ Bq/kg } ^{210}\text{Pb}$ ; Verplancke 1992); ein entsprechender Aufbau liegt auch den passiven Abschirmungen der Meßplätzen P36 und N38 zugrunde (Tabelle 5).

Durch die Eigenaktivität der Probe oder der Detektorumgebung bzw. die Höhenstrahlung kann auch in den Abschirmmaterialien **charakteristische Röntgenstrahlung** verursacht werden (Röntgenfluoreszenz; vgl. Abb. 3). Die Röntgenlinien von Stoffen hoher Ordnungszahlen liegen in gegebenenfalls interessierenden Energiebereichen, z. B. die des Pb bei 73 ... 87 keV. Zur Lösung dieses Problems werden üblicherweise abgestufte Abschirmungen mit von außen nach innen abnehmender Materialdicke und -ordnungszahl verwendet („graded shield“, „graded lining“, z. B. Hg ( $Z = 80$ ), Cd (48), Cu (29) oder Fe (26) (Brodzinski et al. 1990; Verplancke 1992; Heusser 1993; Preuß 1993). Dabei können die freiwerdenden Pb-Röntgenquanten durch ein Material niedrigerer Ordnungszahlen absorbiert werden, dessen charakteristische Röntgenstrahlung im Idealfall außerhalb des  $\gamma$ -Spektrums



liegt (z. B.  $K_{\beta 1}(\text{Cu}) = 8.9 \text{ keV}$ ). Bei der Auswahl dieser inneren Abschirmmaterialien ist wiederum auf niedrige Eigenradioaktivität zu achten. Ein zusätzlicher Vorteil der abgestuften Abschirmung liegt in der Verringerung des oben beschriebenen störenden Einflusses der RN  $^{210}\text{Pb}$  und  $^{210}\text{Bi}$ .

Im Falle der hier verwendeten Meßplätze wurde die innere Schicht, welche Detektor und Probe umgibt, aus Cu oder Fe (für MB-Probenbehälter auf N38) gestaltet, deren Röntgenlinien Energien  $< 10 \text{ keV}$  aufweisen (Abb. 8, Abb. 10). Hg, welches für den Meßplatz P36 verwendet wurde, ist ein guter Absorber und kann sehr rein destilliert werden (kein  $^{210}\text{Pb}$ !). Hg erfordert jedoch eine umsichtige Handhabung und emittiert, ähnlich Pb, Röntgenlinien im Bereich  $70 \dots 83 \text{ keV}$ .

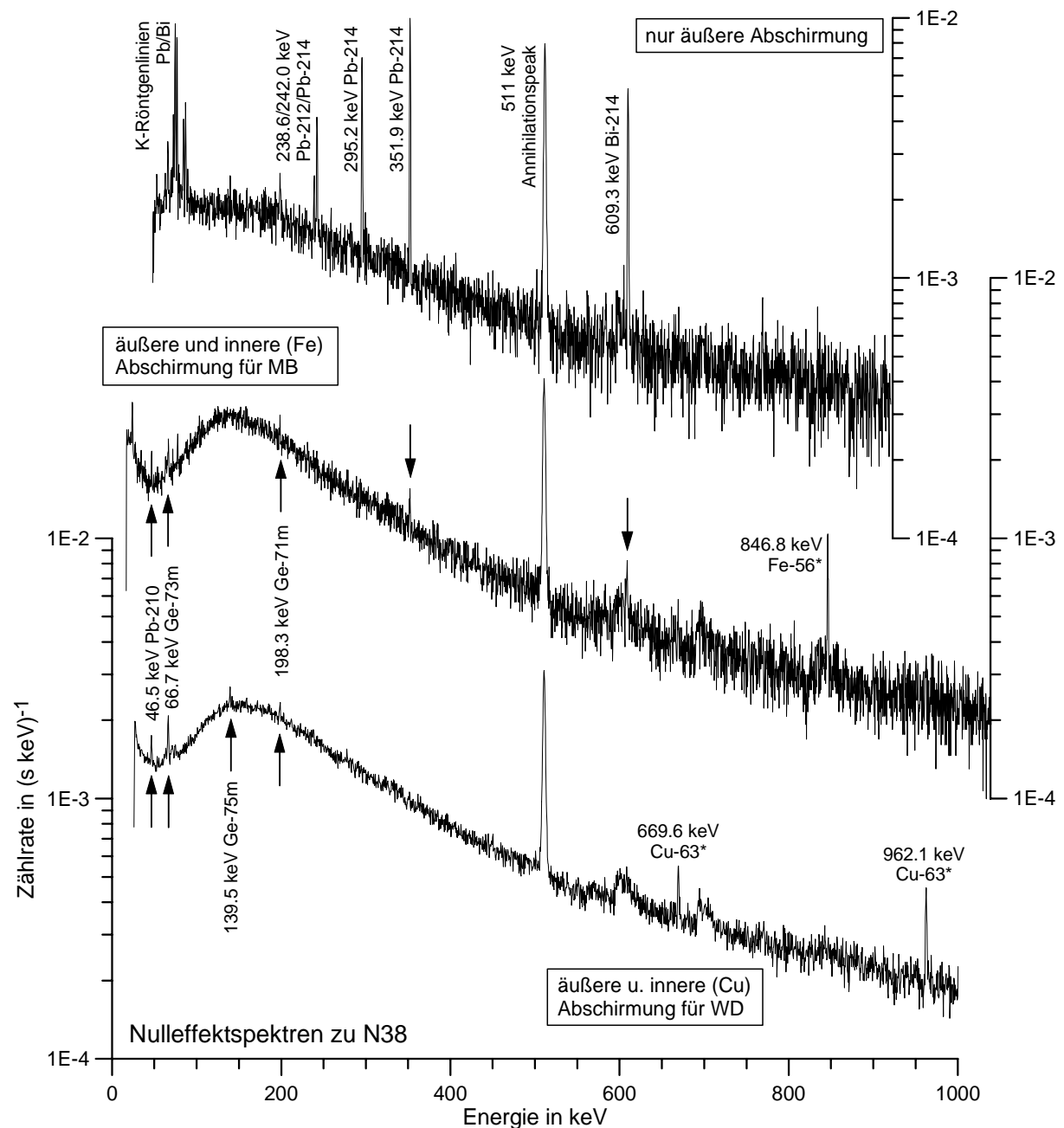


Abb. 9: Vergleich der Nulleffektspektren des Meßplatzes N38 mit und ohne innerer Cu- bzw. Fe-Abschirmung für die WD- und MB-Probenbehälter (ohne Stickstoffspülung)

Weitere Folgen der Wechselwirkungen unterschiedlicher Strahlungsarten mit der Abschirmung zeigen sich im Nulleffektspektrum einerseits im Bereich 70 ... 310 keV, wo durch den Comptoneffekt rückgestreute  $\gamma$ -Strahlung einen erhöhten Untergrund bewirkt (Verplancke 1992; vgl. Abb. 9), andererseits als Beitrag zum Elektron-Positron-Annihilationspeak (511 keV), sofern  $\gamma$ -Strahlen einer Energie  $> 1022$  keV auf die Abschirmung treffen (z. B. durch Höhenstrahlung oder RN hochenergetischer  $\gamma$ -Emissionen in der Probe). Werden Materialien niedrigerer Ordnungszahl benutzt, so wird die Nulleffekterhöhung durch Comptonstreuung mit steigender Materialdicke noch verstärkt. Bei der Dimensionierung der abgestuften Abschirmung ist somit ein Kompromiß zu finden zwischen reduziertem NE durch Absorption der Pb-Röntgenstrahlung und erhöhtem NE durch Comptonstreuung in Materialien geringer Ordnungszahl einerseits und einer Verstärkung der Reaktionen mit kosmischer Strahlung andererseits.

Abb. 9 zeigt den Nulleffekt des Meßplatzes N38 vor und nach dem Einbau der inneren Abschirmung für WD (Cu) bzw. MB (Fe) (Spektrum vor dem Einbau noch ohne, danach mit Stickstoffspülung). Dabei wurde eine Reduktion der integralen Zählrate im Bereich 50 ... 1500 keV um 19 % für Cu bzw. 2 % für Fe erzielt. Markiert sind neutroneninduzierte Linien aus der Abregung angeregter Kernzustände (\*) der Abschirmungsmaterialien, wie 669.6 keV ( $^{63}\text{*Cu}$ ) und 846.8 keV ( $^{56}\text{*Fe}$ ), oder aus der Abregung isomerer Zustände des Detektor-Ge, wie 66.7 keV ( $^{73\text{m}}\text{Ge}$ ), 139.5 keV ( $^{75\text{m}}\text{Ge}$ ) und 198.3 ( $^{71\text{m}}\text{Ge}$ ). Deutlich sichtbar ist der Annihilationspeak bei 511 keV. Umgebungs-, Luft- und Materialeigenradioaktivitäten äußern sich v. a. in den Linien der  $^{238}\text{U}$ - bzw.  $^{222}\text{Rn}$ -Folgenuklide  $^{214}\text{Pb}$  (241.9, 295.1 keV, 351.9 keV) und  $^{214}\text{Bi}$  (609.3 keV) und des  $^{210}\text{Pb}$  (46.5 keV; nicht sichtbar im Spektrum ohne innere Abschirmung, da dieses erst bei 48 keV beginnt). Das NE-Spektrum vor Einbau der inneren Abschirmung zeigt die  $K_{\alpha}$ - und  $K_{\beta}$ -Röntgenlinien von Pb und Bi im Bereich 73 ... 90 keV. In den Spektren mit innerer Abschirmung sind diese Linien nicht mehr zu erkennen, die statt dessen hervorgerufenen Röntgenlinien des Cu bzw. Fe liegen mit Energien von 6 ... 9 keV außerhalb des Spektrums.

Die Myonenkomponente der sekundären kosmischen Strahlung wird auch durch starke passive Abschirmungen kaum geschwächt und trägt in Form eines Kontinuums und einer Intensivierung des Annihilationspeaks zum Nulleffekt bei. Der Myoneneinfluß kann konventionell nur durch eine massive Gesteinsabschirmung, wie sie z. B. untertage gegeben ist, unterdrückt werden (Liguori et al. 1983; Brodzinski et al. 1985; Hebert et al. 1986; Heusser 1993; Mouchel u. Wordel 1996; Laubenstein et al. 2004). Übertage stellen **aktive Abschirmungen**, sog. **Antikoinzidenzabschirmungen**, eine wirkungsvolle Alternative dar (Heusser 1991; Verplancke 1992; Wordel et al. 1996). Der am Institut für Angewandte Physik im Rahmen der Dissertation von W. Preuß (Preuß 1993) aufgebaute Meßplatz P36 ist mit einer Antikoinzidenzabschirmung ausgestattet, welche die passive Abschirmung des  $\gamma$ -Spektrometers an drei Seiten mit Vieldrahtproportionalzählkammern („multiwire proportional counter“ = MWPC) umgibt (Abb. 10). Verursacht ein einfallendes Myon einen Impuls sowohl in einem der sog. Vetodetektoren als auch im Ge-Kristall, so wird dieser Impuls in dem gemessenen  $\gamma$ -Spektrum nicht berücksichtigt. Um zu gewährleisten, daß die Impulse von demselben Myon ausgelöst wurden, müssen sie quasi zeitgleich, d. h. innerhalb eines Zeitfensters von etwa 20  $\mu\text{s}$ , registriert werden. Effektiv reduziert sich die Gesamtzählrate des Nulleffekts (50 keV ... 2700 keV) durch die passive Abschirmung (WD-Aufbau) um den Faktor 240. Der durch sekundäre kosmische Strahlung verursachte kontinuierliche Anteil und der Annihilationspeak, welche das verbleibende Nulleffektspektrum dominieren, werden durch die aktive Abschirmung um durchschnittlich 60 % verringert (Preuß 1993).

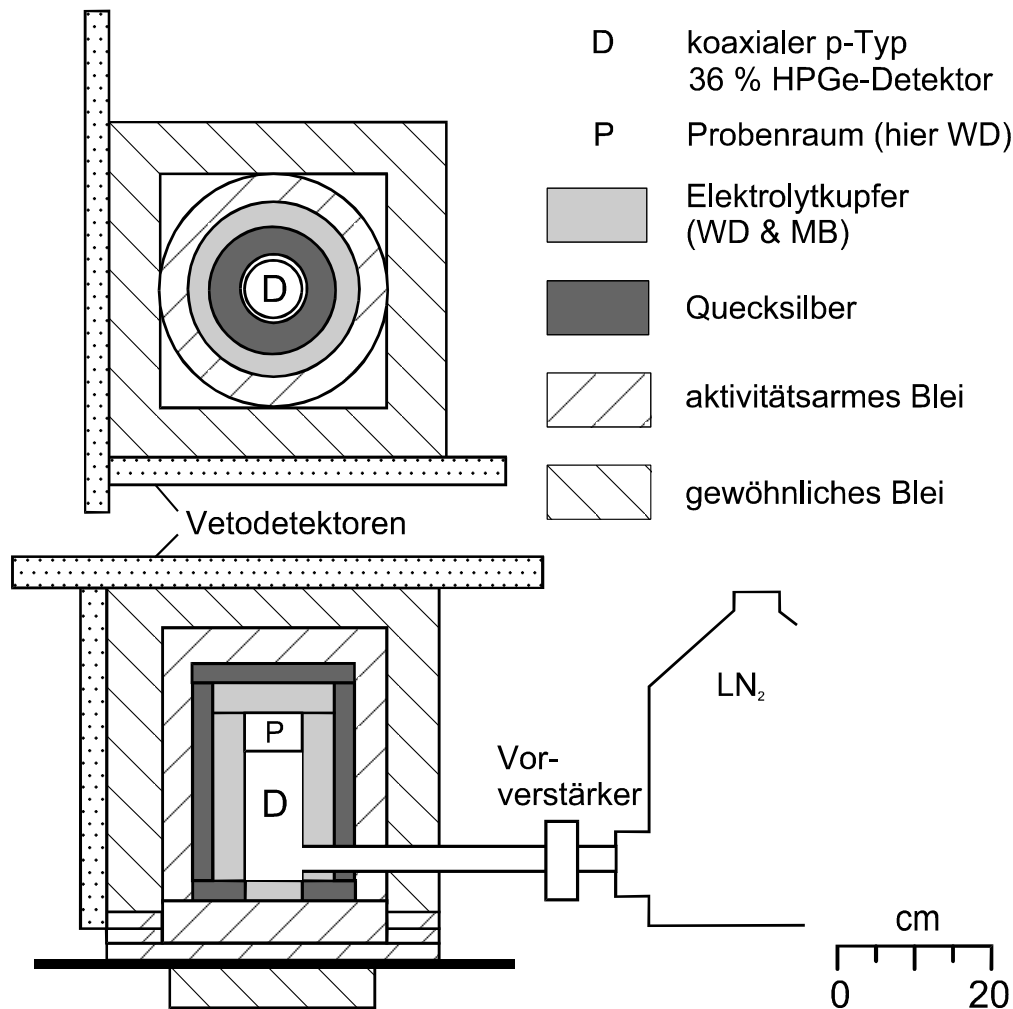


Abb. 10: Meßplatz P36 mit koaxialem p-Typ 36 % HPGe-Detektor und Antikoinzidenzabschirmung (nach Preuße 1993)

Eine weitere Form der Antikoinzidenzabschirmung stellen sog. **Anti-Compton-Spektrometer** dar, deren Vetodetektoren innerhalb der passiven Abschirmung angebracht sind (Landsberger u. Peshev 1996; Wahl et al. 1996; Degering 1997). Zwar kann damit der überwiegend durch kosmische Strahlung induzierte Nulleffekt durch Einsatz der Vetodetektoren in vergleichbarem Maße reduziert werden (z. B. integraler Reduktionsfaktor für den Bereich 50 ... 2700 keV von etwa 3 in Degering 1997; vgl. oben genannte Angaben zur NE-Reduktion durch Einsatz der aktiven Abschirmung aus Preuße 1993), die eigentliche Zielstellung des Anti-Compton-Spektrometers stellt jedoch die Unterdrückung der durch Comptonstreuung verursachten Kontinua in den  $\gamma$ -Spektren zu messender Proben dar (vgl. Abb. 5). Aus dem Detektorkristall Compton-gestreute  $\gamma$ -Strahlung wird in den umgebenden Vetodetektoren, meist Szintillationsdetektoren, registriert und vom  $\gamma$ -Spektrum ausgeschlossen. Wie stark das Comptonkontinuum unterdrückt wird, hängt u. a. von Größe, Form und geometrischer Anordnung der beiden Detektorarten ab. Mit optimalen Anordnungen kann der Comptonuntergrund im niederenergetischen Bereich um einen Faktor deutlich über 10 herabgesetzt werden.

Ideal ist die Verwendung eines Anti-Compton-Spektrometers für die Aktivitätsbestimmung von Einliniennukliden wie  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  und  $^{241}\text{Am}$ . Wahl et al. (1996) und Degering (1997) erreichten für das Comptonkontinuum des  $^{137}\text{Cs}$  Unterdrückungsfaktoren von über 20 an der Comptonkante bei gleichbleibender Intensität des Vollenergiepeaks. Mehrliniennuklide wie  $^{60}\text{Co}$  (Abb. 2; ein Kaskadenübergang) und  $^{96}\text{Tc}$  (zwei dreifache Kaskadenübergänge) erfuhren eine noch stärkere Comptonunterdrückung mit Faktoren von bis zu 60, allerdings verbunden mit einer Intensitätsverringerung der Peaks um den Faktor 7 bzw. 20–30. Grund hierfür ist die mit zunehmender Linienanzahl eines RN erhöhte

Wahrscheinlichkeit, daß die unabhängigen Wechselwirkungen zweier  $\gamma$ -Quanten mit dem Detektor einerseits und der aktiven Abschirmung andererseits als koinzident registriert und somit ausgeblendet werden, was zu einer Verringerung der Zählrate in den Vollenenergiepeaks führt. Anti-Compton-Spektrometer sind somit wenig geeignet für die Detektion von Mehrliniennukliden geringer Aktivitäten, z. B. der in dieser Arbeit interessierenden künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und vieler Folger der natürlichen Zerfallsreihen. Nachteilig ist darüber hinaus der erhöhte finanzielle Aufwand durch sowohl eine größere passive Abschirmung, welche die Vetodetektoren vollständig umschließen muß, als auch die nötige hohe radiochemische Reinheit der für die Vetodetektoren verwendeten Materialien. Die am Meßplatz P36 installierte aktive Abschirmung ist somit wesentlich besser auf die hier vorliegenden Untersuchungsanforderungen durch Umweltproben mit einer Vielzahl natürlicher, kosmogener und künstlicher RN abgestimmt.

### Reduktion des $^{222}\text{Rn}$ -Beitrags zum Nulleffekt mittels Gasspülung des Probenraums (N38)

Um den Einfluß der  $\gamma$ -Strahlung emittierenden  $^{222}\text{Rn}$ -Folgenuklide auf den Nulleffekt zu minimieren, wurde für den Meßplatz N38 eine Gasspülung des Probenraums konstruiert. Grund hierfür war einerseits die gekaufte großvolumige Abschirmung, andererseits der ungünstige Standort des Meßplatzes im Untergeschoß. Der geologische Untergrund (Freiberger Grauer Gneis) und das Baumaterial des Kellerfundaments weisen hohe Rn-Emanationsraten auf. Dadurch ist der  $^{222}\text{Rn}$ -Gehalt der Raumluft im Keller im Vergleich dem der Außenluft um ein Vielfaches erhöht:  $^{222}\text{Rn}$ -Messungen mittels einer Lucaszelle mit Zinksulfid-Beschichtung zeigten im Kellerlabor stark schwankende Werte, im Meßzeitraum 12.3.–7.4.1997 beispielsweise bis zu  $250 \text{ Bq/m}^3$  (Abb. 11), die  $^{222}\text{Rn}$ -Gehalte der Außenluft im zweiten Stock desselben Gebäudes dagegen lagen i. allg. bei  $< 50 \text{ Bq/m}^3$  (z. B. max.  $43 \text{ Bq/m}^3$  im Zeitraum 29.8.1995–3.1.1996; U. Zeiske, TU BAF, unveröff. Untersuchungsergebnisse 1998). Der Verlauf des  $^{222}\text{Rn}$ -Gehaltes in der Luft wird beeinflußt durch Schwankungen der Wetterlage (Luftdruck, Temperatur, Windverhältnisse, Hoch-/Tiefdruck u. a. Einflüsse), wobei die Zusammenhänge jedoch sehr komplex sind.

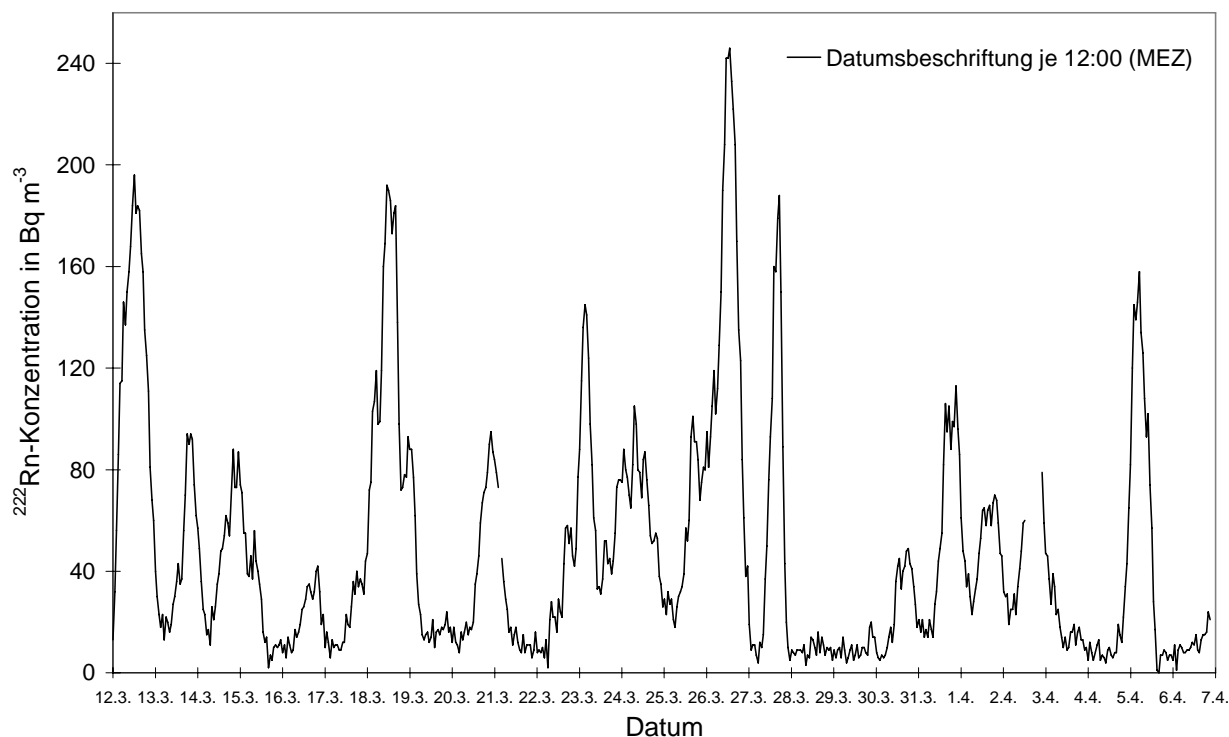


Abb. 11: Verlauf der  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentration in der Raumluft (Kellerraum, Meßplatz N38) im Zeitraum 12.3.–7.4.1997

Die Stickstoffspülung des Innenraums der äußeren Abschirmung mit einem Durchfluß von etwa 70 l/h (Abb. 8) verringert den  $^{222}\text{Rn}$ -Gehalt signifikant, was im Nulleffektspektrum deutlich an den Nettopeakzählraten der  $^{222}\text{Rn}$ -Folgenuklide zu sehen ist (Reduktion > 90 %; Abb. 12). Insgesamt kann eine Reduktion der integralen Zählrate des Energiebereichs 50 ... 1500 keV um etwa 9 % bewirkt werden.

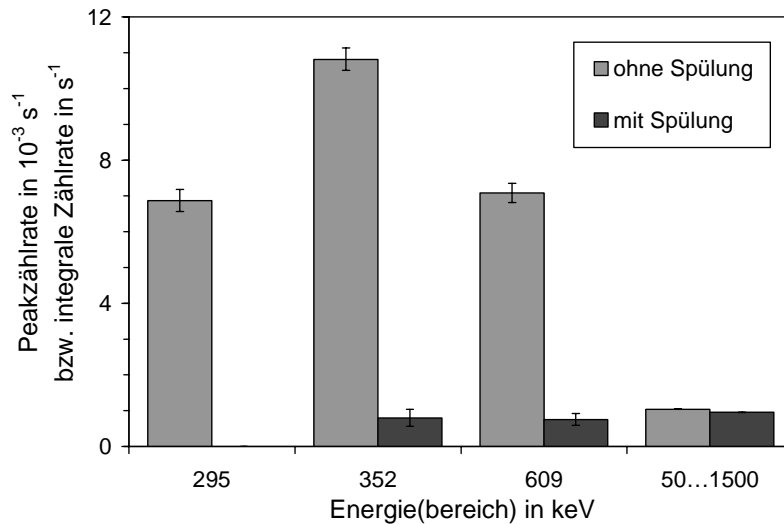


Abb. 12: Vergleich des Nulleffekts des Meßplatzes N38 (nur äußere Abschirmung) mit und ohne Stickstoffspülung anhand der Nettopeakzählraten von Linien der  $^{222}\text{Rn}$ -Folgenuklide  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  (statistische Unsicherheiten  $1\sigma$ ) und der integralen Zählrate des Energiebereichs 50 ... 1500 keV ( $1\sigma < 1\%$ )

Mittels eines Simulationsexperiments sollte geprüft werden, nach welcher Zeitdauer die Aktivitäten der  $^{222}\text{Rn}$ -Folgeprodukte durch den Spülvorgang auf einen konstanten minimalen Endwert, den Nulleffekt mit Spülung, abgeklungen sind. Dazu wurde als starke  $^{222}\text{Rn}$ -Quelle ( $T_{1/2} = 3.82 \text{ d}$ ) ein Stück des Uranminerals Uraninit (Pechblende,  $\text{UO}_2$ ) in einem Exsikkator eingeschlossen und durch diesen hindurch ein konstanter Volumenstrom des Stickstoffs in die äußere Abschirmung geleitet. In festen Zeitintervallen wurden  $\gamma$ -spektrometrische Messungen durchgeführt und die Vollenergielinien der Rn-Folger ausgewertet bzw. die integrale Zählrate des Bereichs 100 ... 700 keV bestimmt.

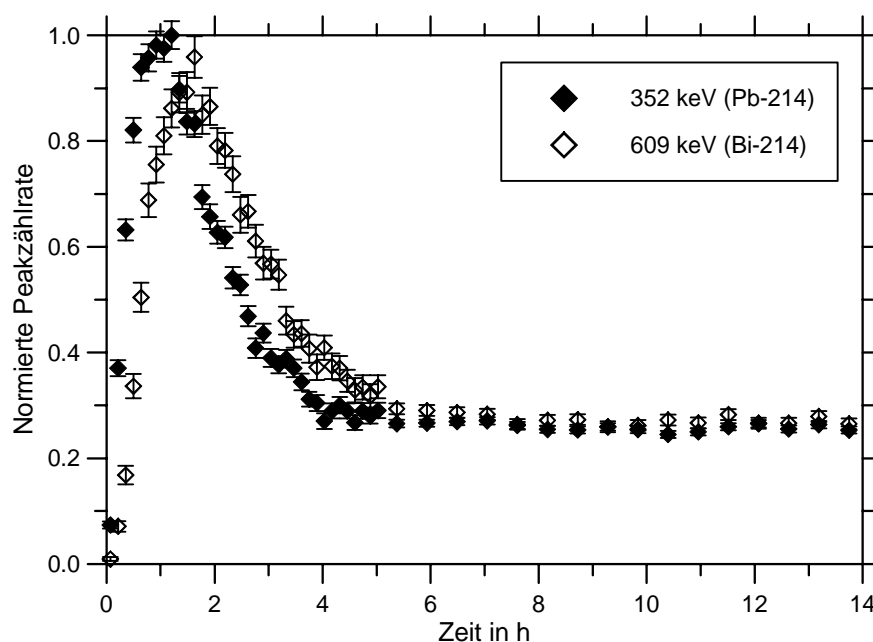


Abb. 13: Zeitlicher Verlauf der normierten Nettopeakzählraten der  $^{222}\text{Rn}$ -Folgeprodukte  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  (statistische Unsicherheiten  $1\sigma$ ) beim Befüllen des Probenraums (nur äußere Abschirmung) mittels einer  $^{222}\text{Rn}$ -Quelle.

Wie Abb. 13 zeigt, steigen im Verlauf des Experiments die Peakzählraten der  $^{222}\text{Rn}$ - Folgeprodukte  $^{214}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 26.8\text{ m}$ ) und  $^{214}\text{Bi}$  ( $T_{1/2} = 19.9\text{ m}$ ) zunächst bis zu einem Maximum an, um dann auf einen Gleichgewichtswert abzufallen, der sich aus den jeweiligen Eintrags-, Austrags- sowie Zerfallsraten und dem Gleichgewicht zwischen  $^{222}\text{Rn}$  und seinen Folgeprodukten ergibt. Grund für das Maximum ist, daß sich im Exsikkator eine relativ hohe  $^{222}\text{Rn}$ -Konzentration ausgebildet hatte, die mit Versuchsbeginn in den Probenraum eingetragen wurde. In die Berechnung der normierten Nettopeakzählraten sind die Verhältnisse der Emissionswahrscheinlichkeiten und typischer N38-Detektoreffektivitäten der 352 keV- und 609 keV-Linien eingegangen (letztere Parameter stellen im Rahmen des Versuchs eine plausible Annäherung für die hier verwendete Abschirmungskonfiguration (nur äußere Abschirmung) dar und ermöglichen einen qualitativen Vergleich der Peakzählraten, nicht jedoch die quantitative Berechnung realer Aktivitäten innerhalb des Probenraums).

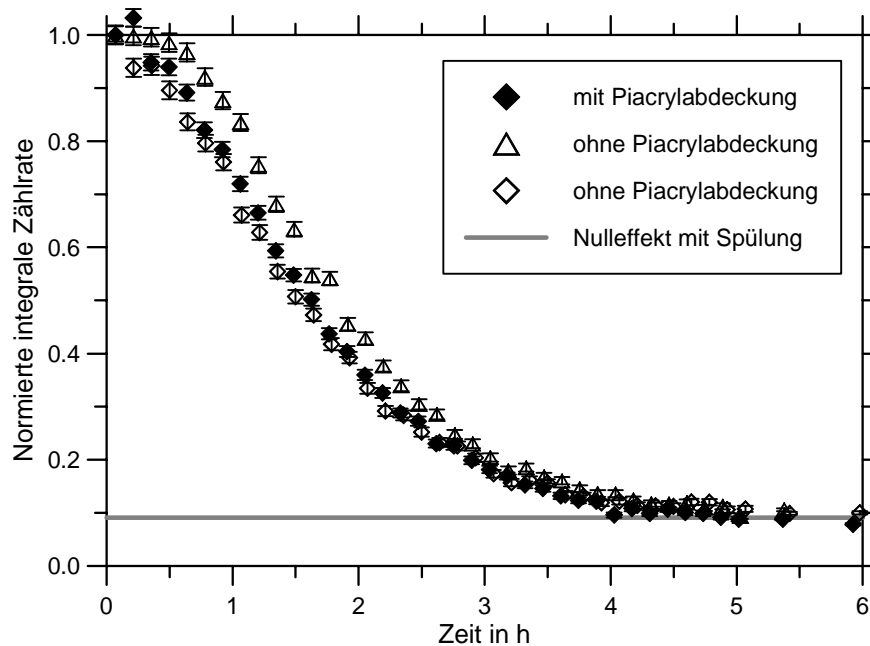


Abb. 14: Zeitlicher Verlauf der integralen Zählrate des Bereichs 100 ... 700 keV (normiert auf den Wert für  $t = 0$ ) bei Spülvorgängen mit und ohne Piacrylabdeckung (statistische Unsicherheiten  $1\sigma$ )

Nach dem Befüllungsvorgang wurde die Rn-Quelle aus dem Stickstoffstrom entfernt und die Spülung des Meßplatzinnenraums fortgeführt, bis die Zählraten wieder auf den Nulleffekt abgeklungen waren. Die Versuche wurden mehrfach mit und ohne der innerhalb der äußeren Abschirmung angebrachten Piacrylabdeckung durchgeführt. Die prinzipiellen Verläufe sämtlicher Spülvorgänge – demonstriert anhand der drei Meßreihen in Abb. 14 – stimmen dabei gut überein. Die integralen Zählraten im Bereich 100 ... 700 keV sind nach 3 ... 4 h um etwa 95 % und nach 6 ... 7 h um 100 % auf den NE abgefallen.

Wie die Ergebnisse zeigen, kann der Meßbetrieb des  $\gamma$ -Spektrometers nach längerem Öffnen der äußeren Abschirmung, d. h. wenn sich der Probenraum mit Rn-reicher Raumluft füllt, spätestens nach 3 ... 4 h Spüldauer wieder aufgenommen werden. Dieser Fall tritt jedoch nur selten auf, z. B. beim Umbau der inneren Abschirmung. Bei regulärem Probenwechsel kann die Messung sofort wieder gestartet werden, da bei den üblichen Meßzeiten von mehreren Tagen der Nulleffekt in ausreichend kurzem Zeitraum wiederhergestellt ist. Zudem verringert die innere Fe- bzw. Cu-Abschirmung den Einfluß eindringenden Radons auf den Nulleffekt merklich.

### Resultierende Nulleffekte der Meßplätze P36 und N38

Entsprechend der durchgeführten Maßnahmen zur Verringerung des Nulleffekts unterscheiden sich die resultierenden NE-Spektren der beiden Meßplätze in wesentlichen Punkten voneinander. Die integrale Zählrate des Energiebereichs 50 ... 1500 keV liegt für den Meßplatz P36 um einen Faktor 2–2.5 unter der von N38 (Tabelle 7; NE-Messungen mit kompletter passiver Abschirmung sowie Antikoinzidenzabschirmung bzw. Stickstoffspülung für die jeweiligen inneren Abschirmungen der MB- und WD-Probenbehälter).

Energiebereich keV	Integrale Zählrate ( $s^{-1}$ )			
	N38		P36	
	WD	MB	WD	MB
50 ... 100	0.077	0.099	0.042	0.041
100 ... 500	0.541	0.741	0.249	0.219
500 ... 1000	0.169	0.199	0.103	0.109
1000 ... 1500	0.068	0.082	0.041	0.048
50 ... 1500	0.854	1.021	0.434	0.416

Tabelle 7: Vergleich der Nulleffekte der Meßplätze P36 und N38 anhand der integralen Zählraten verschiedener Energiebereiche ( $1\sigma < 1\%$ )

Neben der Unterdrückung des durch kosmische Strahlung verursachten Kontinuums bewirkt die Antikoinzidenzabschirmung von P36 auch eine Verringerung der Zählraten des Annihilationspeaks: im Vergleich liegen die Nettopeakzählraten um einen Faktor von etwa 2.5 niedriger (Abb. 15).

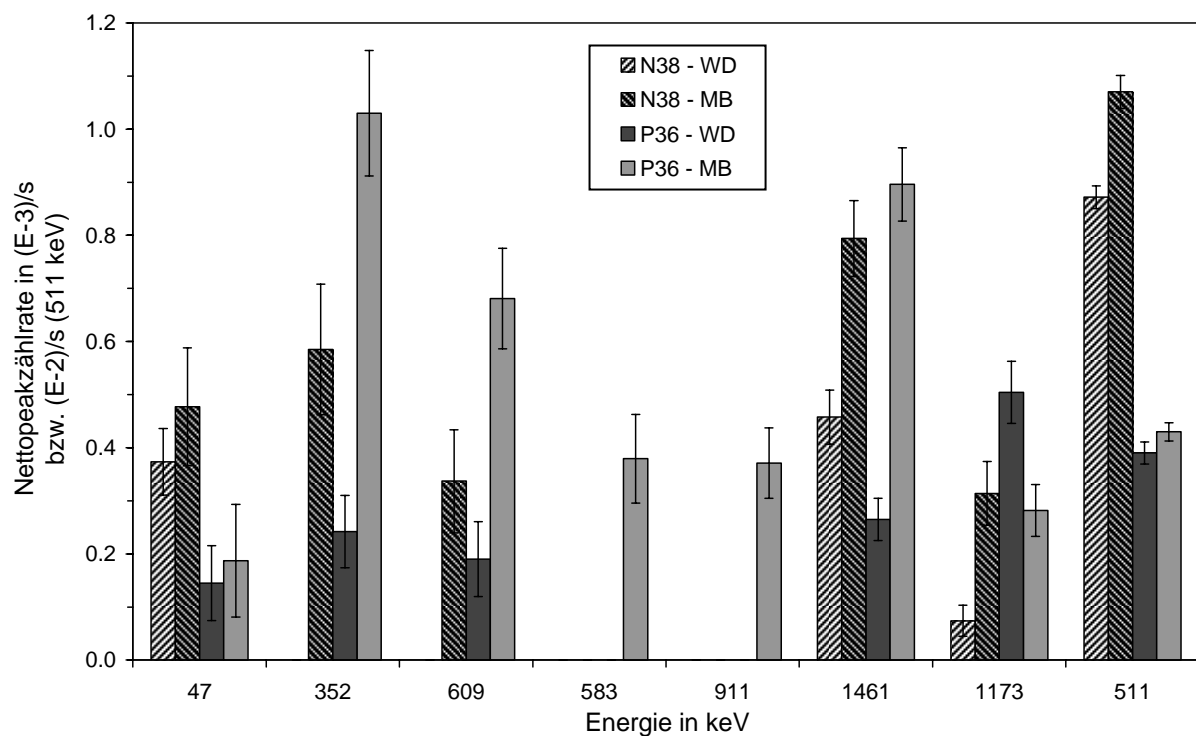


Abb. 15: Vergleich der Nulleffekte der Meßplätze P36 und N38 mit jeweiliger Abschirmung für WD- und MB-Probenbehälter anhand der Nettopeakzählraten wesentlicher Linien:  $^{210}\text{Pb}$  (47 keV),  $^{214}\text{Pb}$  (352 keV),  $^{214}\text{Bi}$  (609 keV),  $^{208}\text{Tl}$  (583 keV),  $^{228}\text{Ac}$  (911 keV),  $^{40}\text{K}$  (1461 keV) und  $^{60}\text{Co}$  (1173) sowie Positronen (511 keV)

$^{210}\text{Pb}$  ist in allen NE-Spektren nachweisbar; die Zählraten für N38 sind dabei jeweils etwa 2.5mal höher als die für P36. Generell sind Spuren von  $^{210}\text{Pb}$  in unterschiedlichen Materialien in Kristallnähe zu erwarten (z. B. im Lot). Der p-Typ Detektor des P36 ist allerdings für entsprechend niederenergetische  $\gamma$ -Quanten nicht mehr empfindlich (s.u.). Weitere Linien natürlicher RN sind die des  $^{214}\text{Pb}$  (352 keV) und des  $^{214}\text{Bi}$  (609 keV), wobei beiden  $\gamma$ -Spektrometern die Abschirmungskonfiguration für MB eine jeweils höhere Zählrate aufweist als die für WD. Die prinzipiell geringeren Zählraten der  $^{222}\text{Rn}$ -Folger für N38 werden der dort installierten Stickstoffspülung des Probenraums zugeschrieben. RN der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe sind nur für P36 mit MB-Abschirmung detektierbar.  $^{40}\text{K}$ , das hauptsächlich aus den Baumaterialien des Gebäudes (Wände, Boden) herrührt, ist in den NE-Spektren beider Meßplätze enthalten und wird wiederum besser durch den WD-Aufbau abgeschirmt als durch den für MB. Speziell für Photonen höherer  $\gamma$ -Energien ist trotz Abschirmung ein gewisser Prozentsatz an Ereignissen im Nulleffekt zu erwarten. Die  $^{60}\text{Co}$ -Emissionen entstammen den jeweiligen Fe-Komponenten der Meßplätze, z. B. den Edelstahlbehälter der Hg-Abschirmungskomponente von P36 oder der MB-Abschirmung des N38.

Bezüglich des Meßplatzes N38 kann die Verringerung des NE wie folgt zusammengefaßt werden. Die Stickstoffspülung der äußeren Abschirmung (vor Einbau der inneren Abschirmung) reduziert die integrale Zählrate im Bereich 50 ... 1500 keV um etwa 9 %. Bei Installation der inneren Abschirmung (inkl. Gasspülung) erfährt der integrale Nulleffekt eine Reduzierung um 19 % (WD) bzw. 2 % (MB). Die Nettopeakzählrate des  $^{214}\text{Bi}$  (609.3 keV) wird im letzteren Fall nahezu vollständig (WD) bzw. um den Faktor 2 (MB) verringert. Der Annihilationspeak wird durch die innere Abschirmung um knapp 60 % (WD) bzw. etwa 45 % (MB) geschwächt. Unabhängig von den Auswirkungen der Abschirmung auf den NE ist der Meßplatz N38 aufgrund des n-Typ-Detektors besser zur Messung niedriger  $\gamma$ -Energien geeignet (s. u.).

### Kalibrierung der Meßplätze

Die  $\gamma$ -Spektrometer wurden sowohl mittels gekaufter zertifizierter als auch selbstgemischter Standards für beide Probenbehälterkonfigurationen kalibriert. Zur Auswertung der hier diskutierten Proben wurden die Standards entsprechend Tabelle 8 verwendet. Den U- und Th-Standards in MB-Probenbehältern lagen die zertifizierten Referenzmaterialien der International Atomic Energy Agency (IAEA) „S7“ und „S16“ zugrunde. Den Messungen der Standards folgend wurden Effektivitätskurven  $\eta(E_\gamma)$  erstellt (Abb. 16; Definition  $\eta(E_\gamma)$  s. Kap. 3.1.1 u. Kap. 3.1.3).

Tabelle 8: Zur Kalibrierung der Meßplätze verwendete Standards

Standard	Matrix	Proben-behälter	RN	Hersteller
A2820	wasser-äquiv. <sup>1)</sup>	MB	Einlinien-RN: $^{210}\text{Pb}$ , $^{241}\text{Am}$ , $^{109}\text{Cd}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{54}\text{Mn}$ Mehrlinien-RN: $^{155}\text{Eu}$ , $^{57}\text{Co}$ , $^{125}\text{Sb}$ , $^{134}\text{Cs}$ , $^{60}\text{Co}$	North American Scientific; Kundenanfertigung
IAEA-135	$\text{SiO}_2$	MB	$^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{241}\text{Am}$	50.5 g IAEA-135 + 505.1 g $\text{SiO}_2$ <sup>2)</sup>
U	$\text{SiO}_2$	MB	$^{235}\text{U}$ - und $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihen	30 g IAEA-S7 + 2 kg $\text{SiO}_2$ <sup>2)</sup>
Th	$\text{SiO}_2$	MB	$^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe	15 g IAEA-S16 + 2 kg $\text{SiO}_2$ <sup>2)</sup>
K	$\text{SiO}_2$	MB	$^{40}\text{K}$	100 g KCl + 2 kg $\text{SiO}_2$ <sup>2)</sup>
RGU-1	$\text{SiO}_2$	WD	$^{235}\text{U}$ - und $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihen	IAEA
RGTh-1	$\text{SiO}_2$	WD	$^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe	IAEA
RGK-1	$\text{SiO}_2$	WD	$^{40}\text{K}$	IAEA

<sup>1)</sup> Dichte 1.07 g/cm<sup>3</sup>

<sup>2)</sup> Aufbereitung durch W. Preuße (U, Th, K) bzw. N. Schleich (IAEA-135), Institut für Angewandte Physik, TU BAF



Im Verlauf der  $\eta(E_\gamma)$ -Kurven spiegelt sich u. a. die unterschiedliche Ausführung der jeweiligen Detektorkonfigurationen, hier p- und n-Typ, wider. Bei coaxialen n-Typ HPGe-Detektoren besteht der p+-Kontakt aus der gesamten Außenseite des Kristalls, der n+-Kontakt befindet sich in der Innenbohrung, bei p-Typ Detektoren ist es umgekehrt. Die beiden Kontakte unterscheiden sich sehr in ihrer Dicke. Während die Ausführung des p+-Kontakts durch Implantation von Bor-Ionen eine Totschicht von nur 0.3  $\mu\text{m}$  Dicke hervorruft, verursacht die des n+-Kontakts durch Lithium-Diffusion eine etwa 600  $\mu\text{m}$  dicke Totschicht im Ge-Kristall (EG&G Ortec, detektorbegleitendes Informationsmaterial). Die Materialien der Kristallhalterung und der Endkappe, welche den eigentlichen Detektor umgeben, sollten zur Reduktion von Absorptions- und Streuprozessen ein möglichst geringes Z aufweisen. Meist werden Endkappen aus Al ( $Z = 13$ ) oder Mg (12) einer Dicke von 1 ... 2 mm oder in Form eines Beryllium-Fensters ( $Z = 4$ ; Dicke 0.5 ... 1.0 mm) gefertigt. Sowohl Endkappe als auch Totschicht schwächen im besonderen niederenergetische  $\gamma$ -Strahlung  $< 200$  keV. Die wesentlich dickere äußerer Totschicht von p-Typ Detektoren führt v. a. in diesem Energiebereich zu vergleichsweise niedrigeren Effektivitäten und begrenzt den Gebrauch der Detektoren i. allg. auf  $> 40$  keV.

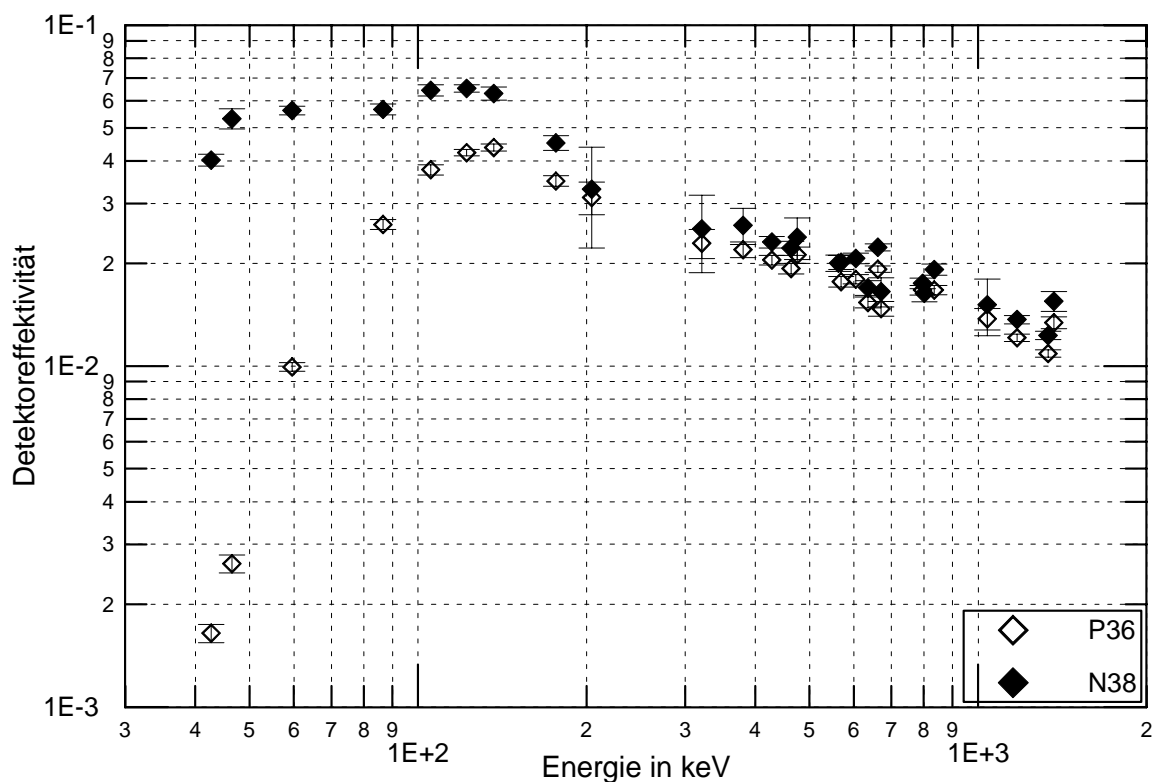


Abb. 16: Vergleich der Detektoreffektivitäten  $\eta(E)$  der Meßplätze P36 und N38 für MB (Standard A2820)

Dieser Effekt läßt sich für die hier verwendeten Detektoren beispielhaft anhand der  $\eta$ -Kurven für den Standard A2820 in Abb. 16 verdeutlichen. Während der n-Typ 38 % HPGe-Kristall selbst für 42.7 keV ( $^{155}\text{Eu}$ ) noch eine gute Detektoreffektivität von etwa 0.04 zeigt, liegt die Effektivität des p-Typ 36 % HPGe-Detektors bei dieser Energie um eine Größenordnung niedriger. Bei der Verwendung von Marinellibechern ist für die resultierende Effektivität auch die Seitenempfindlichkeit des Detektors von Bedeutung, welche ebenfalls von Material und Dicke der Totschicht, der Kristallhalterung und der Endkappe abhängt. Um die bessere Seitenempfindlichkeit des n-Typ-Detektors nicht zu beeinträchtigen, wurde eine Al-Halterung des Kristalls statt des beim p-Typ-Detektor verwendeten Cu ( $Z = 29$ ) eingesetzt (Tabelle 5 u. Abb. 7).

Im Bereich höherer Energien verlaufen die  $\eta$ -Kurven parallel, die Effektivität des n-Typ Detektors

liegt, wie schon aufgrund der relativen Detektoreffektivitäten bei 1.33 MeV von 36 % und 38 % zu erwarten ist, über der des p-Typ Detektors (Abb. 16). Vergleichbare Aussagen lassen sich sowohl zu den  $\eta$ -Kurven treffen, die anhand der Standards mit SiO<sub>2</sub>-Matrix erstellt wurden, als auch zu den  $\eta$ -Kurven für WD-Probenbehälter.

In den  $\eta$ -Kurven ist ein jeweils niedrigerer Wert für die durch Mehrliniennuklide bestimmt  $\eta$ -Werte im Vergleich zu denen der Einliniennuklide – z. B. <sup>137</sup>Cs bei 662 keV und <sup>54</sup>Mn bei 835 keV – zu erkennen. Dies ist durch die in Kap. 3.1.1 angesprochenen Summenkoinzidenzen zu erklären: Von Kaskaden herrührende koinzidente  $\gamma$ -Quanten mit ausreichend kurzen Lebensdauern im Zwischenzustand ( $< 10 \mu\text{s}$ ; sog. prompte  $\gamma$ -Quanten) werden mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit bei Summenenergien registriert. Diese Ereignisse fehlen der Vollenergielinie, so daß die berechneten  $\eta$ -Werte zu klein sind. Entsprechende Effekte hängen u. a. von der Größe des Detektors, der Probe-Detektor-Anordnung sowie der jeweiligen Koinzidenzwahrscheinlichkeit ab.

Bei der Wahl der für die jeweiligen Messungen verwendeten Probenbehälter spielten neben der Spektrometerkonfiguration und den interessierenden RN bzw. deren  $E_\gamma$  auch die Spezifika der zu messenden Proben wie Matrix und Dichte, die zur Verfügung stehende Menge sowie die Beschaffenheit bzw. Struktur des Materials eine Rolle.

Für die Messung von Umweltproben niedriger Dichte wie rein organischem Bodenmaterial, die zudem oft nur vergleichsweise geringe spezifische Aktivitäten aufweisen, ist die Verwendung der MB vorzuziehen. Die nötigen großen Probenvolumina können in MB mit relativ konstanter Dicke um die Seitenflächen und das Ende der Endkappe verteilt werden (vgl. Abmessungen B und h in Abb. 7 u. Tabelle 6). Die spezielle Geometrie der MB ist zudem günstig zur Vermeidung störender Schwächung der  $\gamma$ -Strahlung in der Probe selbst (Selbstabsorption, vgl. Kap. 3.1.3), was v. a. in Materialien hoher Dichte und großer Ordnungszahl wie mineralischen Proben zur Geltung kommt. Bei der Messung niederenergetischer Linien geringer Intensitäten wirkt sich die Ausnutzung der Seitenempfindlichkeit durch den Einsatz von MB generell vorteilhaft auf die erzielten Effektivitäten aus, da bei sehr niedrigen  $E_\gamma$  aufgrund von Selbstabsorptionseffekten eher die Fläche der Probe als deren Volumen ausschlaggebend für die Detektion der  $\gamma$ -Quanten ist. Letztgenanntes Kriterium zur Vermeidung der Schwächung in der Probe trifft auch für WD zu, welche ein relativ geringes Verhältnis Füllhöhe zu Grundfläche aufweisen (Tabelle 6).

### 3.1.3 Auswertung und Korrekturen

Die  $\gamma$ -Spektren typischer Umweltproben sind i. allg. sehr komplex, da sich die Linien und Kontinua einer Vielzahl von RN überlagern. Dies zeigt sich deutlich im Vergleich des  $\gamma$ -Spektrums einer <sup>137</sup>Cs-Punktquelle (Abb. 5) mit den Spektren zweier Bodenproben (Abb. 17; markiert sind wichtige Vollenergielinien der RN <sup>7</sup>Be, <sup>125</sup>Sb, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am sowie <sup>210</sup>Pb und weiterer RN der natürlichen Zerfallsreihen). Die Auswertung derartiger Spektren erfordert ein methodisches Vorgehen, wobei gegebenenfalls verschiedene Korrekturen nötig sind.

Zur **Darstellung und Auswertung der Spektren** wurde das Programm Maestro II, für Peakfits ergänzend das Programm GammaVision verwendet (beide EG&G Ortec). Die Peaksuche wurde nicht automatisiert, sondern von Hand vorgenommen, da sehr kleine Peaks oder solche mit sehr großer Halbwertbreite (z. B. <sup>208</sup>Tl bei 2614 keV) oft nicht von den im Programm vorgegebenen Peaksuche-Algorithmen erkannt werden. Die Peaks wurden stets auf möglichst ähnliche Weise markiert, auch im Vergleich von Nulleffekt-, Standard- und Probenmessung. Dabei erfolgte die Markierung so, daß der Untergrund durch die den Peak flankierende Kanäle möglichst gut repräsentiert wird. Das Programm Maestro II verwendet zur Berechnung des Untergrunds die jeweils drei äußeren markierten Kanäle.

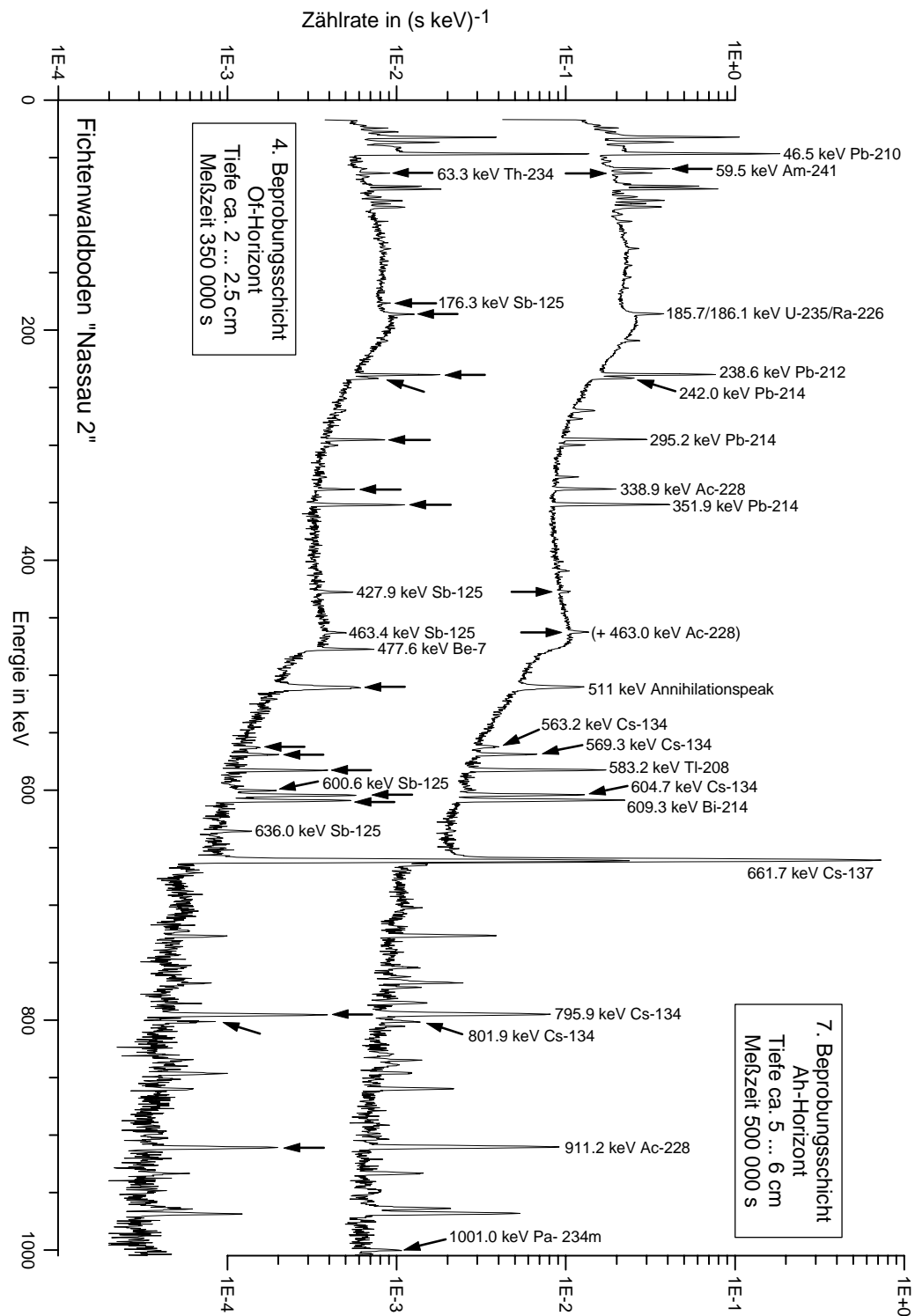


Abb. 17:  $\gamma$ -Spektren zweier Beprobungsschichten des Fichtenwald-Bodenprofils „Nassau 2“, gemessen auf dem Meßplatz N38 (Probenbehälter MB; 4. und 7. Beprobungsschicht, vgl. Kap. 6.1.1)

Die Nettoanzahl der Zählimpulse im Peak berechnet sich damit zu

$$N_{\text{netto}} = N_{\text{brutto}} - c_{\text{ges}} \cdot \frac{N_{\text{UG}}}{6} \quad (6)$$

mit	$N_{\text{netto}}$	:	Nettoanzahl der Zählimpulse im Peak
	$N_{\text{brutto}}$	:	Bruttoanzahl der Zählimpulse im markierten Bereich
	$c_{\text{ges}}$	:	Gesamtanzahl der Kanäle
	$N_{\text{UG}}$	:	Gesamtanzahl der Zählimpulse in den sechs äußeren Kanälen

Für sehr kleine Peaks, die sich nur gering über den Untergrund erheben und z. T. vom Programm Maestro nicht erkannt werden, ist die Nettoimpulszahl stark unsicherheitsbehaftet. Dennoch stimmen die Ergebnisse recht gut mit denen überein, die sich bei Anwendung der Peakfitfunktion des Programms GammaVision ergeben. Teilweise wurde die Nettopeakfläche von Hand berechnet (vgl. auch Methoden der Peakflächenbestimmung in Debertin u. Helmer 1988 und Gilmore u. Hemingway 1995). Bei nahe beeinanderliegenden, sich teilweise überschneidenden Linien ist ein Peakfit hilfreich und liefert bessere Ergebnisse (z. B. Trennung von  $^{134}\text{Cs}$ , 604.7 keV, und  $^{214}\text{Bi}$ , 609.3 keV).

Die weitere Verarbeitung der Peakzählraten wurde mittels des Tabellenkalkulationsprogramms Microsoft Excel, die graphische Darstellung vorwiegend in Grapher 1.22 vorgenommen. Die **Aktivitätsbestimmung** der einzelnen RN erfolgte unter Beachtung des jeweiligen Nulleffekts entweder im direkten Vergleich mit den entsprechenden Aktivitäten eines Standards oder über die passende Effektivitätskurve. Letzteres Verfahren wurde nur angewandt, sofern kein adäquater, das interessierende RN enthaltender Standard zur Verfügung stand; beim Ablesen von  $\eta$  wurden Unterschiede in den Werten für Einlinien- und Mehrliniennuklide berücksichtigt (vgl. Kap. 3.1.3). In die Auswertung integriert ist eine einfache Korrektur der Selbstabsorption (s. u.). Eine Korrektur unterschiedlicher Füllhöhen mittels eines Füllfaktors war i. allg. nicht nötig, da beim Befüllen der Probenbehälter auf eine konstante, mit den verwendeten Standards konforme Füllhöhe geachtet wurde; auf vereinzelte Ausnahmen wird in der jeweiligen Ergebnisdarstellung eingegangen.

Wird die **Aktivität**  $A_p$  eines Nuklids in einer Probe direkt in Anlehnung an eine Standardmessung berechnet, so ergibt sich entsprechend der Definition der Detektoreffektivität  $\eta$  als Verhältnis der vom Detektor registrierten Nettopeakzählrate  $\dot{N}_p^N$  zu der  $\gamma$ -Emissionsrate der Probe  $\dot{N}_p^0$

$$\eta = \frac{\dot{N}_p^N}{\dot{N}_p^0} = \frac{\dot{N}_p^N}{\varepsilon \cdot A_p} \quad \text{bzw.} \quad A_p = \frac{\dot{N}_p^N}{\varepsilon \cdot \eta} \quad (7)$$

wobei  $\varepsilon$  die Emissionswahrscheinlichkeit des betreffenden  $\gamma$ -Quants ist. Allgemein gilt für die Bestimmung der Nettopeakzählrate einer  $\gamma$ -Linie

$$\dot{N}_p^N = (\dot{N}_p^B - \dot{N}_p^U) - (\dot{N}_{\text{NE}}^B - \dot{N}_{\text{NE}}^U) \quad (8)$$

Dabei entstammen die Bruttopeakzählrate  $\dot{N}_p^B$  und die Zählrate des Peakuntergrunds  $\dot{N}_p^U$  der Probenmessung, die Bruttopeakzählrate  $\dot{N}_{\text{NE}}^B$  und die Zählrate des Peakuntergrunds  $\dot{N}_{\text{NE}}^U$  dem zugehörigen Nulleffektspektrum. Der Berechnung der Zählraten liegen die jeweilige Anzahl der Zählimpulse und die totzeitkorrigierte Meßzeit („live time“) zugrunde.

Ein RN sehr kleiner Aktivität emittiert eine solch geringe Rate an  $\gamma$ -Quanten, daß diese u. U. selbst bei vollständiger Absorption wegen ihrer zu niedrigen Rate keinen Peak bilden, der aus den statistischen Schwankungen des Kontinuums herauswächst. Um dennoch eine Angabe zur maximal vorhandenen Aktivität machen zu können, ist die Definition der **Nachweisgrenze (NWG)** hilfreich. Wie Gl. (8) zeigt, ist für den Nachweis einer  $\gamma$ -Emission die Zählrate des bei der  $\gamma$ -Energie der interessierenden Linie vorhandenen Untergrunds von Bedeutung. Diese wiederum hängt von der Gesamtheit der

zusätzlich in der Probe enthaltenen RN, aber auch den Probenspezifika wie Zusammensetzung und Menge ab. Die Angabe einer Nachweisgrenze ist somit der jeweiligen Probenmessung zugehörig. Weitere beeinflussende Parameter stellen die Detektoreffektivität, die Probengeometrie und die Probe-Detektor-Anordnung sowie die Meßzeit dar (Debertin u. Helmer 1988). Ist die interessierende Linie auch im Nulleffektspektrum enthalten, so muß diese entsprechend mit betrachtet werden.

Während in dem geschilderten Szenario die Entscheidung ermöglicht werden soll, ob in einem speziellen Probenspektrum ein Meßeffect vorhanden ist, machen die anhand eines Nulleffektspektrums bestimmten Nachweisgrenzen eine Aussage über die kleinsten detektierbaren  $\gamma$ -Emissionsraten der verwendeten Meßanordnung. Entsprechende Werte stellen jedoch eher den Idealfall dar und sind in der Realität nur bei sehr schwachen Proben annäherungsweise erreichbar.

Zur Definition der Nachweisgrenze und damit eng verbundener weiterer charakteristischer Grenzen wie der Erkennungsgrenze finden sich in der Literatur verschiedene Herangehensweisen (z. B. Currie 1968; DIN 25482:1993), von denen einige allerdings teilweise widersprüchlich sind. Eine detaillierte Diskussion der zugrundeliegenden Statistik ist u. a. in Gilmore u. Hemingway (1995) zu finden. Eine erste einfache Abschätzung der Nachweisgrenze  $L_D$  („detection limit“) ist gegeben durch

$$L_D = 3\sqrt{N_b} \quad (9)$$

Dabei ist  $N_b$  die Impulszahl des Untergrunds bei der interessierenden Energie. Die Berechnung beruht darauf, daß die statistischen Schwankungen des Untergrunds durch dessen Standardabweichung  $\sqrt{N_b}$  beschrieben werden können (Debertin u. Helmer 1988). Nach der Definition von Currie (1968) berechnet sich  $L_D$  für den Fall eines „well-known blank“ zu

$$L_D = 2.71 + 3.29\sqrt{N_b} \quad (10)$$

Bei den hier durchgeführten mehrtätigen  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen kann ein ausreichend gut definierter Untergrund an der jeweiligen Peakposition sowohl für Nulleffektmessungen als auch Probenmessungen – d. h. in den angrenzenden Kanälen des Peaks – vorausgesetzt werden.

Da es erklärtes Ziel der Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie ist es, kleinste  $\gamma$ -Aktivitäten zu messen, sind niedrige Nachweisgrenzen essentiell. Gleichungen (8) bis (10) demonstrieren die Wichtigkeit einer möglichst vollständigen Unterdrückung der Peakzählrate und einer Reduktion der Untergrundzählrate im Nulleffekt – wie sie durch die in Kap. 3.1.2 angesprochenen Maßnahmen wie passive und aktive Abschirmungen und Stickstoffspülung des Probenraums gefördert werden.

Zur **Darstellung der Aktivitäten** der gemessenen Umweltproben wurden diese je nach Zielstellung auf die physikalischen Größen Masse  $m$ , Volumen  $V$  oder Fläche  $S$  bezogen:

$$\text{Spezifische Aktivität} \quad A_{\text{spez}} = \frac{A}{m} \quad \text{in Bq/kg} \quad (11)$$

$$\text{Aktivitätskonzentration} \quad A_{\text{konz}} = \frac{A}{V} \quad \text{in Bq/m}^3 \quad (12)$$

$$\text{Inventar} \quad A_F = \frac{A}{S} \quad \text{in Bq/m}^2 \quad (13)$$

Alle Angaben spezifischer Aktivitäten beziehen sich in der vorliegenden Arbeit auf die Trockenmasse (TM; unter Angabe der Trocknungstemperatur).

Die im Rahmen der Peakanalysefunktionen der Auswertprogramme Maestro II und GammaVision errechneten **Meßunsicherheiten** basieren auf den statistischen Unsicherheiten der Zählimpulse. Die Meßunsicherheiten der Zählimpulse der Peakflächen der Proben-, Standard- und gegebenenfalls Nulleffektmessungen gingen in die Berechnung der Unsicherheiten der Aktivitäten ein. Die Unsicherheiten

der Meßzeiten und der Proben- bzw. Standardmassen waren vernachlässigbar. Bei der Berechnung der Unsicherheiten von  $A_{\text{konz}}$  und  $A_F$  wurden durch die Probennahme, d. h. bei der Bestimmung der Beprobungsflächen und Profiltiefen, verursachte Unsicherheiten beachtet (vgl. Kap. 3.3.2 u. Kap. 3.3.3). Sämtlichen Berechnungen liegen die Gesetzmäßigkeiten für die Fortpflanzung von Meßunsicherheiten zugrunde (Gauß'sche Unsicherheitsfortpflanzung; vgl. ISO 1995).

Die Aktivität eines Mehrliniennuklids wurde im Falle der Auswertung mehrerer Linien i. allg. als ein mit den jeweiligen Unsicherheiten gewichteter Mittelwert dargestellt (vgl. Kap. 3.1.4); in der Mittelung sind Linien mit kleiner Unsicherheit stärker gewichtet als Linien mit großer Unsicherheit.

In allen anderen Fällen handelt es sich in der vorliegenden Arbeit bei Mittelwerten, sofern nicht anders vermerkt, stets um arithmetische Mittel. Sämtliche entsprechend errechnete Standardabweichungen – wie auch generell die Unsicherheiten der Meßergebnisse – sind als einfache Standardabweichungen ( $1\sigma$ ) angegeben.

### Zerfallskorrektur

Es wurde darauf geachtet, die Zeitspanne zwischen Probennahme und Messung möglichst kurz zu halten, dennoch ist im Falle kurzlebiger RN wie  $^7\text{Be}$  i. allg. eine Zerfallskorrektur auf das Probennahmedatum nötig. Auch zur Trennung der aus den Kernwaffentests und Tschernobyl herrührenden  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten (Kap. 3.1.4) ist eine Zerfallskorrektur der  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten erforderlich.

Die spontanen Kernumwandlungen folgen statistischen Gesetzen. Die Aktivität  $A$  eines radioaktiven Nuklids, d. h. die Anzahl der sich je Zeitintervall umwandelnden Atomkerne  $dN/dt$ , ist proportional der Anzahl noch nicht umgewandelter Kerne  $N$  entsprechend

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N \quad (14)$$

Die Zerfallskonstante  $\lambda$  stellt ein Maß für Wahrscheinlichkeit der Umwandlung dar und ist charakteristisch für das betreffende Nuklid. Die Lösung von Gl. (14) ergibt das exponentielle Umwandlungsgesetz

$$A(t) = A(0) \cdot e^{-\lambda t} \quad \text{bzw.} \quad N(t) = N(0) \cdot e^{-\lambda t} \quad (15)$$

Zwischen der Halbwertszeit  $T_{1/2}$ , d. h. der Zeitspanne, nach der sich die Hälfte der ursprünglich vorhandenen Atome umgewandelt hat, und der Zerfallskonstante  $\lambda$  besteht die Beziehung

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (16)$$

Für die Berechnung von Aktivitäten über das Zerfallsgesetz und dazu nötiger Umrechnung von Halbwertszeiten wurde ein Jahr 365.25 Tagen gleichgesetzt.

### Korrektur der Schwächung im Probenmaterial (Selbstabsorption)

Einerseits basiert die Detektion mittels Halbleiterkristallen auf der Schwächung der von einer Meßprobe emittierten  $\gamma$ -Strahlung, d. h. der Energieübertragung auf den Kristall (Kap. 3.1.1), andererseits findet der Effekt der Schwächung auch im Probenmaterial selbst statt, im Deutschen fälschlicherweise Selbstabsorption genannt (engl. „self-attenuation“). Werden  $\gamma$ -Quanten in weiter vom Detektorkristall entfernt gelegenen Bereichen der Probe frei, so wird ihre Intensität auf dem Weg zur Kristalloberfläche in mehr oder weniger starkem Maße verringert. Wie anhand von Gl. (1) ... (4) zu sehen ist, hängt das Ausmaß der Schwächung ab von der Strahlungsenergie, der Elementzusammensetzung des Probenmaterials (Ordnungszahl  $Z$ ) und der Flächenmasse  $d = \rho x$  der Probe (in  $\text{kg m}^{-2}$ ). Bedeutsam ist die Schwächung dabei hauptsächlich in Energiebereichen  $< 100 \text{ keV}$  (vgl. Abb. 4) und ist somit v. a. bei der Bestimmung der Aktivität von RN niedriger  $\gamma$ -Energien, wie z. B.  $^{210}\text{Pb}$  (46.5 keV,  $^{241}\text{Am}$  (59.5 keV) und  $^{234}\text{Th}$  (63.3 keV) zu beachten.

Wird die Auswertung einer Probenmessung über einen Standard ausgeführt, so ist eine Korrektur der Selbstabsorption beider Materialien nötig, sofern sich Probe und Standard in Matrix und Dichte unterscheiden. Aufgrund der teilweise deutlich voneinander abweichende Matrices sowohl der einzelnen Proben der hier untersuchten Bodenprofile (z. B. Nadelstreu im Gegensatz zu mineralischem Bodenmaterial) als auch der verwendeten Standards (wasseräquivalente und  $\text{SiO}_2$ -Matrix; Tabelle 8), war dies für viele Probenmessungen zutreffend und wurde deshalb in der Auswertung generell berücksichtigt.

Integriert man Gl. (1) über  $dx$  bis zur Schichtdicke  $x = h$ , so erhält man für die Selbstabsorption

$$I_S(x = h) = I_S(0) \cdot \frac{1 - e^{-\mu^* \cdot \rho \cdot h}}{\mu^* \cdot \rho \cdot h} \quad (17)$$

Da dieser vereinfachte Ansatz hinreichend gut für WD stimmt und, wie z. B. Kim (1987) demonstriert, auch für MB verwendet werden kann, liegt er den hier durchgeführten Korrekturen zugrunde.

Die in der Literatur, z. B. in Debertin u. Helmer (1988) und Hubbell (1982), tabellierten Werte für  $\mu^* = f(Z, E)$  beziehen sich nur auf einzelne Elemente, chemische Verbindungen wie  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{SiO}_2$  oder Gasgemische wie Luft. Für ein Stoffgemisch aus  $n$  Elementen der relativen Masseanteile  $p_i$  errechnet sich der Massenschwächungskoeffizient nach

$$\mu^* = \sum_{i=1}^n p_i \cdot \mu_i^* \quad (18)$$

Die chemische Elementzusammensetzung der hier untersuchten Umweltproben ist jedoch i. allg. unbekannt und inwieweit z. B. die Werte „typischer“ Böden, wie sie teilweise in der Literatur zu finden sind, auf die Proben zutreffen, ist fraglich.

Neben dem rechnerischen Ansatz besteht auch die Möglichkeit, probenspezifische  $\mu^*$  unter Verwendung externer Strahlungsquellen zu bestimmen. Mit diesem Ziel wurde eine Meßserie mit Punktquellen verschiedener  $\gamma$ -Energien und Marinellibechern mit repräsentativen Befüllungen einzelner Wald- und Moorbodenhorizonte durchgeführt. Die einzelnen Quellen wurden dabei jeweils mittig auf den Deckeln sowohl leerer als auch befüllter Probenbehälter positioniert und  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen. Da nicht alle Quellen echte Punktquellen waren und die Ergebnisse teilweise sehr große Unsicherheiten aufwiesen, gestaltete sich die Bestimmung der Massenschwächungskoeffizienten für die Bodenproben unterschiedlicher Matrix allerdings als schwierig. Dennoch verwiesen die Ergebnisse auf eine hinreichende Genauigkeit der Korrektur unter Verwendung der energieabhängigen  $\text{SiO}_2$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Massenschwächungskoeffizienten für Bodenproben vorwiegend mineralischer bzw. organischer Matrix; entsprechende Werte wurden für die Auswertung verwendet.

### 3.1.4 $\gamma$ -spektrometrisch untersuchte Radionuklide

In den untersuchten Umweltproben konnten  $\gamma$ -Strahlung emittierende RN kosmogenen, natürlichen und künstlichen Ursprungs nachgewiesen werden. Die RN unterscheiden sich sowohl in ihren physikalischen Charakteristika wie der Halbwertszeit, den  $\gamma$ -Energien und deren Emissionswahrscheinlichkeiten als auch in ihrer Herkunft. In Tabelle 9 sind nur jene Herkunftsquellen genannt, welche maßgeblich für die hier gemessenen Aktivitäten verantwortlich sind (vgl. Kap. 2).

Tabelle 9: In Umweltproben  $\gamma$ -spektrometrisch gemessene RN kosmogenen, natürlichen und künstlichen Ursprungs, ihre Halbwertszeiten sowie die in dieser Arbeit im wesentlichen berücksichtigten  $\gamma$ -Energien und deren Emissionswahrscheinlichkeiten (Firestone u. Shirley 1996)

RN	$T_{1/2}$ a	$E_\gamma$ keV	$\epsilon$ %	Herkunft
$^{40}\text{K}$	$1.28 \cdot 10^9$	1460.8	10.7	natürlich
$^{232}\text{Th}$ -, $^{235}\text{U}$ - und $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihen				natürliche Zerfallsreihen (s. Tabelle 10)
$^7\text{Be}$	53.3 d	477.6	10.5	kosmogen
$^{22}\text{Na}$	2.60	1274.5	99.9	kosmogen
$^{106}\text{Ru} (^{106}\text{Rh})^{1)}$	1.02 (29.8 s)	621.9	9.93	Tschernobyl
		1050.4	1.56	
		176.3	6.82	
		427.9	29.6	
		463.4	10.5	
$^{125}\text{Sb}$	2.76	600.6	17.9	Tschernobyl
		606.7	5.03	
		636.0	11.3	
		563.2	8.38	
		569.3	15.4	
$^{134}\text{Cs}$	2.06	604.7	97.6	Tschernobyl
		795.9	85.4	
		801.9	8.73	
		1365.2	3.04	
		661.7	85.1	
$^{137}\text{Cs}$	30.1	661.7	85.1	Kernwaffentests, Tschernobyl
$^{154}\text{Eu}$	8.59	123.1	40.8	Tschernobyl
		1274.4	35.2	
$^{241}\text{Am}$	432	59.5	35.9	Kernwaffentests

<sup>1)</sup>  $^{106}\text{Ru}$ , das keine  $\gamma$ -Emissionen aufweist, wird über die  $\gamma$ -Linien des Tochternuklids  $^{106}\text{Rh}$  bestimmt.

### Natürliche Zerfallsreihen

Die Mutternuklide  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  sowie ihre wichtigsten längerlebigen Tochternuklide sind in Tabelle 10 aufgeführt (Zerfallsreihen s. Anhang A). Die RN können entweder direkt über zugehörige  $\gamma$ -Linien oder über  $\gamma$ -Linien kurzlebiger Tochternuklide detektiert werden.

Innerhalb der Zerfallsreihen zeigen die Verhältnisse der Aktivitäten der Folgenuklide zueinander eventuelle Ungleichgewichte auf. Radioaktive Ungleichgewichte sind für die Untersuchung von Umweltproben von großem Interesse. Es ist jedoch sicherzustellen, daß die ursprünglichen, schon vor der Beprobung in der Natur vorhandenen Ungleichgewichte gemessen werden und nicht solche, welche durch Probennahme, Aufbereitung oder Befüllung der Probenbehälter entstanden sind. So ist z. B. das Entweichen von gasförmigem  $^{222}\text{Rn}$  aus den Proben eine mögliche Fehlerquelle bei der Bestimmung von  $^{226}\text{Ra}$ .

### $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe

$^{228}\text{Ra}$  und  $^{228}\text{Th}$  sind die langlebigsten Folgenuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe. Sie können über ihre  $\gamma$ -Strahlung emittierenden Folger  $^{228}\text{Ac}$  bzw.  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{208}\text{Tl}$  bestimmt werden (Tabelle 10). Ein



Verlust des gasförmigen  $^{220}\text{Rn}$  ist aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von 55.6 s auszuschließen. Ebenso kann davon ausgegangen werden, daß  $^{224}\text{Ra}$  ( $T_{1/2} = 3.66$  d) weder an- noch abgereichert wird, so daß  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{208}\text{Tl}$  das Mutternuklid  $^{228}\text{Th}$  gut repräsentieren. Im Falle übereinstimmender Aktivitäten des  $^{228}\text{Ra}$  und des  $^{228}\text{Th}$  kann ein Gleichgewicht zu  $^{232}\text{Th}$  i. allg. angenommen werden.

Tabelle 10: Die wichtigsten RN der drei natürlichen Zerfallsreihen, ihre Halbwertszeiten und die hauptsächlich verwendeten  $\gamma$ -Linien (Firestone u. Shirley 1996)

RN	$T_{1/2}$ a	RN	$E_\gamma$ keV	$T_{1/2}$
<b><math>^{232}\text{Th}</math>-Zerfallsreihe</b>				
$^{232}\text{Th}$	$1.41 \cdot 10^{10}$	$^{228}\text{Ac}$	338.3, 911.2, 969.0	6.15 h
$^{228}\text{Ra}$	5.75	$^{212}\text{Pb}^{1)}$	238.6	10.64 h
$^{228}\text{Th}$	1.91	$^{212}\text{Bi}$	727.3	60.55 m
		$^{208}\text{Tl}$	583.2, 860.6	3.053 m
<b><math>^{235}\text{U}</math>-Zerfallsreihe</b>				
$^{235}\text{U}$	$7.04 \cdot 10^8$	$^{235}\text{U}/^{223}\text{Ra}$	163.3	
		$^{223}\text{Ra}$	143.8/144.2	
		$^{227}\text{Ac}$	185.7 (nach Abtrennung des $^{226}\text{Ra}$ -Anteils)	
<b><math>^{238}\text{U}</math>-Zerfallsreihe</b>				
$^{238}\text{U}$	$4.47 \cdot 10^9$	$^{234}\text{Th}$	63.3	24.1 d
		$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1001.0	1.17 m
$^{226}\text{Ra}$	1600	$^{214}\text{Pb}$	186.1 (nach Abtrennung des $^{235}\text{U}$ -Anteils)	
$^{222}\text{Rn}^{3)}$	3.82 d	$^{214}\text{Bi}$	295.2, 351.9	26.8 m
		$^{214}\text{Bi}$	609.3, 1120.3, 1764.5	19.9 m
$^{210}\text{Pb}$	22.3		46.5	

<sup>1)</sup> Trennung von  $^{212}\text{Pb}$  ( $^{232}\text{Th}$ -Reihe, 238.6 keV) und  $^{214}\text{Pb}$  ( $^{238}\text{U}$ -Reihe, 242.0 keV) bei höheren Zählraten nötig

<sup>2)</sup> Die 186 keV-Linie setzt sich zusammen aus  $^{235}\text{U}$  (185.7 keV) und  $^{226}\text{Ra}$  (186.1 keV).

<sup>3)</sup>  $^{222}\text{Rn}$ -Folgenuklide sind in erster Linie als  $^{226}\text{Ra}$ -Folger zu verstehen (s. Erläuterung im Text).

### $^{235}\text{U}$ -Zerfallsreihe

Die Linien der  $^{235}\text{U}$ -Zerfallsreihe sind in der Regel zu schwach, um ausgewertet werden zu können. Bei hoher  $^{235}\text{U}$ -Aktivität (z. B. in mineralischen Proben) kann das Nuklid direkt über die 163.3 keV-Linie bestimmt werden, allerdings beträgt die Emissionswahrscheinlichkeit nur 5.08 %. Die höchste Emissionswahrscheinlichkeit eines RN der  $^{235}\text{U}$ -Zerfallsreihe findet sich im  $\gamma$ -Spektrum in dem zusammengesetzten Peak  $^{235}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  bei 186 keV ( $^{235}\text{U}$  mit  $\varepsilon = 57.2$  %,  $E_\gamma = 185.7$  keV). Die Aktivität des  $^{235}\text{U}$  kann aus diesem Peak über die  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität in der Probe errechnet werden. Voraussetzung ist radioaktives Gleichgewicht zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und seinen Töchtern (s. u.).

### $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe

Für eventuelle Ungleichgewichte innerhalb der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe sind die Verhältnisse von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  und der  $^{226}\text{Ra}$ - bzw.  $^{222}\text{Rn}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  von Interesse.  $^{238}\text{U}$  kann über die  $\gamma$ -Linien der kurzlebigen Töchter  $^{234}\text{Th}$  und  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  bestimmt werden.  $^{226}\text{Ra}$  ist direkt nur über den zusammengesetzten Peak  $^{235}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  bei 186 keV detektierbar. Hierzu muß allerdings die Aktivität des  $^{238}\text{U}$  bekannt sein (z. B. über  $^{234}\text{Th}$  bei 63.3 keV). Zudem ist anzunehmen, daß  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  im natürlichen Isotopenverhältnis vorliegen. Ebenso läßt sich auch  $^{238}\text{U}$  aus der 186 keV-Linie bei bekannter, d. h. über die Folger bestimmter,  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität errechnen; Voraussetzung ist jedoch ein Gleichgewicht zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und seinen Folgern. Ein Vergleich der berechneten  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität mit der über die Töchter bestimmten  $^{238}\text{U}$ -Aktivität beispielsweise zeigt, ob sich die beiden RN im Gleichgewicht befinden.

Im Falle eines Ungleichgewichts wird dieses in der vorliegenden Arbeit als Tochter-zu-Mutter-Ungleichgewicht bezeichnet. Gegebenenfalls wird zudem der als Überschußfaktor bezeichnete errechnete Faktor der Aktivitäten aufgeführt, wobei das Nuklid höherer Aktivität ins Verhältnis zu dem niedrigeren Aktivität gesetzt wird. Beispielsweise konnte in der tiefsten Bohrprobe aus dem Georgenfelder Hochmoor ein  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewicht detektiert werden; dieses ist charakterisiert durch einen  $^{238}\text{U}$ -Überschuß, wobei der  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor 6.3 beträgt (Kap. 7.1.1). Die Bezeichnung „Überschuß“ ist hierbei jedoch unabhängig davon, ob in Realität eine An- oder Abreicherung eines der Nuklide stattgefunden hat.

Das gasförmige  $^{222}\text{Rn}$  mit einer relativ langen Halbwertszeit von 3.82 d kann leicht entweichen und so Ungleichgewichte verursachen. Die  $^{222}\text{Rn}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  sind in diesen Fällen an- bzw. abgereichert. In mit Bodenmaterial befüllten und radondicht verschlossenen Probenbehältern stellt sich innerhalb einer Wartezeit vor der Messung von etwa 20 d ( $5 \times T_{1/2}(^{222}\text{Rn})$ ) ein Gleichgewicht zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{222}\text{Rn}$  sowie zwischen  $^{222}\text{Rn}$  und seinen unmittelbaren Folgern ein. Die anschließende Messung ermöglicht eine Bestimmung des  $^{226}\text{Ra}$  über die  $^{222}\text{Rn}$ -Folger, gibt jedoch keine Information über den ursprünglichen Gehalt des  $^{222}\text{Rn}$  im natürlichen Bodenprofil vor der Probenentnahme.  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  sind somit eher als  $^{226}\text{Ra}$ -Folger denn als  $^{222}\text{Rn}$ -Folger zu verstehen. Sie werden in der vorliegenden Arbeit konsequent als  $^{226}\text{Ra}$ -Folger bezeichnet.

Um die Radondichte der Probenbehälter zu gewährleisten, wurde die MB-Öffnung vor dem Verschließen mit Klarsichtfolie straff bespannt und der Deckel mit zweierlei Klebeband verschlossen; vor dem Verschließen des WD-Probenbehälters (mittels einer handbetriebenen Dosenverschlußmaschine) wurde der Dosenrand mit Silikonpaste bestrichen. Testmessungen unter Verwendung einer Lucaszelle zeigten, daß die so verschlossenen Probenbehälter ausreichend radondicht sind. Die zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts nötige Wartezeit vor der Messung wurde i. allg. eingehalten.

$^{210}\text{Pb}$  erfordert aufgrund seiner niedrigen  $\gamma$ -Energie von 46.5 keV ebenso wie  $^{234}\text{Th}$  (63.3 keV) und  $^{241}\text{Am}$  (59.5 keV) einen Low-level-Meßplatz mit hoher Empfindlichkeit für niedrige Energien. Aus diesem Grund wurden nach Inbetriebnahme des Meßplatzes N38 sämtliche Proben dort gemessen. Zu starken Ungleichgewichten zwischen  $^{210}\text{Pb}$  und den vorangehenden RN der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe führt v. a. der Anteil des  $^{210}\text{Pb}$ , welcher durch die  $^{222}\text{Rn}$ -Gehalte der Luft in die Umwelt gelangt (Kap. 2.1). Aufgrund der Spezifika dieses von den Mutternukliden losgelösten Eintrags eignet sich  $^{210}\text{Pb}$  zur radiometrischen Datierung z. B. von Seesedimenten oder Torfen.

### Datierung von Moorschichten mit freiem $^{210}\text{Pb}$ unter Verwendung des CRS-Modells

Die Altersbestimmung von Sedimenten mittels des CRS-Modells (CRS = Constant Rate of Supply) nach Appleby u. Oldfield (1978) basiert auf der Annahme einer konstanten Eintragsrate von atmosphärischem  $^{210}\text{Pb}$  (sog. „unsupported“ bzw. freies  $^{210}\text{Pb}$ ) während des betrachteten Zeitraums. Die Sedimentations- bzw. Akkumulationsrate des Substrats selbst kann dabei variabel sein. Obwohl der atmosphärische  $^{210}\text{Pb}$ -Fluß stark durch meteorologische Bedingungen beeinflusst wird und saisonalen Variationen unterliegt, ist die Depositionsrate, über einen Zeitraum von mehreren Jahren betrachtet, als annäherungsweise konstant anzusehen (vgl. Kap. 2.1). Da zu Datierungszwecken entnommene Schichten von z. B. limnischen Sedimenten oder Torfablagerungen zudem meist mehrere Jahre umfassen, werden kurzfristige Variationen generell ausgeglichen, so daß die Annahme einer konstanten Eintragsrate i. allg. gerechtfertigt ist. Das Gesamtinventar  $A_F(0)$  von freiem  $^{210}\text{Pb}$  (in  $\text{Bq}/\text{m}^2$ ) eines Sedimentprofils ist somit der jährlichen  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamtdepositionsrate  $\Phi$  an der Lokalität (in  $\text{Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$ ; freies  $^{210}\text{Pb}$ ) proportional:

$$\Phi = \lambda_{\text{Pb-210}} \cdot A_F(0) \quad (19)$$

Dabei ist  $\lambda_{\text{Pb-210}}$  die Zerfallskonstante des  $^{210}\text{Pb}$  mit  $\lambda_{\text{Pb-210}} = \ln 2/T_{1/2}$  und  $T_{1/2} = 22.3 \text{ a}$ . Das Alter  $t$  des Substrats in einer Tiefe  $x$ , d. h. die Zeit, die vergangen ist, seit die entsprechende Schicht die Oberfläche des Profils darstellte, läßt sich errechnen aus der Beziehung

$$A_F(x) = A_F(0) \cdot e^{-\lambda_{\text{Pb-210}} \cdot t} \quad \text{bzw.} \quad t = -\frac{1}{\lambda_{\text{Pb-210}}} \cdot \ln \frac{A_F(x)}{A_F(0)} \quad (20)$$

$A_F(x)$  bezeichnet das entsprechende kumulative Inventar (in Bq/m<sup>2</sup>) unterhalb der Tiefe  $x$ . Unter Verwendung der Substratdichte  $\rho(x)$  gilt

$$A_F(x) = \int_x^\infty A_{\text{spez}}(x) \rho(x) \cdot dx = \int_x^\infty A_{\text{konz}}(x) \cdot dx \quad (21)$$

Für ein schichtweise beprobtes und untersuchtes Profil können  $A_F(0)$  und  $A_F(x)$  durch numerische Integration aus der Tiefenverteilung des freien <sup>210</sup>Pb bestimmt werden. Weist ein Profil  $n$  Beprobungsschichten der Schichtdicke  $\Delta x_i$  auf, so errechnet sich das Gesamtinventar  $A_F(0)$  aus

$$A_F(0) = \sum_{i=1}^n A_{\text{konz},i} \cdot \Delta x_i \quad (22)$$

Für die zu datierende  $k$ -te Schicht einer Bodentiefe  $x$  ergibt sich  $A_F(x)$  zu

$$A_F(x) = \frac{1}{2} (A_{\text{konz},k} \cdot \Delta x_k) + \sum_{i=k+1}^n A_{\text{konz},i} \cdot \Delta x_i \quad (23)$$

Die <sup>210</sup>Pb-Alter  $t$  der einzelnen Beprobungsschichten errechnen sich entsprechend Gl. (20) und sind jeweils der mittleren Entnahmetiefe der Schichten zuzuordnen.

Besteht die oberste Probe des Profils aus der an der Bodenoberfläche abgeschnittenen rezenten Vegetation (vgl. Kap. 3.3.3, Profile des Georgenfelder Hochmoors und der Schwarzen Heide), und liegt somit kein Wert für  $A_{\text{konz}}$  in Bq/(m<sup>2</sup> cm) vor, so kann das entsprechende Teilinventar dieser „Schicht“ aus  $A_{\text{spez}}$  und der flächenbezogenen Masse der Probe (in kg/m<sup>2</sup>) bestimmt werden.

Grundlegende Voraussetzung für die Anwendung des CRS-Modells und vergleichbarer Datierungsmethoden ist, daß Prozesse, welche zu einer Verlagerung entweder der jeweiligen RN oder des akkumulierenden Substrats nach der Deposition des Nuklids führen, weitgehend ausgeschlossen werden können und somit sämtliche Veränderungen der RN-Gehalte seit Bildung des Systems einzig dem radioaktiven Zerfall und dem Wachstum zuzuschreiben sind. Des weiteren sollte die Beprobungstiefe des untersuchten Profils eine möglichst vollständige Erfassung des Gesamtinventars des freien <sup>210</sup>Pb,  $A_F(0)$ , gewährleisten, d. h. idealerweise bis zu Depositionsschichten eines Alters von deutlich über 100 a bzw. bis zu einer Tiefe, in der entweder die <sup>210</sup>Pb-Gehalte denen des <sup>226</sup>Ra entsprechen („supported“ <sup>210</sup>Pb) oder <sup>210</sup>Pb generell nicht mehr nachweisbar ist (vgl. Kap. 7.3).

### Künstliche Radionuklide

Sämtliche gemessene Spektren wurden auf das Vorhandensein der in Tabelle 9 gelisteten Linien künstlicher RN geprüft. Je nach Emissionswahrscheinlichkeit und  $\gamma$ -Energie (und damit der Lage im Spektrum) eignen sich die Linien unterschiedlich gut zur Bestimmung der jeweiligen Aktivitäten. Einschränkungen existieren in wenigen Fällen auch aufgrund möglicher Interferenzen: In Bodenproben gemischt-organisch-mineralischer Zusammensetzung genügend hoher Th-Gehalte beispielsweise machte die Überlagerung von Linien des <sup>134</sup>Cs (563 keV, 796 keV) und des <sup>125</sup>Sb (463 keV) mit Linien vergleichbarer  $\gamma$ -Energien des <sup>228</sup>Ac (<sup>232</sup>Th-Reihe) eine Entfaltung erforderlich. Entsprechende rechnerische Trennungen wurden für eine Reihe von Messungen vorgenommen. Die resultierenden Aktivitäten stimmten i. allg. innerhalb der Meßunsicherheiten mit den Ergebnissen der anderen Linien überein, wurden jedoch nicht in eventuelle Mittelwertbildung einbezogen, u. a., da es sich nicht um die Linien jeweils höchster Emissionswahrscheinlichkeit handelt.

### Trennung von Kernwaffen- und Tschernobyl-Cäsium

Unter dem „Tschernobyl-Faktor“  $f_{\text{Tsch}}$  wird das Verhältnis der Aktivität des  $^{137}\text{Cs}$  zu der des  $^{134}\text{Cs}$  im Tschernobyl-Fallout (in der Literatur teilweise auch dessen Kehrwert) verstanden:

$$f_{\text{Tsch}} = \frac{A(^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}})}{A(^{134}\text{Cs}_{\text{Tsch}})} \quad (24)$$

Anhand von  $f_{\text{Tsch}}$  und der Tatsache, daß die heutzutage gemessene Aktivität des  $^{134}\text{Cs}$  nur aus dem Tschernobyl-Fallout stammt ( $^{134}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  bzw. in den folgenden Kapiteln vereinfacht  $^{134}\text{Cs}$ ), läßt sich die gemessene Gesamtaktivität des  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ )

$$A(^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}) = A(^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}) + A(^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}) \quad (25)$$

in die durch Kernwaffentests und den Reaktorunfall eingetragenen Anteile  $A(^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}})$  und  $A(^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}})$  trennen:

$$A(^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}) = A(^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}) - f_{\text{Tsch}} \cdot A(^{134}\text{Cs}_{\text{Tsch}}) \quad (26)$$

Als Bezugszeitpunkt für die Trennung und die nötigen Zerfallskorrekturen der Cs-Aktivitäten wird in der vorliegenden Arbeit, wie auch oft in der Literatur, der 1.5.1986 verwendet, der ungefähre Zeitpunkt der Deposition des radioaktiven Fallouts in Deutschland nach dem Reaktorunfall. Die Berechnung der entsprechenden Unsicherheiten basiert auf den Gesetzen der Unsicherheitsfortpflanzung.

## 3.2 Ergänzende Untersuchungsmethoden

### 3.2.1 Plutoniumanalysen ( $^{238}\text{Pu}$ und $^{239,240}\text{Pu}$ )

Untersuchungen der Verteilung des Transurans Pu in Böden ermöglichen sowohl Aussagen zur Mobilität des Pu als auch zum Prozentsatz, zu dem das in der Umwelt nachweisbare  $^{241}\text{Am}$  aus dem Zerfall des  $^{241}\text{Pu}$  der Kernwaffentests stammt (vgl. Kap. 2.3). Die  $\alpha$ -Emissionen des  $^{241}\text{Pu}$  sind jedoch i. allg. nicht nachweisbar ( $\varepsilon < 0.01\%$ ). Die Messung der  $\beta^-$ -Strahlung von  $^{241}\text{Pu}$  mit einer niedrigen Maximalenergie von 20.8 keV erfordert einen sehr hohen Aufwand bezüglich Probenaufbereitung und Meßtechnik, z. B. die Verwendung von  $^3\text{H}$ -freiem Wasser ( $E_{\beta\text{max}}(^3\text{H}) = 18.6\text{ keV}$ ). Die ebenfalls aus dem Bombenfallout stammenden Pu-Isotope  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  dagegen können anhand ihrer  $\alpha$ -Energien relativ gut bestimmt werden (Tabelle 11). Da  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$   $\alpha$ -spektrometrisch nicht zu trennen sind, kann nur die Gesamtaktivität, hier bezeichnet als  $^{239,240}\text{Pu}$ , angegeben werden.

Pu-Isotop	$T_{1/2}$ a	Zerfallsart	$E$ MeV	$\varepsilon$ %
$^{238}\text{Pu}$	87.7	$\alpha$	5.456 5.499	29.0 70.9
$^{239}\text{Pu}$	$2.41 \cdot 10^4$	$\alpha$	5.144 5.157	15.1 73.3
$^{240}\text{Pu}$	$6.56 \cdot 10^3$	$\alpha$	5.124 5.168	27.1 72.8
$^{241}\text{Pu}$	14.4	$\beta^-$	0.02 max	

Tabelle 11: Zerfallsart, Halbwertszeit, die wichtigsten Emissionsenergien und die Emissionswahrscheinlichkeiten der hier diskutierten Plutoniumisotope (Firestone u. Shirley 1996)

Die  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitäten ausgewählter Proben zweier Bodenprofile (Fichtenwald Nassau 2, Hochmoor Kleiner Kranichsee, vgl. Kap. 4) wurden mittels radiochemischer Aufbereitung und anschließender  $\alpha$ -Spektrometrie gemessen. Die Analysen konnten in der Landesmeßstelle für Radioaktivität / FB Physik an der Universität Bremen unter Anleitung von G. Kirchner und R. Braatz durchgeführt werden (7.–13.8.1997). Untersucht wurden jene Bodenschichten bzw. -horizonte, in denen  $^{241}\text{Am}$

zuvor  $\gamma$ -spektrometrisch nachgewiesen worden war. Um einen direkten Vergleich der Ergebnisse zu ermöglichen, wurden beide Meßmethoden auf dasselbe Probenmaterial angewendet. Die geringen Mengen der Moorproben wurden mit zusätzlichem Material auf über 100 g aufgestockt. In der zur Verfügung stehenden Zeit konnten sämtliche  $^{241}\text{Am}$  aufweisenden Proben des Moorbodenprofils, im Waldbodenprofil jedoch nur fünf Oh- und Ah-Beprobungshorizonte (Oh(Of) ... Ah2, vgl. Kap. 6.1.1) analysiert werden.

Die luftgetrockneten Bodenproben wurden nach dem in Abb. 18 skizzierten Verfahren verascht und radiochemisch aufbereitet. Als Tracer wurde  $^{236}\text{Pu}$  verwendet; die zugegebenen  $^{236}\text{Pu}$ -Aktivitäten wurden so gewählt, daß eine gute chemische Ausbeute der Analysen gewährleistet werden konnte. Erreicht wurden Ausbeuten bis zu 56 %. Vier Proben wiesen niedrige Ausbeuten von 0.5 ... 7.6 % auf; die Ursachen dafür ließen sich nicht feststellen. Die Extraktion einiger Moorbodenproben wurde durch ungewöhnlich starke Schaumbildung erschwert, was die Ausbeute jedoch nicht merklich beeinflusste. Die  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitäten der aus der Aufbereitung resultierenden Präparate wurden mittels  $\alpha$ -Spektrometrie bestimmt. Eine Zusammenstellung der Ergebnisse ist in Anhang B.1 zu finden.

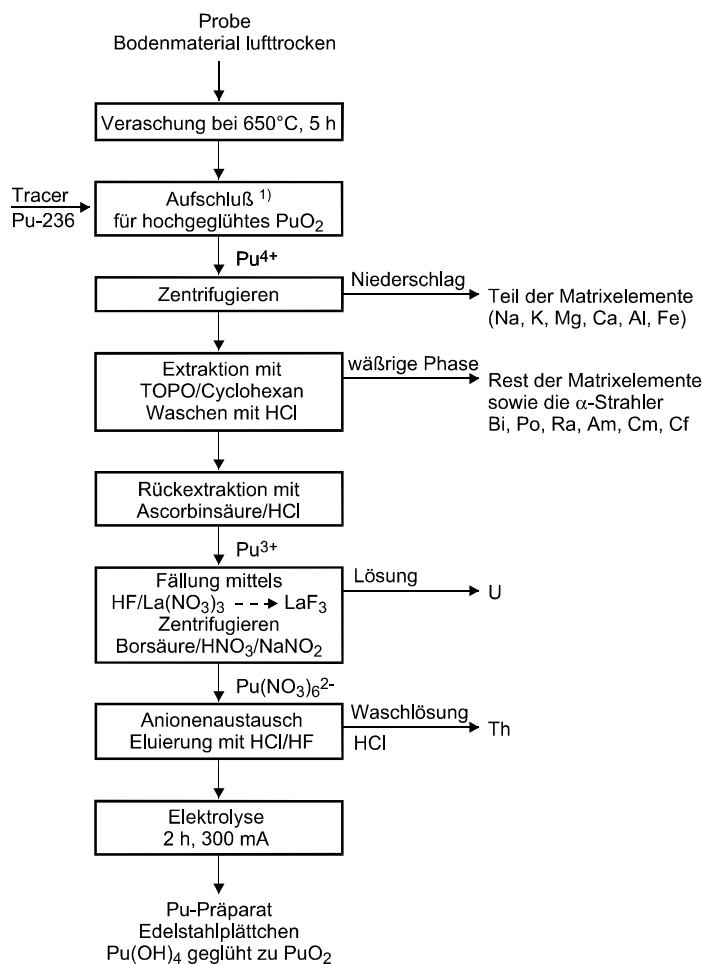


Abb. 18: Schematische Darstellung des verwendeten Analyseverfahrens zur Bestimmung der  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Gehalte in Bodenproben (erweitert nach Schüttelkopf 1981 und R. Braatz, Landesmeßstelle für Radioaktivität, Bremen, pers. Mitt. 1997)

<sup>1)</sup> Hochgeglühtes  $\text{PuO}_2$  (z. B. aus den Kernwaffentests) erfordert einen zweistufigen Aufschluß unter Verwendung von  $\text{HF}/\text{HNO}_3$  und  $\text{HNO}_3/\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ . Unter Zugabe von  $\text{NaNO}_2$  werden abschließend sämtliche Pu-Verbindungen in die Vierwertigkeit überführt

### 3.2.2 Geo- und pedomische Untersuchungen

Zur weiterführenden Charakterisierung des Torfes und der Elementverteilung mit der Tiefe wurden am Bodenmaterial eines der beprobten Erzgebirgshochmoore (Georgenfelder Hochmoor, vgl. Kap. 4) ergänzende Untersuchungen – geochemische Analysen sowie Bestimmung von Glühverlust und Kohlenstoffgehalt – durchgeführt.

Zur Vorbereitung für die geochemischen Untersuchungen wurde ein repräsentativer Anteil der getrockneten Moorschichten analysefein gemahlen. Die Zerkleinerung wurde zweistufig mit einer Schneidmühle (Lochung des Siebeinsatzes  $\varnothing$  1 mm) und einer Rotor-Schnellmühle (Lochung des Siebrings  $\varnothing$  80  $\mu$ m) vorgenommen. Es wurden mehrere Vorversuche mit verschiedenen Mühlen (u. a. Planeten-Kugelmühle) durchgeführt, mit dieser Kombination wurden jedoch die besten Ergebnisse bezüglich Homogenität bei geringer Fremdkontamination und vertretbarem zeitlichem Aufwand erzielt. Die gemahlenen Proben wurden mit groben und feinen Riffelteilern auf etwa 1 g heruntergeteilt.

Die Bestimmung der Gehalte von Al, As, Cd, Cr, Cu, Fe, Hg, Mn, Ni, Pb, U und Zn in den Proben wurde am Institut für Mineralogie der TU BAF, durchgeführt (vgl. Analyseprotokoll Nr. 169a des Geochemisch-Analytischen Labors, Institut für Mineralogie, 1995). Die Proben wurden mittels Königswasserauszug aufgeschlossen und anhand ICP-AES/-AAS (Hydridtechnik) analysiert (B. Kunz, TU BAF, pers. Mitt. 1995). Die Untersuchungsergebnisse enthielten keine Angaben zu den Meßunsicherheiten. Die Gehalte der Elemente Al, As, Cr, Ni, Pb und Zn (in mg/kg, bezogen auf absoluttrockene Masse bei 105 °C) sind in Anhang E.2, Tabelle E.5 zusammengestellt, die entsprechenden Tiefenverteilungen sind in Abb. E.1 und Abb. E.2 abgebildet.

Für einige der gemahlenen Proben wurde der Glühverlust bei 600°C und 1000°C bestimmt (vgl. DIN 19684:1977; DIN 38414:1985; Ergebnisse, bezogen auf absoluttrockene Masse bei 105 °C, s. Anhang E.2, Tabelle E.5). Die relative Unsicherheit der Werte beträgt unter 1 %, wie Mehrfachmessungen zeigen. Unter der Annahme, daß unter den Reaktionsbedingungen keine Stoffabgabe oder -aufnahme stattfindet, entspricht der Glühverlust dem Gehalt der Probe an organischer Substanz.

Die Kohlenstoffgehalte der Proben wurden mittels eines TOC-Analysators Ströhlein C-mat 5500 am Institut für Bohrtechnik und Fluidbergbau bestimmt (M. Hahnewald, TU BAF, pers. Mitt. 1999). Entsprechend den Angaben des Analysatorherstellers und nach Mehrfachmessungen beträgt die relative Unsicherheit 3 ... 5 %. In carbonatfreien Proben wie den hier untersuchten Torfen entsprechen die Gehalte des organischen Kohlenstoffs (TOC) den Gesamtkohlenstoffgehalten (TC) (TOC-Gehalte, bezogen auf absoluttrockene Masse bei 105 °C, s. Anhang E.2, Tabelle E.5). Laut AG Boden (1994) errechnet sich der Gehalt der organischen Substanz aus dem organischen Kohlenstoffgehalt annäherungsweise über den Faktor 1.72, bei Torfen und Auflagehumus (in der Regel Oh-Horizonte) über den Faktor 2.

### 3.2.3 Palynologische Untersuchungen

In Hochmooren ist die Verteilung eingebrachter Substanzen stark mit der jahrtausendewährenden Entwicklung des Torfkörpers verknüpft (vgl. Kap. 3.4). Im Falle fest gebundener und damit unbeweglicher Stoffe läßt sich der Eintrag im Laufe der Zeit wie in einem Geschichtsbuch rekonstruieren. So kann aus dem Vorkommen von Pollenkörnern in aufeinanderfolgenden, zeitlich nacheinander abgelagerten Schichten auf die Floren- und Vegetationsentwicklung vor Ort geschlossen werden. Diese relative Datierungsmethode, **Pollenanalyse** genannt, ist ein Teilbereich der **Palynologie**, d. h. der Erforschung von Pollenkörnern und Sporen, und wird insbesondere an Seesedimenten und Torfkörpern angewandt (Straka 1970; Overbeck 1975; Göttlich 1990; Lang 1994; Wagenitz 1996). Moore bzw. ihre Torfe stellen somit Archive der jeweilig herrschenden Vegetation und der Stoffeinträge dar.

Schon vor 160 Jahren war bekannt, daß sich Pollen fossil erhält, sofern er unter Sauerstoffabschluß abgelagert wird (Firbas 1949). Diese Voraussetzung trifft auch für Hochmoore zu. Hochmoore werden von langsam wachsenden Torfmoosen aufgebaut, die in wenigen Zentimetern Tiefe absterben und sich anaerob zu Torf zersetzen. Torfe konservieren jedoch nicht nur, sie sind auch schichtbeständig. Auf der Oberfläche eines lebenden Hochmoors werden abgelagerte Pollenkörner (Größe 2 ... 300  $\mu$ m) zwischen den Moosen festgehalten und in der neu entstehende Torfschicht eingebettet. Aufgrund der Filterwirkung der Torfmoossschichten sind sie als immobil anzusehen (Hayen 1990). Pollenkörner und Sporen sind sehr verschieden geformt, weisen art-, gattungs- oder familienspezifische Merkmale auf und sind somit relativ gut unterscheidbar. Sie werden leicht und weit verweht, so daß die Sporen- und Pollenanalyse sowohl eine Rekonstruktion der Vegetationswechsel des Moores ermöglicht als auch

die Vegetation der Moorumgebung erfaßt.

Grundprinzip der Pollenanalyse ist, den in den einzelnen Torfproben eines vertikalen Moorprofils eingebetteten Pollen chemisch herauszulösen und die jeweilige Anzahl der Pollenkörner erkennbarer Gattungen bzw. Arten unter dem Mikroskop auszuzählen. Die Zählergebnisse werden als prozentuale Häufigkeitsverläufe über der Beprobungstiefe aufgetragen (**Pollendiagramm**). Als Bezugsgrundlage der Berechnung kann entweder die Summe des Baumpollens (BP) oder die Summe des Landpflanzenpollens (Gehölze und Kräuter) gewählt werden. Für holozäne Pollendiagramme wird üblicherweise die BP-Grundsumme gleich 100 % gesetzt, um die Waldentwicklung deutlicher herauszuarbeiten. In den Pollendiagrammen werden Phasen der Vegetationsentwicklung gegeneinander abgegrenzt, welche als **Pollenzonen** bezeichnet werden. Da die jeweilige Vegetation des Standorts über die Ansprüche der entsprechenden Pflanzen Rückschlüsse auf vorherrschende Boden-, Standort- und Klimabedingungen sowie in jüngeren Abschnitten auch auf anthropogene Einflüsse zuläßt, können Parallelen zur Klimaentwicklung und der Siedlungsgeschichte eines Gebietes gezogen werden. Dabei müssen wichtige Faktoren wie die spezifische Pollenproduktion, -verwehbarkeit und -erhaltungsfähigkeit berücksichtigt werden. Um jedoch einen numerischen Zeitmaßstab für die Gliederung der Pollendiagramme zu erhalten und damit die historische Einordnung der Vegetationsabfolge zu ermöglichen, sind z. B. ergänzende  $^{14}\text{C}$ -Datierungen ausgewählter Torfschichten nötig (s. Kap. 3.2.4).

Die in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Pollenanalysen wurden von M. Seifert, Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie (LfUG) Freiberg, an einem Bohrkern des Erzgebirgshochmoors Schwarze Heide (vgl. Kap. 4) durchgeführt, welcher zusammen mit dem hier  $\gamma$ -spektrometrisch untersuchten Torfprofil am 30.8.1995 entnommen wurde (Seifert 1997). Mittels eines Kammerbohrers nach Hiller (Innenmaße Kammer: L 50 cm,  $\varnothing$  4 cm) wurde im Gelände eine lückenlose Profilsäule gestochen. Um Verunreinigung durch rezenten Pollen aus der Luft zu vermeiden, wurde das zu untersuchende Moormaterial vor Ort in Kisten abgelegt. Im Labor wurden aus dem Innern des Bohrkerns Proben im Abstand von etwa 5 cm sauber entnommen. Diese Proben wurden nach dem im LfUG Freiberg üblichen Verfahren aufbereitet (Seifert 1997; M. Seifert, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 1998): Je nach Beschaffenheit wird das Probenmaterial mit Salpetersäure, Kalilauge (Lösen der Huminsäuren) und bei starker minerogener Verunreinigung zusätzlich mit Flußsäure und Salzsäure behandelt. Nach den einzelnen Aufbereitungsschritten werden die Proben jeweils neutral ausgewaschen. Das so aufbereitete Material wird zur Herstellung der mikroskopischen Präparate in Glyzeringelatine eingebettet. Pro Probe wurden mehrere Präparate angefertigt. Diese Präparate wurden bei 400facher Vergrößerung bzw. bis zu 1000facher Vergrößerung mit Ölimmersion im Durchlicht identifiziert und ausgezählt. Dabei betrug die ausgezählte Pollensumme pro Präparat 500 Baumpollenkörner. Die Bereiche außerhalb des ausgezählten Abschnitts und die zusätzlichen Präparate wurden nach weiteren Pollenarten durchgesehen. Im Pollendiagramm werden diese Arten durch ein Kreuz (+) angezeigt. Die Darstellung der Zählergebnisse erfolgte in zwei Pollendiagrammen. Einem Diagramm liegt die Anzahl des Baumpollens ohne Hasel, dem anderen die Anzahl von Baumpollen und Hasel als Summe 100 % zugrunde; ersteres ist in Anhang E.3, Abb. E.3 verkürzt wiedergegeben.

### 3.2.4 Altersbestimmung von Moorböden mittels $^{14}\text{C}$ -Datierung

Zur zeitlichen Einordnung der Torfschichten von Moorbodenprofilen eignen sich  $^{14}\text{C}$ -Datierungen des organischen Materials (Trettin et al. 1982; Geyh u. Schleicher 1990; Göttlich 1990; Wöflfi 1992; Lang 1994; Wagner 1995; Hebert 1997). Die Kombination der in Kap. 3.2.3 erläuterten relativen Datierungsmethode Pollenanalyse mit  $^{14}\text{C}$ -Altern ausgewählter Torfschichten ermöglicht die umfassende historische Einordnung eines Moores. Um die an Proben zweier Hochmoorprofile (Georgenfelder Hochmoor, Schwarze Heide) bestimmten  $^{14}\text{C}$ -Alter diskutieren zu können, wird in den folgenden Abschnitten genauer auf die nötige Aufbereitung und die verwendeten Meßverfahren eingegangen.

Das radioaktive  $^{14}\text{C}$  und die stabilen Kohlenstoffisotopen  $^{12}\text{C}$  und  $^{13}\text{C}$  gelangen über den  $\text{CO}_2$ -Kreislauf und die Nahrungskette in alle lebenden Organismen (vgl. Kap. 2.2). Das Isotopenverhältnis  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  der Atmosphäre (1950:  $1,2 \cdot 10^{-12}$ ) findet sich somit in der Biosphäre wieder. Nach dem Tod

eines Organismus wird das Isotopenverhältnis aufgrund des radioaktiven Zerfalls des  $^{14}\text{C}$  im Laufe der Zeit immer kleiner. Durch Messung der noch vorhandenen  $^{14}\text{C}$ -Konzentration ist somit bei bekannter Anfangskonzentration – d. h. zum Zeitpunkt des Todes – eine Altersbestimmung von Proben biologischen Ursprungs in einem Zeitrahmen von etwa 300 ... 40000 a möglich. Die von W. F. Libby ab 1947 entwickelte Methodik (z. B. Libby 1961) beruht auf der Bestimmung der spezifischen Aktivitäten, heutzutage mittels Flüssigkeitsszintillationsspektrometrie (LSC). Bei der seit 1977 verwendeten AMS-Methode dagegen erfolgt die direkte Bestimmung der  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ -Isotopenverhältnisse mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) (Wölfli 1987, 1992; Bonani et al. 1992). Vorteile der AMS-Methode sind u. a. wesentlich geringere benötigte Probenmengen (ca. 1 mg statt mindestens 500 mg Kohlenstoff), wesentlich kürzere Meßzeiten (maximal 30 min statt mehrerer Tage), die Ausdehnung des Altersbereichs auf bis zu 50000 a und die höhere Zuverlässigkeit. Die Probenauswahl ist allerdings sehr umsichtig vorzunehmen. Um z. B. rezente Einflüsse oder Verfälschungen durch Proben langer Lebensdauer zu vermeiden, sind zeitlich repräsentative Proben kurzlebigen Materials zu bevorzugen.

Spezifische  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten bezieht man auf einen NBS-Oxalsäurestandard aus dem Jahre 1950. Die ursprüngliche Festlegung war, daß 95 % der spezifischen  $^{14}\text{C}$ -Aktivität dieses Standards dem  $^{14}\text{C}$ -Rezenteffekt – d. h. 13.56 dpm/g C bzw. 226 Bq  $^{14}\text{C}$ /kg C – entsprechen und als 100 % modern bzw. 100 pMC (percent Modern Carbon) bezeichnet werden. Aus den Meßdaten wird das sog. konventionelle  $^{14}\text{C}$ -Alter berechnet und, ausgehend vom Basisjahr 1950, in a BP (before present) angegeben. Hierbei wird u. a. die von Libby ermittelte Halbwertszeit von 5568 a verwendet; nach heutigen Erkenntnissen beträgt  $T_{1/2}$  jedoch  $(5730 \pm 40)$  a. Leider werden die konventionellen Alter immer noch sehr häufig in der Literatur verwendet, was den Vergleich erschwert und teilweise Fehlschlüsse fördert. Bei der Umwandlung der konventionellen in die interessierenden kalibrierten  $^{14}\text{C}$ -Alter (a cal BC bzw. a cal AD für Kalenderalter vor bzw. nach Beginn unserer Zeitrechnung) sind verschiedene Korrekturen vorzunehmen. Die anhand Proben bekannten Alters bestimmte Dendro-Korrekturkurve trägt den  $^{14}\text{C}$ -Produktionsschwankungen der vergangenen 10000 a Rechnung (vgl. Jahrringchronologie an Bäumen, Bändertonchronologie, z. B. Götlich 1990; Zolitschka et al. 2000). Leider führen die Fluktuationen z. T. zu mehrfachen Schnittpunkten und erschweren bzw. verhindern so die Bestimmung des wahren Alters. Im Zeitbereich der letzten 300 a wird die Datierung durch einen starken Anstieg der atmosphärischen  $^{14}\text{C}$ -Konzentration im 17. Jahrhundert (De-Vries-Effekt), die Verbrennung  $^{14}\text{C}$ -armer fossiler Brennstoffe in den vergangenen 150 a (Suess-Effekt) und das seit 1945 durch atmosphärische Kernwaffentests freigesetzte  $^{14}\text{C}$  verhindert (Scott et al. 1994). Einzig der „Bombenpeak“ mit einem Maximum der atmosphärischen  $^{14}\text{C}$ -Konzentration um 1963 ermöglicht eine zeitliche Markierung, z. B. von Sedimentlagen.

Die  $^{14}\text{C}$ -Alter ausgewählter Proben höherer Schichten des Torfprofils aus dem Georgenfelder Hochmoor wurden am Institut für Angewandte Physik der TU BAF bestimmt. Tieferliegende Moorschichten konnten nicht datiert werden, da die mittels Kammerbohrer gewonnenen Probenmengen zu gering waren. Aus repräsentativen Anteilen der luftgetrockneten Proben wurden vorbereitend jene Bestandteile von Hand aussortiert, bei denen eine rezente Herkunft nicht auszuschließen ist, wie z. B. Wurzelstücke, Stöckchen. Etwa 40 g organischen Torfmaterials, das entspricht rund 1.7 g Kohlenstoff, wurden im Labor mit HCl und NaOH zur Beseitigung von Kalk und Huminsäuren gekocht. Die so gereinigten Proben wurden unter  $\text{O}_2$ -Atmosphäre verbrannt. Aus dem gewonnenen  $\text{CO}_2$  wurde in zwei Zwischenschritten Lithiumcarbid ( $\text{Li}_2\text{C}_2$ ) und Ethin ( $\text{C}_2\text{H}_2$ ) hergestellt und schließlich Benzen ( $\text{C}_6\text{H}_6$ ) synthetisiert. Nach Vermischung mit einem Szintillatorcocktail wurde die  $^{14}\text{C}$ -Aktivität der Probe mit einem LSC-Spektrometer (TRICARB 4530) gemessen. Je nach Probenalter und gewünschter Genauigkeit (eine relative Unsicherheit von 1 % ist möglich) sind bei diesem Verfahren 0.5 ... 2 d Meßzeit nötig. Die untere NWG beträgt 0.5 ... 1.0 pMC (Hebert et al. 1973; D. Hebert, TU BAF, pers. Mitt. 1995, 1998).

Die Radiokohlenstoffdatierungen an vier Schichten des Moorprofils Schwarze Heide und einer Probe des Profils Kleiner Kranichsee wurden im Leibnitz-Labor für Altersbestimmung und Isotopenforschung der Universität Kiel mittels AMS durchgeführt. Den Laborangaben entsprechend wurden



aus den stark durchwurzelt Proben unter dem Mikroskop, soweit möglich, Stengelstücke und Rinde mit geringerer Durchwurzelung zur Datierung ausgewählt. In einer dreistufigen Exktraktion (1 %ige HCl und 1 %ige NaOH) wurden Karbonate, Fulvo- und Huminsäuren entfernt. Die Verbrennung der Rückstände erfolgte bei 900 °C in mit CuO und Silberwolle gefüllten Quarzampullen. Nach der Oxidation des gereinigten Probenrestmaterials und einer anschließenden Reduktion des CO<sub>2</sub> zu graphitähnlichem Kohlenstoff (Graphitisierung) wurde das standardisierte Analyseverfahren in der AMS-Anlage durchgeführt. Über das gemessene <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C-Verhältnis wurde eine Korrektur der Isotopenfraktionierung vorgenommen. Die Ergebnisse der AMS-Messungen wurden als konventionelle und kalibrierte <sup>14</sup>C-Alter angegeben (P.M. Grootes, Christian-Albrechts-Universität Kiel, pers. Mitt. 1997).

Sämtliche Ergebnisse lagen nach den Untersuchungen als <sup>14</sup>C-Konzentrationen in pMC bzw. konventionellen <sup>14</sup>C-Alter vor und wurden unter Verwendung von Korrektur- bzw. Kalibrierungskurven (Pearson u. Stuiver 1986; Stuiver u. Pearson 1986; Stuiver u. Becker 1993; Hebert 1997; O. Nitzsche, TU BAF, pers. Mitt. 1996, 1998) in kalibrierte Alter übertragen.

### 3.3 Entnahme, Charakterisierung und Aufbereitung der Proben

#### 3.3.1 Profilaufnahme und Bodenansprache

Unabdingbare Voraussetzung dafür, die gewonnenen Meßergebnisse vergleichen, einordnen und diskutieren zu können, sind bodenkundlich definierte Proben. Deshalb wurden die zu untersuchenden Böden entsprechend der in der Bodenkunde üblichen Methodik charakterisiert („Ansprache“) und beprobt. Die Entnahmeverfahren wurden teilweise verfeinert und den hier herrschenden Randbedingungen, z. B. bezüglich der zur Messung nötigen Probenmenge, angepaßt. Die für diese Arbeit wichtigen bodenkundlichen Grundlagen sind im weiteren knapp zusammengefaßt; wesentliche Basisliteratur dazu stellen Schachtschabel et al. (1992), Roeschmann et al. (1993) und AG Boden (1994) sowie die Bodenkunde-Vorlesungsskripte von L. Feldmann (TU Clausthal, 1993) und J. Schmidt (TU BAF, 1995) dar.

**Bodenhorizonte** entstehen durch das Ausgangsgestein verändernde Prozesse wie Verwitterung, Mineralbildung, Zersetzung, Humifizierung, Gefügebildung und Stoffumlagerungen. Wesentliche Faktoren dieser Umformung sind dabei das Ausgangsgestein, die streubildende Vegetation, die einwirkenden Bodenorganismen, das herrschende Klima sowie menschliche Einflüsse. Die gebildeten Horizonte unterscheiden sich in ihren Gehalten mineralischer und organischer Substanz (Humus) sowie ihren Merkmalen wie Gefüge, Korngrößenzusammensetzung und Farbe. Der Bodenkundlichen Kartieranleitung (AG Boden 1994) folgend werden die Bodenhorizonte durch Großbuchstaben symbolisiert. Horizontmerkmale, welche das Ergebnis bodenbildender Prozesse darstellen (pedogene Merkmale), werden durch nachgestellte Kleinbuchstaben gekennzeichnet. Für die im Erzgebirge und den Vergleichsgebieten beprobten Wald- und Moorböden (vgl. Kap. 4) sind die Horizonte entsprechend Tabelle 12 maßgeblich.

In den untersuchten Böden unter Nadelwald konnten die Streulage L, der Fermentationshorizont Of, der Humifizierungshorizont Oh, der humushaltige Oberbodenhorizont Ah und der mineralische B-Horizont angesprochen werden. Aus der Kombination und Abfolge charakteristischer Horizonte sowie deren Mächtigkeit leitet sich der jeweilige **Bodentyp** ab. Ein Boden mit der Horizontfolge Ah/Bv/C, wie er an den drei erzgebirgischen Beprobungspunkten prinzipiell vorliegt, wird als Braunerde klassifiziert. Bei dem Prozess der **Verbraunung** bildet die Verwitterung Fe-haltiger Minerale braun gefärbte Fe-Oxide. Findet im Boden eine vertikale **Tonverlagerung** statt, so kann ein Ah/Al/Bt/(Bv)/C-Profil entstehen. Diesem als Parabraunerde bezeichneten Typ gehört der in Oberschwaben beprobte Boden an (Eggwald, vgl. Kap. 4). Die hier untersuchten Böden sind zudem von **Podsolierung** geprägt und weichen dadurch von der genannten Norm-Profilierung ab. Unter Podsolierung versteht man eine abwärts gerichtete Stoffumverteilung im Mineralboden durch gelöste organische Stoffe. Grund ist ein stark saures Milieu, welches Nährstoffmangel hervorruft und dadurch den mikrobiellen Abbau der organischen Substanz hemmt. Dabei entstehen auch wasserlösliche niedermolekulare Huminstoffe, z. B. Fulvosäuren, welche ebenfalls wasserlösliche Komplexe mit Fe- und Al-Ionen bilden können. Diese

metallorganischen Komplexe, u. a. Chelate, werden für pH-Werte < 4 abgeführt, und fallen erst wieder im Unterboden aus. Bei dem Bodentyp Podsol zeigen sich die Umlagerungsprozesse sichtbar in einem Auswaschungshorizont Ae und einem Anreicherungshorizont Bs. Im Bodentyp podsoliierte Braunerde, wie er an den erzgebirgischen Beprobungsstandorten tendenziell eher vorliegt, ist die Podsolierung weniger stark ausgeprägt als in einem echten Podsol.

Tabelle 12: Bodenkundliche Nomenklatur zur Bezeichnung der untersuchten Bodenhorizonte (Schachtschabel et al. 1992; AG Boden 1994)

<b>Organische Horizonte (über 30 Masse-% organische Substanz)</b>	
<b>H</b>	Torfhorizont (Humus) ( <b>hH</b> Hochmoortorf)
<b>L</b>	Streu, weitgehend (über 90 %) unzersetzte Pflanzensubstanz (engl. <u>L</u> itter)
<b>O</b>	Horizont aus Ansammlung stark zersetzter Pflanzensubstanz ( <u>o</u> rganisch)
<b>Mineralische Horizonte (unter 30 Masse-% organische Substanz)</b>	
<b>A</b>	Mineralhorizont im Oberboden mit Akkumulation organischer Substanz und/oder Verarmung an mineralischer Substanz und/oder an Humus
<b>B</b>	Mineralhorizont im Unterboden mit verändertem Mineralbestand durch Verwitterung, Verlehmung und/oder Stoffanreicherung (Verwitterungshorizont)
<b>C</b>	Mineralischer Untergrundhorizont, von der Bodenentwicklung nicht oder kaum beeinflusstes Gestein
<b>G</b>	Semiterrestrischer Bodenhorizont mit Grundwassereinfluß ( <u>G</u> rundwasser)
<b>Vorangestellte Zusatzsymbole geogener Merkmale (hier verwendete Kombinationen)</b>	
<b>f</b>	<u>f</u> ossil ( <b>fAh</b> )
<b>h</b>	<u>H</u> ochmoor ( <b>hH</b> )
<b>Nachgestellte Zusatzsymbole pedogener Merkmale (hier verwendete Kombinationen)</b>	
<b>e</b>	<u>e</u> luvial, ausgewaschen, sauergebleicht, podsoliert, d. h. an Fe- bzw. Al-Verbindungen und organischer Substanz durch Podsolierung verarmt ( <b>Ae</b> )
<b>f</b>	<u>f</u> ermentiert, vermodert ( <b>Of</b> )
<b>h</b>	<u>h</u> umos, huminstoffakkumuliert (humifiziert) ( <b>Oh</b> , <b>Ah</b> )
<b>l</b>	<u>l</u> essiviert, tonverarmt ( <b>Al</b> )
<b>r</b>	<u>r</u> eduziert ( <b>Gr</b> )
<b>s</b>	angereichert mit <u>S</u> esquioxiden (Fe-, Mn-, Al-Oxide) ( <b>Bs</b> )
<b>t</b>	<u>t</u> onangereichert ( <b>Bt</b> )
<b>v</b>	<u>v</u> erwittert ( <b>Cv</b> ); <u>v</u> ebraunt oder <u>v</u> erlehmt durch Verwitterung ( <b>Bv</b> )

Für die Beschreibung der Waldbodenprofile (Anhang D.1) wurde die hier erläuterte Symbolik entsprechend der Bodenansprache vor Ort verwendet. Die Bezeichnungen in den Diagrammen beziehen sich auf die eigentliche Beprobung, in der eine Trennung rein nach Horizonten nicht immer möglich oder auch nicht beabsichtigt war. So führte z. B. eine feinere Unterteilung der Horizonte teilweise zu Mischproben. Deren Bezeichnung setzt sich entgegen AG Boden (1994) zusammen aus dem Hauptbestandteil und dem in Klammern nachgestellten untergeordneten, da nur in geringeren Mengen untergemischten Anteil, z. B. Of(L) = Of mit wenig L-Beimengung. Eine nachgestellte Numerierung wie Bv1, Bv2 usw. weist auf mehrere Beprobungsschichten innerhalb desselben bodenkundlichen Horizonts hin. Der Begriff Horizont wird sowohl im eigentlichen bodenkundlichen Sinne als auch für die bei der Probennahme abgetragenen Lagen verwendet, welche i. allg. nicht vollständig mit den zuvor angesprochenen Horizonten übereinstimmen. Zudem erfolgten sämtliche Tiefenangaben (Horizont- bzw. Schichtuntergrenze) sowohl der Wald- als auch der Moorbodenprofile von der Oberfläche aus. Die bei der Ansprache erreichte Maximaltiefe ist in den Tabellen durch ET (Endtiefe) gekennzeichnet.

Der Humuskörper des Bodens, welcher sich aus Streu- und Huminstoffen zusammensetzt, beeinflusst wesentliche Prozesse der Nährstoffversorgung und des Wasserhaushalts sowie die Entwicklung der Bodenorganismen. Den Standortverhältnissen entsprechend sind die organischen Horizonte von unterschiedlicher Ausprägung und Mächtigkeit, woraus sich die jeweilige **Humusform** ableiten läßt. In den hier untersuchten, von zunehmender Versauerung betroffenen Nadelwäldern unter kühlfeuchten

Klimaverhältnissen sind alle organischen Horizonte der Humusauflage, L, Of und Oh, gut sichtbar vorhanden. Es liegen die Auflage-Humusformen (d. h. Oh-Horizont > 5 mm, im Gegensatz zu Mineralboden-Humusformen geringerer Oh-Mächtigkeit) typischer Moder und rohhumusartiger Moder vor.

Dem Bodentyp übergeordnet ist die Unterscheidung der Böden nach ihrem Wasserregime. Während die oben genannten Bodentypen vom Sickerwasser bestimmt und somit zu den terrestrischen Böden gezählt werden, bilden die **Moore** eine eigenständige bodensystematische Abteilung. Grund dafür ist, daß, wie bei keinem anderen Boden, mit ihrer Bildung das Ausgangsmaterial zugleich entsteht. Das „Hochmoor im eigentlichen Sinne“ oder Plateauhochmoor ist ein uhrglasförmig schwach gewölbt, ombrogener Hochmoortypus mit einer waldlosen Hochfläche (Overbeck 1975; Succow u. Jeschke 1986; Succow 1988; Göttlich 1990; Roeschmann et al. 1993). Diesem Typus entsprechen hier am ehesten der Radauer Born und, in seinen zentralen Bereichen, der Kleine Kranichsee (vgl. Kap. 4). Während die Vernässung ombrogener Moore nur von den unmittelbar auf die Moorfläche fallenden Niederschlägen herrührt (Regenmoore), werden geogene Moore rein von Mineralbodenwasser ernährt. Erfahrung Hanghochmoore aufgrund ihrer Hanglage eine teilweise Überrieselung durch Zulaufwasser aus den Mineralböden der Moorumgebung (soligen), so werden sie als ombrosoligen bezeichnet (z. B. das hier untersuchte Georgenfelder Hochmoor). Die Entwicklung des Hochmoors ist hauptsächlich von einer klimatisch bedingten positiven Wasserbilanz unter Bildung von Stauwasser abhängig. Über Nährstoffarmen, sauren Böden siedeln sich dadurch typische Hochmoorpflanzen an, welche wiederum charakteristische Hochmoortorfe bilden. **Torfe** entstehen in wassergesättigtem Milieu durch Anhäufung unvollständig zersetzten Pflanzenmaterials. Sie enthalten wechselnde Anteile von Huminstoffen und den bildenden Pflanzenarten zuzuordnende Pflanzenreste, deren Struktur je nach **Humifizierungsgrad** mehr oder weniger erkennbar ist. Entsprechend der botanischen Artenzusammensetzung werden bodenkundliche Torfartengruppen (z. B. Hochmoortorf) und botanische Torfarteneinheiten (z. B. Moostorfe, Kräutertorfe) unterschieden. Ein Hochmoor kann drei gut unterscheidbare **Horizonte bzw. Schichten** besitzen: einen Vererdungshorizont (Bunkerde; nach Entwässerung), darunter den wenig humifizierten, umbrabraunen jungen Moostorf (Weißtorf) und tiefer den stärker humifizierten, schwärzlichbraunen älteren Moostorf (Schwarztorf); eine klare Gliederung Weißtorf/Schwarztorf ist jedoch nicht immer erkennbar. Bei den Hochmooren des Erzgebirges werden in diesem Zusammenhang eher die Bezeichnungen „jüngerer Moostorf“ und „älterer Moostorf“ verwendet (Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; M. Seifert-Eulen, pers. Mitt. 2005). Zudem können sich schwächer und stärker humifizierte Bereiche über die Tiefe hinweg abwechseln, da jeweils der Humifizierungszustand konserviert wird, in dem das Material in die wassergesättigten, reduzierenden Tiefenbereiche geraten war. Während Horizonte als Lagen der Bodenentwicklung zu verstehen sind, entstehen Schichten durch Sedimentation – im Moor als „organische Sedimente“ bezeichnet. Im Rahmen dieser Arbeit wird die Bezeichnung Schicht für Hochmoore im Sinne von beprobter Lage des Torfkörpers, ungeachtet der jeweiligen Horizontabgrenzungen, verwendet.

### 3.3.2 Waldboden und Fichtennadeln

Unterstützt durch den Förster des jeweiligen Waldreviers wurden in den zu untersuchenden Fichtensäulen geeignete Beprobungsstellen nach folgenden Kriterien ausgewählt:

- Die Bodenhorizonte, vor allem die organischen Horizonte und der humushaltige Oberbodenhorizont Ah, sollten gut ausgebildet und voneinander abgrenzbar sein. Die Mächtigkeit der Horizonte hängt u. a. von Alter und Dichte der Beforstung und somit auch von Streuzufuhr und den Lichtverhältnissen ab.
- Die Waldfläche sollte über einen längeren Zeitraum, idealerweise seit der aktuellen Beforstung, forstwirtschaftlich kaum bzw. nicht bearbeitet belassen sein (Waldpflege mit Bodenauflockerung, Neubepflanzung, Düngung und Kalkung). Es wurde auf ausreichende Entfernung zu Forstwegen geachtet.

- Keine oder nur geringe Neigung der Waldfläche und eine ebene Beprobungsfläche vermeiden. Profilstörungen durch Erosion, die Auswaschung von RN in vertikaler Richtung sowie reduzierte atmosphärische Einträge durch an der Oberfläche ablaufende Niederschläge.
- Beprobungspunkte ohne Pflanzenbewuchs wurden bevorzugt, um eine Beeinflussung der RN-Tiefenverteilungen durch den Transfer Boden–Pflanze (bezüglich der Kraut- und Strauchschicht) auszuschließen.
- Ein Abstand zwischen der Beprobungsstelle und den umgebenden Bäumen von, je nach Baumhöhe, Kronenumfang und Beforstungsdichte, etwa 2 ... 4 m vermeidet einerseits eine zu starke Störung des Profils durch Wurzeln und gewährleistet andererseits eine ausreichend große Streumenge auf der Profiloberfläche.

Letzterer Punkt hat zudem eine Bedeutung für das RN-Inventar im Boden. Laut Bunzl et al. (1989b) zeigten die  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare globalen Kernwaffenfallouts im direkten Umkreis (etwa 0.5 m) von Fichtenstämmen eine etwa 10 % höhere Deposition als an 3 m entfernten Beprobungsstellen (mittlere Inventare, bestimmt an jeweils 30 Fichtenwald-Bodenproben seit 1986; Anhang D.2). Die von Förster et al. (1991) in demselben Fichtenwald gemessenen  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare wiesen am Stammfuß von Fichten rund doppelt so hohe Werte auf als in stammfernen Bereichen unter dem Kronendach (in 0.5 m Abständen bis zu 3 m gemessen). Wichtigster Faktor hierbei ist offensichtlich das verstärkte Streuaufkommen in Stammnähe. Da kein radialer Trend über eine Entfernung von 0.5 m hinaus festgestellt werden konnte, wurden die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Bodenprofile etwa im Mittelpunkt der umliegenden Bäume entnommen, und damit in über 0.5 m Abstand zu allen Stämmen. Das Kriterium eines anthropogen möglichst unbeeinflussten Standorts wird durch verschiedene Untersuchungen unterstützt, in denen z. B. Kalkdüngung (Schimmack et al. 1991, 1997a; Lindner et al. 1994) oder Pflügen (Schimmack u. Bunzl 1986) einen deutlichen Einfluß auf den vertikalen Transport gelöster Stoffe, wie Metallionen oder RN, in Bodenprofilen zeigten.

Die Beprobungsstelle wurde nach Vorsondierung mittels eines Pürckhauer-Bohrstocks und Spatenaushüben ausgewählt. Bodenansprache und Profilaufnahme erfolgten sowohl an mit dem Spaten freigelegten Profilen als auch während der eigentlichen Beprobung. Die definierte Profilentnahme wurde horizontweise innerhalb eines aufgelegten Aluminiumrahmens ( $50 \times 50 \text{ cm}^2$ ) durchgeführt, welcher mittels Eisenheringen fest auf dem Boden positioniert werden kann. Mächtigere Horizonte wurden zusätzlich untergliedert, um für die spätere Bestimmung der RN-Tiefenverteilungen möglichst viele Meßpunkte zu erhalten. Vorbereitende Beprobungen in Oberschwaben hatten gezeigt, daß aus einer Profilfläche von  $40 \times 40 \text{ cm}^2$  zu geringe Probenmengen der organischen Horizonte resultieren, um noch feinere Unterteilungen des Profils zu erlauben (vgl. auch das hier beprobte Bodenprofil im Eggwald). Die mittlere Tiefe der Horizontuntergrenzen konnte mittels einer verschiebbaren, linealartigen Auflage mit vier Markierungen nach jeder Horizontentnahme über ein 16-Punkt-Raster bestimmt werden (arithmetisches Mittel der 16 Meßwerte). Eine akkurate Vorgehensweise ist nötig, da die Beprobungsfläche und die jeweiligen Horizontmächtigkeiten in die Berechnung der Aktivitätskonzentrationen und Inventare eingehen. Je nach Beschaffenheit wurde das Bodenmaterial mit Aluminium- und Kunststofflöffeln, Spachtelkellen oder den Händen entnommen. Um die meist locker aufliegenden organischen Horizonte gut trennen und ohne Vermischung abnehmen zu können, haben sich grifflose Messerschneiden und feste breite Borstenpinsel bewährt. Es wurde darauf geachtet, daß von den Rändern des Beprobungslochs kein Bodenmaterial höherliegender Horizonte nachrutscht. Für den Transport der Proben ins Labor wurden entweder feste Plastiktüten oder Aluminiumschalen verwendet.

Nach der Bestimmung der Feuchtmasse wurde eine geringe Probenmenge zur Messung des  $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ -Werts (Kap. 3.3.6) abgenommen. Anschließend wurde das Bodenmaterial in den Aluminiumschalen mit Papierbögen bedeckt bei maximal  $40^\circ\text{C}$  über mehrere Wochen hinweg bis zur Massekonstanz luftgetrocknet. Die Bodenproben wurden dabei regelmäßig gewendet, um eine gleichmäßige Trocknung zu gewährleisten. Die Proben aus Holzhau (vgl. Kap. 4) wurden bei ca.  $105^\circ\text{C}$  im Trockenschrank getrocknet. Sämtliche Waldbodenproben wurden mittels Siebung in Fein- und Grobboden zerlegt, wobei die Trenngrenze bei einem Äquivalentdurchmesser von 2 mm liegt (Schachtschabel et

al. 1992; AG Boden 1994). Dabei wurden restliche organische und angewitterte mineralische Bodenaggregate zerkleinert, so daß der Grobboden nur mineralische Bestandteile  $> \varnothing 2$  mm, Wurzeln, Aststücke u. ä. enthält. Der Anteil des Grobbodens an der Gesamtmasse betrug 9 ... 35 % für die L-Horizonte, 7 ... 11 % für die Of-Horizonte, bis zu 14 % für die Oh- und Ah-Horizonte und 25 ... 38 % für die Bv-Horizonte der hier untersuchten Bodenprofile. Zur  $\gamma$ -spektrometrischen Messung wurden die durch das Sieben gut vermischten und homogenisierten Feinbodenanteile in Probenbehälter gefüllt. Es war davon ausgegangen worden, daß die natürlichen RN im Feinbodenanteil homogener verteilt sind und der Grobboden nur gering bzw. nicht mit künstlichen und kosmogenen RN kontaminiert ist. Diese Vorgehensweise ermöglicht zudem den Vergleich mit einer Vielzahl von Literaturwerten (vgl. Kap. 6.2).

Die Waldbodenprofile waren, mit Ausnahme des Profils Eggwald, unbewachsen. Eine Zusammenstellung der an den beprobten Waldstandorten bestimmten und in der vorliegenden Arbeit erwähnten Pflanzen ist in Anhang B.2 zu finden.

### **Fichtennadeln**

Ergänzend zur Bodenbeprobung wurden Fichtennadeln des aktuellen Jahrs (1994; als einjährige Nadeln bezeichnet) und der Vorjahre (1993 und älter; mehrjährige Nadeln) eines frischgefallten Baums (15.7.1994; Baumalter etwa 50 a) nahe des baumlosen Kamms in etwa 200 m Entfernung zur Holzhau genannten Probennahmestelle (Profilentnahme 29.4.1994) untersucht. Die Nadeln wurden nicht gewaschen, um der Streulage des Bodenprofils möglichst vergleichbar zu sein, und bei 105°C getrocknet (Meßplatz P36).

### **3.3.3 Moorboden und moorbildende Vegetation**

Nach Absprache mit Vertretern der unteren Naturschutzbehörden bzw. der zuständigen Forstreviere erfolgte die Auswahl der Beprobungsstellen nach folgenden Kriterien:

- Ein bezüglich seiner Bildung und anthropogener Einflüsse ungestörter Torfkörper sollte gewährleistet sein. Deshalb ist auf einen ebenen Standort in ausreichender Entfernung zu Torfstichen und Entwässerungsgräben, umgebender Bewaldung oder Nadelbaumbewuchs des Moores zu achten.
- Für die Beprobung eines aussagekräftigen und umfassenden Moorprofils sind, sofern vorhanden, lebende Hochmoor- oder Regenerationskomplexe mit geringem Bewuchs an Gefäßpflanzen und vergleichsweise geringer Vernässung (Bultstandort) zu bevorzugen.
- Anzustreben sind somit Standorte mit – für das jeweilige Moor – hohen Torfmächtigkeiten ohne Schichtlücken (Hiaten) und damit großer zeitlicher Auflösung des Torfprofils. Dies kann anhand von Moorkartierungen in der Literatur oder mittels Testbohrungen überprüft werden.

Zur Auswahl eines geeigneten Beprobungspunktes wurde mit einem Pürckhauer-Bohrstock sondiert oder ein Spatenaushub vorgenommen. Zur eigentlichen Probenentnahme wurden sowohl Profilblöcke aus dem Moor geschnitten als auch Bohrungen im Torfkörper durchgeführt. Für den Transport der Proben ins Labor wurden entweder feste Plastiktüten oder Aluminiumschalen verwendet. Die Profilaufnahme, die makroskopische Ansprache der Torfe und die Bestimmung des Humifizierungsgrades (Angabe der Merkmale oder des Zersetzungsgrads nach v. Post bzw. der Zersetzungstufe) (Göttlich 1990; Roeschmann et al. 1993; AG Boden 1994) erfolgten, sofern möglich, direkt im Gelände. Die in den Diagrammen dargestellten Tiefen der Beprobungsschichten unterscheiden sich von denen der in Anhang E.1 dargestellten Bodenansprache, da bei der Beprobung im Gelände eine entsprechende Unterteilung zumeist nicht praktikabel oder durchführbar war. Zudem wurde die Vegetation der näheren Umgebung und der zu beprobenden Fläche charakterisiert (s. u.).

Die definierte Profilentnahme in jeweils ca. 1 ... 4 cm dicken Torfschichten wurde innerhalb eines idealerweise im Quadrat gezogenen schmalen Grabens von durchschnittlich etwa 0.5 m Seitenlänge vorgenommen. Ähnlich den in Kap. 3.3.2 beschriebenen Waldbodenbeprobungen wurde die Tiefe

nach jeder Schichtentnahme an 7 ... 13 festgelegten Punkten gemessen. Als Nullmarke wurden quer über die Profiloberfläche Schnüre gespannt und mittels Eisenheringen im Moorboden fixiert. Da die so durchgeführten Probennahmen im Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide jedoch zeigten, daß die *in-situ* Entnahme eines Moorbodenprofils definierten Volumens und feiner schichtweiser Unterteilung schwierig zu realisieren ist, wurde im Hochmoor Kleiner Kranichsee ein Torfblock von etwa  $40 \times 40 \times 26 \text{ cm}^3$  ausgegraben. Dieser konnte im Labor horizontal wesentlich präziser in dünne Schichten zerlegt werden als es im Gelände möglich gewesen wäre. Die daraus resultierenden Untersuchungsergebnisse zeigen differenziertere RN-Tiefenprofile und ermöglichen weitergehendere Aussagen (Kap. 7).

Für die Tiefenbeprobungen der Erzgebirgsmoore wurde ein Kammerbohrer nach Hiller verwendet (Innenmaße Kammer: L 50 cm, Ø 4 cm). Die Kammer des Bohrers wird dabei in die gewünschte Tiefe hinabgedrückt und durch Drehen in eine Richtung, wobei sich die Klappe öffnet, mit Torf gefüllt. Durch entgegengesetztes Drehen wird die Kammer wieder geschlossen. Der Bohrer kann dann mit der 0.5 m mächtigen Schicht hochgezogen werden. Dabei wird das Gefüge der Torfschichten durch die schälende Wirkung des Bohrers fast völlig zerstört, eine stoffliche Kontamination des Torfinhalts beim Herausziehen des Bohrers jedoch ausreichend vermieden. Das im Hochmoor Schwarze Heide zusätzlich beprobte Torfprofil für pollenanalytische Untersuchungen wurde auf vergleichbare Weise entnommen (vgl. Kap. 3.2.3). Für die Beprobung des Harzmoors Radauer Born stand eine Feldsonde zur Verfügung (Innenmaße Kammer: L 150 cm, Ø 3.5 cm). Im Kleinen Kranichsee und dem Radauer Born wurden aus jeweils drei nahe beieinanderliegenden Bohrlöchern abwechselnd in gleichbleibender Reihenfolge möglichst lückenlos aneinander anschließende Profilabschnitte entnommen. Im Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide wurden die Bohrungen von der Maximaltiefe der Profilentnahme aus durchgeführt.

Nach der Bestimmung der Feuchtmasse wurde – sofern ausreichend Bodenmaterial vorhanden war – eine geringe Probenmenge zur Messung des pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werts (Kap. 3.3.6) abgenommen (v. a. Profilblöcke aus dem Georgenfelder Hochmoor und dem Kleinen Kranichsee). Anschließend wurde das Bodenmaterial in den Aluminiumschalen mit Papierbögen bedeckt bei maximal ca. 40 °C über mehrere Wochen hinweg bis zur Massekonstanz getrocknet. Aus Kapazitätsgründen mußten für die Proben aus dem Kleinen Kranichsee verschiedene Trocknungsmöglichkeiten genutzt werden: Einige Proben wurden im Trockenschrank bei bis zu maximal 45 °C getrocknet. Zur  $\gamma$ -spektrometrischen Untersuchung wurden repräsentative Anteile der Torfschichten verwendet. Da Zerkleinerungsversuche gezeigt hatten, daß sich das trockene Torfmaterial leicht in einen faserigen hellbraunen und einen feinkrümeligen schwarzen Anteil zerlegt, wurden von Hand abgebrochene Torfstücke dicht gepackt in die Probenbehälter abgefüllt, um Inhomogenitäten zu minimieren.

Ein wesentlicher Aspekt der Ergebnisdiskussion ist im Falle von Moorbodenuntersuchungen die jeweilige moorbildende Vegetation. Eine erste botanische Ansprache des Pflanzenbewuchses und der Torfmoose (Gattung *Sphagnum*) wurde meist schon am Beprobungsstandort vorgenommen, u. a. mittels Rauh u. Senghas (1973), Frahm u. Frey (1992), Fukarek et al. (1992) und Schauer u. Caspari (1996). Die genaue Bestimmung v. a. der Torfmoosarten des Hochmoors Kleiner Kranichsee führte F. Müller am Institut für Botanik der TU Dresden durch (unter Verwendung von z. B. Daniels u. Eddy 1985). Botanische Hintergrundinformationen wurden u. a. Walther (1983) und Wagenitz (1996) entnommen. Eine Zusammenstellung der an den beprobten Moorstandorten bestimmten und in der vorliegenden Arbeit erwähnten Pflanzen ist in Anhang B.2 zu finden. Bei den Moorbodenbeprobungen im Radauer Born und dem Kleinen Kranichsee sind die aufwachsenden Pflanzen in der obersten Beprobungsschicht zerkleinert und gut untergemischt enthalten. Im Falle der Profile aus dem Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide wurde der hier stärkere Bewuchs extra abgeschnitten und zerkleinert als erste „Schicht“ untersucht (Trocknung und Messung der Pflanzenproben entsprechend der Vorgehensweise für Bodenmaterial). Zusätzliche Pflanzenbeprobungen wurden u. a. im Kleinen Kranichsee durchgeführt (s. u.).

### Pflanzenmaterial (Kleiner Kranichsee)

Am 28.9.1997 wurden im Hochmoor Kleiner Kranichsee zusätzliche Pflanzenbeprobungen, u. a. von Scheidigem Wollgras und verschiedenen Torfmoosarten, durchgeführt. Im folgenden werden nur die in der vorliegenden Arbeit diskutierten Untersuchungen näher erläutert. Sämtliche Proben wurden in geringer Entfernung (< 2 m) zum ursprünglichen Beprobungspunkt des Bodenprofils (Probennahme 11.7.1996) entnommen.

Auf einer Fläche von  $10 \times 16 \text{ cm}^2$  wurden die rezenten Torfmoosabschnitte (d. h. die lebenden, grünen Moosabschnitte inklusive der Köpfchen, Länge ca. 0.5 ... 2 cm) von *Sphagnum rubellum* und *Sphagnum fallax* mit Pinzette und Rasierklinge abgetrennt. Die Proben wurden mehrere Tage im Trockenschrank bei 50 ... 60 °C bis zur Massekonstanz getrocknet. Um einen direkten Vergleich mit dem beprobten Profil vornehmen zu können, wurde das Pflanzenmaterial vor dem Trocknen nicht gewaschen, sondern nur vorsichtig mit der Pinzette von anhaftendem Fremdmaterial gereinigt. Diese Vorgehensweise wird unterstützt durch Brehm (1968, 1971) und Overbeck (1975), deren Untersuchungen an Torfmoosen zeigen, daß auch vom anhaftenden Wasser herrührende Mineralstoffe nach der Trocknung an den Pflanzen verbleiben. (Somit könnte z. B. bei der Untersuchung ungewaschener Proben ein erheblich falsches Bild von den Konzentrationen der Inhaltsstoffe der Torfmoose entstehen; hier ist aber die gegenteilige Folgerung von Bedeutung, und ein Abwaschen der anhaftenden Substanzen ist nicht gewünscht.) Für die Messung wurden die getrockneten Torfmoose von Hand vorsichtig zerkleinert und gut vermischt.

Etwa sechs Horste des Scheidigen Wollgrases (*Eriophorum vaginatum*) wurden inklusive der Wurzelballen vorsichtig aus dem Torf ausgegraben. Zur Aufbereitung wurden die Pflanzen rasch unter fließendem Wasser von anhaftendem Bodenmaterial gereinigt (bzw. kurz gewässert, sofern unabdingbar für die Reinigung) und mit Haushaltspapier trockengetupft. Obwohl die Untersuchungen von C. Brackhage (TU Dresden, pers. Mitt. 1999) an ungewaschenem und mit Wasser oder EDTA gewaschenen Erlenblättern z. B. eine deutliche Reduktion der spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten nach den Waschgängen zeigten, kann davon ausgegangen werden, daß die hier durchgeführte sehr rasche Reinigung der Wollgraspflanzen geringfügigere entsprechende Auswirkungen auf die Aktivitäten der detektierten Nuklide, inklusive des  $^7\text{Be}$ , hat. Allerdings zitieren Jones et al. (1998) Untersuchungen, in denen die Wurzeln junger Bäume nach fünfminütigem Waschen 24 % K-Verlust zeigen, und erwarten analoge Konsequenzen für Cs, so daß entsprechende Effekte also auch bei der hier durchgeführten Reinigungsmethode nicht vollständig auszuschließen sind. Die Pflanzen wurden mittels einer Rasierklinge zerteilt in die Segmente (1) Wurzeln, (2) Wurzelstock bis zur Austrittsstelle aus der Mooroberfläche und (3) zumeist grüne Blätter oberhalb der Moosdecke (vgl. Tabelle 23). Die drei resultierenden Proben wurden jeweils grob zerkleinert, mehrere Tage im Trockenschrank bei 50 ... 60 °C bis zur Massekonstanz getrocknet und anschließend für die Befüllung der Probenbehälter weiter zerkleinert und gut vermischt.

Die  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen wurden auf dem Meßplatz N38 unter Verwendung von WD-Probenbehältern durchgeführt. Mit Ausnahme der Wurzelprobe waren die Probenmengen ausreichend, um die Behälter vollständig zu füllen; die Wurzelprobe ( $m = 1.6 \text{ g}$ ) erreichte nur etwa 30 ... 35 % der Gesamtfüllhöhe. Zum Zeitpunkt der Untersuchungen lag keine Füllhöhenkalibrierung der verwendeten Probenbehälter vor, für die entsprechende Messung kann jedoch ein Korrekturfaktor (Füllfaktor) zwischen 1.5 und 1.8 angenommen werden, was die spezifischen Aktivitäten der Wurzelprobe um 30 ... 45 % verringern würden.

### Gesteinsproben (Georgenfelder Hochmoor)

Um einen Vergleich der RN-Gehalte tieferer Moorschichten mit denen des anstehenden Gesteins zu ermöglichen, wurden verschiedene Gesteinsbeprobungen in der näheren und weiteren Umgebung der untersuchten Moore durchgeführt. In der vorliegenden Arbeit wird nur auf ergänzende Untersuchungen im Rahmen der Beprobungen des osterzgebirgischen Georgenfelder Hochmoors eingegangen.

Da eine direkte Beprobung des geologischen Untergrunds im Moor nicht möglich war, wurden

mehrere kantige Steine ( $\varnothing < 200$  mm) mit möglichst geringer Verwitterung von einem Feld 100 m nordöstlich des Besuchereingangs des Hochmoors aufgelesen (15.3.1995). Die Steine wurden mit einer Mineralspaltvorrichtung und einem Backenbrecher so weit zerkleinert, daß sie für die  $\gamma$ -spektrometrische Messung (Meßplatz P36) in einen Marinellibecher eingefüllt werden konnten; dabei wurden nur Stücke ohne verwitterte Außenflächen verwendet.

### 3.3.4 Regen- und Moorwasser

Zur Überprüfung des aktuellen Eintrags von RN mit dem **Regenwasser** (Freilandniederschlag) stellte die Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld (877 m ü NN), in Absprache mit dem Deutschen Wetterdienst, überschüssige Anteile regelmäßiger wöchentlicher Regenbeprobungen für den TÜV zur Verfügung. Da für die chemischen Analysen des TÜV (durchgeführt im Auftrag des LfUG) nur etwa 200 mL abgefüllt werden, stellt der verworfene „Überschuß“ i. allg. den Großteil des Probenvolumens dar. Die hier untersuchten sieben Wasserproben mit Volumina von 2 ... 10 L entstammten den im einwöchigen Abstand aufeinanderfolgenden Beprobungen des Zeitraums 14.3.–2.5.1995 und wurden mittels eines automatisch schließenden Niederschlagssammlers gesammelt (ANTAS: Automatischer Naß-Trocken-Ablagerungssammler, 2400 cm<sup>2</sup> Auffangfläche). Im Meßnetz Sachsen wird der ANTAS immer als „wet-only sampler“ betrieben; das Gerät ist so programmiert, daß der Deckel nur bei Niederschlagsereignissen öffnet, bei Trockenheit (inklusive Nebel) jedoch geschlossen ist, und somit im Prinzip nur nasse Deposition, d. h. Regen bzw. Schnee, gesammelt wird (F. Berger, LfUG Radebeul, pers. Mitt. 1995; G. Hennersdorf, Deutscher Wetterdienst, pers. Mitt. 1995; E. Kamenz, Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, pers. Mitt. 1995). Für den Transfer ins Labor wurden die Niederschlagsproben der ersten beiden Wochen nach Beendigung des Sammelzeitraums in geeignete laboreigene Kunststoffkanister umgefüllt, die Proben der darauffolgenden Wochen wurden direkt in den laboreigenen Kanistern gesammelt. Die Proben wurden nach Messung des pH-Werts (Kap. 3.3.6) ohne Ansäuerung aufbereitet. Idealerweise wären Säurezugaben zu den Kanistern vor Sammelbeginn erfolgt, dies war jedoch nicht möglich, da es auch die Probenanteile für den TÜV beeinflußt hätte; zudem wies der Niederschlag an der Wetterstation generell sehr geringe pH-Werte auf, so daß – auch in Hinblick auf die weitere Aufbereitung der Proben – auf eine nachträgliche Ansäuerung der Proben verzichtet wurde.

Im Georgenfelder Hochmoor wurde **Moorwasser** sowohl im Profilaushub nach Entnahme der tiefsten Schicht (25.10.1994) als auch aus einem gefluteten Torfstich (15.3.1995) in Glasflaschen abgefüllt (Beprobungsgebiet s. Abb. 45). Im Hochmoor Kleiner Kranichsee wurde Moorwasser sowohl aus Schlenken im Umkreis des Probennahmepunkts in Glasflaschen geschöpft als auch aus dem im Gelände entnommenen Profilblock aufgefangen (11.6.1996; Beprobungsgebiet s. Abb. 57).

Da derartige Wasserproben stark von den vorangehenden Wetterverhältnissen abhängig sind und eventuell Verdünnungen des eigentlichen Moorwassers mit frischem Niederschlagswasser darstellen, wurde eine Beprobungstechnik zur direkten Entnahme von Moorwasser aus dem Torfkörper entwickelt und getestet. Hierbei wird unter Verwendung eines geeigneten Moorbohrers (Schneckenbohrung) eine Bohrung im Torfkörper durchgeführt und ein PVC-Filterrohr mit Aufsatzrohr (je 1 m Rohrlänge) eingesetzt. Bohrungs- und Rohrdurchmesser sollten sich soweit als möglich entsprechen, um eine feste Positionierung des Rohres im Moorkörper zu garantieren. Mittels einer Pumpe (z. B. einer tragbaren Membranpumpe) wird das im Rohr gesammelte Moorwasser direkt in die Sammelbehälter gefüllt. Mit zunehmender Abfüllmenge setzen sich die Schlitze mit Torfsubstanz zu, so daß eine zusätzliche (grobe) Filterwirkung erzielt wird.

Zur Moorwasserentnahme im Kleinen Kranichsee wurden jeweils fünf PVC-Filterrohre (DN50: Innen $\varnothing$  52 mm, Außen $\varnothing$  60 mm; 1 m Filterlänge, mit Aufsatzrohr und Bodenkappe) im direkten Umkreis des ursprünglichen Profilbeprobungspunkts und an einem Schlenkenstandort ca. 8 m südlich davon gesetzt (4.6.1997). Die maximale Bohrlochtiefe betrug dabei etwa 1.7 m. Für die vorliegende Arbeit wurden an den beiden Standorten drei Proben bzw. eine Probe in Kunststoffkanister abgefüllt (Probenvolumen je etwa 5 ... 6 L); weitere Proben wurden für die Untersuchungen von C. Helling



(TU BAF) und K. Schmeide (FZ Rossendorf) entnommen. Die pH-Werte der Proben wurden direkt vor Ort oder im Anschluß an die Beprobung im Labor bestimmt (Kap. 3.3.6). Eine zusätzliche Ansäuerung vor der Aufbereitung der Proben war aufgrund der sehr geringen pH-Werte des Moorwassers i. allg. nicht nötig. Die Kanister wurden in schwarzen Plastiktüten verpackt kühlgestellt und sobald als möglich verarbeitet.

Die Regenwasserproben wurden im Labor zweistufig gefiltert (handelsübliche Faltenfilter; Mikrofilter, PorenØ 0.45 µm = operationell definierte Trenngrenze für die „gelöste“ Fraktion, vgl. Kap. 5.1). Sowohl Regen- als auch Moorwasserproben wurden vorsichtig im Sandbad auf einer Kochplatte bei mäßigen Temperaturen und zum Teil mit zusätzlich über der Schale angebrachter Infrarotlampe unter dem Abzug eingedampft. Die Falten- und Mikrofilter sowie die resultierenden Filterpapierchen mit konzentriertem Eindampfrückstand einer Niederschlagsprobe wurden auf WD-Probenbehältergröße gefaltet, einzeln in Kunststoffolie eingeschweißt und jeweils zusammen (d. h. in einer weiteren Hülle aus Kunststoffolie dicht zusammengefaßt) direkt auf dem Detektor positioniert und  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen (Meßplatz P36). Dabei wurde für alle Regenwasserproben die Reihenfolge Faltenfilter–Eindampfrückstand–Mikrofilter–Detektor eingehalten. Ebenso wurde mit den Filterpapieren verfahren, welche die Moorwasserschwebstoffe enthielten.

### 3.3.5 Staubfilter

Um eine Aussage zum RN-Eintrag mittels trockener Deposition am Erzgebirgskamm machen zu können, wurden sechs **Staubfilterproben** untersucht, welche (im Auftrag des LfUG) mit einem TÜV-Schwebstaubmeßgerät Digitel DHA-80 auf dem Gelände der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld gesammelt worden waren. Bei einem Luftdurchsatz von 30 m<sup>3</sup>/h wurden die eingesetzten Glasfaserfilter alle 24 h gewechselt. Es handelt sich dabei um Rundfilter MN 85/90 BF mit einem Rückhaltevermögen für Partikel eines Durchmessers > 0.5 µm (Macherey-Nagel, Ø 150 mm, Flächenmasse 90 g/m<sup>2</sup>, Dicke 0.40 mm, gefertigt aus Borosilicatglasfasern; im Digitel DHA-80 bestaubte Fläche: Ø 140 mm) (F. Berger, LfUG Radebeul, pers. Mitt. 1995; H. Opitz, TÜV Bautzen, pers. Mitt. 1995). Die untersuchten Filter entstammen dem Zeitraum 2.–12.6.1995 mit jeweils zweitägigem Abstand. Die Filter wurden vorsichtig gefaltet, in Kunststoffolie eingeschweißt und  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen (Meßplatz P36). Ebenfalls untersucht wurden unbenutzte Filterpapiere der gleichen Sorte, welche direkt über Macherey-Nagel bezogen wurden; diese entstammen jedoch nicht derselben Produktionscharge und können somit nur mit Vorbehalt als Blindwert in der Auswertung berücksichtigt werden (vgl. C. Prokisch, Macherey-Nagel, pers. Mitt. 2005; vgl. Diskussion Kap. 5.2).

Zum Vergleich der Eintragungssituation vor und nach dem Tschernobyl-Unfall wurden elf **Filterstaubproben** des Zeitraums Oktober 1985 bis Februar 1988 mittels  $\gamma$ -Spektrometrie untersucht (Meßplatz P36; Langzeitmessung Probe September 1986: Meßplatz N38). Die Proben stellte J. Götze, Institut für Mineralogie der TU BAF, zur Verfügung. Im Rahmen seiner Diplomarbeit (Götze 1985), d. h. seit 1983, und in den darauffolgenden Jahren waren die Filter der Belüftungsanlage der Universitätsbibliothek Freiberg monatlich beprobt worden. Die Entnahme des Staubs aus den Filtermatten erfolgte dabei mittels eines Staubsaugers entsprechend Voland (1984). Die Betriebsbedingungen der Belüftungsanlage (z. B. nur tagsüber in Betrieb, ungleichmäßiger Durchsatz) erlaubten keine genaue Bestimmung der Luftdurchsätze (J. Götze, TU BAF, pers. Mitt. 1999). Zudem sind die genauen Beprobungszeiträume nicht bekannt; die Bezeichnung der Proben (z. B. „Mai 1986“) folgen der ursprünglichen Beschriftung der Probenbehältnisse.

### 3.3.6 Bestimmung des pH-Werts in Boden- und Wasserproben

Die wichtige Bodenkenngroße pH-Wert wird in bodenkundlichen Untersuchungen als phänomenologische Größe festgelegten Vorgehensweisen folgend bestimmt (DIN 19684:1977; Schaller 1988; Schachtschabel et al. 1992). Der pH-Wert eines Bodens wird vom Salzgehalt der Bodenlösung beeinflusst, welcher im Freiland u. a. jahreszeitlichen Schwankungen unterliegt. Um auch bei zeitlich verschiedener Probennahme der Böden reproduzierbare und miteinander vergleichbare pH-Werte zu er-

halten, erfolgt die Bestimmung in der Bodenkunde üblicherweise in salzhaltiger Suspension ( $\text{KCl}$ ,  $\text{CaCl}_2$ ). So wird z. B. mittels einer 0.01 M  $\text{CaCl}_2$ -Lösung eine Bodenlösung simuliert, wie sie ähnlich in landwirtschaftlich genutzten Böden des gemäßigt-humiden Bereichs vorliegt. Zudem soll der Suspensionseffekt verhindert werden, der sich darin äußert, daß der pH-Wert beim Eintauchen der Glaselektrode in die Bodensuspension durch Diffusionspotentiale an der Vergleichselektrode etwas tiefer liegt als in der überstehenden, klaren Lösung. Der  $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$  liegt meist unter dem  $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ -Wert, da  $\text{H-}$  und  $\text{Al-Ionen}$  durch  $\text{Ca-Ionen}$  ausgetauscht werden.

Zur Messung der pH-Werte wurde in der vorliegenden Arbeit eine Einstabmeßkette verwendet (Greisinger electronic GmbH, Digital-pH/mV-Meter GPHR 1400 (Genauigkeit  $\pm 0.02 \text{ pH} \pm 1 \text{ Digit}$ ), pH-Elektrode GE 100 mit nachfüllbarem 3 M  $\text{KCl}$ -Elektrolyt). Vor den Meßserien wurde jeweils eine Zweipunktkalibrierung (pH 7 und 4) unter Verwendung frischer Pufferlösungen durchgeführt. Parallel zum pH-Wert wurde die jeweilige Meßtemperatur bestimmt.

Die  $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ -Werte sämtlicher Bodenproben wurden unmittelbar nach der Probennahme im Labor bestimmt. Schaller (1988) entsprechend wurden je 20 mL ungesiebter feldfeuchter **Waldboden** und 50 mL 0.01 M  $\text{CaCl}_2$ -Lösung in einem Becherglas intensiv vermischt und mit Cellophan abgedeckt mindestens 1 h stehengelassen. Nach der Ruhezeit wurden zwei Messungen vorgenommen, die erste ohne vorheriges Rühren, die zweite nach nochmaligem gründlichen Aufwirbeln. Dabei wurde die Glaselektrode vorsichtig in die (überstehende Lösung) der Bodensuspension eingetaucht. Meist stimmten die Werte beider Messungen gut überein. Langzeitmessungen, in denen der pH-Wert alle 30 s notiert wurde, zeigten zudem, daß der pH-Wert etwa 5 ... 10 min nach dem Rühren konstant ist, nur in seltenen Fällen ließ sich auch nach über 30 min noch ein leichtes Ansteigen des pH-Werts beobachten. Für Routinemessungen kann die erste Variante (d. h. ohne vorheriges Aufwirbeln) mit etwa fünfminütiger Wartezeit empfohlen werden.

Nach DIN 19684:1977 wurden zu jeweils 25 mL feldfeuchtem **Moorboden** 75 mL 0.01 M  $\text{CaCl}_2$ -Lösung gegeben und die Proben nach intensivem Rühren mindestens 1 h abgedeckt stehengelassen. Nach der Ruhezeit wurden die Proben direkt vorsichtig in der überstehenden Lösung gemessen. Das in der DIN-Norm vorgeschriebene nochmalige Rühren vor der Messung führte meist dazu, daß der pH-Wert erst sank, um dann über Stunden hinweg langsam wieder anzusteigen und sich asymptotisch einem Endwert anzunähern. Die (End)Werte beider Meßvarianten stimmten gut überein.

Die pH-Werte der **Regenwasser-** und **Moorwasserproben** wurden ohne Lösungszugabe mit dem pH-Meter direkt gemessen (DIN 38404:1984). Da selbst leichtes Rühren sowohl ungefilterten als auch (zu Testzwecken) gefilterten Moorwassers sofort zu einer Absenkung des gemessenen pH-Werts führte, welcher sich erst nach mehreren Stunden asymptotisch wieder einem Endwert näherte, und zudem die Eintauchtiefe der Glaselektrode das Meßergebnis leicht beeinflusste, wurde die Elektrode für jede Messung vorsichtig eingetaucht, mit einer Eintauchtiefe von etwa 3 ... 4 cm fixiert und die pH-Werte über einen längeren Zeitraum, in Einzelfällen bis zu 3 Stunden, abgelesen. Die angegebenen Werte stellen die erreichten Endwerte dar. Da die Messung des pH-Werts ionenarmer Medien, d. h. deren Ionenstärke gering ist im Vergleich zu denen der Kalibrierungslösungen, zu fehlerhaften Ergebnissen führen kann, wurden die pH-Werte einiger Wasserproben zusätzlich zum Vergleich mittels unterschiedlicher Elektroden bzw. Methodik bestimmt (I. Börner, TU BAF, pers. Mitt. 1994, 1996).

## 4 Auswahlkriterien und Charakterisierung der Untersuchungsgebiete

Entsprechend der im vorangehenden Kapitel beschriebenen methodischen Vorgehensweise wurden im Rahmen dieser Arbeit schwerpunktmäßig Wald- und Moorböden exponierter Lagen des sächsischen Erzgebirges untersucht. Die Übersichtskarte in Abb. 19 verdeutlicht die geographische Lage der Untersuchungsgebiete nahe des Gebirgskamms. Beprobt wurden drei Fichtenwaldstandorte bei Holzhau und Nassau im Osterzgebirge (bezeichnet als Holzhau, Nassau 1 und Nassau 2) sowie jeweils ein Hochmoor in der Nähe von Johanngeorgenstadt (Kleiner Kranichsee, Westerzgebirge), Rübenau (Schwarze Heide, Mittleres Erzgebirge) und Zinnwald-Georgenfeld (Georgenfelder Hochmoor, Osterzgebirge). Zur Erweiterung der lokalen Betrachtungsweise wurden zwei weitere Untersuchungsgebiete, ein Hochmoor des Harzes (Radauer Born, Niedersachsen) und ein Waldstandort in Oberschwaben (Eggwald, Baden-Württemberg), herangezogen.

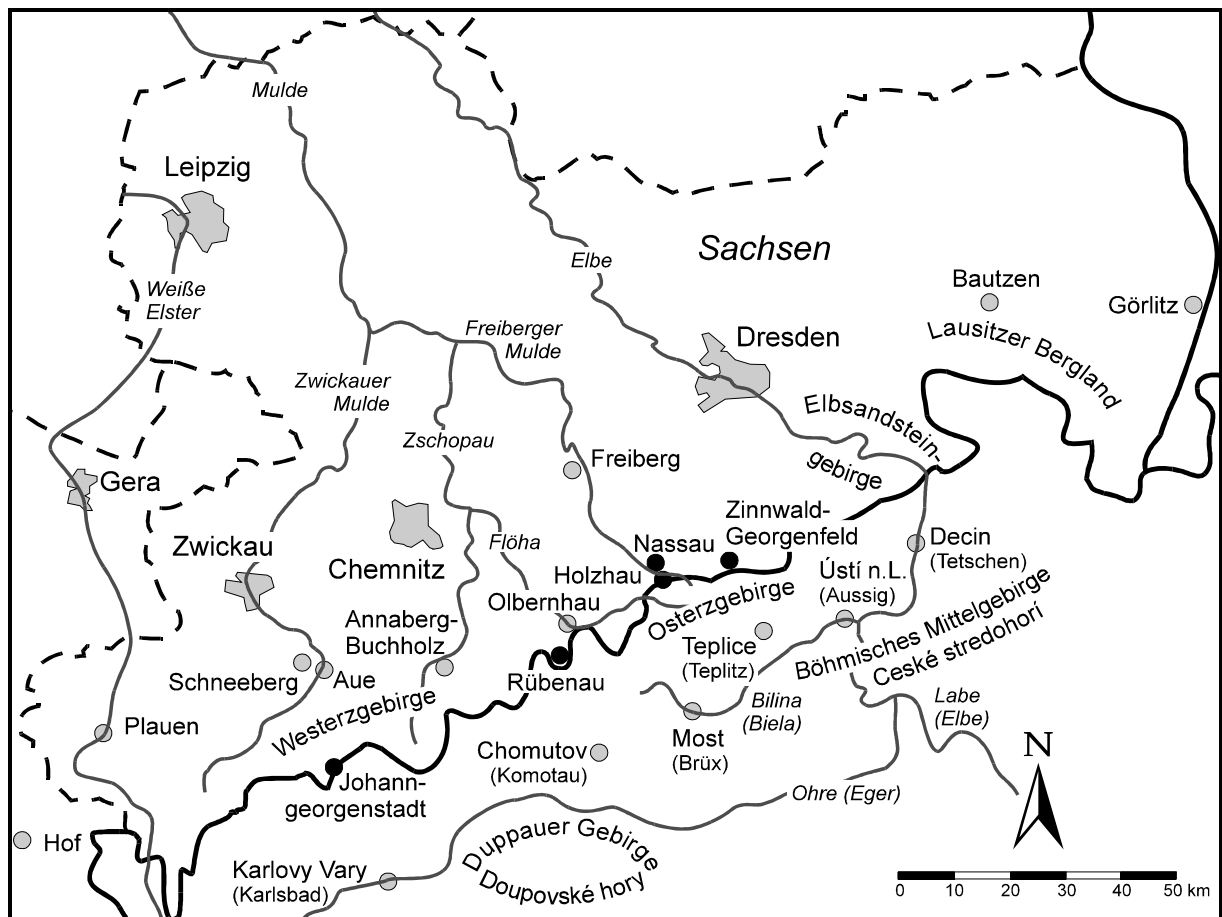


Abb. 19: Topographische Übersichtskarte Sachsens und des angrenzenden tschechischen Erzgebirgsraums mit den Untersuchungsgebieten am Erzgebirgskamm (•)

Um einen grundlegenden Vergleich zu ermöglichen, ist in Tabelle 13 und Tabelle 14 in tabellarischer Form eine allgemeine **Charakterisierung der Beprobungsgebiete**, u. a. bezüglich der geographischen Lage, den klimatischen und geologischen Verhältnissen und des Boden- bzw. Moortyps, vorgenommen, sowie eine kurze Zusammenstellung der Beprobungen gegeben. Auf dieser Gegenüberstellung basierend werden im folgenden die wesentlichen Kriterien diskutiert, welche der Auswahl der Untersuchungsgebiete zugrunde lagen. Zudem sind diese Betrachtungen wichtiger Bestandteil der Ergebnisdiskussion in Kap. 6 und Kap. 7.

Tabelle 13: Allgemeine Charakterisierung der beprobten Waldgebiete bzw. Beprobungspunkte (Stand jeweiliges Beprobungsjahr, d. h. 1994/96) und Zusammenstellung der einzelnen Bodenbeprobungen (Profile) sowie der dabei angesprochenen Bodentypen und Humusformen (vgl. Anhang D.1)

Beprobungspunkt	Holzhaus	Nassau 1	Nassau 2	Eggwald
<b>Topograph. Lage</b>	Osterzgebirge, 40 km SSW Dresden, Landkreis Freiberg, Entfernung zum Kamm ca.:			Oberschwaben, Landkreis Ravensburg
	4 km	7 km	7 km	
<b>Forstrevier</b>	Holzhaus	Holzhaus	Holzhaus	Waldburg
<b>Forstort / Distrikt</b>	„Hirschhübel“	„Kannelberg“	„Auf den wüsten Gütern“	Altdorfer Wald, Distrikt Eggwald
<b>Position</b>	Abt. 52	Abt. 162	Abt. 76	Distr. VI Abt. 7
<b>Höhe (m ü. NN)</b>	750	800	760	670
<b>Mittlere Niederschläge (mm/a)</b>	ca. 900	ca. 1000	ca. 900	ca. 1100 <sup>1) 2)</sup>
<b>Lufttemperatur Jahresmittel (°C)</b>	ca. 4 ... 5	ca. 4 ... 5	ca. 4 ... 5	k. D. <sup>2)</sup>
<b>Geologischer Untergrund</b>	Granite, Jüngerer Intrusivkomplex (Fläje Granit)	Rhyolithoide (Granitporphyr von Frauenstein)	Paragneis (Freiberger Grauer Gneis)	Jungmoräne (Würm)
<b>Waldgesellschaft</b>	Orealer Fichtenbergwald	Orealer Fichtenbergwald	Eumontaner Fichtenwald	Submontaner Fichtenwald
<b>Bestockung</b>	100 % Fichte (43 a; 16.5 m); vereinzelt Eberesche	100 % Fichte (40 a; 16 m)	100 % Fichte (41 a; 15 m)	65 % Fichte, 25 % Tanne, 10 % Buche, vereinzelt Lärche (42 ... 87 a, Ø 57 a; Ø 26 m)
<b>Düngung / Kalkung</b>	– / Dolomitkalkung erst ab 1997	– / Dolomitkalkung erst im Herbst 1996	– / Dolomitkalkung erst im Herbst 1996	– / –
<b>Beprobung</b>	29.4.1994	28.8.1996	5.9.1996	8.7.1994
<b>Koordinaten (Gauß-Krüger)</b>	R: 54 02 400 H: 56 21 115	R: 54 01 340 H: 56 24 090	R: 53 98 845 H: 56 24 300	R: 35 51 650 H: 52 89 700
<b>Fläche (cm<sup>2</sup>)</b>	50×50	50×50	50×50	40×40
<b>Endtiefe (cm)</b>	12 (Profil) 33 (zusätzl. Probe)	55	32	18
<b>Bodentyp</b>	Podsol-Braunerde	Podsolisierte Braunerde	Braunerde-Podsol	Podsolige Parabraunerde
<b>Humusform</b>	Feinhumusreicher typischer Moder	Feinhumusarmer typischer Moder	Feinhumusarmer rothumusartiger Moder	Feinhumusreicher typischer Moder
<b>Aufbereitung</b>	Trocknung (105 °C), Siebung (Ø 2 mm)	Trocknung (max. ca. 40 °C), Siebung (Ø 2 mm)		

k. A. keine Angabe; k. D. keine Daten

<sup>1)</sup> vgl. Niederschlagsdaten Waldburg (750 m ü. NN, ca. 3 km Entfernung zum Beprobungspunkt): Jahressummen 1973–93: Ø 1250 mm (R. Schlude, Forstrevier Waldburg, pers. Mitt. 1994, 2005)

<sup>2)</sup> vgl. Klimadaten Stadtwald Weingarten (620 m ü. NN, ca. 7 km Entfernung zum Beprobungspunkt): mittl. jährl. Niederschlagssumme ca. 980 mm, Jahresmittel Lufttemperatur ca. 8 °C (G. Lupberger, Forstrevier Weingarten, pers. Mitt. 1994)

Die Bezeichnungen der osterzgebirgischen Beprobungspunkte basieren auf dem jeweiligen Ausgangspunkt der Probennahme (Anfahrt über Holzhaus bzw. Nassau). Die Angaben zu den Standorten entsprechen u. a. pers. Mitteilungen von V. Geyer, Forstrevier Holzhaus, 1994–99, R. Schlude, Forstrevier Waldburg, 1994, 2005 und G. John, Forstrevier Nassau, 1996. Sämtliche Distanzangaben sind „Entfernung Luftlinie“. Die Informationen zum geologischen Untergrund wurden ergänzt durch Kardel (1996), Henningsen u. Katzung (1998), pers. Mitteilungen von C. Wolkersdorfer, TU BAF, 1998 und die Geologischen Maßstabsblätter (1:25000) Nassau (GK 118), Altenberg-Zinnwald (GK 119) sowie Ravensburg (Blatt 8223) (Geologisches Landesamt Sachsen 1872; Geologisches Landesamt Baden-Württemberg 1976). Die Klimadaten sind Schätzwerte und basieren auf pers. Mitteilungen von V. Geyer, Forstrevier Holzhaus, 1994–99, G. Lupberger, Forstrevier Weingarten, 1994 und R. Schlude, Forstrevier Waldburg, 1994, 2005 sowie den in Anhang C.2 zusammengestellten Daten.

Tabelle 14: Allgemeine Charakterisierung der beprobten Mooregebiete sowie der einzelnen Bodenbeprobungen (Profile und Bohrkern; vgl. Anhang E.1)

Beprobtes Moor	Kleiner Kranichsee	Schwarze Heide	Georgenfelder Hochmoor	Radauer Born
<b>Topograph. Lage</b>	Westerzgebirge, 3.5 km SW Johann-georgenstadt; Kammlage <sup>1)</sup>	Mittleres Erzgebirge, 1 km NW Rübenau; ca. 2 km Entfernung zum Kamm	Osterzgebirge, 0.5 km SW Zinnwald-Georgenfeld; Kammlage <sup>1)</sup>	Hochharz, 1 km O Torfhaus (Altenau)
<b>Höhe</b> (m ü. NN)	925 ... 930 (ges.) 930 (Beprobung)	750 ... 765 (ges.) 760 (Beprobung)	840 ... 880 (ges.) 860 ... 875 (Dtl.) 865 (Beprobung)	785 ... 801 (ges.) 801 (Beprobung)
<b>Mittlere Niederschläge</b> (mm/a)	ca. 1050	ca. 900 ... 950	979 (1961–90) <sup>2)</sup> 974 (1994) <sup>2)</sup>	ca. 1450
<b>Lufttemperatur Jahresmittel</b> (°C)	ca. 4 ... 5	ca. 4.5 ... 5.5	4.3 (1961–90) <sup>2)</sup> 5.8 (1994) <sup>2)</sup>	ca. 4.5 °C
<b>Geologischer Untergrund</b>	Granite, Jüngerer Intrusivkomplex (Eibenstocker Granit) bzw. Phyllite (Andalusitglimmerfels) <sup>3)</sup>	Metagranitoide (Gefläsener Gneis)	Saure Vulkanite (Teplitz-Altenberger Quarzporphyr = Teplice-Rhyolith)	Brocken-Granit
<b>Moortyp</b>	Vorw. ombrogenes Wasserscheidenmoor, in Teilbereichen ombrosoligenes Gehängemoor	Ehemaliges Quellmuldenmoor	Wasserscheidenmoor (ges.), ombrosoligenes Einhangmoor (Dtl.)	Vorwiegend ombrogenes Sattelmoor
<b>Größe</b> (ha)	29 (NSG, Dtl.) <sup>1)</sup> 19 (Torffläche)	ca. 9	ca. 150 (ges.) <sup>1)</sup> 12 (NSG, Dtl.) 9 (Torffläche, Dtl.)	30 (inklusive Moorfichtenwald) 14 (Hochmoor)
<b>Max. Torftiefe</b> (m)	9 (Dtl.) 2004 max. erbohrte Tiefe: 5.1 m <sup>4)</sup>	k. A. 1995 max. erbohrte Tiefe: 2.2 m <sup>5)</sup>	3 (Dtl.)	6.5
<b>Naturschutzgebiet</b>	seit 1939 (Dtl.)	–	seit 1926 (Dtl.)	seit 1954 <sup>6)</sup>
<b>Beprobung</b>	11.7.1996	30.8.1995	25.10.1994 (Profil) 15.3.1995 (Gestein)	3.11.1995
<b>Koordinaten</b> (Gauß-Krüger)	R: 45 48 060 H: 55 87 075	R: 45 91 630 H: 56 09 210	R: 54 11 345 H: 56 22 295	R: 36 06 974 H: 57 41 736
<b>Profilfläche</b> (cm <sup>2</sup> ) <sup>7)</sup>	ca. 40×40	ca. 44×55	ca. 52×55	ca. 18×21
<b>Endtiefe Profil</b> (cm)	ca. 26	ca. 33	ca. 50	ca. 22
<b>Bohrungen</b>	3 parallele Bohrungen bis 4.8 m	unter Profil: 2 parallele Bohrungen bis 1.8 m <sup>8)</sup>	unter Profil: 2 parallele Bohrungen bis 2.2 m <sup>8)</sup>	3 parallele Bohrungen bis 6.2 m <sup>8)</sup>
<b>Aufbereitung</b>	Trocknung (max. ca. 45 °C)			

k. A. keine Angabe <sup>1)</sup> Die Kammoore erstrecken sich beidseitig der deutsch-tschechischen Grenze, wobei der Großteil der Moorfläche auf tschechischer Seite (Georgenfelder Hochmoor) bzw. deutscher Seite (Kl. Kranichsee; inkl. vollständigen Moorkernen) liegt. <sup>2)</sup> Daten der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld (Anhang C.2, Tabelle C.3) <sup>3)</sup> Die Störungszone (Rehhübler Zug) verläuft unter dem Mooregebiet. <sup>4)</sup> (M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 2005) <sup>5)</sup> (Seifert 1997) <sup>6)</sup> Das Oberharzer Mooregebiet wurde 1937 als Naturschutzgebiet einstweilig sichergestellt, 1954 erfolgte die offizielle Ausweisung als NSG. <sup>7)</sup> Ausgangsfläche der Profilentnahme <sup>8)</sup> Die Bohrung wurde bis zum Liegenden des Moores, d. h. dem Verwitterungsmaterial des geologischen Untergrunds, durchgeführt; die Endtiefe der Beprobung entspricht somit in etwa der Moormächtigkeit am Standort.

Alle Distanzangaben sind „Entfernung Luftlinie“. Die Angaben zu den Standorten im Erzgebirge entsprechen u. a. Rudolph u. Firbas (1924), Bauer et al. (1974), Hempel (1974, 1977), Hempel u. Schiemenz (1986), Succow (1988), Seifert (1997) sowie pers. Mitteilungen von M. Seifert, LfUG Freiberg, 1995, 1998, S. Leistner, Landratsamt Aue-Schwarzenberg, 1996 und J. Heisig, Forstamt Olbernhau, 1998, 2005. Die Angaben zum Radauer Born stammen aus Henrion (1982), Jensen (1987, 1990), Beug et al. (1999) und pers. Mitteilungen von L. Feldmann, TU Clausthal, 1995. Die Klimadaten zu den erzgebirgischen Hochmooren basieren zudem auf den in Anhang C.2 zusammengestellten Werten. Die Informationen zum geologischen Untergrund wurden u. a. ergänzt durch Kadel (1996), Henningsen u. Katzung (1998), pers. Mitt. von C. Wolkersdorfer, TU BAF, 1998 und die Geologischen Meßtischblätter (1:25000) Altenberg-Zinnwald (GK 119), Zöblitz (GK 129) und Johanngeorgenstadt (GK 146) sowie Bad Harzburg (Nr. 2304) (Geologisches Landesamt Sachsen 1872; Preußische Geologische Landesanstalt 1927).

### Auswahlkriterien

Eine definierte Tiefenbeprobung ist eine wesentliche Voraussetzung für die detaillierte Untersuchung von RN-Migrationsprozessen in organischen Wald- und Moorbodenhorizonten. Vor allem Waldböden mit **mächtigen Humusauflagen** und ausgeprägten, deutlich sichtbar voneinander abgrenzbaren Horizonten bzw. Moore **großer Torfmächtigkeit** eignen sich zur Probenentnahme. Wie in Kap. 3.3.1 angesprochen, werden bodenbildende Prozesse wie Verwitterung, Zersetzung und Humifizierung stark von der klimatischen Situation einer Region beeinflusst. Ein kaltes, feuchtes Bodenmilieu hemmt den Abbau organischer Substanz und fördert damit dessen Akkumulation (vgl. Klimadaten zu den Beprobungsgebieten, Tabelle 13 u. Anhang C.2). Die Fichtenwaldböden der **klimatisch exponierten Kammregionen** des Erzgebirges sind dementsprechend häufig sehr stark saure Böden mit rohhumusartiger Auflage, welche organische Horizonte großer Mächtigkeit aufweisen und von Podsolierungsercheinungen geprägt sind (vgl. Dietrich 1968; Hunger 1994) – oft ähnlich den hier untersuchten Braunerden (Tabelle 13). Auch für die Entwicklung ombrogener Hochmoore waren bzw. sind die Klimabedingungen am Erzgebirgskamm günstig (Tabelle 14 u. Anhang C.2; vgl. zusätzliche Klimadaten in DWD 1996, 1997, 1998, 1999 und entsprechenden Publikationen früherer Jahre). Voraussetzung des Hochmoorwachstums ist bei gemäßigten Temperaturen ein Niederschlagsnetto, welches groß genug ist, um den Wasserhaushalt des Moorkörpers völlig unabhängig vom Mineralbodenwasser zu unterhalten. Zudem sind hohe Wassersättigungsgrade der Luft (z. B. Nebel) und das Fehlen längerer Austrocknungsperioden nötig (Overbeck 1975). Für die Untersuchung der vertikalen RN-Verteilung im Boden ist ein hohes jährliches Moorwachstum von Vorteil, da es eine bessere zeitliche Auflösung im entstehenden Torfkörper bewirkt. Bei den beprobten Moorkomplexen handelt es sich um Hochmoore unterschiedlicher Erscheinungsformen und Entwicklungsstadien.

Sowohl die klimatische Exposition als auch die im folgenden diskutierten weiteren Depositionsbedingungen der Standorte am Erzgebirgskamm sind wesentlich von der Topographie des gesamten Erzgebirges geprägt (Wagenbreth u. Steiner 1990; Maerker u. Paulig 1993; Henningsen u. Katzung 1998). Das Osterzgebirge stellt ein großzügig wirkendes Landschaftsbild mit wenig hervortretenden Tälern dar und erreicht Höhen bis zu 900 m ü. NN. Das Westerzgebirge dagegen ist von unruhigen, abwechslungsreichen Landschaftsformen bis über 1000 m ü. NN geprägt, in deren stark gegliederter Oberfläche die Täler oft bis zu 300 m tief eingeschnitten sind und dessen höchste Erhebung auf deutschem Gebiet der Fichtelberg mit 1214 m ü. NN ist. Das Tal der Flöha stellt die natürliche Grenze zwischen Ost- und Westerzgebirge dar (Abb. 19).

Aus der charakteristischen Form des Erzgebirges – einer nach Nordwest schräggestellten Pultscholle, welche zum böhmischen Becken hin schroff abfällt und nach Norden bis in den Leipziger Raum hin allmählich abdacht – ergeben sich typische Klimabedingungen. Die besondere Windexposition verstärkt die Deposition von Staub- und Aerosolpartikeln, und damit auch von RN und Schadstoffen, sowohl aus lokalen bzw. regionalen Quellen als auch durch den Ferntransport (vgl. auch „Böhmische Nebel“, Kap. 5.1).

Zudem stellt die Kammlinie die Hauptwasserscheide dieses Mittelgebirges dar, was die dort lokalisierten Hochmoore in ihren Ausbildungsformen wesentlich beeinflusst hat. Die im Erzgebirge und im Harz untersuchten Hochmoore bildeten sich in speziellen Geländeformen unter unterschiedlichen Vernässungssituationen, wie schon an den Namen der Moortypen – Kamm-, Sattel-, Einhang-, Wasserscheiden- und Quellmuldenmoor – zu erkennen ist (vgl. Tabelle 14).

Nach Süden zur ansteigenden Gebirgslage hin nehmen die Niederschläge zu und die Temperaturen ab. So betrug z. B. 1995 am Fichtelberg das Tagesmittel der Lufttemperatur 3,5 °C; bei einer durchschnittlichen jährlichen Niederschlagsmenge von 1493 mm konnten 187 Tage geschlossener Schneedecke und 281 Nebeltage, jedoch nur 128 frostfreie Tage verzeichnet werden (DWD 1998). Geringfügig abgeschwächt kann diese klimatische Extremlage auch für die beprobten Gebiete im oberen Erzgebirge verzeichnet werden, wie die Klimadaten zeigen (Anhang C.2). Die Bedeutung des Nebels für den Stoffeintrag der hier betrachteten Gebiete ist somit nicht zu unterschätzen (vgl. Kap. 5).

Ein weiteres, im Erzgebirge eng mit der exponierten Kammlage verbundenes Kriterium ist die

Auswahl von Standorten mit extremer **atmosphärischer Deposition**. Dieses Kriterium betrifft sowohl die hauptsächlich durch den Kernwaffenfallout und nach dem Tschernobyl-Unfall eingebrachten künstlichen als auch die kosmogen gebildeten RN. Wie in Kap. 2.3 erläutert, wurden in Süddeutschland nach dem Reaktorunfall 1986 vergleichsweise hohe RN-Konzentrationen deponiert. Bodenproben aus Oberschwaben eignen sich aus diesem Grund sehr gut, um Transportprozesse des Cs zu untersuchen. Während  $^{134}\text{Cs}$  aufgrund der vergleichsweise kurzen Halbwertszeit in Umweltproben mit geringeren  $^{134}\text{Cs}$ -Anfangskonzentrationen inzwischen nur noch mit großen statistischen Unsicherheiten bestimmt werden kann, ist es in den stärker belasteten Böden süddeutscher Waldgebiete noch längere Zeit besser detektierbar. In diesen Proben wird jedoch die Auswertung von RN niedrigerer Konzentrationen durch die hohen  $^{137}\text{Cs}$ -Gehalte erschwert oder sogar verhindert (hoher Comptonuntergrund des  $^{137}\text{Cs}$  im  $\gamma$ -Spektrum, vgl. Kap. 3.1.1). In den untersuchten Gebieten des Erzgebirges wurde die Radioaktivität in der direkten Folgezeit des Tschernobyl-Unfalls in geringeren Konzentrationen eingetragen als in Süddeutschland, hauptsächlich aufgrund der trockeneren Wetterlage und der vorherrschenden Luftströmungen (vgl. Kap. 1.4; Anhang C.1 u. Monatliche Niederschlagsberichte des Meteorologischen Dienstes der DDR für die Bezirke Dresden und Karl-Marx-Stadt, entsprechend pers. Mitteilung von H. Fischer, Klingenberg, 2005; SAAS 1987a, 1988b). Somit sind in erzgebirgischen Bodenproben RN wie  $^{125}\text{Sb}$ , deren Eintrag 1986 vergleichsweise gering war, oder auch das kosmogene  $^7\text{Be}$ , dessen Vollenergielinie im  $\gamma$ -Spektrum bei 477.6 keV und damit auf der Comptonkante des  $^{137}\text{Cs}$  liegt,  $\gamma$ -spektrometrisch gut zu bestimmen. Allerdings ist dieser Vorteil bei RN kürzerer Halbwertszeiten (z. B.  $^{125}\text{Sb}$ ) auf die ersten zwei Jahrzehnte nach dem Tschernobyl-Unfall beschränkt. Erst in den tieferen, mineralischen Horizonten der Waldböden führen die hohen Gehalte an RN der natürlichen Zerfallsreihen im Untergrundgestein zu einer erhöhten Impulsrate des Spektrenuntergrunds, v. a. durch die Comptonkontinua. Hier sind jedoch kaum noch künstliche oder kosmogene RN zu erwarten. Aus diesen Gründen stellen die relativ ungeschützten Kammlagen günstige Untersuchungsstandorte dar, um sowohl trockene als auch nasse Deposition unterschiedlicher Herkunft zu erfassen.

Wie Abb. 19 zeigt, befinden sich sämtliche im Erzgebirge beprobten Waldstandorte im Osterzgebirge, die Moore jedoch jeweils im Ost-, Mittleren und Westerbirge. Betrachtet man den **geologischen Untergrund** der Standorte, so werden die Vorteile dieser Wahl deutlich (Tabelle 13 u. Tabelle 14). Für die Gesteine der drei Waldgebiete (Granit, Granitporphyr und Gneis) sind entsprechend den in Abb. 1 dargestellten Literaturwerten deutlich unterschiedliche spezifische Aktivitäten des  $^{238}\text{U}$  und z. T. auch des  $^{232}\text{Th}$  zu erwarten (s. Gesteinstypen Granite, Rhyolithoide und Paragneis). Bei vergleichbaren Eigenschaften bezüglich Klima, Bestockung, Bodentyp und Humusform sind somit günstige Voraussetzungen zur Untersuchung der Verteilung von natürlichen RN und eventueller Ungleichgewichte innerhalb der natürlichen Zerfallsreihen in den Horizonten von Fichtenwaldböden gegeben. Da die jeweilige Ausprägung der Bodenhorizonte an den Standorten dennoch unterschiedlich ist, eignen sich die Profile dazu, Unterschiede und Gemeinsamkeiten des Migrationsverhaltens der künstlichen und kosmogenen RN aufzuzeigen. In den Hochmooren ist ein eher geringer Einfluß des geologischen Untergrunds auf die RN-Tiefenverteilungen, d. h. nur in den direkt aufliegenden Torfschichten, zu erwarten. Statt dessen hatte hier das Untergrundgestein während der Bildung eines Moores die Funktion der Abdichtung nach unten zu erfüllen und war damit neben der benötigten speziellen klimatischen Situation eine der wesentlichen Voraussetzungen für die Entstehung und Entwicklung des Moores überhaupt (Tabelle 14: Granit bzw. Andalusitglimmerfels, Gneis und Quarzporphyr; vgl. Abb. 1: Gesteinstypen Granite bzw. Phyllite, Metagranitoide und Saure Vulkanite).

Als letztes Kriterium ist die in Kap. 3.4 angesprochene Auswahl weitgehend **anthropogen unbeeinflusster Standorte** anzuführen, welche Bodenprofile mit möglichst ungestörtem Stofftransport gewährleisten soll. Störfaktoren sind z. B. Bodenbearbeitung, Bepflanzung, Entwässerung, Düngung und Kalkung. Die Waldstandorte konnten diesbezüglich relativ problemlos nach Absprache mit dem jeweiligen Revierförster ausgewählt werden. Es wurde auf geringe Bodenbeeinträchtigung bei Pflanzung und Pflege der aktuellen Bestockung Wert gelegt, wobei zu beachten ist, daß die Bodenentwicklung an sich wesentlich älter ist. In den beprobten osterzgebirgischen Waldgebieten beispielsweise wurden während des Zeitraums der Probennahmen bzw. der vorangegangenen zehn Jahre keine forstlichen

Maßnahmen – von immissionsbedingten Schadholzentnahmen abgesehen – durchgeführt (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998). Auf die Moorstandorte sind diese Kriterien nur eingeschränkt anwendbar. Vor allem das Georgenfelder Hochmoor wurde seit dem Mittelalter durch montanwirtschaftliche Aktivitäten beeinflusst, in wesentlich geringerem Maße trifft das auch für den Kleinen Kranichsee zu (Bauer et al. 1974; Hempel 1974, 1977; Hempel u. Schiemenz 1986; Wagenbreth et al. 1990). Die Schwarze Heide blieb zwar vom Bergbau verschont, wurde jedoch zu Beforstungszwecken trockengelegt (Seifert 1997; M. Seifert, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 1995, 1998; J. Heisig, Forstamt Olbernhau, pers. Mitt. 1998, 2005). Die Entwässerungsmaßnahmen hinterließen ihre Spuren u. a. in Form von Sackungen des Moorkörpers und Mineralisierung der oberen Torfschichten. Das Hochmoor Radauer Born im Hochharz entspricht mit seiner maximalen Torfmächtigkeit von über sechs Metern und der (im Sattelbereich des Moores) andeutungsweise uhrglasförmig aufgewölbten Oberfläche am ehesten dem “Hochmoor im eigentlichen Sinne“ und stellt einen idealen Vergleichsstandort für die Untersuchungen dieser Arbeit dar. Anthropogene Einflüsse wie Entwässerung und Torfstich spielten in der Vergangenheit eine geringe Rolle, so daß hier ein nahezu ungestört gewachsener Torfkörper vorliegt (Henrion 1982; Jensen 1987; Jensen 1990; L. Feldmann, TU Clausthal, pers. Mitt. 1995).



## 5 Messungen zum atmosphärischen Eintrag von Radionukliden

### 5.1 Eintrag mit dem Niederschlag

Um die RN-Verteilung in Böden diskutieren zu können, ist es nötig, Art und Menge der Stoffeinträge aus der Atmosphäre zu erfassen. Wie Untersuchungen zum Eintrag von  $^7\text{Be}$  und  $^{210}\text{Pb}$  (Turekian et al. 1977; Todd et al. 1989; Wallbrink u. Murray 1994) oder auch der Deposition von  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  aus dem Tschernobyl-Fallout in der nördlichen Schweiz (Santschi et al. 1988) zeigen, entstammt ein Großteil der Gesamtdosition i. allg. dem Niederschlag, wobei die RN, in gelöster Form oder an Aerosolpartikeln gebunden, ausgewaschen werden und auf die Erdoberfläche gelangen (vgl. Kap. 2). Um eine Vorstellung des aktuellen Eintrags zu gewinnen, wurden stichprobenartig sieben auf dem Gelände der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld gesammelte Regenwasserproben entsprechend Kap. 3.3.4 aufbereitet und  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht (Tabelle 15). Die Messungen wurden anhand der WD-Kalibrierung unter Beachtung der Selbstabsorption ausgewertet. Da die Probenform nur annähernd der des WD-Behälters entspricht und die Probenmatrix nicht als homogen betrachtet werden kann, ergibt sich zusätzlich eine systematische Abweichung in der Größenordnung von 10 ... 20 %.

Tabelle 15: RN-Aktivitätskonzentrationen und pH-Werte der Regenwasserproben (1995, Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld; Kap. 3.3.4) sowie errechneter Jahreseintrag

<b>Sammel- zeitraum</b>	<b>pH-Wert</b> 1)	<b><math>^7\text{Be}</math> 2)</b> Bq/L	<b><math>^{40}\text{K}</math></b> mBq/L	<b><math>^{210}\text{Pb}</math></b> mBq/L	<b><math>^{226}\text{Ra}</math>-Folg.</b> mBq/L	<b><math>^{232}\text{Th}</math>-Folg.</b> mBq/L
14.3.–21.3.	3.9	$2.17 \pm 0.05$	n. n.	$235 \pm 80$	$11.8 \pm 3.1$	$18.8 \pm 2.3$
21.3.–28.3.	4.1	$3.19 \pm 0.03$	n. n.	$106 \pm 26$	$2.4 \pm 1.0$	$3.4 \pm 1.1$ 3)
28.3.–4.4.	4.0	$2.41 \pm 0.03$	n. n.	n. n.	$5.3 \pm 1.1$	$3.56 \pm 0.60$
4.4.–11.4.	4.1	$3.26 \pm 0.04$	$17.2 \pm 9.2$	$177 \pm 37$	$9.6 \pm 1.4$	$17.4 \pm 1.0$ 4)
11.4.–18.4.	4.3	$1.93 \pm 0.02$	$9.6 \pm 4.5$	$101 \pm 20$	$0.96 \pm 0.61$	$1.80 \pm 0.43$
18.4.–25.4.	4.2	$5.69 \pm 0.07$	$42 \pm 20$	$344 \pm 75$	$11.0 \pm 2.6$	$12.9 \pm 1.5$
25.4.–2.5.	4.2	$3.92 \pm 0.04$	n. n.	$415 \pm 47$	$3.9 \pm 1.4$	n. n.
11.–18.4. / Faltenfilter		$0.07 \pm 0.01$	n. n.	$13 \pm 12$	$0.85 \pm 0.50$	$0.88 \pm 0.46$ 3)
11.–18.4. / Rückstand		$2.00 \pm 0.02$	$4.6 \pm 4.1$	$94 \pm 19$	$0.63 \pm 0.54$	$2.11 \pm 0.31$
<b>Eintrag in Bq/(m<sup>2</sup> a) 5)</b>		–	<b><math>12 \pm 4</math></b>	<b><math>230 \pm 20</math></b>	<b><math>7.5 \pm 0.8</math></b>	<b><math>9.6 \pm 0.5</math></b>

n. n. nicht nachweisbar

1) nach der Probennahme im Labor ohne Lösungszugabe direkt gemessen (Meßtemperatur 20 °C; Kap. 3.3.6)

2) Werte zerfallskorrigiert auf die Mitte des jeweiligen Sammelzeitraums

3)  $^{228}\text{Ac}$  nicht nachweisbar

4) Ungleichgewicht zwischen  $^{228}\text{Ac}$  und seinen Folgern

5) berechnet unter Verwendung der Monats- und Jahressummen der Niederschläge 1995 an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld (Anhang C.2, Tabelle C.3)

In den Regenproben waren teilweise wenige Folgenuklide stärkerer Emissionswahrscheinlichkeiten der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen detektierbar (Tabelle 15): die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  (295 und 352 keV) und  $^{214}\text{Bi}$  (609 und 1120 keV),  $^{210}\text{Pb}$  (47 keV) sowie die  $^{232}\text{Th}$ -Folger  $^{228}\text{Ac}$  (338 und 911 keV),  $^{212}\text{Pb}$  (239 keV) und  $^{208}\text{Tl}$  (583 keV). Die sehr geringen Aktivitätskonzentrationen betragen maximal 12 mBq/L ( $^{226}\text{Ra}$ -Folger), 415 mBq/L ( $^{210}\text{Pb}$ ) und 19 mBq/L ( $^{232}\text{Th}$ -Folger). In der Probe vom 21.–28.3.1995 ist  $^{228}\text{Ac}$  nicht nachweisbar. In der Probe vom 4.–11.4.1995 übersteigt die Aktivitätskonzentration des  $^{228}\text{Ac}$  deutlich die seiner Folger.

Die  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitätskonzentrationen liegen in der Größenordnung der Literaturwerte vergleichbarer Breitengrade (Peirson et al. 1966; Gavini et al. 1974; Fukuda u. Tsunogai 1975; Todd et al. 1989). Wie Gavini et al. (1974) anhand der Untersuchungen von 48 Regenereignissen zeigen, können die  $^{210}\text{Pb}$ -Gehalte in Regenwasser stark variieren (28 ... 413 mBq/L; Fayetteville, Arkansas, USA, 1973/74).

In den Jahren 1992–94 an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld mittels mehrerer Totalisatoren

(„bulk“-Sammler; vgl. Bozau 1995) im Niederschlag bestimmte U- und Th-Konzentrationen betragen maximal 0.06 µg/L bzw. 0.02 µg/L (Matschullat et al. 2000). Daraus errechnen sich Aktivitätskonzentrationen von 0.7 mBq/L ( $^{238}\text{U}$ ) bzw. 0.08 mBq/L ( $^{232}\text{Th}$ ), welche deutlich unter den hier gemessenen Werten für Folgenuklide der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen liegen (Tabelle 15). Ursachen hierfür könnten z. B. die unterschiedlichen Probennahme- und Aufbereitungstechniken sein, als auch die sehr unterschiedlichen Sammelzeiträume. Prinzipiell sammeln die verwendeten Totalisatoren sowohl die nasse als auch einen gewissen Prozentsatz der trockenen Deposition (Bozau 1995). Die nicht gelösten Bestandteile des gesammelten Niederschlagswassers wurden allerdings in den Untersuchungen von Bozau (1995) und Matschullat et al. (2000) nicht erfaßt, da die Proben vor der Analyse (der Kationen) dekantiert wurden. Beim Vergleich des gewählten Probenaufbereitungsschemas mit einem Aufbereitungsverfahren, bei dem die Proben vor der Analytik mit  $\text{HNO}_3$  angesäuert, 24 h geschüttelt und danach erst dekantiert wurden, ergaben sich laut Bozau (1995) erhebliche Konzentrationsunterschiede, v. a. von „Spurenelementen“ wie Zn.

Obwohl der in der vorliegenden Arbeit verwendete ANTAS prinzipiell nur bei Regen und Schnee geöffnet, bei Trockenheit jedoch geschlossen ist (Kap. 3.3.4), können auch während Niederschlagsereignissen organische Partikel (z. B. Pollen, Sporen, Insekten- und Vegetationsbruchstücke) und Staubpartikel wie Boden-, Ruß- und Aschepartikel oder Mineralstaub (z. B. Saharastaub) in den Sammler gelangen (vgl. Kap. 5.2). Darüber hinaus wurde beobachtet, daß der Niederschlagssensor des Geräts teilweise auch auf Nebelnässen oder Reifablagerungen reagierte, was fälschlicherweise zum Öffnen des Deckels außerhalb von Niederschlagszeiträumen führte (R. Kristof, Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, pers. Mitt. 2004); es ist allerdings fraglich, ob dies im hier untersuchten Zeitraum überhaupt vorgekommen ist. Da die in Tabelle 15 aufgeführten Werte anhand  $\gamma$ -spektrometrischer Messungen der Gesamtproben (Filterpapiere aller drei Aufbereitungsschritte; Kap. 3.3.4) bestimmt wurden, sind höhere Konzentrationen der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folgenuklide, im Vergleich zu den oben genannten Literaturwerten, somit durchaus plausibel (vgl. Probe 11.–18.4.1995, s. u. Diskussion der Einzelmessungen der Filterpapiere).

Eine weitere Ursache für die Unterschiede könnte eine ungleichmäßige Flächenverteilung der Deposition, selbst in lokalem Maßstab, sein. Bozau (1995) konnte teilweise sehr große Konzentrationsunterschiede im Niederschlagswasser der jeweils vier Totalisatoren, welche an jeder Meßstation des Projekts installiert waren, beobachten. Es wird darauf hingewiesen, daß bei derartigen Untersuchungen die Meßunsicherheiten der Elementkonzentrationen zumeist vernachlässigbar sind im Vergleich zu den zeitlichen und räumlichen Streuungen der Konzentrationen in den Niederschlagsproben (Ulrich et al. 1986; Bozau 1995; Matschullat u. Bozau 1996).

Die genannten Faktoren, im speziellen bezüglich unterschiedlicher Probennahme- und Aufbereitungstechniken, könnten zudem die Beobachtung erklären, daß die  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitätskonzentrationen in der bodennahen Umgebungsluft, welche von atmosphärisch eingetragenen  $^{210}\text{Pb}$  (vgl. Kap. 2.1) dominiert werden, und auch die des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (s. u.; vgl. Kap. 2.2) recht gut mit Literaturwerten vergleichbar sind, während die Aktivitätskonzentrationen der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folgenuklide sowie des  $^{40}\text{K}$  (s. u.) teilweise deutlich über den Literaturangaben liegen.

$^{40}\text{K}$  war nur in drei Niederschlagsproben mit großer Meßunsicherheit detektierbar. Diese Werte liegen in derselben Größenordnung bzw. eine Größenordnung über den  $^{40}\text{K}$ -Aktivitätskonzentrationen, welche sich aus den (mit der Niederschlagsmenge gewichteten) Jahresmitteln der Konzentrationen von Kalium im Niederschlagswasser an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld 1994–97 (LfUG 1995, 1996, 1997, 1998) berechnen lassen. Wie monatliche Meßwerte an fünf Meßpunkten im Osterzgebirge zeigen, können die K-Gehalte im Niederschlag jedoch sehr starken Schwankungen unterliegen: Im Zeitraum Mai 1992 bis April 1994 lagen die K-Gehalte des mittels mehrerer Totalisatoren an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld gesammelten Niederschlags im Bereich 0.07 ... 5.52 mg/L (Bozau 1995; Matschullat u. Bozau 1996); dies entspricht  $^{40}\text{K}$ -Aktivitätskonzentrationen von 2 ... 170 mBq/L. Relativ hohe K-Einträge werden nicht nur im Osterzgebirge, sondern auch in anderen Regionen beobachtet (Ulrich et al. 1986; Bozau 1995). Erhöhte K-Konzentrationen im Sommerhalbjahr können v. a. durch pflanzlichen Eintrag erklärt werden; aus der Vegetation ausgewaschenes K kann über die soge-

nannte (Re-)Insertion auch zu einer Beladung des Freilandniederschlags führen (Ulrich et al. 1986; Bozau 1995).

Das kosmogene  $^7\text{Be}$  war das einzige sehr gut zu detektierende RN mit Aktivitätskonzentrationen von 1.9 ... 5.7 Bq/L. Die Werte bewegen sich im Bereich der Literaturangaben für  $^7\text{Be}$  im Niederschlag, z. B. 0.59 ... 2.7 Bq/L (Milford Haven, UK; Peirson 1963), 0.7 ... 2.2 Bq/L (Heidelberg; Schumann u. Stoepler 1963), 0.57 ... 3.7 Bq/L (Norfolk, Virginia, USA; Todd et al. 1989) und 0.02 ... 5.9 Bq/L (Canberra, Australien; Wallbrink u. Murray 1994).

$^{137}\text{Cs}$  war in den Regenwasserproben nicht nachweisbar; die NWG für das Cs-Isotop lag bei diesen Messungen im Bereich 1.0 ... 4.3 mBq/L (für Regenwasservolumina von 2 ... 10 L und Meßzeiten von über 3 d). Schon 1992/93 betrugen die in Dänemark an zehn Meßstationen gemessenen  $^{137}\text{Cs}$ -Einträge im Niederschlag im Mittel nur etwa 1.5 mBq/L (Aarkrog et al. 1995). Als Hauptursache für die meist geringen Konzentrationen in Regen- und Luftproben im europäischen Raum nach 1986 kann (lokale) Resuspension von Tschernobyl-bürtigem  $^{137}\text{Cs}$  angesehen werden (Cambray et al. 1989; vgl. Kap. 5.2).

Die drei **Filterpapiere der Niederschlagsprobe 11.–18.4.1995** wurden zusätzlich einzeln  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen (vgl. Kap. 3.3.4); diese Probe wies mit 10.3 L das höchste Sammelvolumen auf. Wie Tabelle 15 zeigt, sind die Ergebnisse der Einzelmessungen (s. tabellierte Ergebnisse für Faltenfilter und Rückstand) und der Messung des Gesamtpakets der Filter weitestgehend konform. Im Faltenfilter (erster Filterschritt) war nur  $^{40}\text{K}$  nicht detektierbar; zwar konnte auch der  $^{232}\text{Th}$ -Folger  $^{228}\text{Ac}$  nicht nachgewiesen werden, wohl aber die Folgenuklide  $^{212}\text{Pb}$  und  $^{208}\text{Tl}$ . Im  $\gamma$ -Spektrum des Mikrofilters dagegen (zweiter Filterschritt) war keines der RN nachweisbar, während im Eindampfrückstand alle aufgeführten RN gemessen werden konnten.

Der Vergleich der Ergebnisse zeigt, daß  $^{210}\text{Pb}$  zu nur etwa 20 % in der ersten Filterung aufgefangen wurde, der Großteil also im Rückstand vorliegt. Mit über 95 % der Gesamtaktivitätskonzentration ist das kosmogene  $^7\text{Be}$  noch wesentlich ausgeprägter im Rückstand akkumuliert. Dies ist ein plausibler Befund, da angenommen werden kann, daß bei den vorliegenden pH-Werten das freie, unkomplexierte  $\text{Be}^{2+}$ -Ion dominiert und Be somit gut wasserlöslich ist, und da auch Schwermetalle wie Pb in Aerosolen bei derartig niedrigen pH-Werten zunehmend in Lösung gehen und als Ionen mit dem Niederschlag eingetragen werden (vgl. Thor u. Zutshi 1958; Lindberg u. Harriss 1983; Olsen et al. 1985; Gaffney et al. 1994; Ulrich 1997; Norton et al. 2000; vgl. Stabilitätskonstanten bzw. Speziationsdiagramme, z. B. in Fairhall 1960, Baes u. Mesmer 1976 und Stumm u. Morgan 1996). Laut Bozau (1995) ist bei derartigen Untersuchungen nicht auszuschließen, daß Elemente wie Pb mit ebenfalls eingetragener organischer Substanz während des Beprobungszeitraums im Sammelkanister hochmolekulare metallorganische Komplexe bilden, die im Filter zurückgehalten werden können. In diesem Fall wäre ein erhöhter Anteil des Pb aus dem Niederschlagswasser herausgefiltert worden, und der ursprünglich im Regenwasser „gelöste“ – d. h. ionar, kolloidal oder in partikulärer Form  $< 0.45 \mu\text{m}$  vorliegende – Prozentsatz an Pb wäre noch höher anzusetzen.

$^{40}\text{K}$  ist vollständig im Eindampfrückstand akkumuliert, was darauf verweist, daß das Element vorwiegend ionar, d. h. als einwertiges  $\text{K}^+$ -Kation, vorliegt (vgl. Schachtschabel et al. 1992; Stumm u. Morgan 1996). Die  $^{232}\text{Th}$ -Folger sind mit etwa 70 % im Rückstand enthalten. Daß  $^{228}\text{Ac}$  nur im Rückstand detektierbar war, nicht jedoch im Faltenfilter, weist darauf hin, daß das Nuklid ebenfalls „gelöst“ im Regenwasser vorliegt. Im Fall der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger läßt sich aufgrund der sehr geringen, von großen Meßunsicherheiten behafteten Werte keine genaue Aussage zur Verteilung zwischen den Fraktionen machen.

Auf der Basis der im Niederschlag gemessenen Aktivitätskonzentrationen (Tabelle 15) und der Monats- und Jahressummen der Niederschläge des Jahres 1995 an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld (DWD 1998; Anhang C.2, Tabelle C.3) wurde der **Jahreseintrag der langlebigen RN** abgeschätzt (Tabelle 15). Dabei wurde z. B. zu erwartenden jahreszeitlichen Schwankungen der  $A_{\text{konz}}$ -Werte keine Rechnung getragen; die angegebenen Unsicherheiten beinhalten nur die aus der Messung

herrührenden Unsicherheiten (vgl. Kap. 3.1.3) und wurden entsprechend den Gesetzmäßigkeiten für die Fortpflanzung von Meßunsicherheiten errechnet.

Für  $^7\text{Be}$  sind derartige Berechnungen problematisch aufgrund der kurzen Halbwertszeit des Nuklids und der hohen Variabilität der durch individuelle Regenereignisse eingetragenen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten (Olsen et al. 1985; Brown et al. 1989; Wallbrink u. Murray 1994). Die korrekte Bestimmung jährlicher  $^7\text{Be}$ -Gesamtdepositionsraten (bzw. auch „durchschnittlicher kumulativer Flächenkonzentrationen“ in  $\text{Bq/m}^2$ , vgl. Wallbrink u. Murray 1994) erfordert idealerweise kontinuierliche, mehrjährige Beprobungen der nassen und trockenen Deposition und möglichst kurze Beprobungsintervalle. Literaturwerte ortsabhängiger  $^7\text{Be}$ -Einträge sind in Tabelle 2 zusammengestellt (vgl. Kap. 2).

Unter der zuvor diskutierten Voraussetzung, daß ein Großteil der  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamtdeposition dem Niederschlag entstammt (Turekian et al. 1977; Todd et al. 1989), ist der hier bestimmte  $^{210}\text{Pb}$ -Eintragswert nasser Deposition von  $(230 \pm 20) \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  in der Größenordnung eines berechneten Eintragswerts für kontinentale Gebiete von  $< 220 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  (Krishnaswami u. Lal 1978; El-Daoushy 1988), liegt jedoch über dem von H. Dörr 1989, zitiert in Gellermann et al. (1992) angegebenen Wert von  $(100 \pm 50) \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  für Westeuropa (Tabelle 1). Allerdings zeigen die in Moore u. Poet (1976) zusammengestellten  $^{210}\text{Pb}$ -Eintragswerte für die gemäßigte Klimazone der Nordhalbkugel (kontinentale Gebiete) von  $130 \dots 330 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$ , daß der Eintrag je nach Lokalität stark variieren kann, so daß der hier bestimmte Wert, auch aufgrund der sehr exponierten Lage der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, plausibel ist.

Der  $^{40}\text{K}$ -Eintragswert von  $(12 \pm 4) \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  liegt ebenfalls in der Größenordnung entsprechender Literaturwerte. Bozau (1995) errechnete K-Einträge von  $3.8 \text{ kg/(ha a)}$  und  $8.9 \text{ kg/(ha a)}$  für die beiden Untersuchungsjahre an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld (s. o.); diese entsprechen  $^{40}\text{K}$ -Eintragswerten von  $12 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  und  $28 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$ . Die vom LfUG 1994–96 an der Wetterstation bestimmten K-Einträge sind geringer und betragen  $0.7 \text{ kg/(ha a)}$ ,  $2.0 \text{ kg/(ha a)}$  und  $0.5 \text{ kg/(ha a)}$  (LfUG 1995, 1996, 1997), woraus sich  $^{40}\text{K}$ -Werte von  $2.2 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$ ,  $6.2 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  und  $1.5 \text{ Bq/(m}^2 \text{ a)}$  ergeben.

Wie in Kap. 4 angesprochen, ist am Erzgebirgskamm neben hohen jährlichen Niederschlagsmengen eine große Anzahl von Nebeltagen zu verzeichnen (vgl. Anhang C.2, Tabelle C.3). Nebel bildet sich, indem Wassertröpfchen aus wassergesättigter Luft an vorhandenen Aerosolpartikeln kondensieren. Dabei können sich Aerosolkomponenten in den Nebeltröpfchen lösen und Gase wie  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NH}_3$  und  $\text{HCl}$  absorbiert werden. Meist enthalten Nebeltröpfchen (deren Durchmesser wesentlich kleiner ist als der von Regentropfen) um ein bis zwei Größenordnungen höhere Konzentrationen an Schadstoffen, d. h. sauren Komponenten, Schwermetallen und organischen Verunreinigungen, als Regenwasser (Sigg u. Stumm 1994; Stumm u. Morgan 1996). Dementsprechend ist das Niederschlagswasser von Nebel oft stark sauer (auch Führ et al. 1986; Conradt u. Horstmann 1996; Zimmermann u. Zimmermann 2002). Während Regenwolken oft über Hunderte von Kilometern transportiert werden und dabei aus weiten Gebieten Gase und Aerosole aufnehmen können, spiegelt die Nebelzusammensetzung eher die lokalen Verhältnisse wider, da der Nebel meist in tieferen Luftschichten gebildet wird (Sigg u. Stumm 1994; Stumm u. Morgan 1996). Dabei können die in den Kammlagen der Mittel- und Hochgebirge von den Baumkronen ausgekämmten Nebeltröpfchen eine Erhöhung der Jahresniederschlagssummen von über 150 % bewirken (J. Grunow 1955, zitiert in Krieter 1991).

Der Eintrag über den Nebel wird von automatisch schließenden Niederschlagssammlern, wie dem hier verwendeten, im Prinzip nicht erfaßt (E. Kamenz, Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, pers. Mitt. 1995). Generell ist der Nebelniederschlag quantitativ kaum meßbar (vgl. Stumm u. Morgan 1996; Matschullat u. Kritzer 1997), und wird in der Literatur, wenn überhaupt, oft nur qualitativ angesprochen. Für die Eintragssituation am Erzgebirgskamm spielt der Nebel jedoch eine wesentliche Rolle (Beer et al. 1997) und sollte in die Betrachtungen mit einbezogen werden. Eine ortstypische Erscheinung sind die sogenannten „Böhmischen Nebel“, die bei Inversions- und Südwestlagen (v. a. bei ausgeprägten Südostlagen) aus dem böhmischen Becken und dem Egergraben über den Gebirgskamm streichen (Bauer et al. 1974; Beer et al. 1997; V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1994).

Sie führten, hauptsächlich bis Ende der 90er Jahre, u. a. stark  $\text{SO}_2$ -haltige Emissionen und Braunkohleaschen der dortigen Kohlekraftwerke und der nordböhmischen chemischen Industrie mit sich (vgl. auch Paces 1985; Moldan u. Schnoor 1992; Cerny 1995; Markert et al. 1996b; Novák et al. 1996; Matschullat et al. 2000). Wie auch in anderen Teilen der aufgrund extremer Schadstoffbelastung der Luft (hauptsächlich durch Braunkohle verarbeitende Industrie) als „Schwarzes Dreieck“ („Black Triangle“) bezeichneten Region, welche Nordböhmen (Tschechische Republik), den Südwestteil Niederschlesiens (Polen) und den südlichen Teil Sachsens umfaßt (Abraham et al. 2000), sind diese Einträge eine Ursache der teilweise extrem starken Versauerung der (Wald)Böden sowie starker Waldschäden (Paces 1985; Fiedler 1991; Krieter 1991; Möhring 1992; Moldan u. Schnoor 1992; Hofmann u. Nebe 1996; Novák et al. 1996).

Der „Saure Regen“ in Verbindung mit dem kühlfeuchten Klima der Gebirgslagen fördert die in Kap. 3.3.1 beschriebenen Podsolierungserscheinungen der untersuchten erzgebirgischen Fichtenwaldböden. Wie mit Fe und Al können wasserlösliche Huminstoffe dabei auch mit Schwermetallen lösliche metallorganische Komplexe bilden und somit die Verlagerung von Metallen im Boden bewirken (Schachtschabel et al. 1992). Der anthropogen verursachte hohe Säureeintrag zeigt sich deutlich in den niedrigen pH-Werten der Regenwasserproben von pH 3.9 ... 4.3 (arithmetischer Mittelwert pH 4.1; Tabelle 15). Vergleichbare pH-Werte wurden 1992–96 auch im Rahmen des DFG-Projekts „Stoffdispersion Osterzgebirge“ (Bozau 1995; Matschullat u. Bozau 1996) und der Immissionsmessungen des LfUG (LfUG 1995, 1996, 1997) im Osterzgebirge ermittelt. Niederschlagsproben der 30 km nördlich von Regensburg gelegenen Wetterstation Mappenberg dagegen wiesen pH-Werte von 5 ... 6 auf (Bachhuber u. Bunzl 1992). Der „natürliche“ (d. h. theoretische) pH-Wert von Regenwasser beträgt 5.7, wobei diese Abweichung vom neutralen Bereich prinzipiell auf der Lösung von atmosphärischem  $\text{CO}_2$  im Niederschlag beruht (Schachtschabel et al. 1992; Stumm u. Morgan 1996). Sowohl natürliche als auch anthropogene Stoffeinträge können den pH-Wert weiter absenken (bzw. teilweise auch erhöhen), so daß der resultierende pH-Wert in Regenwasser typischerweise bei 3.5 ... 6 liegt (Stumm u. Morgan 1996). Für mitteleuropäische Verhältnisse stellten die hier gemessenen niedrigen pH-Werte keine Ausnahme dar: Krieter (1991) gibt für Freilandverhältnisse in Mitteleuropa Ende der 80er Jahre pH-Werte um 4.3 (Freilandniederschlag) und im Tropfwasser der Waldbestände um 3.3 an (Bestandesniederschlag).

## 5.2 Äolischer Eintrag

Die trockene Deposition in Form von Gasen, Staub- und Aerosolpartikeln steuert einen zumeist geringen, wenngleich nicht unwesentlichen Anteil zum Gesamteintrag bei (vgl. Kap. 5.1). Zur Erfassung des aktuellen Eintrags wurden sechs Staubfilterproben aus einem Schwebstaubmeßgerät an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht (2.–12.6.1995, 24 h Sammelintervalle; Kap. 3.3.5). Die Auswertung der Messungen erfolgte anhand der Kalibrierung für WD unter Berücksichtigung von Selbstabsorptionseffekten. Aufgrund der nur annähernd erreichten WD-Probenform, der Probeninhomogenität und einer geringen Dicke, d. h. Füllhöhe, der Proben muß von einer systematischen Abweichung in der Größenordnung von 20 ... 30 % ausgegangen werden.

Die Staubfilter weisen nur sehr niedrige Aktivitäten einer geringen Anzahl von RN auf (Tabelle 16). Die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  (295 und 352 keV) und  $^{214}\text{Bi}$  (609 keV),  $^{210}\text{Pb}$  (47 keV) sowie die  $^{232}\text{Th}$ -Folger  $^{228}\text{Ac}$  (911 keV),  $^{212}\text{Pb}$  (239 keV) und  $^{208}\text{Tl}$  (583 keV) konnten in fast allen Proben gemessen werden. Gut auszuwerten waren nur  $^{40}\text{K}$  und das kosmogene  $^7\text{Be}$ .

$^{137}\text{Cs}$  konnte in den Staubfiltern nicht nachgewiesen werden; die NWG für das Cs-Isotop lag bei diesen Messungen im Bereich 11 ... 15  $\mu\text{Bq/m}^3$ .  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen in Luft von  $< 10 \mu\text{Bq/m}^3$  wurden z. B. für den Münchner Raum schon seit 1994 verzeichnet (Bunzl et al. 1995a). Auch für den Dresdner Raum konnten Ende 1991 anhand von Staubfilterproben der Meßstelle Radebeul-Wahnsdorf nur noch  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen weniger  $\mu\text{Bq/m}^3$  bestimmt werden (S. Unterricker, TU BAF, unveröff. Untersuchungsergebnisse 1992). In Risø, Dänemark, waren die Gehalte (arithmetische Jahresmittelwerte) in den Jahren 1990–93 auf etwa 1  $\mu\text{Bq/m}^3$  abgefallen, und damit nur

geringfügig höher als 1985, vor dem Tschernobyl-Unfall (Aarkrog et al. 1995). Die teilweise dennoch unerwartet langsam abfallenden  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationen in der Luft (Aarkrog 1988a; Bunzl et al. 1995a) werden hauptsächlich mit Resuspensionseffekten – sowohl durch kontaminierte Bodenpartikel als auch kontaminiertes Pflanzenmaterial, wie Pollen (Bunzl et al. 1993) – erklärt (Aarkrog 1988a; Cambray et al. 1989; Bunzl et al. 1995a; Papastefanou et al. 1999). Der stratosphärischen Komponente des Tschernobyl-Fallouts wird ein nur geringer bzw. vernachlässigbarer Einfluß zugeschrieben (Aarkrog et al. 1995; Bunzl et al. 1995a; Winkler 1997). Aarkrog (1988a) und Aarkrog et al. (1995) fanden selbst einige Jahre nach dem Tschernobyl-Unfall noch einen Zusammenhang zwischen dem ursprünglichen Tschernobyl-Fallout und der Deposition an den jeweiligen Meßpunkten.

Tabelle 16: Anhand von Staubfilterproben bestimmte RN-Aktivitätskonzentrationen in Luft (1995, Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld)

Sammeltag	$^7\text{Be}^{1)}$ mBq/m <sup>3</sup>	$^{40}\text{K}^{2)}$ mBq/m <sup>3</sup>	$^{210}\text{Pb}$ mBq/m <sup>3</sup>	$^{226}\text{Ra}$ -Folger µBq/m <sup>3</sup>	$^{232}\text{Th}$ -Folger µBq/m <sup>3</sup>
02.06.	2.0 ± 0.1	2.2 ± 0.1	n. n.	49 ± 10	45 ± 5
04.06.	7.8 ± 0.2	2.6 ± 0.1	0.48 ± 0.20	31 ± 10	54 ± 6
06.06.	4.3 ± 0.2	2.2 ± 0.1	0.65 ± 0.23	26 ± 9	35 ± 5
08.06.	3.6 ± 0.1	2.4 ± 0.1	0.58 ± 0.26	27 ± 10	49 ± 6
10.06.	8.1 ± 0.2	2.3 ± 0.1	0.69 ± 0.28	45 ± 9	59 ± 7
12.06.	2.5 ± 0.1	2.2 ± 0.1	n. n.	39 ± 10	48 ± 7

n. n. nicht nachweisbar

<sup>1)</sup> zerfallskorrigiert auf den Sammeltag

<sup>2)</sup> „Blindwert“: 1.5 ± 0.2 mBq/m<sup>3</sup> (vgl. Kap. 3.3.5 u. Erläuterungen im Text)

Die gemessenen  $^7\text{Be}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitätskonzentrationen (2.0 ... 8.1 mBq/m<sup>3</sup> bzw. bis zu 0.69 mBq/m<sup>3</sup>) liegen in der Größenordnung der Literaturwerte (für  $^7\text{Be}$  z. B. Peirson 1963; Schumann u. Stoepller 1963; Dutkiewicz u. Husain 1985; Hötzl u. Winkler 1987; BfS 1992b; Wallbrink u. Murray 1994). In Süddeutschland betrugen die Langzeitmittelwerte (1970–96) der Konzentrationen in bodennahe Luft 3.69 mBq/m<sup>3</sup> ( $^7\text{Be}$ ) bzw. 0.59 mBq/m<sup>3</sup> ( $^{210}\text{Pb}$ ), und die mittleren monatlichen Konzentrationen lagen in den Bereichen 1.1 ... 7.3 mBq/m<sup>3</sup> ( $^7\text{Be}$ ) bzw. 0.18 ... 1.29 mBq/m<sup>3</sup> ( $^{210}\text{Pb}$ ) (Hötzl et al. 1983; Winkler 1997).

Die Werte für  $^{40}\text{K}$  von 2.2 ... 2.6 mBq/m<sup>3</sup> liegen zwei Größenordnung über Literaturwerten der  $^{40}\text{K}$ -Aktivitätskonzentrationen in bodennahe Luft in Süddeutschland (max. 30 µBq/m<sup>3</sup>, 1983–85; Hötzl u. Winkler 1987) und entsprechender Werte aus dem Erzgebirgsraum. Beispielsweise wurde anhand von Aerosolproben an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld 1992–94 ein Median der K-Konzentration von 150 ng/m<sup>3</sup>, d. h. 4.7 µBq/m<sup>3</sup> ( $^{40}\text{K}$ ), bestimmt (Matschullat et al. 2000). Der Vergleich mit den Literaturangaben und die Beobachtung, daß die  $^{40}\text{K}$ -Aktivitätskonzentrationen der untersuchten Staubfilterproben (entgegen den Werten der anderen RN) im Untersuchungszeitraum nur sehr geringfügig variieren, ließen die Vermutung einer Beeinflussung der Messungen durch materialeigenes K der Glasfaserfilter aufkommen. Unter Beachtung eines Blindwerts, der zu einem späteren Zeitpunkt an unbenutzten Filterpapieren der gleichen Sorte, jedoch aus einer anderen Produktionscharge, bestimmt wurde (Kap. 3.3.5; Tabelle 16), ergeben sich  $^{40}\text{K}$ -Werte von 0.66 ... 1.1 mBq/m<sup>3</sup>, die immer noch eine Größenordnung über den oben genannten Literaturwerten liegen. Laut Aussage des Herstellers wird als Ausgangsmaterial für die Glasfaserfilter Borosilicatglas verwendet, das K in geringen Konzentrationen enthält; Unterschiede in den Gehalten von K – und damit auch  $^{40}\text{K}$  – zwischen verschiedenen Produktionschargen spielen für die Qualität der Glasfasern an sich kaum eine Rolle und sind grundsätzlich nicht auszuschließen (C. Prokisch, Macherey-Nagel, pers. Mitt. 2005). Als Quellen für den K-Eintrag in die bodennahe Umgebungsluft kommen generell die Beladung der Atmosphäre mit Bodestaub (d. h. organischen und mineralischen Bodenbestandteilen) und K-haltigen Aschen,

z. B. aus Biomassenfeuerungsanlagen, sowie das Aufbringen von Mineraldüngern in Land- und Forstwirtschaft in Betracht.

Die Aktivitätskonzentrationen der  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folger liegen etwa eine Größenordnung über Literaturwerten für  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{228}\text{Ra}$ -Aktivitätskonzentrationen in bodennaher Luft in Süddeutschland (Hötzl u. Winkler 1987). Daß weitaus höhere Aktivitätskonzentrationen der RN der U- und Th-Zerfallsreihen möglich sind, zeigen z. B. hohe  $^{226}\text{Ra}$ -Gehalte in Luft von bis zu  $32 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  in Polen (ohne Angabe der Lokaltäten der Meßeinrichtungen; UNSCEAR 2000).

Die RN der natürlichen Zerfallsreihen sind in Luft u. a. aufgrund von resuspendierten Bodenpartikeln nachweisbar; zudem entstammen die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger auch dem radioaktiven Zerfall des gasförmigen Mutternuklids. Generell wird der Staubgehalt in oberflächennaher Luft mit ungefähr  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  angegeben (UNSCEAR 2000), wobei die Staubbelaugung jedoch stark ortsabhängig ist und sowohl im Tages- als auch Jahresgang (z.B. infolge heizungsbedingter Emissionen im Winterhalbjahr oder meteorologischer Faktoren wie Inversionslagen) sehr stark variieren kann (Hötzl et al. 1983; Hötzl u. Winkler 1987; LfUG 1998). Unter Verwendung dieses Werts und der mittleren spezifischen  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Aktivitäten in den Gesteinen der beprobten Gebiete im Erzgebirge, welche im Bereich von etwa  $20 \dots 170 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{238}\text{U}$ ) bzw.  $40 \dots 110 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{232}\text{Th}$ ) liegen (Daten nach Kardel 1996; Abb. 1), errechnen sich Aktivitätskonzentrationen in Luft von  $1.0 \dots 8.6 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  bzw.  $2.0 \dots 5.7 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$  (vgl. entsprechende Abschätzungen in Papastefanou et al. 1999 und UNSCEAR 2000). Diese Schätzwerte, die nur Einträge natürlichen Ursprungs berücksichtigen, liegen ebenfalls deutlich unter den hier gemessenen Werten. Zudem sind die Schwebstaubkonzentrationen am Erzgebirgskamm (s. Meßstationen des sächsischen Immissionsmeßnetzes Fichtelberg, Carlsfeld und Zinnwald) sogar noch deutlich geringer als in stark anthropogen genutzten Gebieten (z. B. Jahresmittelwerte 1995 aus LfUG 1996: Carlsfeld  $19 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , Zinnwald  $21 \mu\text{g}/\text{m}^3$  im Gegensatz zu Dresden-Nord  $68 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und Borna  $76 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), und vergleichbare Tendenzen sind auch für die Staubniederschlagswerte in  $\text{mg}/(\text{m}^2 \text{ d})$  ersichtlich (LfUG 1995, 1996, 1997, 1998).

Allerdings ist der Staub- und Aerosoleintrag an einem Standort keineswegs nur als lokal bzw. regional anzusehen, sondern kann, in Abhängigkeit von Faktoren wie der Partikelgröße und vorherrschenden Luftströmungen, sehr stark von durch Ferntransport eingetragenen Partikeln beeinflusst werden (Reiter et al. 1979; Eisenbud u. Gesell 1997; Matschullat u. Kritzer 1997; Abraham et al. 2000). Dies zeigt sich z. B. in den Ergebnissen europaweiter flächendeckender Untersuchungen der Schwermetall-Einträge mittels Moosmonitoring (Herpin et al. 1996; Markert et al. 1996a; Sucharov u. Suchara 1998).

Es kann davon ausgegangen werden, daß die in Kap. 5.1 angesprochenen „Böhmischen Nebel“ mittels transportierter Braunkohleflugaschen nicht nur Schwermetalle (vgl. Markert et al. 1996a, 1996b; Sucharov u. Suchara 1998), sondern auch Folgenuklide der natürlichen Zerfallsreihen eintragen. Zu den RN-Gehalten der Emissionen nordböhmischer Braunkohlekraftwerke, welche bis in die 90er Jahre hinein noch nicht mit ausreichend effektiven Rauchgasfiltern ausgestattet waren (vgl. Moldan u. Schnoor 1992; Markert et al. 1996b; Matschullat u. Kritzer 1997; LfUG 1998), lagen weder Literaturwerte vor, noch waren Ascheproben zu erhalten. Um dennoch Aussagen zu möglichen Einträgen am Erzgebirgskamm treffen zu können, wurden **Filteraschen der Braunkohlekraftwerke** Hagenwerder und Jänschwalde (Reviere der Ober- bzw. Niederlausitz)  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht. Die Mischaschen (Vor-, Mittel- und Nachreinigung) wurden im Rahmen der Dissertation von U. Münch beprobt sowie chemisch und mineralogisch charakterisiert (Münch u. Götze 1994; Münch 1996). Die gemessenen Gehalte natürlicher RN sind in Tabelle 17 zusammengestellt.

Die spezifischen Aktivitäten erstreckten sich über die Bereiche  $64 \dots 125 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{238}\text{U}$ ),  $81 \dots 153 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{226}\text{Ra}$ -Folger),  $64 \dots 162 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{210}\text{Pb}$ ) bzw.  $31 \dots 76 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{232}\text{Th}$ ) sowie  $290 \dots 348 \text{ Bq}/\text{kg}$  ( $^{40}\text{K}$ ). In den untersuchten Aschen liegen die spezifischen Aktivitäten der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  im Gleichgewicht zu denen des Mutternuklids  $^{226}\text{Ra}$  vor (Überprüfung anhand der  $186 \text{ keV}$ -Linie). Dagegen weisen sämtliche Proben ein Ungleichgewicht zwischen  $^{238}\text{U}$  und  $^{226}\text{Ra}$  auf. Aufgrund der Meßunsicherheiten der spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten von  $14 \dots 23 \%$  kann nicht geklärt werden, ob in den Aschen aus Jänschwalde ein Ungleichgewicht zu  $^{226}\text{Ra}$  besteht.

Die gemessenen spezifischen Aktivitäten liegen in der Größenordnung der Literaturwerte für Filteraschen braunkohlegefeuerter Kraftwerke („bottom ash“; z. B. Simopoulos u. Angelopoulos 1987). Die Zusammensetzung dieser Aschen ist zeitlich größeren Schwankungen unterworfen; die Kraftwerksaschen werden maßgeblich durch die Zusammensetzung der im Kraftwerk verfeuerten Kohle einschließlich der stofflichen Veränderung bei der bergmännischen Gewinnung geprägt (Simopoulos u. Angelopoulos 1987; Manolopoulou u. Papastefanou 1992; Jäkel u. Rascher 1994). Somit spiegeln sich die jeweiligen geologischen Bedingungen der Braunkohlelagerstätten in der unterschiedlichen Zusammensetzung der Förderkohlen und damit auch der Aschen wider. Dies liefert einen Erklärungsansatz für die bis zu einem Faktor 2.5 höheren spezifischen Aktivitäten der Hagenwerder Asche: Während die untersuchten Niederlausitzer Braunkohleaschen im Vergleich zu der Oberlausitzer Asche einen höheren Anteil silikatischer Bestandteile aufweisen, ist umgekehrt in der Oberlausitzer Asche ein höherer Anteil organischer Reste zu finden; U und Th wiederum werden an den organischen Bestandteilen stärker gebunden als an den silikatischen (Terytze 1993; Münch 1996; J. Götze, TU BAF, pers. Mitt. 1999).

Tabelle 17: Spezifische Aktivitäten natürlicher RN in Filteraschen der Braunkohlekraftwerke Hagenwerder (Oberlausitz) und Jänschwalde (Niederlausitz) im Vergleich zu typischen Gehalten in Flugaschen

Aschenart bzw. Revier	<sup>238</sup> U Bq/kg	<sup>226</sup> Ra Bq/kg	<sup>210</sup> Pb Bq/kg	<sup>232</sup> Th Bq/kg	<sup>40</sup> K Bq/kg
<b>Filteraschen</b> <sup>1)</sup>					
Hagenwerder	124.6 ± 7.0	152.6 ± 0.6	162 ± 23	75.9 ± 0.5	347.6 ± 2.5
Jänschwalde I	76.6 ± 5.7	101.0 ± 0.4	93 ± 21	35.5 ± 0.4	289.7 ± 2.3
Jänschwalde II	64.0 ± 4.0	80.5 ± 0.3	64 ± 15	30.7 ± 0.3	303.2 ± 1.9
<b>Flugaschen</b> <sup>2)</sup>	200	240	930	70 ( <sup>232</sup> Th) 110 ( <sup>228</sup> Th) 130 ( <sup>228</sup> Ra)	265

<sup>1)</sup> Mischaschen (Vor-, Mittel- und Nachreinigung), beprobt im Rahmen der Dissertation Münch (1996), zur Verfügung gestellt von J. Götze (Institut für Mineralogie, TU BAF)

<sup>2)</sup> typische Gehalte nach UNSCEAR 1982, zitiert in Manolopoulou u. Papastefanou (1992)

Generell kann am jeweiligen Kraftwerksstandort von einer weitgehenden Übereinstimmung der Zusammensetzung der Flugaschen und der Filteraschen (v. a. der Mittel- und Nachreinigung) ausgegangen werden (J. Götze, TU BAF, pers. Mitt. 1999). Da jedoch eine Anreicherung einiger RN beim Abkühlen der Kraftwerksemissionen im Kamin erfolgt, erhöhen sich z. B. die <sup>210</sup>Pb- und <sup>210</sup>Po-Konzentrationen in Flugaschen i. allg. um einen Faktor von 5–10 im Vergleich zu den ursprünglichen Konzentrationen in der Förderkohle (Simopoulos u. Angelopoulos 1987; Manolopoulou u. Papastefanou 1992; Eisenbud u. Gesell 1997). Dies wird deutlich in den von UNSCEAR 1982, zitiert in Manolopoulou u. Papastefanou (1992) aufgeführten typischen RN-Gehalten in Flugaschen, und auch im Vergleich zu den hier gemessenen Werten sächsischer Filteraschen, welche, mit Ausnahme der spezifischen <sup>40</sup>K-Aktivitäten, unter den tabellierten Literaturwerten für Flugaschen liegen (Tabelle 17).

Obwohl hier keine endgültigen Aussagen dazu getroffen werden können, ob die von den Kraftwerken des böhmischen Beckens emittierten Flugaschen prinzipiell vergleichbare Konzentrationen natürlicher RN aufweisen, und obwohl eine quantitative Erfassung des Anteils dieser Kraftwerksflugaschen an der Gesamtbelastung der Luft auf der Grundlage der hier vorhandenen Informationen nicht möglich ist, wäre dennoch denkbar, daß die hier gemessenen vergleichsweise hohen Aktivitätskonzentrationen der <sup>226</sup>Ra-Folger und <sup>232</sup>Th-Folger in bodennaher Umgebungsluft mit entsprechenden Einträgen zu erklären sind.



### 5.3 Eintrag künstlicher Radionuklide durch den Tschernobyl-Unfall

Filterstaubproben der Belüftungsanlage der Universitätsbibliothek (Kap. 3.3.5) ermöglichten eine nachträgliche Untersuchung der Eintragungssituation vor und nach dem Tschernobyl-Unfall im Freiburger Raum. Die 1985–88 entnommenen Stäube wurden 1996  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen (Meßplatz P36; Zusammenstellung ausgewählter Messungen in Tabelle 18); eine 8tägige Langzeitmessung der Probe September 1986 wurde auf dem Meßplatz N38 durchgeführt. Während in den Ende 1985 beprobten Stäuben nur natürliche RN und das aus dem globalen Kernwaffenfallout stammende  $^{137}\text{Cs}$  detektiert wurden, konnten in den Filterstaubproben des Zeitraums nach dem Kernkraftwerksunfall zusätzlich die künstlichen RN  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{125}\text{Sb}$  nachgewiesen werden. In dem Spektrum der Langzeitmessung war zudem  $^{154}\text{Eu}$  erkennbar. Diese RN konnten auch in Filterstäuben aus anderen Regionen Deutschlands detektiert werden, z. B. im Münchner, Karlsruher und Berliner Raum (König et al. 1986; Hötzl et al. 1987; SAAS 1987a, 1988b). RN kürzerer Halbwertzeiten wie z. B.  $^{106}\text{Ru}$  waren nicht mehr nachweisbar. Die Aktivitätskonzentrationen der detektierten natürlichen und künstlichen RN in der Luft wurden nicht berechnet, da die genauen Beprobungszeiträume und der entsprechende Luftdurchsatz nicht bekannt waren (Kap. 3.3.5).

Anhand der spezifischen Aktivitäten der Cs-Isotope in den Proben wurde der Tschernobyl-Faktor  $f_{\text{Tsch}}$  entsprechend Kap. 3.1.4 berechnet (Bezugszeitpunkt 1.5.1986; Tabelle 18). Einige der Literatur entnommene Werte für  $f_{\text{Tsch}}$  sind in Tabelle 19 zusammengestellt. Der in Freiberg bestimmte Wert liegt im Variationsbereich der Literaturwerte. Für die in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Berechnungen von Tschernobyl- und kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}$ -Anteilen (Kap. 3.1.4) wurde ein Faktor von  $f_{\text{Tsch}} = 1.9 \pm 0.1$  verwendet; die Unsicherheit von  $f_{\text{Tsch}}$  ging in alle Berechnungen mit ein.

Tabelle 18: Spezifische  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten der Filterstaubproben aus der Belüftungsanlage der Universitätsbibliothek in Freiberg im Zeitraum 1985–88 (zerfallskorrigiert auf den 1.5.1986; Meßplatz P36, Messungen > 100000 s) und daraus berechneter Tschernobyl-Faktor (Bezugszeitpunkt 1.5.1986)

Sammelzeitraum	Masse g	Meßzeit s	$^{134}\text{Cs}$ Bq/kg	$^{137}\text{Cs}$ Bq/kg	$f_{\text{Tsch}}$
Okt. 85	7.6	197487	–	$43.4 \pm 1.8$	
Nov. 85	7.7	216785	–	$44.2 \pm 1.6$	
Dez. 85	12.2	296769	–	$45.3 \pm 1.1$	
Mittelwert			–	$44.3 \pm 0.9$	
Mai 86	6.0	332926	–	$92.6 \pm 2.0$	–
Jun. 86	7.6	511800	$3213 \pm 49$	$6034 \pm 11$	$1.86 \pm 0.03$ <sup>1)</sup>
Sep. 86	37.7	237402	$960 \pm 18$	$1839.0 \pm 3.9$	$1.87 \pm 0.04$
Mär. 87	7.6	435027	$530 \pm 26$	$901.9 \pm 4.5$	$1.62 \pm 0.08$
Apr. 87	13.5	167592	$1493 \pm 42$	$2689.5 \pm 9.2$	$1.77 \pm 0.05$
Jul. 87	13.2	257133	$951 \pm 29$	$1819.3 \pm 6.2$	$1.87 \pm 0.06$
Nov. 87	9.2	185148	$1230 \pm 47$	$2569 \pm 10$	$2.05 \pm 0.08$
Feb. 88	20.1	176406	$960 \pm 28$	$1773.2 \pm 6.1$	$1.80 \pm 0.05$
<b>Mittelwert</b>					<b><math>1.83 \pm 0.13</math></b> <sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Die Unsicherheiten der monatlichen  $f_{\text{Tsch}}$ -Werte basieren auf den Unsicherheiten der jeweiligen Messung (Berechnung entsprechend den Gesetzmäßigkeiten für die Fortpflanzung von Meßunsicherheiten).

<sup>2)</sup> Arithmetischer Mittelwert  $\pm 1\sigma$  Standardabweichung

Einige Quellen wie z. B. die Berichte des Staatlichen Amtes für Atomsicherheit und Strahlenschutz, (SAAS; DDR) (SAAS 1987a, 1987b, 1988a) geben den Tschernobyl-Faktor mit 2.0 oder größer an (Tabelle 19). Den Werten liegen Messungen von u. a. Aerosol-, Niederschlags-, und Milchproben aus der damaligen DDR zugrunde. Aus einzelnen Meßwerten dieser Zitate errechnete Faktoren würden teilweise sehr deutlich über 2.0, und somit weit über z. B. den Angaben aus dem süddeutschen Raum von Hötzl et al. (1987) und Heider (1994) liegen. Eine mögliche Erklärung für die Abweichungen

könnte ein systematischer Fehler sein. Wird die Aktivität des  $^{134}\text{Cs}$  anhand der Linien bei 604 keV und 795 keV über eine mittels Einliniennukliden erstellte Effektivitätskurve ausgewertet, so führt dies aufgrund der möglichen Kaskadenzerfälle zu einer Unterschätzung des Werts. D. Obrikat (BfS, pers. Mitt. 2000) gab die in diesem Fall für die damals vom SAAS bestimmten  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten entstehenden möglichen Abweichungen mit 8 ... 25 % an, was eine Überschätzung des daraus berechneten Tschernobyl-Faktors um denselben Prozentsatz zur Folge hätte. Berücksichtigt man diese Angabe, so würde das die aus Meßwerten des SAAS (SAAS 1987a, 1987b, 1988a) berechneten Tschernobyl-Faktoren in den Bereich anderer Literaturwerte senken. Eine weitere Ursache für höhere  $f_{\text{Tsch}}$ -Werte kann die Probenwahl sein (vgl. Dörr u. Münnich 1987b; Simopoulos 1989; Tabelle 19). Dörr u. Münnich (1987b) beispielsweise bestimmten einen Wert von  $2.1 \pm 0.2$  anhand von Pflanzenmaterial („Baum, Nadeln und Blätter“). Untersuchungen der Stoffkreisläufe, z. B. im Ökosystem Wald, zeigen jedoch, daß selbst in einjährige Fichtennadeln oder Blätter schon Waffen-Cs eingetragen worden sein kann (Irlweck et al. 1999).

Aus den Untersuchungsergebnissen eines weltweiten Meßnetzes, welches ursprünglich zur Überwachung von Nuklearwaffenfallout eingerichtet worden war (routinemäßige Niederschlagsbeprobungen und wöchentliche Messungen der Aktivitätskonzentrationen in Luft an sechs Meßstationen in Großbritannien sowie mehreren Stationen in Übersee; Harwell Laboratory, UK), und verschiedener ergänzender Beprobungen des Tschernobyl-Fallouts schließen Cambray et al. (1987) auf sowohl zeitliche als auch geographische Variationen von  $f_{\text{Tsch}}$ . Die Autoren führen dies u. a. zurück auf unterschiedliche Einsatzzeiten der Brennelemente sowie lokale Inhomogenitäten der Neutronenflußdichten im Reaktorkern, welche in variierenden  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnissen resultieren. Untersuchungen von  $f_{\text{Tsch}}$  in Luft in Skandinavien zeigten laut Gudiksen et al. (1989) ebenfalls ein zeitlich variierendes, d. h. tendenziell steigendes Isotopenverhältnis. Als Erklärung wird für möglich gehalten, daß älterer Kernbrennstoff aufgrund einer höheren spezifischen Aktivität, und somit auch höherer thermischer Dichte, vorzugsweise in den früheren Stadien des Unfalls emittiert wurde, während neuerer Kernbrennstoff im wesentlichen erst später graduell freigesetzt wurde (Cambray et al. 1987; Gudiksen et al. 1989). Dies wird auch unterstützt durch den zeitlichen Verlauf des  $^{137}\text{Cs}/^{103}\text{Ru}$ -Aktivitätsverhältnisses in der Umgebungsluft (Cambray et al. 1987). Aus dem Vergleich der eigenen Untersuchungsergebnisse mit denen von z. B. Cambray et al. (1987) schließen Gudiksen et al. (1989) auf ein Aktivitätsverhältnis von knapp über 1.5 in älterem Kernbrennstoff, und etwa 2.0 in jüngerem Brennstoff.

Die verschiedenen Emissionsphasen des Reaktorunfalls (Hohenemser et al. 1986a; Appleby u. Luttrell 1993; NEA 1996; UNSCEAR 2000) zeigten sich in einigen Gebieten prinzipiell durch zwei Maxima im zeitlichen Verlauf der Aktivitäten kontinuierlicher Aerosol- und Niederschlagsbeprobungen, wobei Bondietti u. Brantley (1986) und Joshi (1987) im Fallout der beiden Phasen unterschiedliche RN-Zusammensetzungen und Aktivitätsverhältnisse (z. B.  $^{137}\text{Cs}/^{103}\text{Ru}$ ) nachwiesen. Laut Joshi (1987) waren die beiden Aktivitätsmaxima zudem durch voneinander abweichende  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisse von 1.7 und 2.1 gekennzeichnet; ähnliche Tendenzen sind auch in den Meßergebnissen von Bondietti u. Brantley (1986) erkenntlich. Allerdings war der jeweilige lokale Depositionsverlauf nach dem Tschernobyl-Unfall generell stark abhängig von den vorherrschenden meteorologischen Bedingungen sowie der Lage relativ zu den verschiedenen Luftströmungen, welche den radioaktiven Fallout transportierten (vgl. Hohenemser et al. 1986a; König et al. 1986; Thomas u. Martin 1986; Denschlag et al. 1987; Hötzl et al. 1987; SAAS 1988b; Hirose u. Sugimura 1990; Brandt 1998). In Chilton (UK) beispielsweise wurde ein neuerlicher Aktivitätsanstieg in der Umgebungsluft am 7./8.5.1986 durch Rezirkulationsprozesse derselben Luftströmung verursacht (Smith u. Clark 1986; Cambray et al. 1987). Obwohl auch Denschlag et al. (1987) und Hötzl et al. (1987) zwei Phasen unterschiedlicher Aktivitätsverhältnisse (z. B.  $^{137}\text{Cs}/^{103}\text{Ru}$ ) im Fallout ausmachen konnten, wiesen diese jedoch vergleichbare  $f_{\text{Tsch}}$ -Werte auf. Die hier untersuchten Filterstäube entstammten monatlichen Beprobungen (Kap. 3.3.5), und erlauben somit keine detaillierten Aussagen zum Depositionsverlauf des Tschernobyl-Fallouts im Freiburger Raum. Generell kann auch die Frage, ob die Kontamination des Erzgebirges und Oberschwabens durch Luftströmungen unterschiedlichen zeitlichen Ursprungs über

Tschernobyl (vgl. Kap. 2.3) auch verschiedene Werte für  $f_{\text{Tsch}}$  an beiden Lokalitäten verursacht hat, anhand der durchgeführten Messungen und vorliegenden Literaturangaben (Tabelle 18 u. Tabelle 19) nicht eindeutig geklärt werden.

Tabelle 19: Vergleich des anhand von Filterstaubproben in Freiberg bestimmten Tschernobyl-Faktors  $f_{\text{Tsch}}$  mit Literaturwerten

Zitat	Faktor $f_{\text{Tsch}}$	Bezugsdatum	Ort	Probenart (Anzahl bzw. Zeitintervall; Zeitraum)
Aarkrog 1988a	$\varnothing 1.80^{1)}$	26.4.1986	Risø, Dänemark	Luftfilter, trockene Deposition, Gras (3; 26.–29.4.1986)
Aoyama et al. 1986	$2.0 \pm 0.3$	Beprobungsdatum	Tsukuba, Japan	Luftfilter (11; 3.–15.5.1986)
Battiston et al. 1987	1.84 ... 1.90	k. A.	Nordostitalien	Luftfilter und Gras (ca. 50; ab 29.4.1986)
Battiston et al. 1987	1.87	1.5.1986	Nordostitalien	Boden (k. A., Anfang Juni 1986)
Cambray et al. 1987	$1.7^{1)}$	Beprobungsdatum bzw. Intervallmitte	UK; Tromsø, Gibraltar, Hong Kong	Luftfilter (täglich in Chilton, UK, ansonsten wöchentlich; ab Mai 1986)
Denschlag et al. 1987	$2.0 \pm 0.6^{1)}$	26.4.1986	Mainz	Regen (11; 3.–29.5.1986)
Denschlag et al. 1987	$2.0 \pm 0.2^{1)}$	26.4.1986	Wiesbaden	Luftfilter (8; 30.4.–29.5.1986)
Devell et al. 1986	2.0	k. A.	Studsvik, Schweden	Luftfilter (< täglich; 28.4.–9.5.1986)
Dörr u. Münnich 1987b	$2.1 \pm 0.2$	k. A.	Westdeutschland	Baum, Nadeln und Blätter (k. A.)
Heider 1994 <sup>2)</sup>	$1.73 \pm 0.03$	1.5.1986	Bodensee	Sedimentkerne (8 Kerne; 12./13.10.1992)
Hötzl et al. 1987	$1.75 \pm 0.06^{1)}$	26.4.1986	Neuherberg, nahe München	Luftfilter (33; 29.4.–31.12.1986) und atmosph. Deposition, naß und trocken (5; 29.4.–1.6.1986)
Kirchner u. Noack 1988	$1.89 \pm 0.03^{1)}$	6.5.1986	Garching, nahe München	Boden, Vegetation, Regen, Staub, etc. (22; 2.–20.5.1986)
SAAS 1987a	$\varnothing 2.0^{1)}$	unkorrigiert	ehem. DDR	Luftfilter, Regen, Milch, etc. (k. A.; April/Mai 1986)
SAAS 1987b				
Sadasivan u. Mishra 1986	$\varnothing 1.97^{1)}$	26.4.1986	(Bombay, Indien)	Wischproben von Flugzeugen, gelandet in Bombay (5; 2.–29.5.1986)
Seewald 1991	$1.83 \pm 0.18$	1.5.1986	Bodensee	Sedimentkerne (36 Schichten; 26.11.1990)
Simopoulos 1989	$2.04 \pm 0.02$	1.5.1986	Griechenland	Angabe nicht eindeutig, vermutlich Boden (0 ... 1 cm Tiefe, Mai – Nov. 1986)
Sloof u. Wolterbeek 1992	$1.65 \pm 0.34$	k. A.	Niederlande	Flechten (20; Juli und Nov. 1986)
Solem u. Gaare 1992	$1.86 \pm 0.04$	k. A.	Dovre fjell, Norwegen	Flechten (10; Mai 1986)
Thomas u. Martin 1986	$1.98^{1)}$	k. A.	Paris, Frankreich	Luftfilter (17; 29.4.–21.5.1986)
nach U. Wahl 1987, zitiert in Lindner u. Recknagel 1988	$1.66 \pm 0.17$ $1.70 \pm 0.14$	26.4.1986 k. A.	Konstanz Singen	Regen (1; 30.4.1986) Luftfilter (1; k. A.)
<b>eigene Messungen</b>	<b><math>1.83 \pm 0.13</math></b>	<b>1.5.1986</b>	<b>Freiberg, Sachsen</b>	<b>Luftfilterstaub (Belüftungsanlage der Universitätsbibliothek)</b>

k. A. keine Angabe

<sup>1)</sup> Zur besseren Vergleichbarkeit wurden reziproke Angaben (Aktivitätsverhältnis  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ) entsprechend der hier verwendeten Definition von  $f_{\text{Tsch}}$  (Aktivitätsverhältnis  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ ) umgerechnet.

<sup>2)</sup> Angaben basieren auf Untersuchungsergebnissen von Richter (1993).

Bürmann et al. (1994) wählten aufgrund eigener Untersuchungen (Richter 1993; Heider 1994) und den Arbeiten von Hötzl et al. (1987) im Münchner Raum einen Wert von  $f_{\text{Tsch}} = 1.75$  (Bezugszeitpunkt 1.5.1986) zur Auswertung von Proben süddeutscher Standorte, welche vorwiegend durch Niederschlagsereignisse kontaminiert worden waren. Unter Verweis auf Untersuchungen in Großbritannien legen die Autoren dar, daß für nördlichere Gebiete, in denen höhere Beiträge trockener Deposition am Gesamteintrag verzeichnet werden konnten, ein Wert von etwa 1.6 zutreffender wären, da in Aerosolen von einem geringeren anfänglichen  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis ausgegangen werden könne (Bürmann et al. 1994). Die in diesem Zusammenhang aufgeführte Referenz Coughtrey et al. (1991) führt jedoch Verhältnisse im Bereich von 1.5 ... 2.0 für das gesamte Vereinigte Königreich bzw. von 1.4 ... 1.8 für Cumbria an. Dabei weisen Coughtrey et al. (1991) auf eine starke Variabilität des Verhältnisses hin, und verwenden den in Bürmann et al. (1994) zitierten Wert  $f_{\text{Tsch}} = 1.6$  im speziellen für ihre Untersuchungen im südwestlichen Cumbria. Die Angaben in Coughtrey et al. (1991) werden auch von Beresford et al. (1992) diskutiert, wobei die Autoren ebenfalls die hohe Variationsbreite der im nördlichen Großbritannien und Nordirland gemessenen Werte für  $f_{\text{Tsch}}$  betonen, und im Rahmen ihrer eigenen Untersuchungen aus einer umfangreichen Zusammenstellung von Literaturwerten (Luft und Regenwasser) einen arithmetischen Mittelwert von 1.9 für diese Regionen berechnen. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit bestimmten Werte für  $f_{\text{Tsch}}$  (Tabelle 18) unterstützen die Annahme deutlich niedrigerer Isotopenverhältnisse für Gebiete, in denen der Tschernobyl-Fallout von trockener Deposition dominiert worden war (vgl. Witterungsdaten zum Untersuchungsgebiet in Anhang C.1; SAAS 1987a, 1988b), ebenfalls nicht. Auch im Vergleich der Literaturwerte (Tabelle 19) läßt sich dies nicht bestätigen.

## 6 Waldbodenprofile: Ergebnisse und Diskussion

### 6.1 Tiefenverteilungen der Radionuklide in den Fichtenwaldböden

Wie in Kap. 4 dargestellt, konnten die an osterzgebirgischen Fichtenwaldstandorten untersuchten Böden alle als (ursprüngliche) Braunerden mit jedoch variierenden Podsolierungsstadien entsprechend Kap. 3.3.1 angesprochen werden (s. Übersicht der Beprobungen, Tabelle 13, u. Zusammenstellung aller bodenkundlichen Ansprachen, Anhang D.1). Zudem unterscheiden sie sich in ihrem Ausgangsgestein und der Humusausprägung. Die Unterschiede und Gemeinsamkeiten der RN-Tiefenverteilungen dieser Profile können somit unter mehreren Aspekten miteinander verglichen werden. An dem süddeutschen Standort lag eine podsolige Parabraunerde vor. Das zugrundeliegende Jungmoränengestein steht bezüglich seiner Entstehung und Zusammensetzung in deutlichem Kontrast zu den Gesteinen des Erzgebirges, was sich z. T. auch in den Gehalten natürlicher RN widerspiegelt. In dem oberschwäbischen Profil werden v. a. auch die Auswirkungen des in Kap. 4 diskutierten stärkeren RN-Eintrags nach dem Tschernobyl-Unfall sichtbar. Um die Unterschiede und Übereinstimmungen der Tiefenverteilungen aufzuzeigen, werden im ersten Teil dieses Kapitels die Untersuchungsergebnisse aller Profile, mit den erzgebirgischen beginnend, dargestellt und im zweiten Teil die Einflußgrößen der Verteilungen diskutiert. Hintergrundinformationen sowohl zur Ergebnisdarstellung als auch zur Diskussion können z. B. Rehfuess (1990), Schachtschabel et al. (1992) und Otto (1994) entnommen werden.

In der Literatur werden die gemessenen Aktivitäten zumeist als Konzentrationen  $A_{\text{konz}}$  in  $\text{Bq}/(\text{m}^2 \text{ cm})$  oder als spezifische Aktivitäten  $A_{\text{spez}}$  in  $\text{Bq}/\text{kg}$  angegeben. In der vorliegenden Arbeit sind, sofern nicht anders vermerkt, die spezifischen Aktivitäten dargestellt. Da sie sich direkt aus der Auswertung der Messungen ergeben, können sie als Basisdaten aufgefaßt werden. Die spezifische Aktivität einer Bodenprobe ist ein Maß für das Speicherverhalten des Bodenmaterials bezüglich des jeweiligen RN. Die Aktivitätskonzentration dagegen ist von der Lagerungsdichte (bzgl. Trockenmasse, in  $\text{g}/\text{cm}^3$ ; Trockenrohddichte) des Bodenmaterials abhängig und kann als Maß für das Speicherverhalten des betrachteten Bodenkompartmentes angesehen werden.

Bei der Berechnung der Unsicherheiten von  $A_{\text{konz}}$  sind neben der Meßunsicherheit der spezifischen Aktivität auch die Unsicherheit der bestimmten Lagerungsdichte des Bodenmaterials zu beachten. Während die Grundfläche über die Beprobung hinweg meist gut eingehalten werden kann, ist die Bestimmung der Horizonttiefen über das in Kap. 3.3.2 beschriebene 16-Punkt-Raster nicht in allen Fällen zufriedenstellend, z. B. bei stark welligen oder zungenförmigen Horizontgrenzen. Auch von der Seite eingewachsene dickere Wurzeln oder Gesteinsblöcke können meist nicht berücksichtigt werden und erschweren die Bestimmung der Lagerungsdichte. Im Profil Eggwald störten Wühlmausgänge im Oh, Ah und oberen B-Horizont, welche mit Material tieferer Bereiche verfüllt waren. Das von unten hochgedrückte Fremdmaterial wurde entfernt und ging nicht ins Profil mit ein, woraus sich in den entsprechenden Horizonten geringere Gesamtmassen ergaben und damit geringere Dichten. Mit zunehmender Beprobungstiefe fallen bei der Entnahme mineralischen Materials sehr große Probenmassen an, so daß hier z. T. nur Teile des Beprobungshorizonts entnommen wurden. Eine Darstellung der Aktivitätskonzentrationen des gesamten Bodenprofils ist somit meist nicht möglich. Zur Bestimmung der Verteilungsmaxima wurden dennoch sowohl  $A_{\text{spez}}$  als auch  $A_{\text{konz}}$  verwendet.  $A_{\text{konz}}$  wird jedoch nur bei Nichtübereinstimmung in der Diskussion aufgeführt und zum Literaturvergleich verwendet. Bei der Berechnung des Inventars  $A_F$  in  $\text{Bq}/\text{m}^2$  sind nur die Unsicherheiten von  $A_{\text{spez}}$  und der Beprobungsfläche zu beachten. Die Unsicherheiten der Horizontmassen sind generell vernachlässigbar. War die Bestimmung der Lagerungsdichten nicht möglich oder aufgrund erschwelter Verhältnisse im Gelände fehlerbehaftet, so wurden plausible Werte angenommen bzw. anhand der Beprobungsaufzeichnungen Korrekturen an den berechneten Dichten vorgenommen.

### 6.1.1 Die Waldstandorte im Osterzgebirge: Holzhau, Nassau 1 und Nassau 2

Die Holzhau genannte Probennahmestelle liegt in einem Waldstück in ca. 4 km Entfernung Luftlinie zum teilweise unbewaldeten Kamm an der Kreuzung der Alten Torfstraße mit dem Alten Mühlweg (Waldabteilung 52; Abb. 20). Das Waldgebiet gehörte bis 1995 zum Forstrevier Holzhau, seither ist es dem Revier Rechenberg zugeordnet (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998).

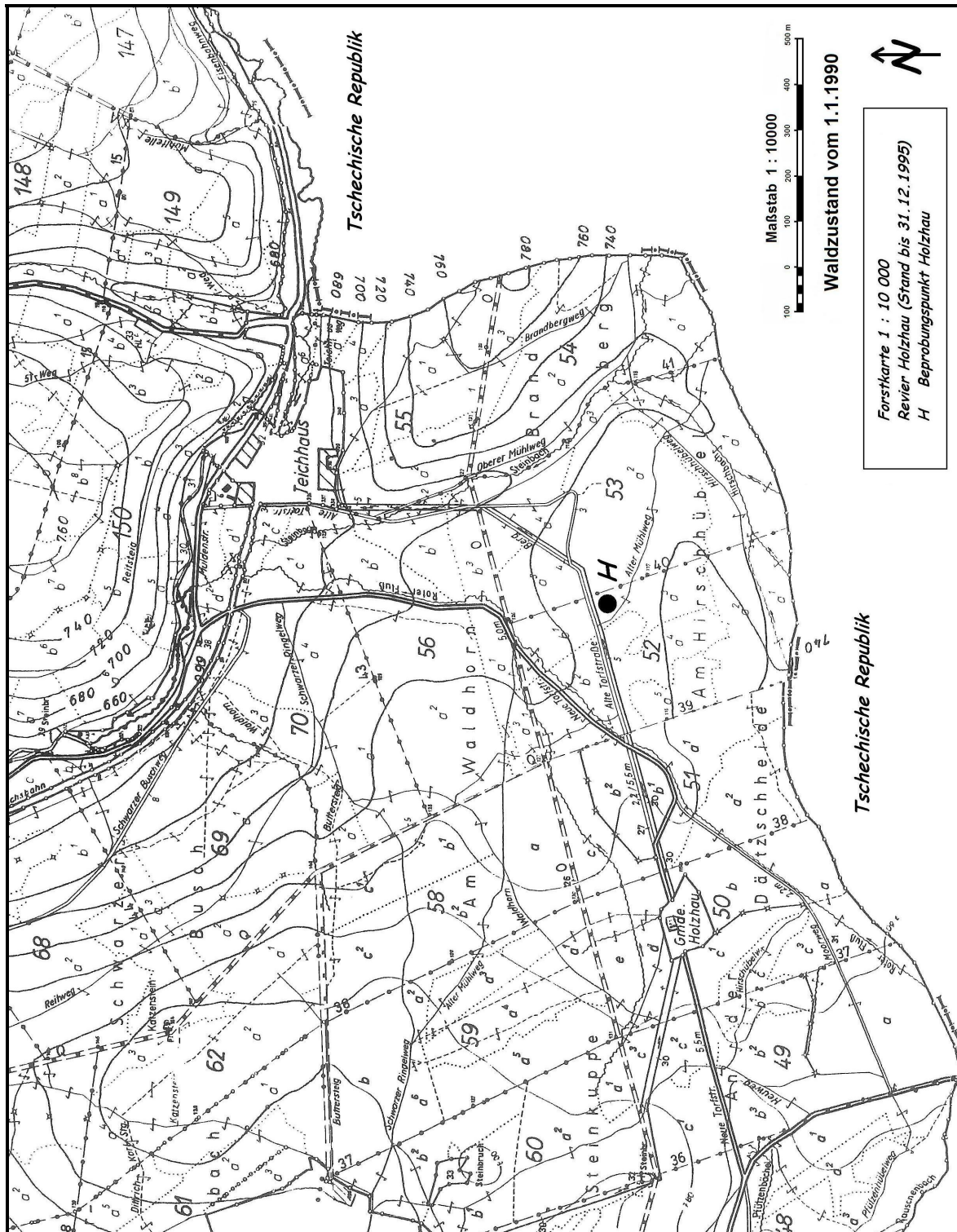


Abb. 20: Ausschnitt der Forstkarte 1:10000 des Reviers Holzhau (Stand bis 1995; Ausschnitt verkleinert, Karte verändert nach V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 2006) mit dem Holzhau genannten Beprobungspunkt (H; Holzhau liegt ca. 3 km in nordwestlicher Richtung)



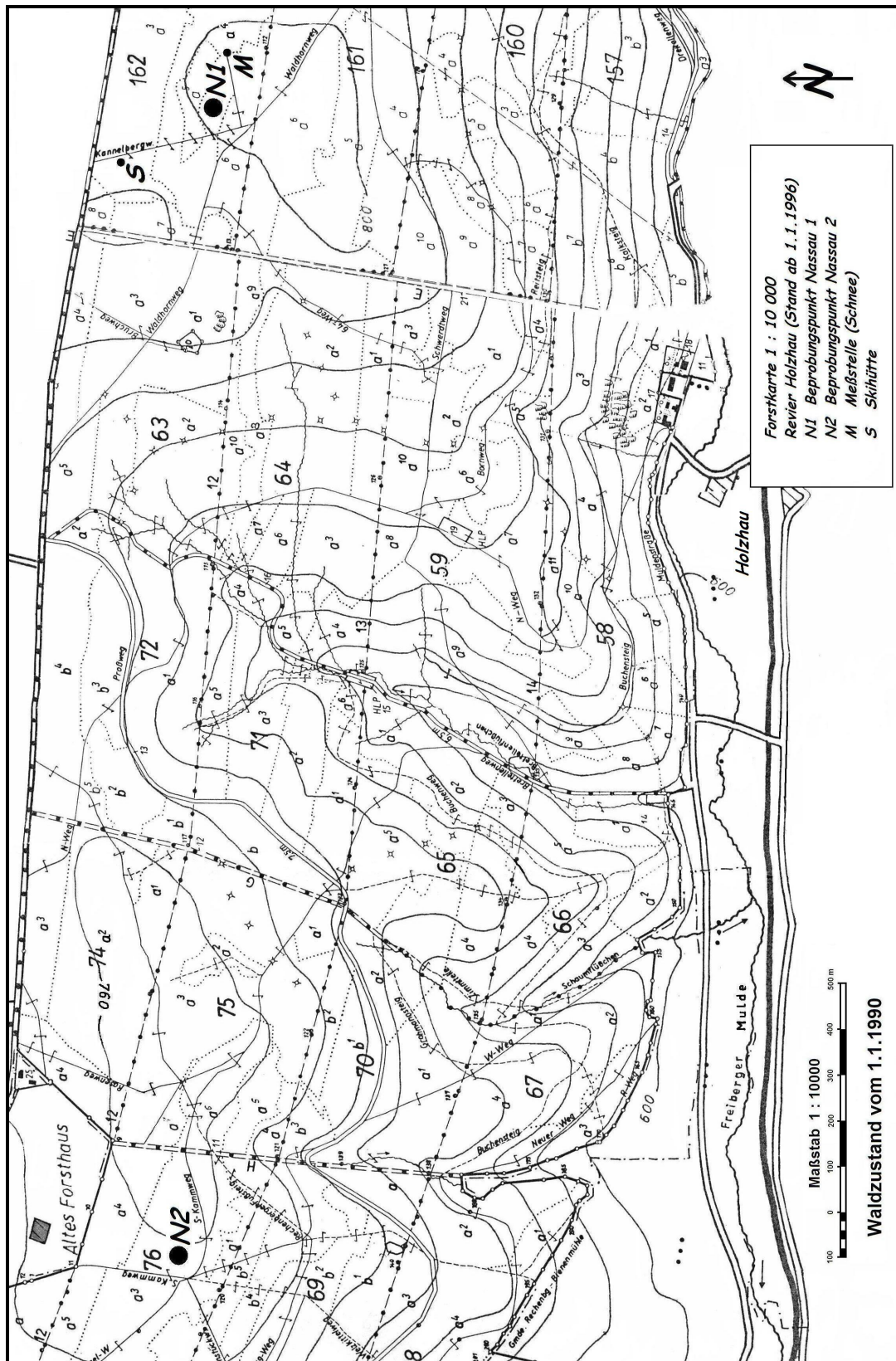


Abb. 21: Ausschnitt der Forstkarte 1:10000 des Reviers Holzgau (Stand ab 1996; Ausschnitt verkleinert, Karte verändert nach V. Geyer, Forstrevier Holzgau, pers. Mitt. 1996) mit den Nassau 1 und Nassau 2 genannten Beprobungspunkten (N1 und N2)

Die als Nassau 1 und Nassau 2 bezeichneten Beprobungspunkte sind etwa 7 km vom eigentlichen Gebirgskamm entfernt. Die Probennahme Nassau 1 wurde am Kannelberg, nahe des Kannelbergwegs, durchgeführt (Abt. 162; Abb. 21). Die Beprobungsstelle Nassau 2 liegt am S-Kammweg in dem Waldstück oberhalb des Gasthofs „Altes Forsthaus“ (Abt. 76; Abb. 21). Letzterer befindet sich am südöstlichen Ortsende von Nassau, einem langgestreckten Waldhufendorf. Das Waldgebiet, in dem beide Standorte liegen, ist seit 1996 dem Forstrevier Holzhau zugeordnet (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998).

### Das Profil Holzhau

Als ein geeignetes Beispiel für ein „typisches“ Bodenprofil sowohl für die im Erzgebirge untersuchten Waldstandorte als auch für Fichtenwaldböden allgemein wird im folgenden das Profil am Beprobungspunkt Holzhau dargestellt (Schleich et al. 1995). Wie in Kap. 4 diskutiert, bietet die klimatisch exponierte Kammlage im Erzgebirge zwar günstige Bedingungen für die Deposition sowohl natürlicher und kosmogener als auch künstlicher RN, der Tschernobyl-Fallout wurde jedoch im Vergleich zu anderen Gegenden, z. B. dem Bodenseeraum, in geringeren Konzentrationen deponiert. Somit können anhand des Profils Holzhau typische Verteilungsmuster der  $\gamma$ -spektrometrisch untersuchten natürlichen, kosmogenen und künstlichen RN im Boden gezeigt werden.

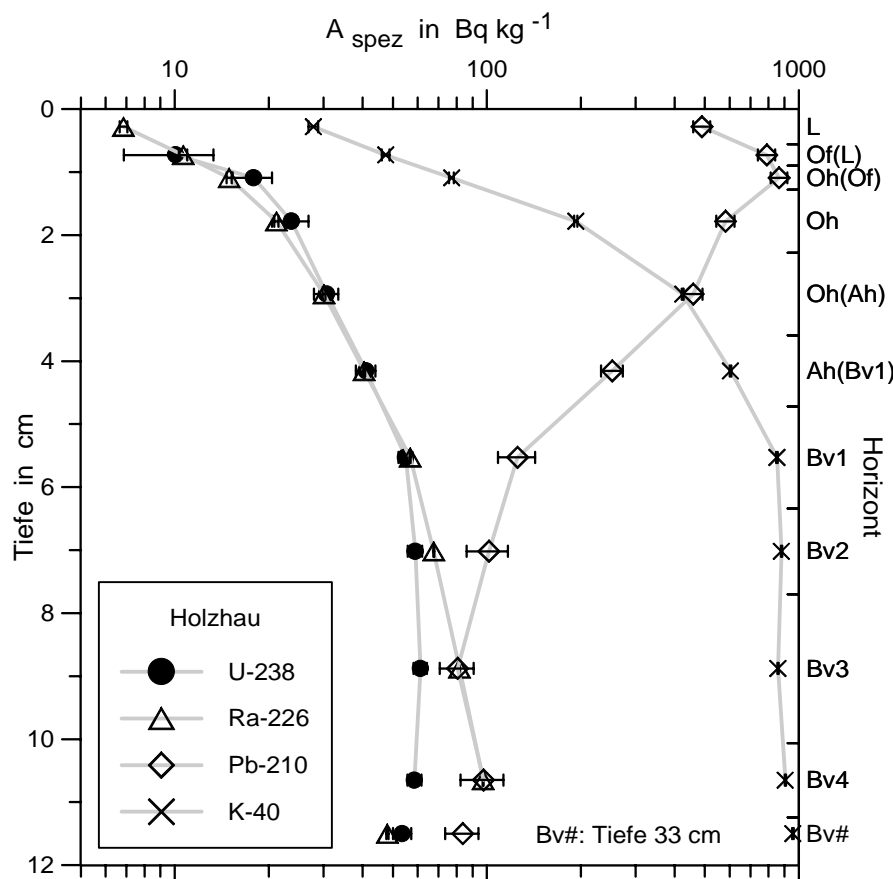
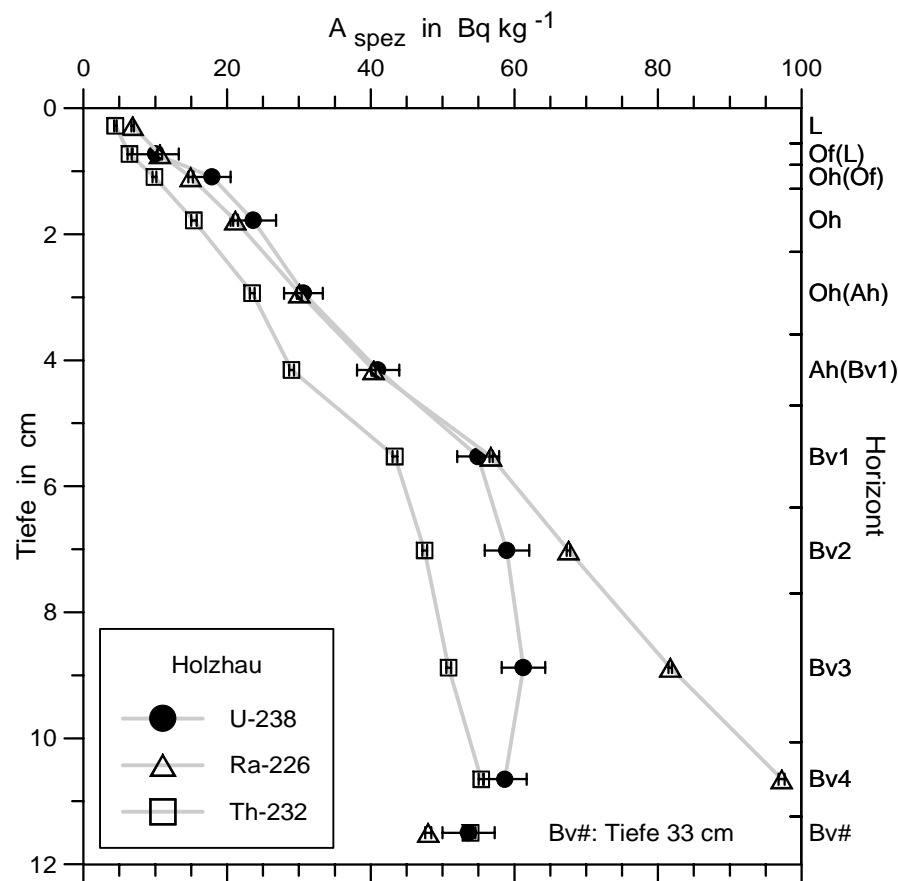
Die Beprobung wurde nahezu direkt den vorliegenden Horizonten entsprechend durchgeführt, da die Humusaufgabe (Horizonte L, Of und Oh) von nur etwa 3.5 cm keine weitergehende Unterteilung der Horizonte gestattete. Der in Kap. 3.3.2 beschriebenen Vorgehensweise folgend, wurden zehn Beprobungshorizonte bis zu einer maximalen Tiefe von knapp 12 cm entnommen. Zusätzlich wurde Bodenmaterial mit dem Spaten aus einer mittleren Tiefe von ca. 33 cm Tiefe beprobt; diese Probe ist in der Ergebnisdarstellung mit Bv# bezeichnet und in 11.5 cm Tiefe, d. h. in Anschluß an Bv4, aufgetragen. Die bodenkundliche Ansprache wurde an einem mit dem Spaten freigelegten Bodenstück und während der Beprobung durchgeführt (Anhang D.1.1). Der sehr dünne AeAh-Horizont des podsolierten Bodens wurde erst bei einer späteren nochmaligen Begehung des Geländes angesprochen und könnte im hier vorgestellten Profil im Beprobungshorizont Ah(Bv1) enthalten sein (L. Zöller, Universität Bonn, pers. Mitt. 1998).

Abb. 22 und Abb. 23 zeigen die Tiefenverteilungen der spezifischen Aktivitäten von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen und des  $^{40}\text{K}$  (vgl. Schleich et al. 1995). Die Werte des  $^{238}\text{U}$  und des  $^{226}\text{Ra}$  sind in Abb. 23 nochmals mit eingezeichnet, um alle bestimmten RN der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe vergleichen zu können. (Entsprechend Kap. 3.1.4 sind damit im folgenden stets die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger gemeint, sofern nicht anders vermerkt, z. B. durch den Hinweis auf die Auswertung über die 186 keV-Linie.)  $^{238}\text{U}$  konnte in der Streulage L nicht nachgewiesen werden. Die spezifischen  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivitäten steigen mit zunehmender Bodentiefe kontinuierlich an. Obwohl sie in den Verwitterungshorizonten Bv2 ... Bv4 Ungleichgewicht zwischen  $^{238}\text{U}$  und den  $^{226}\text{Ra}$ -Folgern aufweisen, nähern sie sich in der Probe aus 33 cm Tiefe wieder einander an mit  $(54 \pm 4)$  Bq/kg ( $^{238}\text{U}$ ) und  $(48 \pm 1)$  Bq/kg ( $^{226}\text{Ra}$ ). Der Mittelwert der spezifischen  $^{238}\text{U}$ -Aktivität in Bv1 ... Bv4 beträgt  $(58 \pm 2)$  Bq/kg.

Die spezifische  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität ist in Of(L) und Oh(Of) mit bis zu 860 Bq/kg maximal. In den organischen Horizonten und dem oberen Bereich der Verwitterungshorizonte besteht ein starkes Ungleichgewicht zwischen  $^{210}\text{Pb}$  und den vorangehenden RN der  $^{238}\text{U}$ -Reihe mit einem  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor von bis zu 74 in Of(L). In Bv3 und Bv4 stimmen die Werte überein. Der  $^{210}\text{Pb}$ -Wert in 33 cm Tiefe dagegen beträgt  $(84 \pm 10)$  Bq/kg und liegt damit über den Werten des  $^{238}\text{U}$  und der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger.

Die Folgenuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe liegen im radioaktiven Gleichgewicht vor (vgl. Schleich et al. 1995), so daß in Abb. 23 die gemittelten Werte der Folger  $^{228}\text{Ra}$  und  $^{228}\text{Th}$  dargestellt sind. Die spezifischen  $^{232}\text{Th}$ -Aktivitäten steigen mit zunehmender Tiefe stetig an und erreichen einen Wert in Bv4, welcher gut zu dem Wert der Probe aus 33 cm Tiefe von  $(54 \pm 1)$  Bq/kg paßt.





Die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität steigt mit der Tiefe, bei einem Wert in L von  $(28 \pm 1) \text{ Bq/kg}$  beginnend, kontinuierlich bis Bv1 an (Abb. 23). In den mineralischen Unterbodenhorizonten Bv1 ... Bv4 beträgt der Wert  $(870 \pm 5) \text{ Bq/kg}$ . Die Probe aus 33 cm Tiefe weist eine spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität von  $(956 \pm 6) \text{ Bq/kg}$  auf.

Das kosmogene  $^7\text{Be}$  ist über die vier Beprobungshorizonte L ... Oh bis in knapp 2.5 cm nachweisbar (Abb. 24). Unterhalb des Maximums in L von  $(169 \pm 2) \text{ Bq/kg}$  sinkt die spezifische Aktivität steil mit der Tiefe.

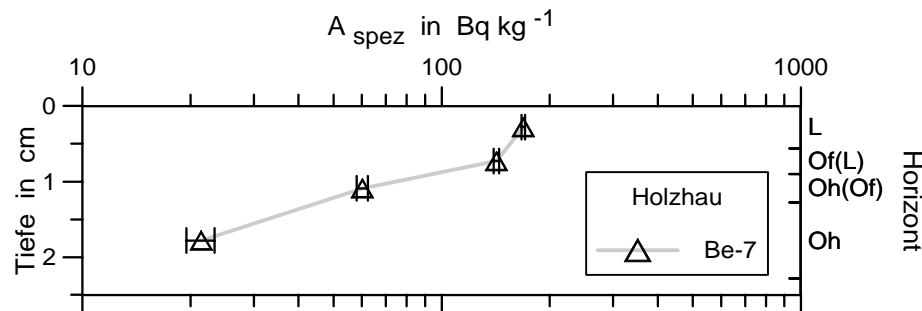


Abb. 24: Holzhaus. Tiefenprofil des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (zerfallskorrigiert auf das Probenahmedatum 29.4.1994; logarithmische Darstellung)

Abb. 25 zeigt die Tiefenprofile der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  (vgl. Schleich et al. 1995). Das kernwaffenbürtige  $^{241}\text{Am}$  konnte im Bereich Of(L) ... Ah(Bv1) (d. h. ca. 0.5 ... 4.5 cm Tiefe) detektiert werden. In der Streulage ist  $^{241}\text{Am}$  nicht nachweisbar. Die spezifische Aktivität ist mit  $(6.2 \pm 0.8) \text{ Bq/kg}$  im Oh-Horizont maximal.

Das aus dem Tschernobyl-Fallout stammende  $^{125}\text{Sb}$  wurde in den Horizonten L ... Bv1 bis in eine Tiefe von etwa 6.5 cm gemessen. Das Maximum der spezifischen Aktivität von  $(11.6 \pm 0.5) \text{ Bq/kg}$  liegt im Oh(Oh)-Horizont.

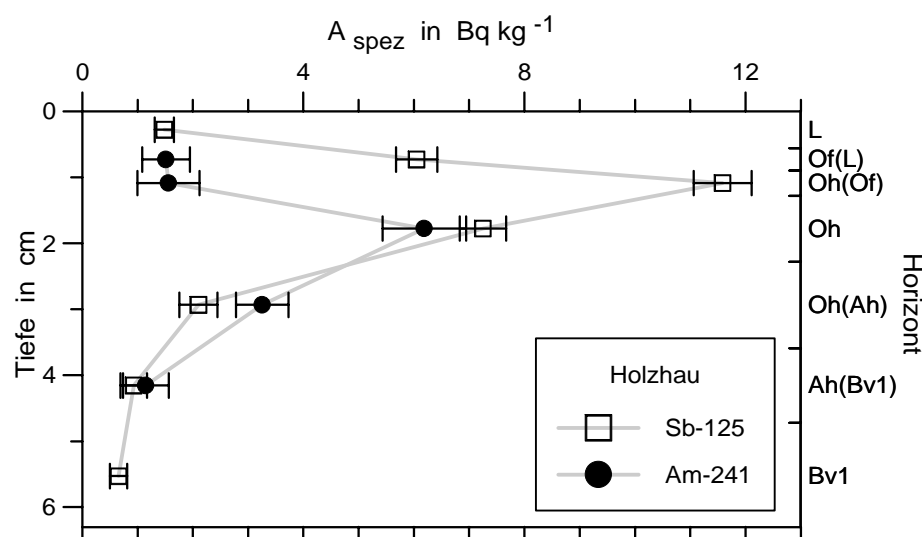


Abb. 25: Holzhaus. Tiefenprofile der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Beprobungsdatum 29.4.1994; verändert nach Schleich et al. 1995)

Beispielhaft für die untersuchten Waldbodenprofile sind in Abb. 26 die Tiefenverteilungen des gemessenen Cs-Isotops  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  sowie die von den Kernwaffentests und dem Tschernobyl-Unfall herrührenden Anteile  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  dargestellt. Die Auftrennung erfolgte unter Verwendung der

$^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten und des Tschernobyl-Faktors mit  $f_{\text{Tsch}} = 1.9 \pm 0.1$  (1986; vgl. Kap. 3.1.4 u. Kap. 5). Für die später vorgestellten Bodenprofile werden nur noch die spezifischen Aktivitäten des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  aufgetragen, da die Information zu den Ausgangswerten des  $^{134}\text{Cs}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  mit im Diagramm beinhaltet ist.

Für die obersten drei Beprobungshorizonte L ... Oh(Of) errechnen sich für  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  anhand der  $^{137}\text{Cs}$ -Trennung Werte von  $< 0$ , d. h. unterhalb der „rechnerischen Nachweisgrenze“. Im Diagramm aufgetragen sind die in den positiven Bereich hineinragenden Bereiche der Unsicherheiten, welche sich aus der Unsicherheitsfortpflanzung entsprechend der Trennung ergeben ( $1\sigma$ ).

Beide Cs-Isotope sind bis in den Verwitterungshorizont Bv4 nachweisbar. In der Probe aus 33 cm Tiefe ist nur noch  $^{137}\text{Cs}$  (d. h.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ) mit einer spezifischen Aktivität von  $(0.7 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  detektierbar. Das Maximum des  $^{134}\text{Cs}$  von  $(14.7 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$  und damit auch das des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  mit  $(342 \pm 18) \text{ Bq/kg}$  befinden sich im Oh(Of)-Beprobungshorizont. Das tiefste Maximum der künstlichen RN weist das aus der  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Trennung resultierende  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  auf. Mit  $(100 \pm 12) \text{ Bq/kg}$  im Oh(Ah)-Beprobungshorizont erhebt es sich aus dem Bereich erhöhter Werte Oh ... Bv1.

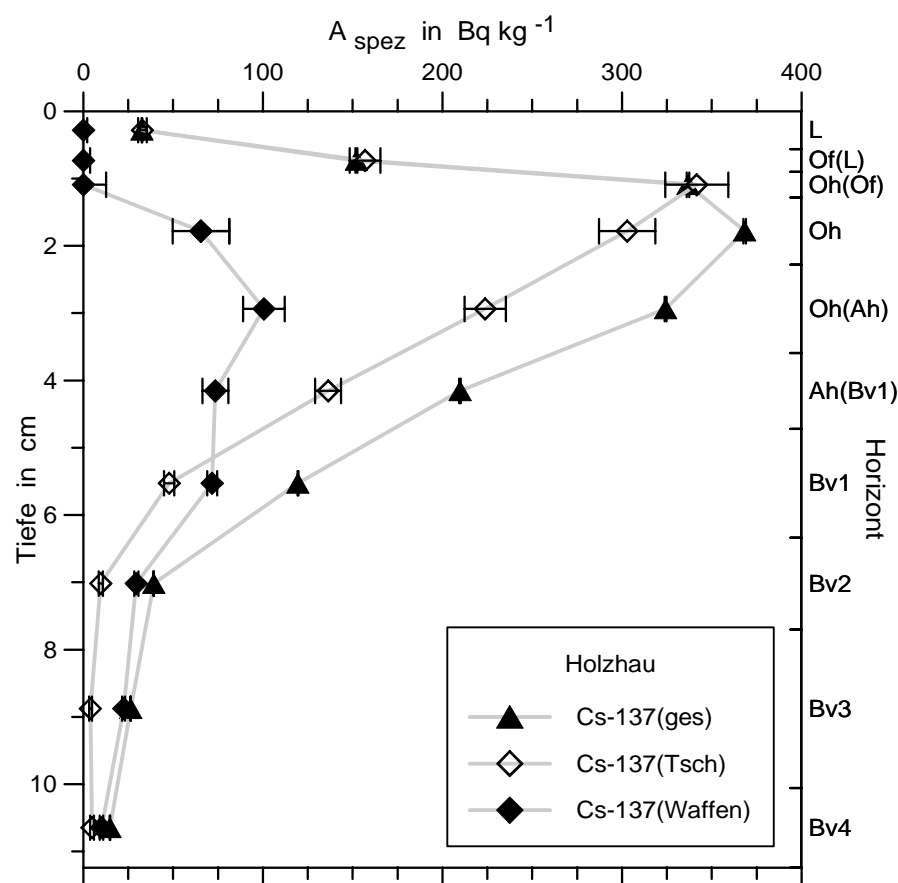


Abb. 26: Holzhaus. Tiefenverteilungen der spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten (zerfallskorrigiert auf das Probenahmedatum 29.4.1994; verändert nach Schleich et al. 1997)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten.

Das Tschernobyl-bürtige Eu-Isotop  $^{154}\text{Eu}$  (Kap. 2.3) konnte in den Beprobungshorizonten Of(L) und Oh(Of) nachgewiesen werden (o. Abb.). Vergleichsmessungen der beiden Proben im INFN UntertageLabor in Gran Sasso, Italien, bestätigten die Detektion von  $^{154}\text{Eu}$  (W. Preuß, INFN Laboratori Nazionali del Gran Sasso, pers. Mitt. 1997). Im Oh(Of)-Horizont war zudem das ebenfalls mit dem Tschernobyl-Fallout eingetragene  $^{106}\text{Ru}$  ( $^{106}\text{Rh}$ ) nachweisbar.

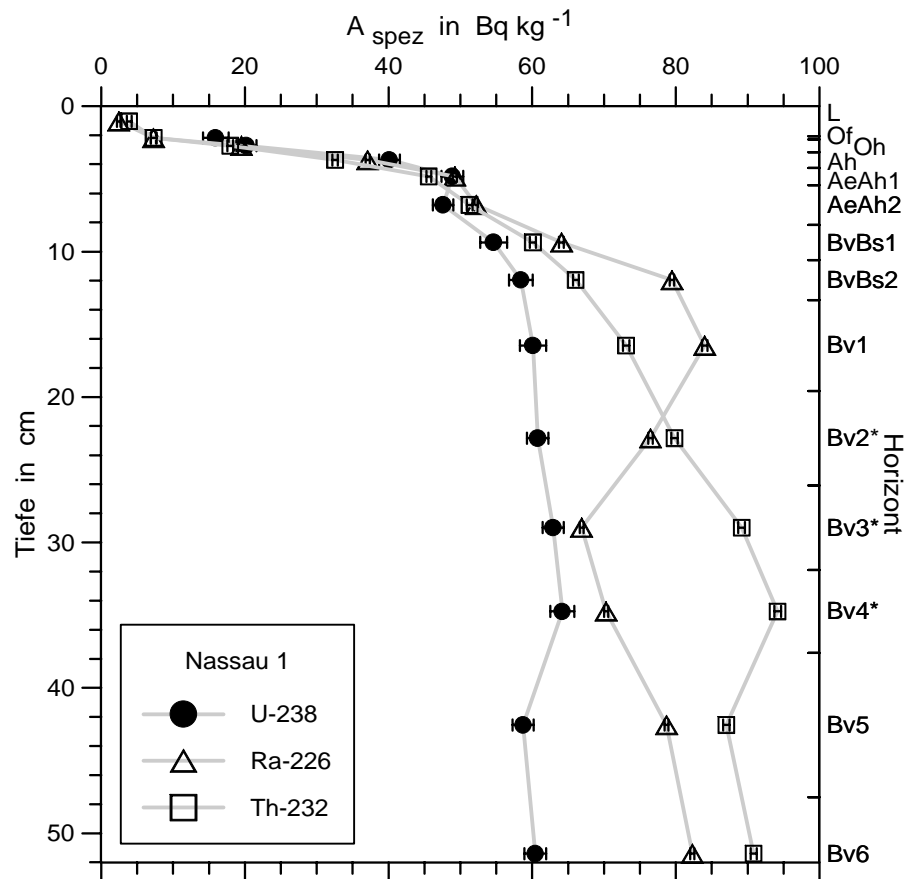


Abb. 27: Nassau 1. Tiefenprofile von  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Folgenukliden der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe im Vergleich zu RN der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe

Die spezifische  $^{238}\text{U}$ -Aktivität wurde über die Werte des  $^{234}\text{Th}$  und des  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  bestimmt,  $^{226}\text{Ra}$  über  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$ . Die  $^{232}\text{Th}$ -Werte wurden aus denen der  $^{228}\text{Ra}$ - und  $^{228}\text{Th}$ -Folger gemittelt. Die mit \* gekennzeichneten Bv-Horizonte weisen starke Solifluktiionsmerkmale auf.

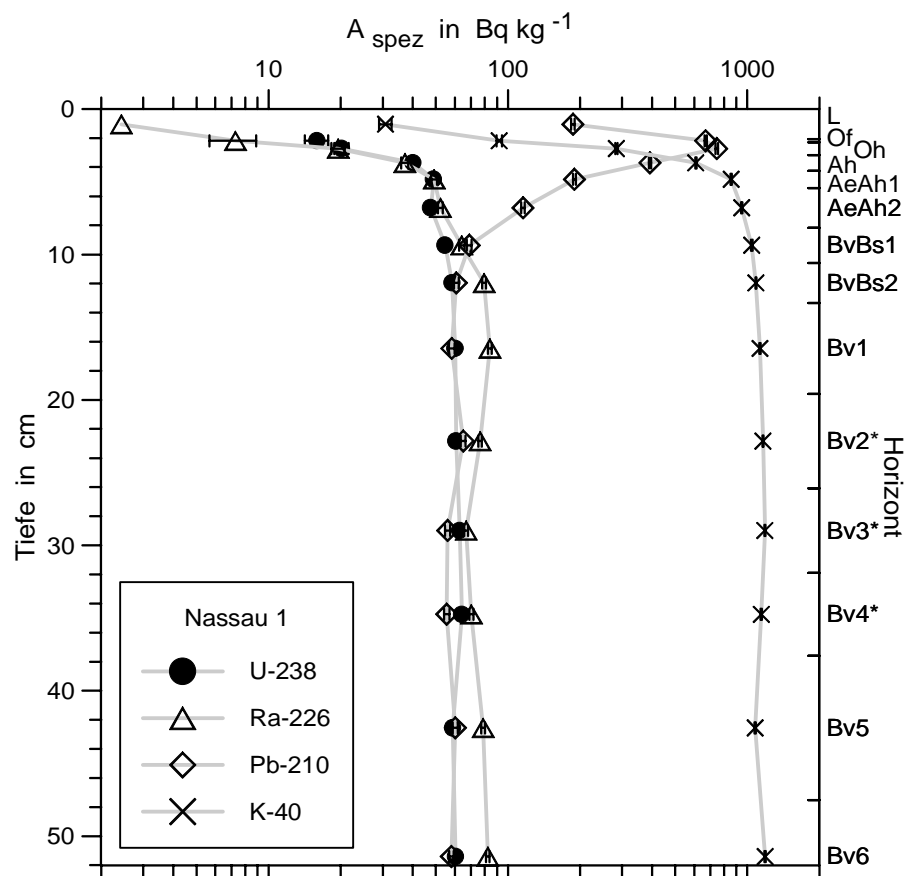


Abb. 28: Nassau 1. Logarithmische Darstellung der Tiefenverteilungen des  $^{210}\text{Pb}$  und des  $^{40}\text{K}$ ; zum Vergleich sind die spezifischen Aktivitäten des  $^{238}\text{U}$  und des  $^{226}\text{Ra}$  entsprechend Abb. 27 mit eingezeichnet

## Das Profil Nassau 1

Zielstellung des Profils Nassau 1 war eine möglichst tiefe, die vorhandenen mineralischen Horizonte weitgehend umfassende Beprobung mit einer ausführlichen Bodenansprache, um eine fundierte Untersuchung der Tiefenverteilung v. a. der natürlichen RN zu ermöglichen. Die Bodenentnahme und bodenkundliche Ansprache erfolgten mit freundlicher Unterstützung durch L. Feldmann (TU Clausthal). Wie das Bodenprofil Holzhau weist auch Nassau 1 eine relativ dünne Humusauflage von nur 3 ... 3.5 cm auf, unter der ein etwa 1 cm dicker Ah-Horizont liegt. Diesem folgen ausgeprägte, z. T. miteinander vermischte AeAh- und BvBs-Horizonte bis in etwa 13 cm Tiefe (vgl. Anhang D.1.2). Es wurden 14 Beprobungsschichten bis zu einer Tiefe von 55 cm entnommen.

Es zeigt sich, hier in noch stärkerem Maße als bei dem anschließend vorgestellten Profil Nassau 2, daß die an einem mit dem Spaten freigelegten Profil durchgeführte Ansprache und die Ansprache der in geringer Entfernung gelegenen eigentlichen Beprobungsstelle bezüglich der Mächtigkeiten v. a. der organischen Horizonte variieren (vgl. Ergebnisdiagramme u. Anhang D.1.2). Einerseits schwanken die Horizontdicken über die Waldbodenfläche hinweg, u. a. in Abhängigkeit vom Bodenrelief, der Entfernung zur Bestockung, der (Baumkronenausdehnung) und des Nadelfalls. Andererseits können die Horizonte während der eigentlichen Beprobung kaum vollständig voneinander getrennt werden. Das liegt in geringerem Maß an der Beprobungstechnik, den Boden schichtweise von oben abzunehmen, was eine „vorausschauende“ Beprobung erschwert. Von größerer Bedeutung sind jedoch Form und Schärfe der Horizontgrenzen und die Ausprägung des horizontspezifischen Bodengefüges, d. h. der räumlichen Anordnung der festen Bodenbestandteile innerhalb jedes Horizonts. Die hier beprobten Humusformen typischer Moder und rohhumusartiger Moder weisen meist verfilzt oder schichtig gelagertes Of-Material bzw. eine bröckelige oder schichtig bis kompakte Lagerung des Oh-Horizonts auf. Die Trennung der teilweise unscharf ineinander übergehenden Horizonte und die weitere Unterteilung der Horizonte ist somit nicht ganz leicht zu bewerkstelligen.

In Abb. 27 und Abb. 28 sind die Tiefenprofile der natürlichen RN  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und ihrer Folger sowie  $^{40}\text{K}$  dargestellt.  $^{238}\text{U}$  konnte nur in der Streulage L nicht nachgewiesen werden. In Of mit einem Wert von  $(16 \pm 2)$  Bq/kg beginnend, steigt die spezifische Aktivität bis BvBs an, um sich ab dort in den gesamten Verwitterungshorizonten Bv um einen Wert von  $(61 \pm 2)$  Bq/kg zu bewegen.  $^{238}\text{U}$  und  $^{226}\text{Ra}$  liegen nur in den Horizonten Oh ... AeAh im Gleichgewicht vor. In den BvBs- und Bv-Horizonten liegen Ungleichgewichte mit einem  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Überschußfaktor von bis zu 1.4 vor. Der mit \* gekennzeichnete Bereich Bv2 ... Bv4 war bei der Beprobung stark blockführend und stellt eine Solifluktionsschicht der letzten Eiszeit dar. Die gemittelte spezifische  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivität in den Bv-Horizonten beträgt  $(76 \pm 1)$  Bq/kg, in der Streulage konnten  $(2.4 \pm 0.2)$  Bq/kg nachgewiesen werden.

Der Verlauf des  $^{210}\text{Pb}$  weist das Maximum in Oh mit  $(744 \pm 8)$  Bq/kg auf. Der  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor in Oh beträgt 38. In dem gesamten Bodenprofil besteht ein  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Ungleichgewicht, ab BvBs2 in Form eines  $^{226}\text{Ra}$ -Überschusses. In den Verwitterungshorizonten Bv liegen die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten ähnlich denen des  $^{238}\text{U}$  bei  $(59 \pm 2)$  Bq/kg.

Da die Folger der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe im Gleichgewicht sind, werden in Abb. 27 die gemittelten Werte gezeigt. In L mit  $(3.9 \pm 0.3)$  Bq/kg beginnend, steigt die spezifische  $^{232}\text{Th}$ -Aktivität erst steiler (bis AeAh1), dann flacher an, um im Bereich Bv3 ... Bv6 einen Wert von etwa 90 Bq/kg zu erreichen.

Die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität beträgt im L-Horizont  $(31 \pm 2)$  Bq/kg. Der Wert steigt bis in AeAh1 sehr steil an und erreicht nach einem flacheren Anstieg einen durchschnittlichen Wert von  $(1146 \pm 7)$  Bq/kg in den Bv-Horizonten.

Das  $^7\text{Be}$ -Tiefenprofil erstreckt sich bis in den humosen Oberbodenhorizont Ah in knapp 4.5 cm Tiefe (Abb. 29). Auch im AeAh ist  $^7\text{Be}$  noch erkennbar, jedoch nicht auszuwerten. In der Streulage ist die spezifische Aktivität mit  $(463 \pm 4)$  Bq/kg maximal. Darunter fällt der Wert sehr schnell mit der Tiefe ab.

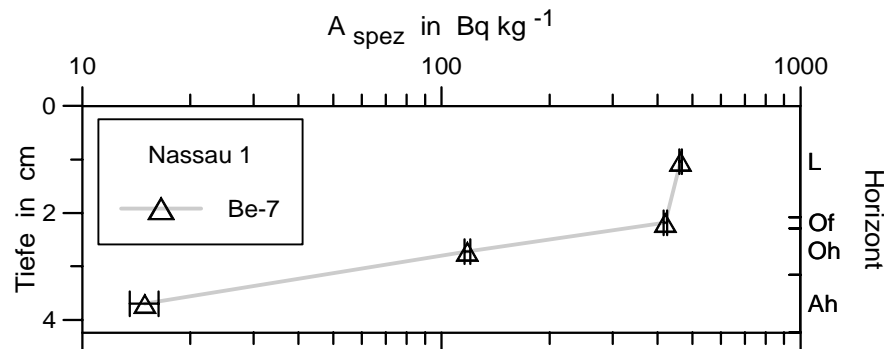


Abb. 29: Nassau 1. Tiefenverteilung des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 28.8.1996; logarithmische Darstellung)

Die Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  sind in Abb. 30 dargestellt.  $^{241}\text{Am}$  ist im Bereich Oh ... AeAh2, d. h. in einer Tiefe von etwa 2.5 ... 8 cm, nachweisbar. Die maximale spezifische Aktivität liegt im Ah-Horizont und beträgt  $(2.4 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$ .

$^{125}\text{Sb}$  ist im Bereich Of ... BvBs1 (2 ... 10.5 cm) detektierbar, mit einem maximalen Wert in Oh von  $(4.2 \pm 0.6) \text{ Bq/kg}$ .

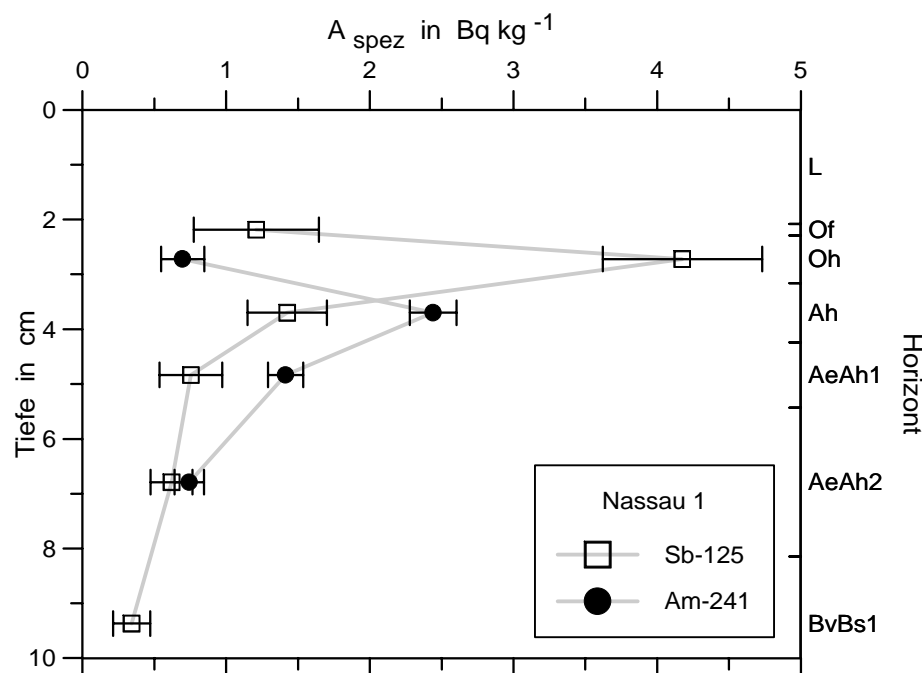


Abb. 30: Nassau 1. Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 28.8.1996)

Abb. 31 zeigt einen Ausschnitt der Tiefenprofile der beiden  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile bis zum BvBs2-Horizont. Betrachtet man das gesamte Bodenprofil (L ... Bv6), so ist  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  (wie das nicht abgebildete  $^{134}\text{Cs}$ ) im Bereich L ... Bv2, d. h. bis in 26 cm Tiefe, detektierbar. Das Maximum der spezifischen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Aktivitäten ist scharf ausgeprägt und liegt mit  $(311 \pm 17) \text{ Bq/kg}$  im Oh-Horizont ( $^{134}\text{Cs}$ :  $(6.4 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$ ). In der Streulage liegt  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  unterhalb der „rechnerischen Nachweisgrenze“; im Diagramm dargestellt ist nur der positive Bereich der Unsicherheiten (vgl. Ergebnisdarstellung Profil Holzhaus). Das Maximum von  $(127 \pm 10) \text{ Bq/kg}$  liegt im Ah-Horizont. Die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Verteilung reicht bis in eine Tiefe von 48 cm (Bv5). Erst im letzten Beprobungshorizont Bv6 ist  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  und damit auch  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  nicht mehr nachweisbar.

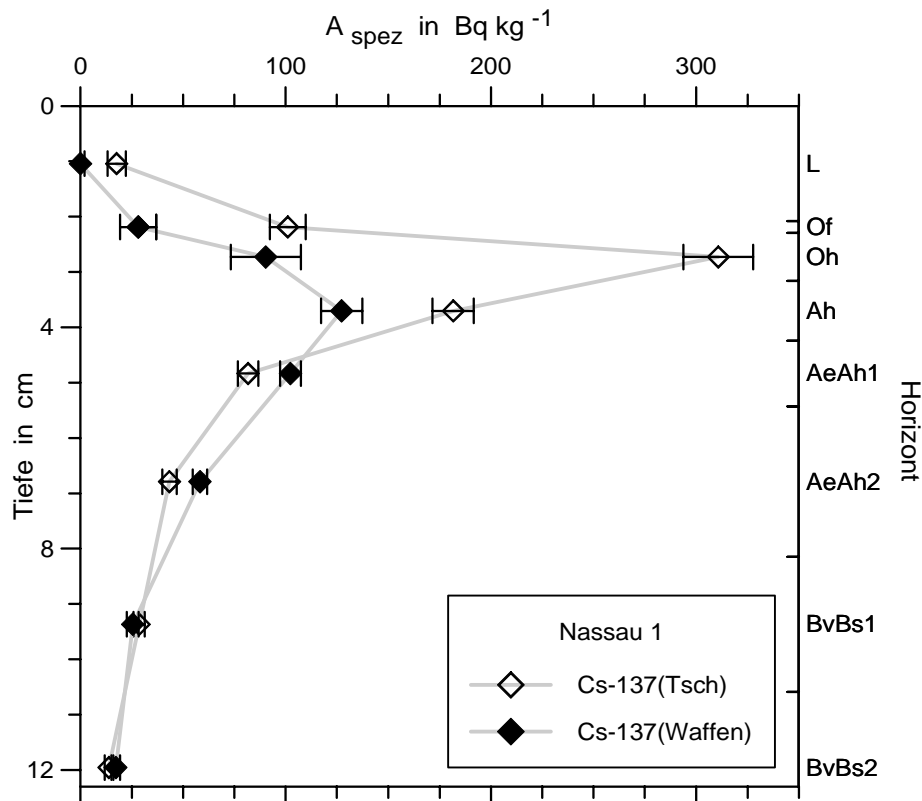


Abb. 31: Nassau 1. Ausschnitt der  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ - und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Tiefenprofile (zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 28.8.1996)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten.

## Das Profil Nassau 2

Die Probenahmen an den nur 2 km voneinander entfernten Fichtenwaldstandorten Nassau 1 und Nassau 2 wurden innerhalb einer Woche in engem Zusammenhang vorgenommen. Die Horizonte und der Bodentyp beider Beprobungspunkte konnten weitgehend übereinstimmend angesprochen werden trotz unterschiedlichen Untergrundgesteins (vgl. Anhang D.1.2 u. D.1.3). Von allen in dieser Arbeit beprobten Waldstandorten weist Nassau 2 jedoch die mächtigste Humusauflage mit über 5 cm auf. Dies ermöglichte auch in den organischen Horizonten eine weitere Untergliederung bei der Beprobung. Insgesamt wurden 15 Proben bis in eine Tiefe von 32 cm entnommen. Im Vergleich zum Profil Nassau 1, wo ein Schwerpunkt auf der Untersuchung der bis in größere Tiefen reichenden vertikalen RN-Verteilung lag, war das Hauptaugenmerk bei der Analyse des Profils Nassau 2 auf das Verhalten v. a. künstlicher RN in den organischen und humushaltigen Horizonten des Fichtenwaldbodens gerichtet (Schleich et al. 2000). Entsprechend Kap. 3.2.1 wurden an Proben dieses Profils auch die ergänzenden Pu-Analysen durchgeführt.

Die Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen sowie des  $^{40}\text{K}$  sind in Abb. 32 und Abb. 33 zu sehen.  $^{238}\text{U}$  ist in L und L(Of) nicht nachweisbar. In Oh erreicht die  $^{238}\text{U}$ -Verteilung einen relativen Maximalwert. Vom mineralischen Oberboden Ah an strebt  $^{238}\text{U}$  auf einen Mittelwert von  $(32 \pm 1) \text{ Bq/kg}$  in den Verwitterungshorizonten Bv1 ... Bv3 zu. Die spezifische Aktivität der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  steigt von L mit  $(1.1 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$  an kontinuierlich mit der Tiefe und weist im Bereich Oh ... Ah2 einen relativ konstanten Wert auf. Nach einem weiteren sprunghaften Anstieg läuft sie auf einen Wert von um  $35 \text{ Bq/kg}$  zu. Das Profil ist von  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewichten geprägt. Im Bereich Of(Oh) ... Ah(Oh) besteht ein  $^{238}\text{U}$ -Überschuß (Abb. 32). Vom AeAh-Horizont an dagegen liegen die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger im Überschuß vor.

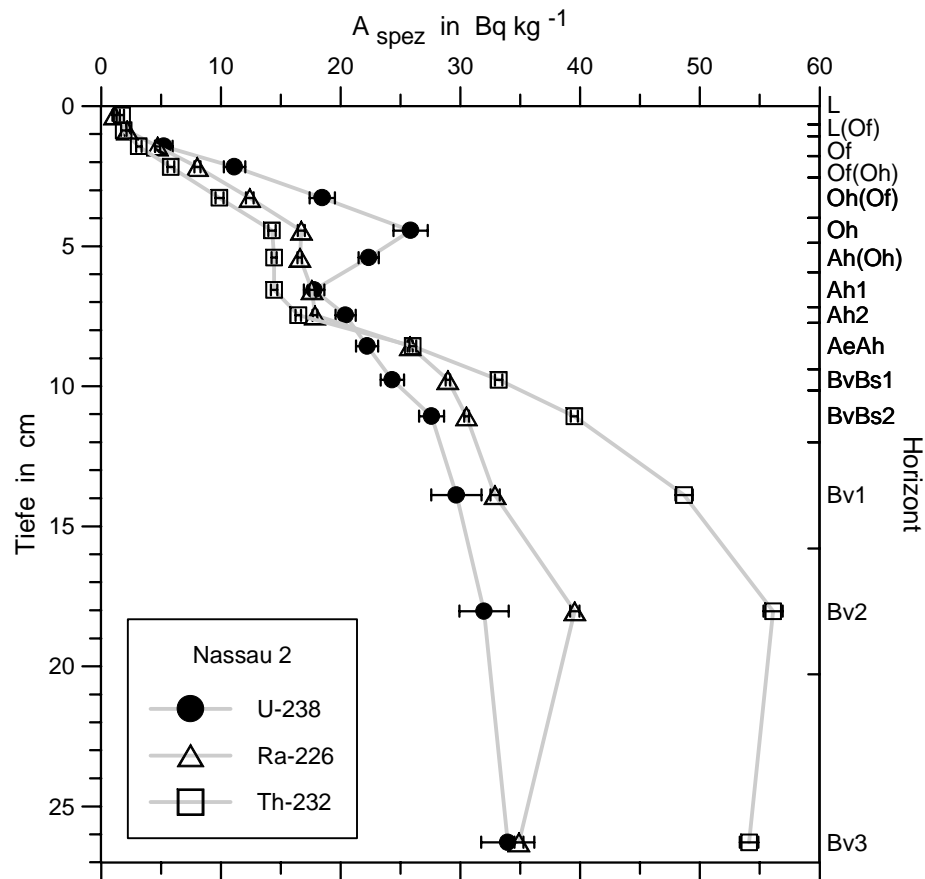


Abb. 32: Nassau 2. Tiefenprofile von  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Folgenukliden der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe im Vergleich zu RN der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe

Die spezifische  $^{238}\text{U}$ -Aktivität wurde über die  $^{234}\text{Th}$ -Werte bestimmt,  $^{226}\text{Ra}$  über  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$ . Die  $^{232}\text{Th}$ -Werte wurden gemittelt aus denen der  $^{228}\text{Ra}$ - und  $^{228}\text{Th}$ -Folger.

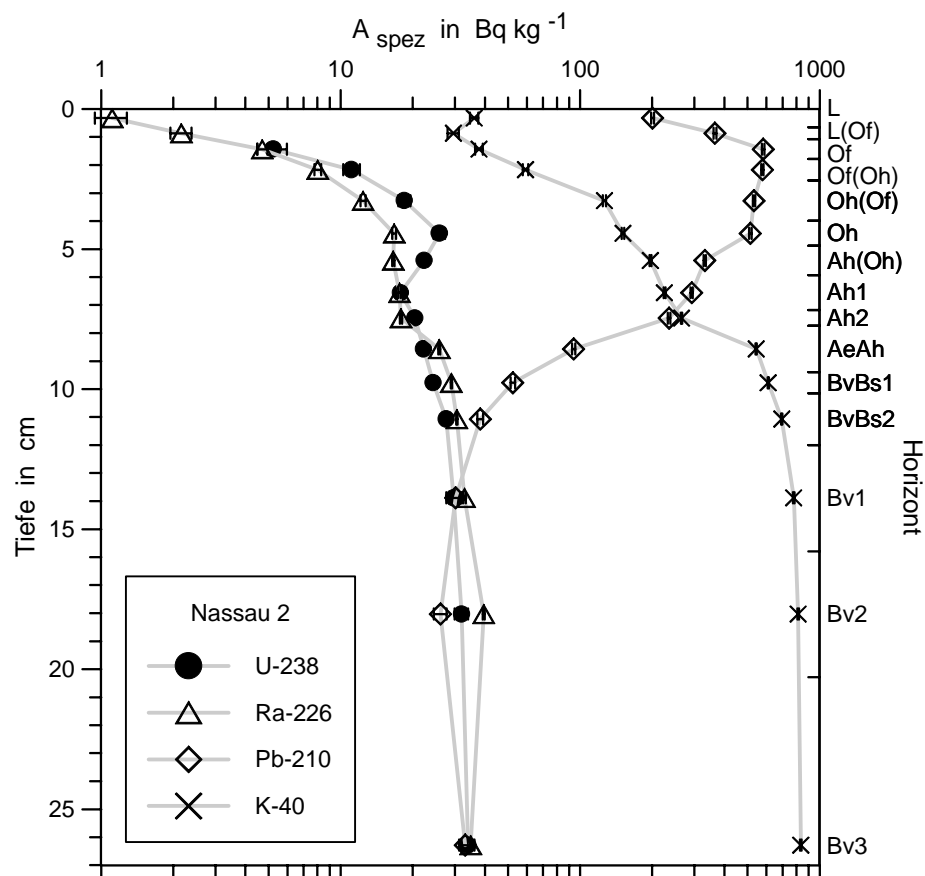


Abb. 33: Nassau 2. Logarithmische Darstellung der Tiefenverteilungen des  $^{210}\text{Pb}$  und des  $^{40}\text{K}$ ; zum Vergleich sind die spezifischen Aktivitäten des  $^{238}\text{U}$  und des  $^{226}\text{Ra}$  entsprechend Abb. 32 mit eingezeichnet (nach Schleich et al. 2000)



Zudem weist das gesamte Profil starke Ungleichgewichte zwischen  $^{210}\text{Pb}$  und den vorangehenden RN der  $^{238}\text{U}$ -Reihe auf. Das Maximum der spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität liegt in Of und Of(Oh) mit einem mittleren Wert von  $(578 \pm 6) \text{ Bq/kg}$  (Abb. 33) und erstreckt sich mit erhöhten Werten auch noch über Oh(Of) und Oh. In Of beträgt der  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor 123. Erst im mineralischen Unterbodenhorizont Bv3 stimmen die spezifischen Aktivitäten des  $^{210}\text{Pb}$ , der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger und des  $^{238}\text{U}$  überein und liegen bei  $(34 \pm 2) \text{ Bq/kg}$ .

Die Folgenuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe liegen im Gleichgewicht vor. Abb. 32 zeigt den gemittelten Wert für  $^{232}\text{Th}$ . Die spezifische  $^{232}\text{Th}$ -Aktivität in L beträgt  $(1.7 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$ . Die Tiefenverteilung verläuft bis zum Ah-Horizont parallel zu der des  $^{226}\text{Ra}$ . Unterhalb des Ah-Horizonts steigt die spezifische Aktivität steil an und erreicht in Bv3 und Bv4 einen Mittelwert von  $(55 \pm 1) \text{ Bq/kg}$ .

$^{40}\text{K}$  schwankt in L ... Of um etwa  $34 \text{ Bq/kg}$ . Nach einem stetigen Anstieg der Werte bis zum Ah-Horizont verdoppelt sich die spezifische Aktivität zum AeAh-Horizont hin sprunghaft. Nach einem weiteren Anstieg nähert sich  $^{40}\text{K}$  in den Verwitterungshorizonten asymptotisch einem Endwert an (Bv3:  $(833 \pm 6) \text{ Bq/kg}$ ).

Das kosmogene  $^7\text{Be}$  ist über die sechs Beprobungshorizonte L ... Oh hinweg bis in knapp 5 cm Tiefe nachweisbar (Abb. 34). Der maximale Wert in L beträgt  $(352 \pm 3) \text{ Bq/kg}$ .

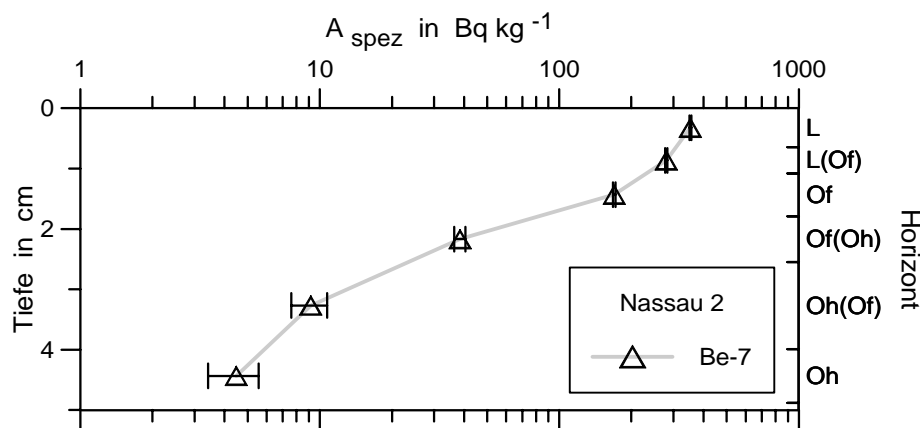


Abb. 34: Nassau 2. Tiefenverteilung des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (zerfalls-korrigiert auf das Beprobungsdatum 5.9.1996; logarithmische Darstellung)

Abb. 35 zeigt die Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $\gamma$ -Spektrometrie) sowie  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  (radiochemische Aufbereitung und  $\alpha$ -Spektrometrie, Kap. 3.2.1).  $^{241}\text{Am}$  ist im Bereich Of(Oh) ... AeAh (ca. 2 ... 9.5 cm Tiefe) nachweisbar. Die maximale spezifische Aktivität liegt in Ah(Oh) und beträgt  $(5.4 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$ . Die Pu-Analysen wurden an den zentralen Horizonten gut nachweisbarer  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten im Bereich Oh(Of) ... Ah2 durchgeführt. Die Maxima liegen in Oh mit  $(0.34 \pm 0.03) \text{ Bq/kg}$  ( $^{238}\text{Pu}$ ) und  $(11.0 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  ( $^{239,240}\text{Pu}$ ).

$^{125}\text{Sb}$  ist im Bereich Of ... Ah(Oh) (ca. 1 ... 6 cm Tiefe) und in Ah2 detektierbar (etwa 7.5 cm). Die maximale spezifische Aktivität weist das Nuklid in den Beprobungshorizonten Of(Oh) und Oh(Of) auf (Mittelwert  $(4.7 \pm 0.4) \text{ Bq/kg}$ ).

Abb. 36 zeigt einen Ausschnitt der Tiefenprofile des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  bis zum BvBs2-Beprobungshorizont. Die Verteilungen beider Cs-Isotope erstrecken sich über den gesamten abgebildeten Tiefenbereich. Das nicht dargestellte  $^{134}\text{Cs}$  (d. h. auch  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) ist unterhalb des BvBs2-Horizontes jedoch nicht mehr nachweisbar (Messung in WD-Probenbehältern). Die maximalen spezifischen Aktivitäten liegen in Oh(Of) mit  $(307 \pm 17) \text{ Bq/kg}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) und  $(6.3 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  ( $^{134}\text{Cs}$ ).  $^{137}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  ist bis in Bv3 detektierbar (32 cm, Endtiefe). In den nicht abgebildeten Beprobungshorizonten betragen die spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Aktivitäten  $(15.8 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$  (Bv1),  $(4.3 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  (Bv2) und  $(1.8 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  (Bv3). Das  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Maximum ist plateauartig über den Bereich Oh ... AeAh ausgebildet und liegt bei etwa  $100 \text{ Bq/kg}$ .

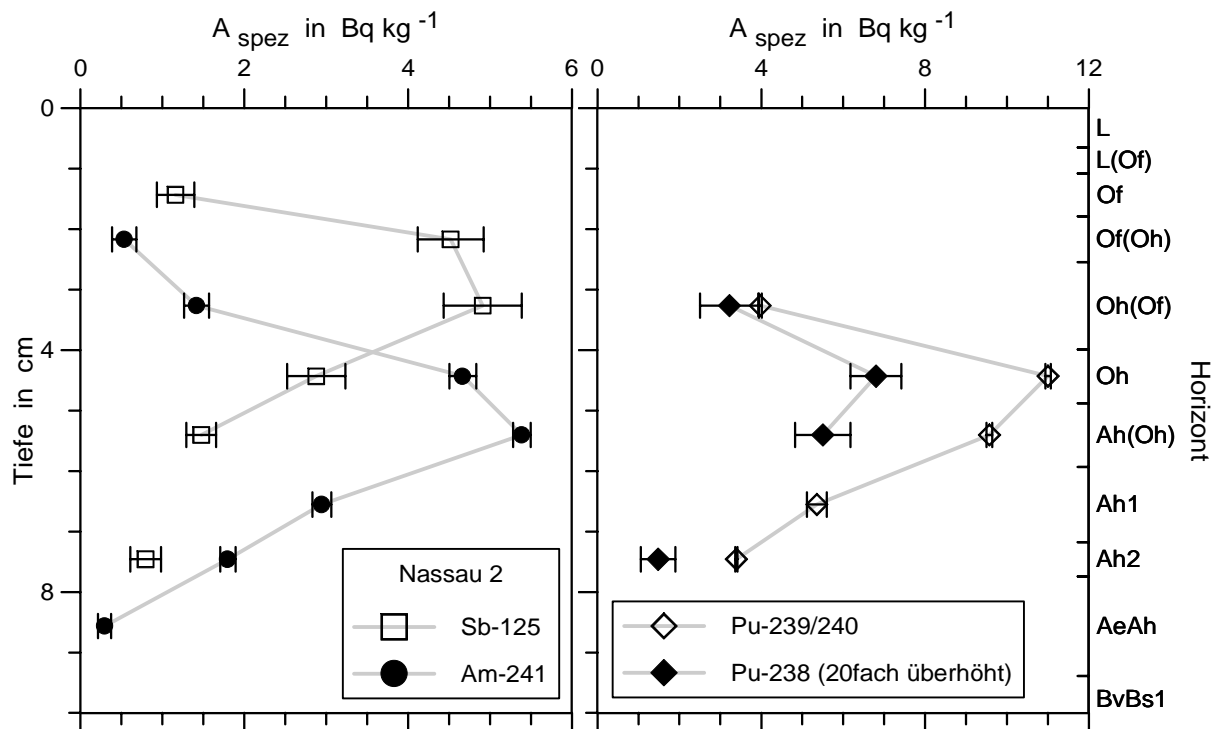


Abb. 35: Nassau 2. Tiefenverteilungen der RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  sowie  $^{238}\text{Pu}$  (20fach überhöht) und  $^{239,240}\text{Pu}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 5.9.1996; nach Schleich et al. 2000)

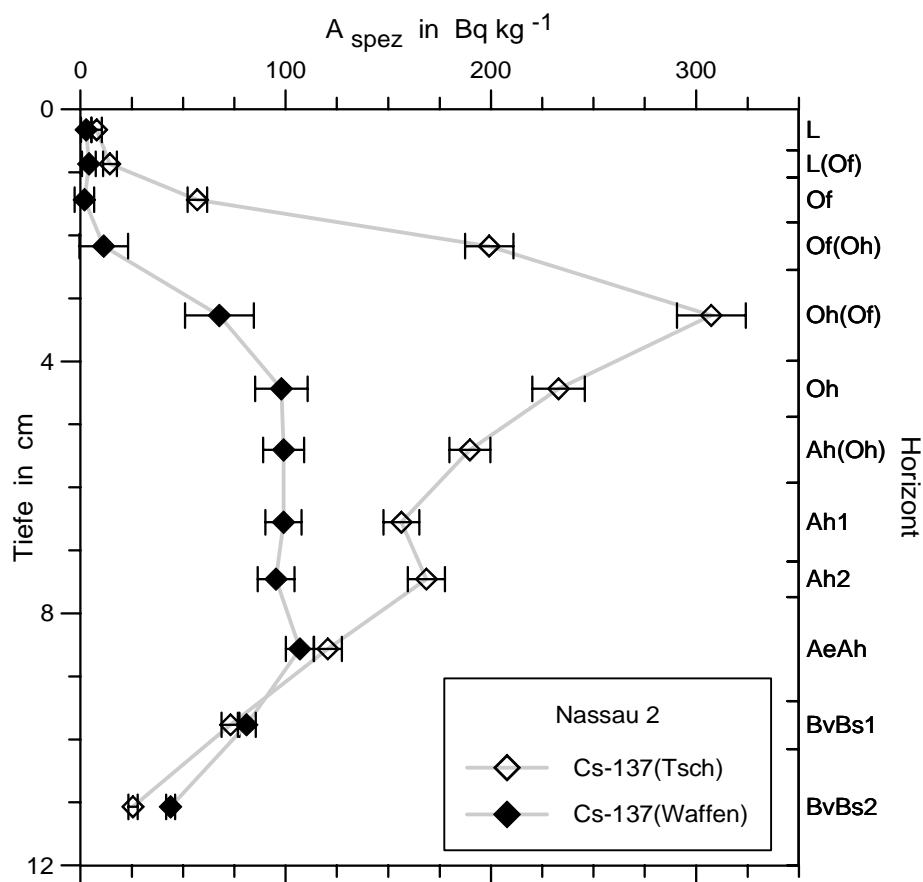


Abb. 36: Nassau 2. Ausschnitt der  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ - und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Tiefenprofile (zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 5.9.1996; nach Schleich et al. 2000)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten.

### 6.1.2 Der Vergleichsstandort in Süddeutschland: Eggwald

Nach dem Tschernobyl-Unfall 1986 wurden an der Fachhochschule Ravensburg-Weingarten im Rahmen von Diplomarbeiten zur Untersuchung der Cs-Migration in Waldböden eine Vielzahl von Beprobungen durchgeführt – u. a. in dem 10 km nordöstlich von Ravensburg gelegenen Altdorfer Wald (Drissner 1991; Bürmann 1993; Enslin 1994; Heider 1994). Zu Beginn der vorliegenden Arbeit wurde zu Vergleichszwecken, auf den Erfahrungen der vorangehenden Untersuchungen aufbauend, eine Bodenprobennahme in dem schon mehrfach beprobten Walddistrikt Eggwald durchgeführt (Abb. 37; Tabelle 13).

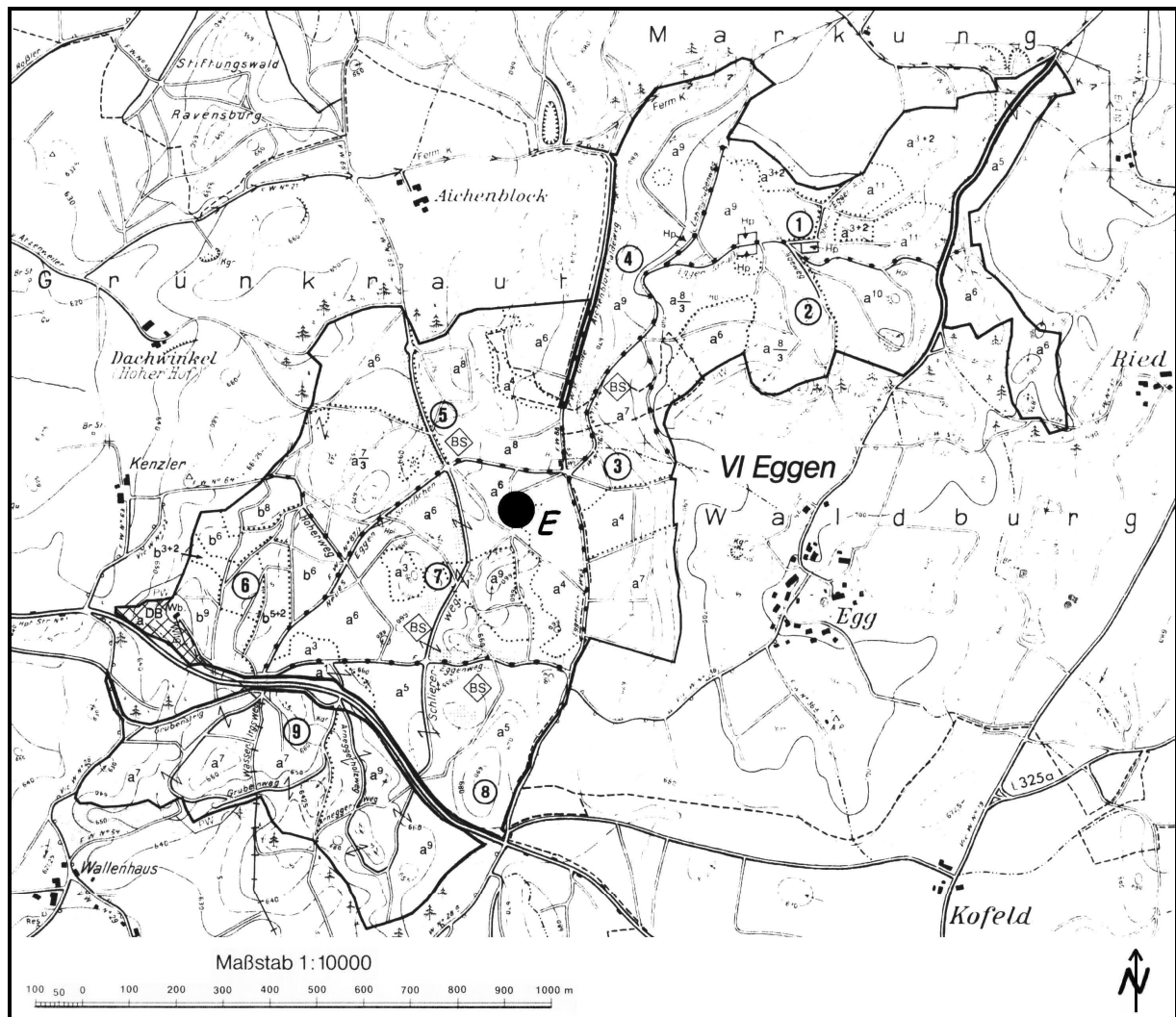
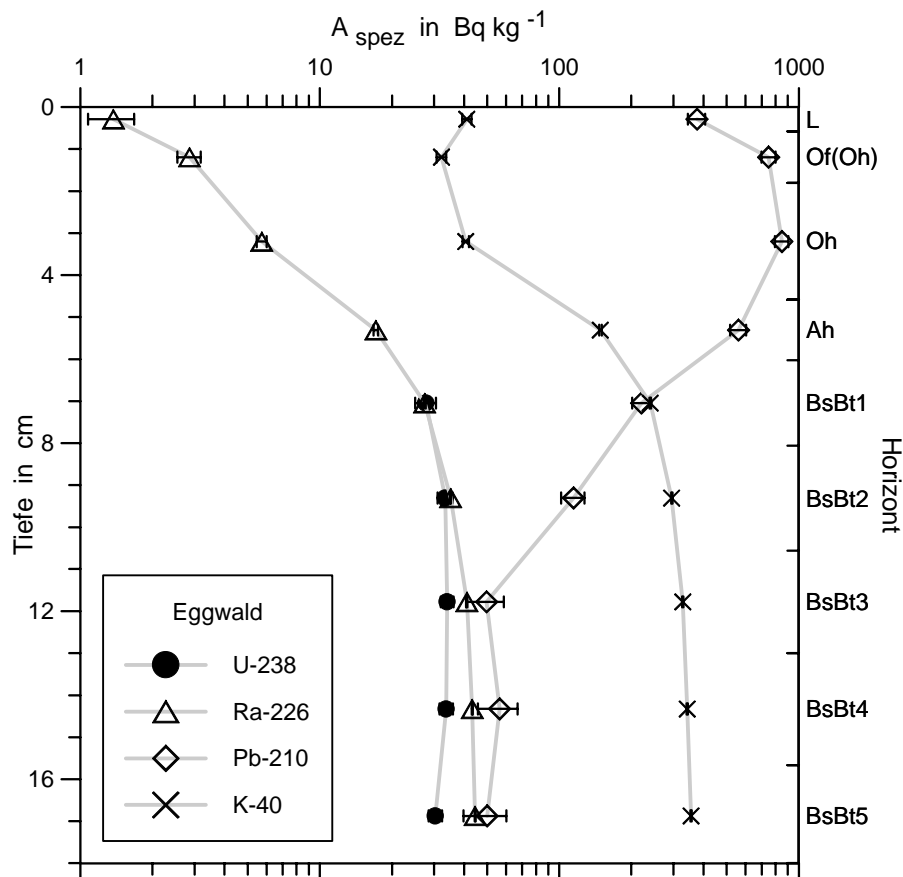
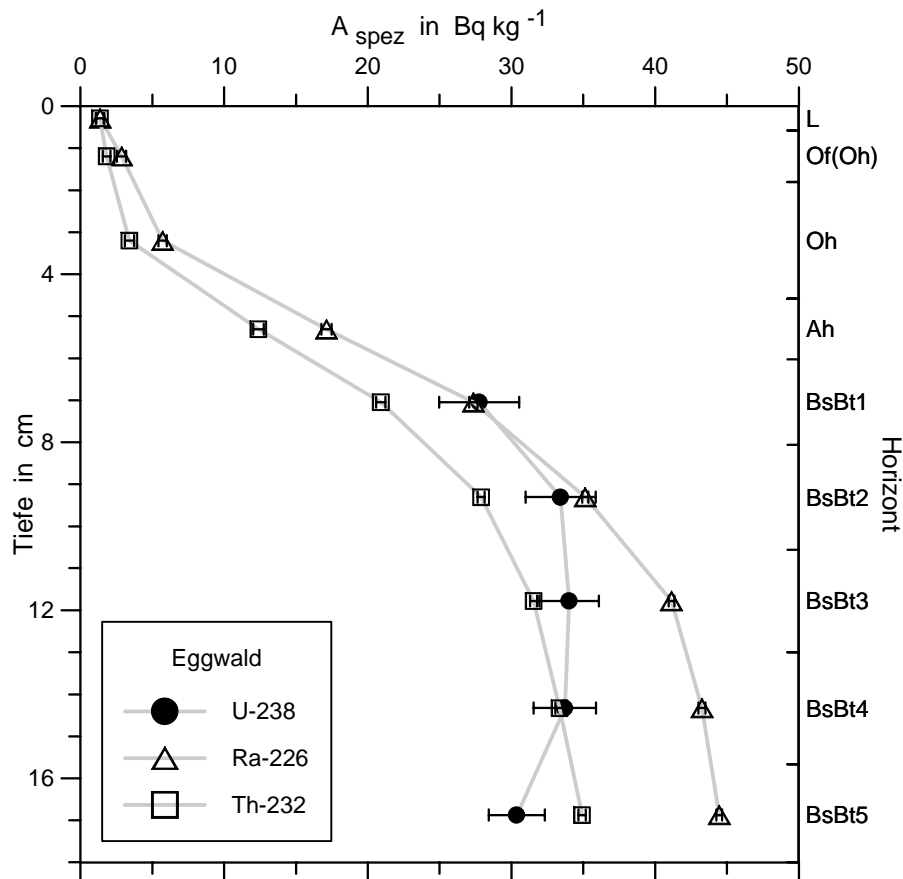


Abb. 37: Walddistrikt Egggen (= Eggwald) mit dem Eggwald genannten Beprobungspunkt (E) (Ausschnitt der Forstkarte 1:10000 des Forstreviers Waldburg; Forstbezirk Ravensburg, Betriebskarte 3, 1996/2005, Stand 1.10.1995; Ausschnitt verkleinert, Karte verändert nach R. Schlude, Forstrevier Waldburg, pers. Mitt. 2005)

Die Landschaft des südlichen Oberschwabens ist geprägt durch die Einflüsse der jüngsten Eiszeit (Würm-Glazial), während der sich der Rheingletscher bis ca. 25 km über Ravensburg hinaus nach Norden erstreckte (Bibus u. Kösel 1997). Der geologische Untergrund besteht aus eiszeitlichen Ablagerungen und wird als Jungmoräne bezeichnet (Geologisches Landesamt Baden-Württemberg 1976); im Vergleich zu den erzgebirgischen Böden stellt dieser Standort somit einen großen Kontrast dar. An der Beprobungsstelle im Eggwald liegt dem Untergrundgestein eine podsolige Parabraunerde auf (Anhang D.1.4).



Es wurden neun Beprobungshorizonte bis in eine Tiefe von 18 cm entnommen. Die Horizonte BsBt1 ... BsBt3 waren von Ah-Fahnen durchsetzt, wobei der Ah-Anteil etwa 60 % (BsBt1), 30 % (BsBt2) und < 5 % (BsBt3) betrug. Im Vergleich zu den erzgebirgischen Standorten handelt es sich in diesem Waldstück nicht um einen Fichtenreinbestand, zudem ist die Bestockung fast doppelt so alt. Die Profilerfläche war geringflächig bewachsen (Anhang D.1.4).

In Abb. 40 und Abb. 41 sind die Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen und des  $^{40}\text{K}$  dargestellt. Die ausgewerteten  $\gamma$ -Linien entsprechen denen des Bodenprofils Holzhaus.  $^{238}\text{U}$  konnte nur in den mineralischen BsBt-Horizonten mit einem gemittelten Wert von  $(32 \pm 3) \text{ Bq/kg}$  nachgewiesen werden. In den  $\gamma$ -Spektren der darüberliegenden Horizonte war der schwache  $^{234}\text{Th}$ -Peak (63 keV) hauptsächlich aufgrund der hohen spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten und des daraus resultierenden hohen Comptonuntergrunds nicht zu sehen (vgl. Kap. 3.1.1, Abb. 5). Der Verlauf der  $^{226}\text{Ra}$ -Folge beginnt in L mit  $(1.4 \pm 0.3) \text{ Bq/kg}$  und steigt bis Oh nur langsam an. Darunter nimmt die spezifische Aktivität bis BsBt3 schneller zu und nähert sich in den untersten Beprobungshorizonten einem Wert von  $45 \text{ Bq/kg}$ . Ab BsBt3 liegt ein  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewicht vor.

Die spezifische  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität wird in Of(Oh) und Oh maximal (Oh:  $(849 \pm 56) \text{ Bq/kg}$ ). Der  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor beträgt bis zu 260 (Of(Oh)). In den tieferen Beprobungshorizonten BsBt3 ... BsBt5 fällt  $^{210}\text{Pb}$  auf einen mittleren Wert von  $(52 \pm 10) \text{ Bq/kg}$  zurück und ist damit im Gleichgewicht zu  $^{226}\text{Ra}$ .

Der Verlauf des  $^{232}\text{Th}$ , dessen Folgenuklide im Gleichgewicht vorliegen, ist in Abb. 38 aufgetragen. In L mit  $(1.4 \pm 0.3) \text{ Bq/kg}$  beginnend, steigt die spezifische Aktivität erst flach bis Oh, um dann steiler bis BsBt2 anzusteigen. Bis BsBt5 nähert sie sich einem Wert von  $35 \text{ Bq/kg}$  an.

Die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität schwankt im Bereich L ... Oh um  $38 \text{ Bq/kg}$  (L:  $(41 \pm 2) \text{ Bq/kg}$ ). Nach einem steileren Anstieg in den Verwitterungshorizonten wird in BsBt5 ein Wert von  $(355 \pm 2) \text{ Bq/kg}$  mit steigender Tendenz erreicht.

Die spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten betragen  $(311 \pm 6) \text{ Bq/kg}$  in L und  $(103 \pm 4) \text{ Bq/kg}$  in Of(Oh) (o. Abb.; Zerfallskorrektur auf das Probennahmedatum 8.7.1994). In tieferen Horizonten ist  $^7\text{Be}$  nicht nachweisbar. Aufgrund der relativ hohen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten an dem oberschwäbischen Waldstandort ist  $^7\text{Be}$  in den Proben schlecht zu detektieren: die  $\gamma$ -Energie seiner Vollenergielinie und die der Comptonkante des  $^{137}\text{Cs}$  im  $\gamma$ -Spektrum sind nahezu identisch (vgl. Kap. 3.2).

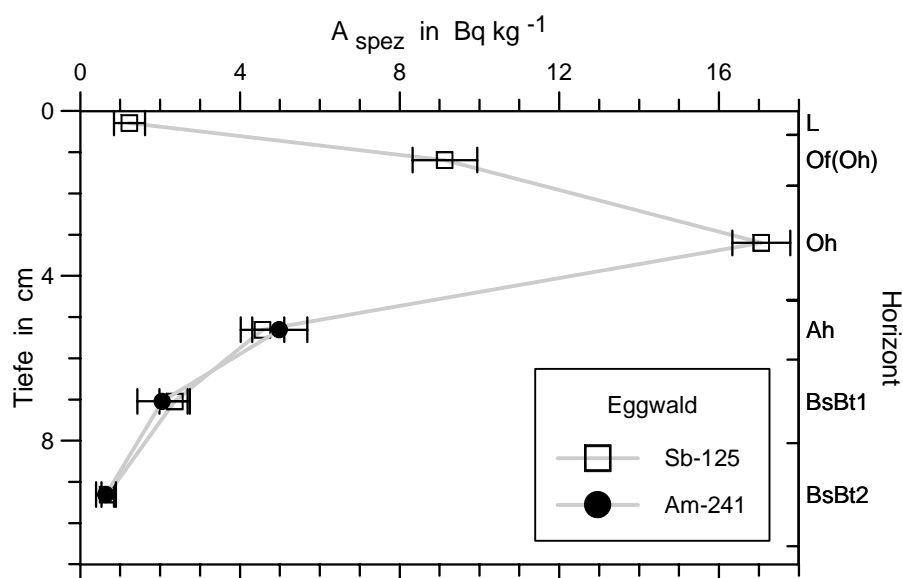


Abb. 40: Eggwald. Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 8.7.1994)

$^{241}\text{Am}$  ist nur im Ah-Horizont und dem oberen, von Ah-Fahnen durchzogenen Bereich des BsBt (BsBt1 und BsBt2) bis in eine Tiefe von knapp 11 cm nachweisbar (Abb. 40). In Ah ist die spezifische Aktivität maximal mit  $(5.0 \pm 0.7) \text{ Bq/kg}$ . In den darüberliegenden Bodenproben liegen die spezifischen  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten unterhalb der Nachweisgrenzen. Vor allem für Oh ist die Ursache dafür, ähnlich der Situation des  $^7\text{Be}$ , in den hohen spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten zu sehen. Diese verursachen einen hohen Untergrund in den  $\gamma$ -Spektren, welcher sich störend auf die Detektion des  $^{241}\text{Am}$ -Peaks (59.5 keV) auswirkt.

$^{125}\text{Sb}$  ist im Bereich L ... BsBt2 bis 10.5 cm Tiefe meßbar. Die maximale spezifische Aktivität von  $(17 \pm 1) \text{ Bq/kg}$  ist im Oh-Horizont zu finden.

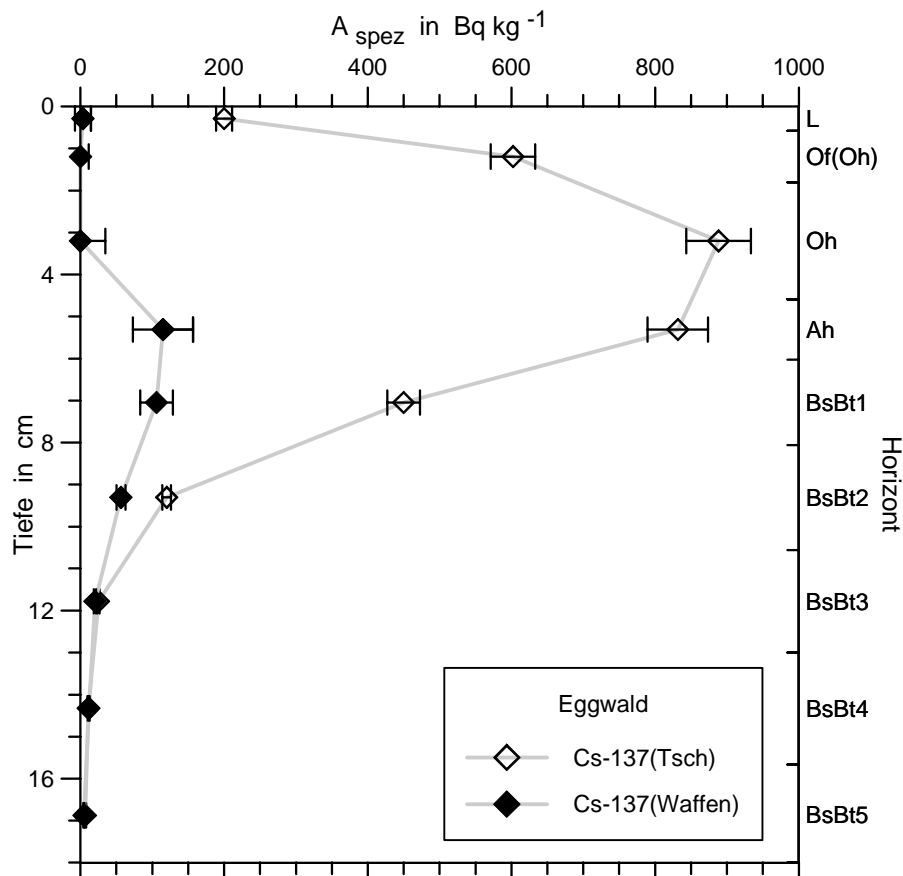


Abb. 41: Eggwald. Tiefenverteilungen des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  (zerfallskorrigiert auf das Bemessungsdatum 8.7.1994)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten.

In Abb. 41 sind die Tiefenverteilungen des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  dargestellt. Beide  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile sind im gesamten Profil detektierbar (bis 18 cm, Endtiefe). Das nicht abgebildete  $^{134}\text{Cs}$  und damit auch  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  sind in Oh maximal mit  $(35.9 \pm 0.3) \text{ Bq/kg}$  und  $(888 \pm 45) \text{ Bq/kg}$ . Die höchsten Werte des kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  liegen in Ah und BsBt1 mit einem Wert in Ah von  $(115 \pm 42) \text{ Bq/kg}$ .

## 6.2 Einflußgrößen der Tiefenverteilungen von Radionukliden in Fichtenwaldböden

Die in Kap. 6.1 gezeigten Ergebnisse machen deutlich, daß die Tiefenverteilungen der verschiedenen RN in den organischen und oberen mineralischen Horizonten von Fichtenwaldböden von sehr unterschiedlichen Prozessen gesteuert werden. Die vertikalen Profile spiegeln sowohl Herkunft, Eintragsstärke und -dauer der RN (vgl. Kap. 2) als auch die jeweiligen Horizonteigenschaften und Bodenbildungsprozesse wider. Die ausgeprägte Horizontierung der Humusaufgabe (L, Of, Oh) und des mineralischen Ober- und Unterbodens (A, B) beeinflußt die Transportvorgänge im Fichtenwaldboden besonders stark. Das Migrationsverhalten natürlicher und künstlicher Spurenelemente im Boden wird zudem von Sorptions-, Ionenaustausch- und Komplexbildungsprozessen bestimmt. Jene wiederum hängen stark von den physikalischen und chemischen Eigenschaften der RN ab. Einen großen Einfluß auf den Stofftransport übt die Verlagerung mit dem Sickerwasser aus. Neben der vertikalen Mobilität sind auch horizontale Stoffströme und Diffusionsprozesse nicht zu vernachlässigen.

Auf diesen Einflußgrößen basierend werden im weiteren die Ergebnisse der Untersuchungen in Fichtenwaldböden zusammenfassend diskutiert. Zur Diskussion werden zusätzliche, im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Messungen (z. B. an Fichtennadeln, vgl. Kap. 3.3.2) sowie Untersuchungen an Boden- und Pflanzenmaterial aus dem Freiburger Raum, welche der vorliegenden Arbeit am Institut für Angewandte Physik vorangingen (Suworow 1994), herangezogen.

### Die pH-Werte der Fichtenwaldböden

Der pH-Wert eines Bodens ist eng mit dem Stoffhaushalt des Bodens verbunden und beeinflußt auch die Mobilität von Substanzen, wie Schwermetallen, in starkem Maß (Herms u. Brümmer 1980, 1984; Krieter 1991; Schachtschabel et al. 1992; Ulrich 1997). Abb. 42 zeigt die nach Kap. 3.3.6 bestimmten  $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ -Werte der Waldbodenprofile (vgl. Anhang D.1). Die Werte in den A- und B-Horizonten entsprechen denen versauerter mitteleuropäischer Böden (vgl. Schwertmann et al. 1982; Ulrich 1997). Das Absinken des pH-Werts von den B-Horizonten zum Oberboden Ah hin, wie es die Profile Nassau 1 und Eggwald ausgeprägt zeigen, wird sehr oft in Bodenprofilen beobachtet (vgl. Schwertmann et al. 1982; Hunger 1994), im Altdorfer Wald z. B. auch von Bürmann (1993) und Lindner et al. (1994). Ursache hierfür ist, daß der überwiegende Teil der  $\text{H}^+$ -Ionen durch die mikrobielle Zersetzung der toten Biomasse produziert wird und dies hauptsächlich im Oberboden und den O-Horizonten erfolgt. Für saure Waldböden typisch ist die bei allen vier Profilen sichtbare pH-Wert-Erhöhung im L-Horizont. In der Streulage werden bei der Zersetzung u. a. organische und  $\text{HCO}_3^-$ -Anionen frei, welche  $\text{H}^+$ -Ionen neutralisieren. Die untersuchten Fichtenwaldböden bzw. deren Horizonte sind als stark bis extrem sauer einzustufen (Schachtschabel et al. 1992; AG Boden 1994).

Wie in den vorangehenden Kapiteln angesprochen, stellen die niedrigen pH-Werte eine Ursache für die Mobilisierung metallorganischer Komplexe dar; dies wird in den hier untersuchten Waldböden auch in Form von Podsolierungserscheinungen sichtbar (Umlagerung gelöster organischer Stoffe, oft zusammen mit Al und Fe; Kap. 3.3.1). Sowohl die niedrigen pH-Werte als auch die Podsolierung werden durch Faktoren gefördert, welche die Organismenaktivität – speziell die bakterielle Aktivität im Gegensatz zu der der Pilze (W. Zech, Universität Bayreuth, pers. Mitt. 2005) – hemmen, wie ein kühlfeuchtes Klima und ein schwer zersetzbarer Auflagehumus. Letzterer ist im Erzgebirge aufgrund der Wiederaufforstungen mit Nadelbäumen während der letzten Jahrhunderte – nach der bergbaubedingten Entholzung – gegeben (vgl. Hunger 1994). Nadelstreu enthält schlecht abbaubare Gerbstoffe (Tannine) und Zellwandbestandteile (Lignin und Cellulose). Neben dem dominierenden Einfluß des Klimas bestimmt generell die mineralogische und chemische Beschaffenheit des Grundgesteins, d. h. des Ausgangsmaterials der Bodenbildung, die weiteren Merkmale der Bodenentwicklung und damit auch die resultierenden Bodentypen und Bodeneigenschaften, z. B. die jeweiligen Nährstoffverhältnisse und das Wasserhaltevermögen (Nebe 1964, 1970; Hunger 1994; vgl. Tabelle 13 u. Anhang D.1). In der exponierten Lage am Kamm wurde der „Saure Regen“ noch durch  $\text{SO}_2$ -Emissionen aus dem böhmischen Becken verstärkt (vgl. Kap. 5.1). Die Auswirkungen des pH auf die Mobilität einzelner RN bzw. der entsprechenden Elemente werden im folgenden mit betrachtet.

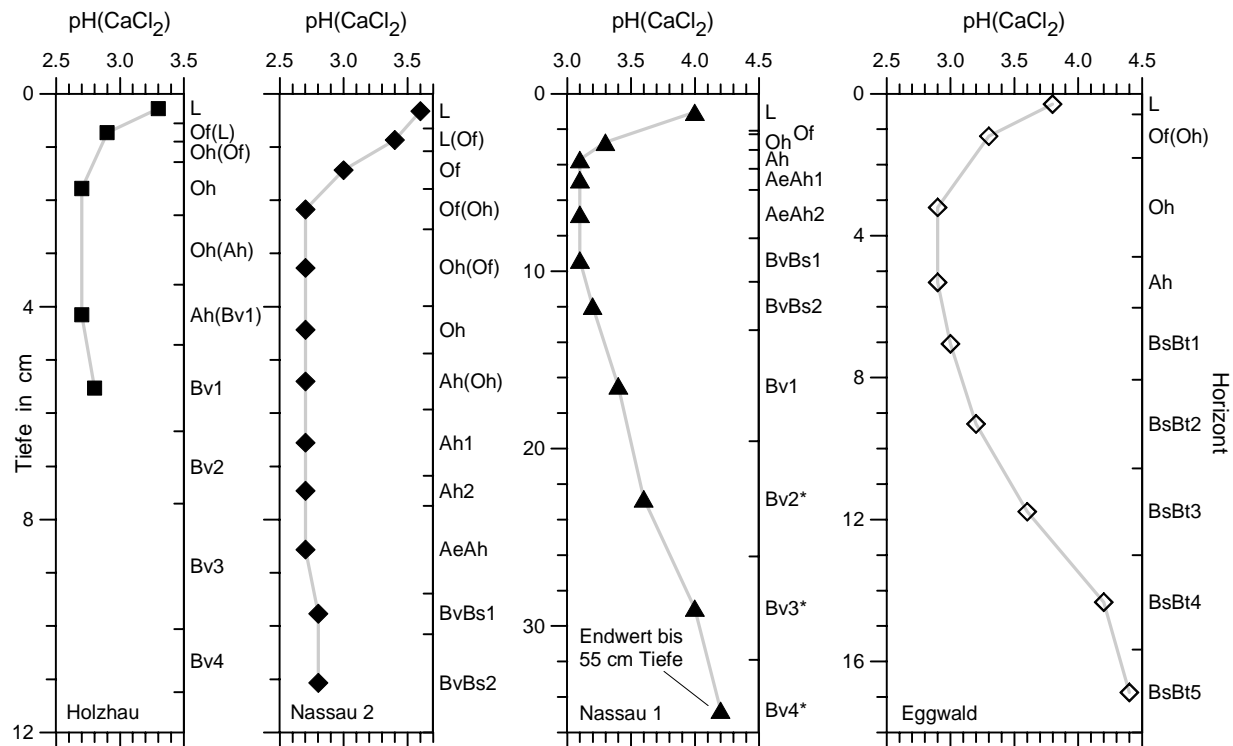


Abb. 42: Tiefenverläufe der pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte an den beprobten Waldstandorten

### Natürliche Zerfallsreihen – <sup>210</sup>Pb

Die Tiefenverteilungen der natürlichen RN (<sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U- und <sup>232</sup>Th-Zerfallsreihen, <sup>40</sup>K), mit Ausnahme des <sup>210</sup>Pb, werden in erster Linie vom geologischen Untergrund bestimmt. Vom Unterboden ausgehend, nehmen die spezifischen Aktivitäten tendenziell zur Bodenoberfläche hin ab. Ungleichgewichte entsprechend Kap. 3.1.4 konnten hauptsächlich in der <sup>238</sup>U-Reihe nachgewiesen werden. Vor allem die Verteilung des <sup>210</sup>Pb ist von starken Ungleichgewichten zu den Mutternukliden geprägt. Ursache ist der zusätzliche atmosphärische Eintrag von <sup>210</sup>Pb aus dem Zerfall des gasförmigen <sup>222</sup>Rn (Kap. 2.1; vgl. Niederschlags- und Staubfilterproben, Kap. 5.1 u. Kap. 5.2). Dieses sog. freie („unsupported“) <sup>210</sup>Pb ist für die wesentlich höheren Aktivitäten in den organischen Horizonten verantwortlich und bewirkt eine für Fichtenwaldböden typische <sup>210</sup>Pb-Tiefenverteilung (Abb. 23, Abb. 28, Abb. 33, Abb. 39; Dörr u. Münnich 1989, 1991; Schleich et al. 1997, 2000). Als weitere Einflußgrößen der <sup>210</sup>Pb-Verteilung im Boden sind zu diskutieren:

1. die Migration des <sup>210</sup>Pb im Boden,
2. die Deposition organischen und anorganischen Materials auf der Bodenoberfläche,
3. der Zerfall des <sup>210</sup>Pb und
4. der Gehalt des geogenen („supported“) <sup>210</sup>Pb, welcher vom <sup>238</sup>U-Gleichgewichtswert des geologischen Untergrunds bestimmt ist.

Das freie <sup>210</sup>Pb ist in den <sup>210</sup>Pb-Tiefenverteilungen der untersuchten Waldbodenprofile deutlich erkennbar. Die spezifischen <sup>210</sup>Pb-Gesamtaktivitäten in der Streulage betragen etwa 190 ... 490 Bq/kg. Die maximalen Werte liegen in den Fermentations- und Humifizierungshorizonten Of und Oh und sind um bis zu einem Faktor 4 größer als die des L-Horizonts (580 ... 860 Bq/kg). Im humushaltigen Oberbodenhorizont Ah sind die spezifischen Aktivitäten schon wieder auf etwa die Hälfte des Maximalwerts gesunken. In den Verwitterungshorizonten nähern sie sich dem Gleichgewichtswert des geo-



logischen Untergrunds – sofern dort keine Ungleichgewichte vorliegen.

Der Hauptanteil des atmosphärischen  $^{210}\text{Pb}$  wird i. allg. naß deponiert (vgl. Kap. 2.1). Die in Kap. 5 dargestellten Messungen an Niederschlags- und Luftfilterproben und Vergleichswerte aus der Literatur (Tabelle 1) lassen die Größenordnung dieses Eintrags erkennen. Der in Kap. 5.1 berechnete  $^{210}\text{Pb}$ -Eintragswert nasser Deposition von  $(230 \pm 20) \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$  und die Literaturwerte der Gesamtdosition von z. B.  $(100 \pm 50) \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$  für Westeuropa (H. Dörr 1989, zitiert in Gellermann et al. 1992) bzw. von 130 ... 330  $\text{Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$  für die gemäßigte Klimazone der Nordhalbkugel (kontinentale Gebiete; Moore u. Poet 1976) sind den  $^{210}\text{Pb}$ -Inventaren der L-Horizonte von etwa 90 ... 310  $\text{Bq}/\text{m}^2$  prinzipiell vergleichbar (unter der hypothetischen Annahme, daß die Inventare der L-Horizonte den Eintrag eines Jahres repräsentieren; Werte basierend auf freiem  $^{210}\text{Pb}$ ). In Fichtenwaldböden ist eine Erfassung des Zusammenhangs zwischen  $^{210}\text{Pb}$ -Eintrag und  $^{210}\text{Pb}$ -Bodeninventar in dieser Form jedoch schwierig, da einerseits keine einheitliche Mobilität des Pb in den Bodenhorizonten vorausgesetzt werden kann und andererseits auch die Bodenhorizonte selbst nicht so klar zeitlich eingeordnet werden können, wie das z. B. bei Moorböden in günstigen Fällen möglich ist (vgl. Kap. 7.3).

$^{210}\text{Pb}$ , welches an Aerosole angelagert aus der Atmosphäre auf der Bodenoberfläche deponiert wird, ist in der Streulage noch wesentlich mobiler als in tieferen organischen Horizonten, wo eine Fixierung auftreten kann (s. u. Löslichkeit und Bindungsformen des Pb). Einen generellen Einfluß auf die Fähigkeit, Pb oder andere Elemente zu binden, üben dabei Oberflächeneffekte des jeweiligen Bodenmaterials aus. Während der biologisch kaum belebte L-Horizont eine im Vergleich minimale spezifische Oberfläche aufweist, steigt die spezifische Oberfläche im Of um das drei- bis vierfache an und potenziert sich im Oh, welcher das Endprodukt der Zersetzungsvorgänge darstellt (W. Nebe, TU Dresden, pers. Mitt. 1999).

Der Kronenraum spielt eine wesentliche Rolle für den atmosphärischen Stoffeintrag in Waldgebieten (vgl. „Sollingprojekt“; Mayer u. Heinrichs 1980; Ellenberg et al. 1986). Staub- oder Aerosolpartikel können aus der Atmosphäre z. B. an der rauhen Oberfläche der Baumrinde und an den Fichtennadeln ausgekämmt (Interzeption) und durch nachfolgende Niederschläge ausgewaschen und in den Boden eingetragen werden (Bestandesniederschlag einschließlich Stammablauf; Interzeptions-Deposition). Die Baumkronen bzw. deren Rezeptoroberflächen wie Blätter und Nadeln üben somit eine Filterwirkung aus und verzögern den Eintrag in den Boden zeitlich (Krieter 1991; Matschullat u. Kritzer 1997).

Für den Eintrag von Substanzen durch Fichtennadeln selbst ist zu unterscheiden zwischen Substanzen, die an der Oberfläche der Nadeln haften, und solchen, welche in Nadeln aufgenommen wurden. Ergänzende Untersuchungen zum RN-Eintrag durch Fichtennadeln (vgl. Kap. 3.3.2, Abb. 44 und zugehörige Erläuterungen im Text; ohne Unterscheidung der RN-Gehalte in bzw. an den Nadeln) konnten nicht eindeutig klären, in welchem Maß dieser Eintragspfad in den Boden für  $^{210}\text{Pb}$  von Bedeutung ist. Die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten lagen bei den untersuchten Nadeln des aktuellen Jahrs und der Vorjahre unterhalb der Nachweisgrenze. Auch Suworow (1994) bestimmte an ein- und mehrjährigem Nadelmaterial aus dem Freiburger Raum (1992) für drei Proben spezifische  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten unterhalb der Nachweisgrenze; drei weitere Proben wiesen zwar Werte von bis zu 114  $\text{Bq}/\text{kg}$  auf, deren Meßunsicherheiten betrugen jedoch etwa 60 %:  $(47 \pm 30) \text{ Bq}/\text{kg}$ ,  $(96 \pm 56) \text{ Bq}/\text{kg}$  und  $(114 \pm 64) \text{ Bq}/\text{kg}$ . Ein direkter Zusammenhang zwischen den Meßergebnissen und dem Alter der Nadeln war nicht erkenntlich. Es kann angenommen werden, daß die Position der Fichtennadeln (bzw. des tragenden Astes) innerhalb der Baumkrone eine wichtige Rolle für die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten des Nadelmaterials spielen.

An den Standorten Nassau 1 und 2, welche nur etwa 2 km voneinander entfernt liegen und innerhalb einer Woche beprobt wurden, sind die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten der L-Horizonte nahezu identisch. Das  $^{210}\text{Pb}$ -Maximum des Profils Nassau 1 weist zwar einen höheren Wert auf, ist aber auch schmaler ausgebildet; Of und Oh umfassen hier nur etwa 2 cm. Im Profil Nassau 2 dagegen erstreckt es sich über die vier Beprobungshorizonte Of ... Oh (ca. 4 cm). Um zu überprüfen, ob aus derartigen Beobachtungen auf vergleichbare Eintragssituationen geschlossen werden kann, wurden die Tiefenverteilungen der spezifischen Aktivitäten des freien  $^{210}\text{Pb}$  bestimmt (Gesamtgehalt abzüglich des Ge-

halts der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger) und daraus die Aktivitätskonzentrationen und Horizontinventare berechnet. Zum Vergleich erfolgte eine Umrechnung sowohl unter Einbeziehung der Feinmassen als auch der Gesamtmassen der Horizonte (unter der vereinfachenden Annahme gleicher Gehalte in beiden Fraktionen). Die Maxima der Aktivitätskonzentrationen liegen, ähnlich denen der spezifischen Aktivitäten, in den Of- und Oh-Horizonten (allerdings nur im Bodenprofil Holzhau in exakt demselben Beprobungshorizont). Eine Ausnahme stellt das Profil Eggwald dar, wo die maximale Aktivitätskonzentration im Ah-Horizont zu finden ist. Zusätzlich zum Maximum weisen auch die Profile Nassau 1 und Nassau 2 stark erhöhte Werte in Ah bzw. Ah2 auf. Die Gesamtinventare der Bodenprofile liegen im Bereich  $4300 \dots 7430 \text{ Bq/m}^2$  (Abb. 43). Aus den Gesamtinventaren der Profile Nassau 1 und Nassau 2 von  $(4300 \pm 70) \text{ Bq/m}^2$  und  $(5450 \pm 60) \text{ Bq/m}^2$  kann jedoch nicht auf einen vergleichbaren atmosphärischen  $^{210}\text{Pb}$ -Eintrag in der Vergangenheit geschlossen werden. Auch die Aktivitätskonzentrationen der beiden L-Horizonte und deren Horizontinventare sind gegenläufig und unterstützen die aus den spezifischen Aktivitäten gezogenen Schlüsse nicht.

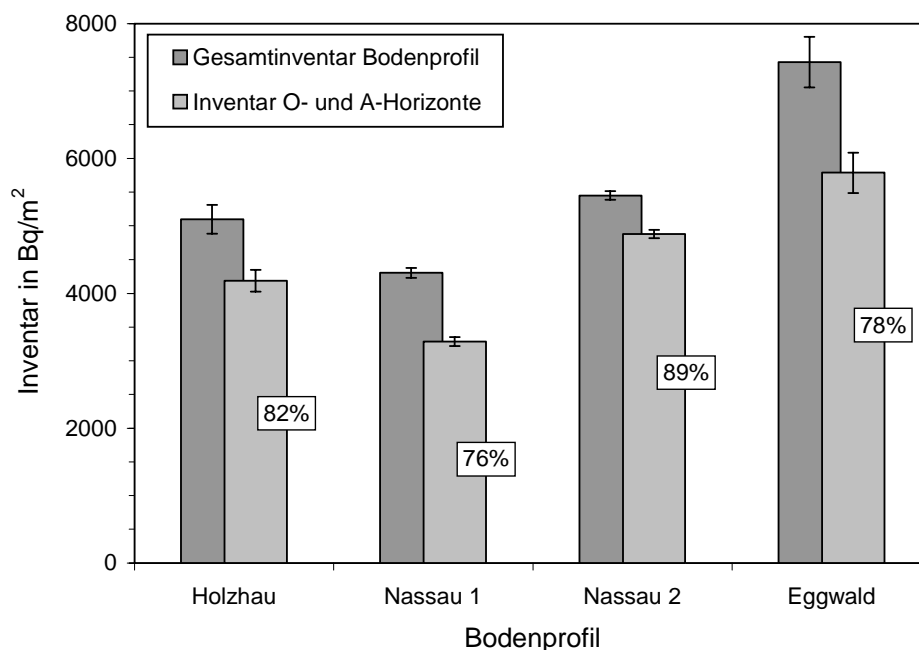


Abb. 43: Vergleich der Gesamtinventare und der Inventare der O- und A-Horizonte von freiem  $^{210}\text{Pb}$  in den Waldbodenprofilen (berechnet über die Aktivitätskonzentrationen der Horizonte, nur Feinanteil berücksichtigt)

Das auch innerhalb der Horizonte sehr fein unterteilte Bodenprofil Nassau 2 zeigt deutlich, daß die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten der jeweils zu ein- und demselben bodenkundlichen Horizont gehörenden Beprobungshorizonte oft gut übereinstimmen bzw. nur geringe Gradienten innerhalb der Horizonte aufweisen (Abb. 33, siehe Of und Of(Oh), Oh(Of) und Oh sowie Ah(Oh) ... Ah2). Durch Horizontgrenzen oder den Beprobungsvorgang verursachte Materialvermischungen sind an Zwischenwerten erkenntlich, z B. bei Of(Oh)- und Oh(Of)-Horizonten. Offensichtlich wird die in einen Horizont eingetragene Aktivität innerhalb des Horizonts relativ homogen (bezüglich der Masse) verteilt. Das Bodenmaterial zusammengehörender Beprobungshorizonte weist als Folge vergleichbare spezifische Aktivitäten auf, was auf ein relativ konstantes Speicherverhalten bezüglich des RN innerhalb eines Bodenhorizonts hinweist. Vor allem in der Humusaufgabe werden die  $^{210}\text{Pb}$ -Tiefenverteilungen somit von Horizontspezifika dominiert, welche den ebenfalls erkennbaren kontinuierlichen Verlauf mit der Tiefe überprägen.

Einen Erklärungsansatz für die Maximalwerte des  $^{210}\text{Pb}$  in den Of- und Oh-Horizonten stellen die Bindungsformen und das Löslichkeitsverhalten des Schwermetalls Pb in stark saurem Milieu dar. In den Böden wird das eingetragene Pb in bodeneigene Bindungsformen und Verbindungen umgewandelt. Die Löslichkeit des Pb wird dabei vom pH-Wert, den Redoxbedingungen und der stofflichen Zusammensetzung der Böden sowie von dem Gesamtgehalt an Pb beeinflusst (Corrin u. Natusch 1979; Zimdahl u. Hassett 1979; Schachtschabel et al. 1992; Schulte u. Blum 1997; Ulrich 1997). Im Gegensatz zu den Schwermetallen Cd, Zn und Ni ist Pb in Böden sehr immobil und bei pH-Werten  $> 5$  in der Regel nur in sehr geringem Maß löslich. Erst bei pH-Werten  $< 4 \dots 4.5$ , wie sie in den hier untersuchten Bodenhorizonten vorliegen (vgl. Abb. 42), nimmt die Pb-Löslichkeit und damit auch seine Verlagerbarkeit und Verfügbarkeit deutlich zu (Herms u. Brümmer 1980, 1984; Blume u. Hellriegel 1981). Dabei weisen Bodenproben mit hohen Gehalten an organischer Substanz eine wesentlich geringere Pb-Löslichkeit auf als Proben mit niedrigen  $C_{\text{org}}$ -Gehalten. Die organische Substanz der Böden wirkt damit im stark sauren Bereich stärker löslichkeitserniedrigend als mineralische Bodenkomponenten (Herms u. Brümmer 1980, 1984; Blume u. Hellriegel 1981). Der Anteil des unspezifisch adsorbierten, pflanzenverfügbaren Pb steigt mit abnehmendem pH-Wert (und kann in sauren Waldböden bei pH-Werten um 3 bis zu 10 % ausmachen). Zudem überwiegt in diesem pH-Bereich die Bindungskapazität der Huminstoffe die der Oxide, so daß bis zu 80 % von Pb in O- und A-Horizonten an die organische Substanz gebunden ist (Schwertmann et al. 1982; Schachtschabel et al. 1992). Auch das vor allem bei  $\text{pH} < 4$  aus mineralischer Bindung freigesetzte Pb kann von den Pflanzen aufgenommen und mit den Vegetationsresten in O- und A-Horizonten angereichert werden (austragshemmende Zyklisierung). Ebenso wird das aus anthropogenen Quellen stammende Pb zum größten Teil in diesen Horizonten akkumuliert und liegt dort vorwiegend in organischer und zum geringeren Teil in oxidischer Bindung vor. Die Festlegung des Pb erfolgt vor allem durch Bildung schwerlöslicher metallorganischer Komplexe hoher Stabilität (Herms u. Brümmer 1984; Schachtschabel et al. 1992). Generell wird Pb in Böden aufgrund der geringen Löslichkeit des Pb und der hohen Adsorptionskapazität auch der mineralischen Bodenkomponenten nur in sehr geringem Maß verlagert oder sogar ausgewaschen (Blume 1981; Blume u. Hellriegel 1981; Mayer 1978; Mayer u. Heinrichs 1980; Pleßow et al. 1997; Schulte u. Blum 1997). Die Akkumulation des Pb in den O- und A-Horizonten ist in Abb. 43 am Beispiel des freien  $^{210}\text{Pb}$  demonstriert. Der Vergleich zwischen dem  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamtinventar und den aufsummierten Inventaren der jeweiligen Of-, Oh- und Ah- bzw. AeAh-Horizonte (unter Beachtung von Mischhorizonten) bestätigt die obigen Ausführungen: Die  $^{210}\text{Pb}$ -Anteile in O und A betragen über 70 % bis knapp 90 % des Gesamtinventars.

In den O- und A-Horizonten der Fichtenwaldböden ist die Migration des  $^{210}\text{Pb}$  somit eher vernachlässigbar. Ist das Pb erst in den organischen Horizonten fixiert, so kann die Deposition organischen und anorganischen Materials ein „Einwachsen“ des  $^{210}\text{Pb}$  in den Boden bewirken. Den Hauptfaktor stellt nun der radioaktive Zerfall dar. Zudem führt der geringere Anteil organischer Substanz im Ah (per Definition  $< 30$  Masse-%) und dem oberen Bereich der Verwitterungshorizonte zu geringeren Aktivitäten. Dörr u. Münnich (1989) bestimmten identische Geschwindigkeiten für den abwärtsgerichteten Transfer des organischen Materials und des  $^{210}\text{Pb}$  in Waldböden und schließt daraus ebenfalls, daß der  $^{210}\text{Pb}$ -Transport im Boden aufgrund der Bewegung der organischen Substanz selbst stattfindet. Wesentliche Einflußgrößen dieses Prozesses sind die Zusammensetzung der Streu und die jährliche mikrobielle Zersetzungsrate. Auch die Durchmischung durch Bodenorganismen ist prinzipiell zu berücksichtigen (Bioturbation), in diesen Böden jedoch eher zu vernachlässigen (s. u.). Eine Abhängigkeit der abwärtsgerichteten Migrationsgeschwindigkeit des Pb (und auch des Cs) von Bodentyp und pH-Wert konnte nicht festgestellt werden (Dörr u. Münnich 1991).

Aus den  $^{210}\text{Pb}$ -Tiefenverteilungen kann geschlossen werden, daß die Migration des Pb in der Streulage L und u. U. auch in den mineralischen Horizonten dagegen eine Rolle spielt. Untersuchungen von Herms u. Brümmer (1984) zufolge verbleiben Schwermetalle in den Unterböden von podsolierten Braunerden bei sauren pH-Werten in einer relativ mobilen und leicht verlagerbaren Form. Eine Mobilisierung des Pb durch Sickerwasser ist somit in geringem Umfang denkbar (vgl. Pleßow et al. 1997).

### <sup>238</sup>U- und <sup>232</sup>Th-Zerfallsreihen

In den L-Horizonten der Bodenprofile ist <sup>238</sup>U nicht nachweisbar. Die Gehalte der <sup>226</sup>Ra-Folger <sup>214</sup>Pb und <sup>214</sup>Bi in der Streulage L betragen 1.1 ... 2.4 Bq/kg bzw. knapp 7 Bq/kg am Beprobungsort Holzhau, die des <sup>232</sup>Th und seiner Folgenuklide etwa 1.4 ... 4.4 Bq/kg. Unterhalb des L-Horizonts steigen die spezifischen Aktivitäten sämtlicher RN mit zunehmender Tiefe in der Humusauflage bis in den mineralischen Oberboden an. Es sind verschiedene Eintragspfade dieser RN in die Humusauflage vorstellbar. Zur nassen und trockenen atmosphärischen Deposition einerseits (vgl. Kap. 5) und dem Eintrag über die Biomasse (z. B. Nadeln, Zweige, Rindenstücke) und den Boden selbst (abgestorbene Wurzeln, Ausscheidungsprodukte, Leichen von Bodentieren und Mikroorganismen) andererseits kann auch eine Komponente aus dem Unterboden durch aufwärtsgerichtete Durchmischung beitragen. Letztere wird verursacht durch wühlende und grabende Bodentiere und Wurzeltätigkeiten (Bioturbation) (Graff u. Makeschin 1979; Müller-Lemans u. Van Dorp 1996; Makeschin 1997). Dabei kann Bodenmaterial vom Unterboden zur Bodenoberfläche hin transportiert werden. Diesen Transport der festen Phase beschreiben Müller-Lemans u. Van Dorp (1996) als einen relevanten Mechanismus für die RN-Migration in der Biosphäre, v. a. den aufwärtsgerichteten Transport stark sorbierender RN. In den Tier- oder Wurzelgängen ist zudem eine abwärtsgerichtete Verlagerung sowohl der festen Substanz als auch der Sickerwässer möglich (Transport der flüssigen Phase). Ein Maß für diesen Transportpfad stellen Art und Anzahl der Bodenorganismen und die Größe des Feinwurzelumsatzes dar (hoher Umsatz führt zu einer großen Anzahl „freiwerdender“ Wurzelgänge). An den hier untersuchten stark sauren Waldstandorten spielt die Bioturbation durch Bodentiere jedoch nur im Humuskörper (typischer bzw. rohhumusartiger Moder) eine, wenngleich untergeordnete, Rolle (W. Nebe, TU Dresden, pers. Mitt. 1999).

Um eine einfache Eintragsabschätzung und einen Vergleich mit Literaturwerten zu ermöglichen, wurden ein- und mehrjährige Nadeln einer Fichte in etwa 200 m Entfernung zur Probennahmestelle Holzhau untersucht (Kap. 3.3.2). Abb. 44 zeigt die nachgewiesenen RN-Gehalte in den Fichtennadeln im Vergleich zu den spezifischen Aktivitäten im L-Horizont des Bodenprofils Holzhau. <sup>238</sup>U konnte in den Nadelproben nicht direkt nachgewiesen werden. Die <sup>226</sup>Ra-Folger <sup>214</sup>Pb und <sup>214</sup>Bi (295, 352 und 609 keV) waren detektierbar, für einjährige Nadeln jedoch nur knapp über der NWG, und lagen unter dem Wert der Streulage L. In der <sup>232</sup>Th-Reihe konnten nur die <sup>228</sup>Th-Folger <sup>212</sup>Pb und <sup>208</sup>Tl gemessen werden, nicht jedoch die Mutternuklide <sup>232</sup>Th und <sup>228</sup>Ra über den Folger <sup>228</sup>Ac. Dabei sind die Gehalte der <sup>228</sup>Th-Folger in den mehrjährigen Nadeln etwa doppelt so groß wie die der einjährigen Nadeln und der Streulage. Die spezifische Aktivitäten der von Suworow (1994) gemessenen Fichtennadeln betrugen maximal  $2.9 \pm 1.5$  Bq/kg für <sup>214</sup>Pb und <sup>214</sup>Bi sowie  $6.2 \pm 1.2$  Bq/kg für die <sup>232</sup>Th-Folgenuklide. Dies bestätigt die hier gemessenen Werte prinzipiell, zumal die Aktivitäten der alten Nadeln mit einer Ausnahme ebenfalls höher sind als die der jungen Nadeln.

Diese Ergebnisse werden durch Untersuchungen an verschiedenen Baumarten (Birke, Erle, Fichte, Kiefer) auf einem stark belasteten Standort (industrielle Absetzanlagen Schneckenstein, Westerzgebirge) unterstützt (C. Brackhage, TU Dresden, pers. Mitt. 1999). Dabei konnten in den oberirdischen Pflanzenteilen, d. h. in Nadeln, Blättern und Rinde, wesentlich niedrigere <sup>226</sup>Ra-Gehalte bestimmt werden als in den Wurzeln. Eine mögliche Erklärung dafür ist, daß die Endodermis der Wurzeln eine Barriere für Ra darstellen, so daß Ra kaum in die Pflanze aufgenommen wird. Auf Th scheint sich dieser Effekt nicht auszuwirken (vgl. Kap. 7.2). Der Vergleich der Th-Werte der Nadeln mit denen des L-Horizonts weist darauf hin, daß der Nadelfall hier die wesentliche Rolle für den Eintrag in die Humusauflage spielen könnte. Für die RN der <sup>238</sup>U-Reihe sind eventuell andere Eintragspfade von Bedeutung.

Wie zuvor in der Diskussion der <sup>210</sup>Pb-Resultate angesprochen, ist die Erfassung des Zusammenhangs zwischen dem atmosphärischen RN-Eintrag und dem RN-Bodeninventar in Fichtenwaldböden wesentlich prinzipiell komplexer als z. B. in Hochmoorböden. Somit erlaubt ein Vergleich der in Kap. 5.1 errechneten Eintragswerte nasser Deposition für <sup>226</sup>Ra- und <sup>232</sup>Th-Folger von  $(7.5 \pm 0.8)$  Bq/(m<sup>2</sup> a) bzw.  $(9.6 \pm 0.5)$  Bq/(m<sup>2</sup> a) (Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, 1995) mit den Horizont- bzw. Profilinventaren der entsprechenden RN (z. B. Profil Holzhau, L-Horizont,

$(4.5 \pm 0.2) \text{ Bq/m}^2$  bzw.  $(2.9 \pm 0.2) \text{ Bq/m}^2$ ) keine direkten Schlußfolgerungen.

Die RN-Verteilungen beider Zerfallsreihen steigen mit zunehmender Tiefe meist kontinuierlich an und nähern sich, je nach beprobter Tiefe, in den Verwitterungshorizonten einem konstanten Wert bzw. erreichen ihn. In den unteren mineralischen Horizonten der untersuchten Bodenprofile werden spezifische  $^{238}\text{U}$ -Aktivitäten von etwa 30 Bq/kg (Nassau 2 und Eggwald) bzw. etwa 60 Bq/kg (Holzhau und Nassau 1) sowie spezifische  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivitäten von 30 ... 100 Bq/kg erreicht. Die spezifischen  $^{232}\text{Th}$ -Aktivitäten erreichen etwa 35 Bq/kg (Eggwald), 55 Bq/kg (Holzhau und Nassau 2) bzw. 90 Bq/kg (Nassau 1). Im Vergleich zu den in Abb. 1 dargestellten Literaturwerten (Daten nach Kardel 1996) zeigt sich für Nassau 1 (s. Gesteinstyp Rhyolithoide) und Nassau 2 (Paragneis) eine tendenzielle Übereinstimmung der spezifischen Aktivitäten, und auch der Wert für Holzhau (Granite) liegt im Bereich der hohen Standardabweichung des Literaturwerts von knapp 70 %. Es muß beachtet werden, daß es sich bei diesen Literaturdaten um Mittelwerte sächsischer Gesteine handelt, deren Werte lokal stark streuen können. Literaturwerte zum Jungmoränengestein des Beprobungsorts Eggwald lagen nicht vor. Generell liegen die hier gemessenen Aktivitätswerte auch in den von anderen Autoren angegebenen Größenordnungen (Papastefanou et al. 1999; UNSCEAR 2000).

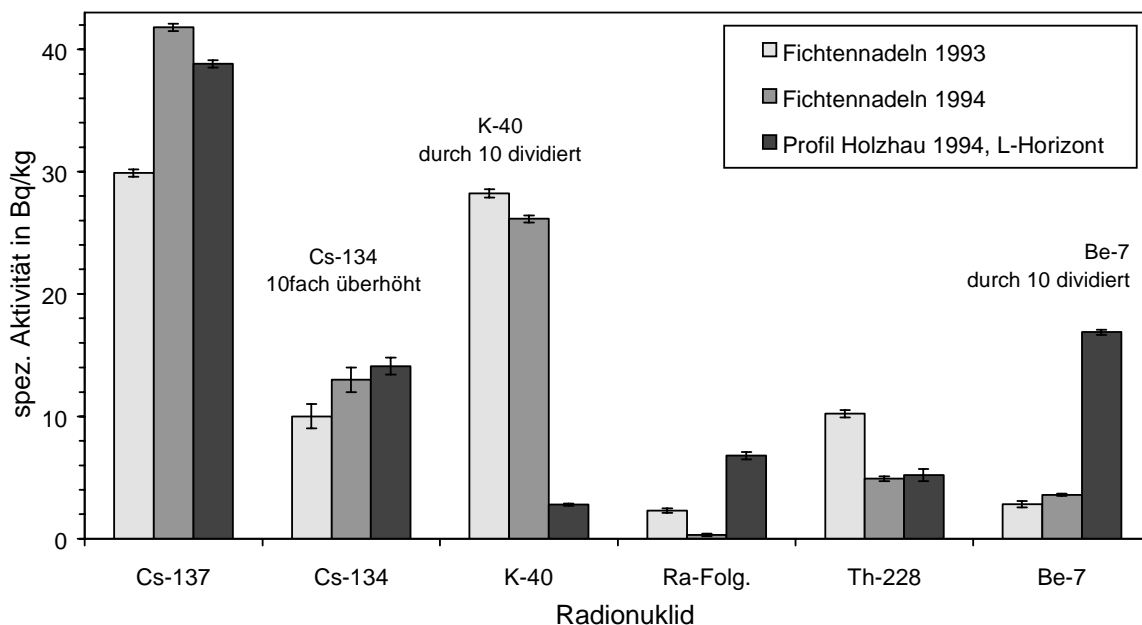


Abb. 44: In ein- und mehrjährigen Fichtennadeln gemessene RN-Gehalte im Vergleich zu den spezifischen Aktivitäten im L-Horizont des Bodenprofils Holzhaus („Ra-Folg.“:  $^{226}\text{Ra}$ -Folger;  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^7\text{Be}$ : zerfallskorrigiert auf das jeweilige Probenahmedatum; „Fichtennadeln 1993“ steht für Nadeln aus dem Jahr 1993 und älter)

### Ungleichgewichte in den $^{238}\text{U}$ - und $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen

Bei den extrem niedrigen pH-Werten der untersuchten Böden können die unterschiedlichen Löslichkeiten und Bindungsformen der Aktiniden U und Th ( $^{230}\text{Th}$ , s.  $^{238}\text{U}$ -Folgenuklide längerer  $T_{1/2}$ ) sowie des Erdalkalimetalls Ra zu Ungleichgewichten zwischen den direkten  $^{238}\text{U}$ -Folgern und den  $^{226}\text{Ra}$ -Zerfallsprodukten führen. Besonders deutlich zeigt sich ein  $^{226}\text{Ra}$ -Überschuß in den Bodenprofilen Holzhaus (Bv2 ... Bv4, Abb. 22) und Nassau 1 (BvBs1 ... Bv6, Abb. 27), aber auch in den Bodenprofilen Nassau 2 (AeAh ... Bv2, Abb. 32) und Eggwald (BsBt3 ... BsBt5, Abb. 38). In darüberliegenden Horizonten der Bodenprofile Nassau 1 (Of) und Nassau 2 (Of(Oh) ... Ah(Oh)) überwiegt der  $^{238}\text{U}$ -Gehalt.

Vor allem die Ungleichgewichte der beiden letztgenannten Profilen könnten u. U. erklärt werden durch die Fixierung und Akkumulation von Uranylhumat und Uranylfulvat in der organischen Substanz einerseits und die starke Adsorption des Ra an Tonminerale, und damit v. a. in Bodenbereichen höherer Gehalte mineralischer Substanz, andererseits. In dem sauren Milieu der Bodenhorizonte höherer organischer Gehalte wäre dagegen von einer höheren Löslichkeit des Ra im Vergleich zu der des U und Th auszugehen (vgl. Diskussion in Kap. 7.2); somit wäre Ra als der mobilere Part stärker wanderungsfähig. Aufgrund der langen Halbwertszeit des  $^{226}\text{Ra}$  kann es sich hierbei nicht um kurzzeitige Prozesse handeln. Zudem stellt der Boden ein offenes System dar, in dem auch Beprobungshorizonte scheinbaren Gleichgewichts (z. B. Ah1 und Bv3 im Profil Nassau 2) eher als Bereiche zu verstehen sind, in denen Ein- und Austrag der Substanzen im Gleichgewicht sind, also ein stoffliches statt eines radioaktiven Gleichgewichts im eigentlichen Sinn besteht. In diesem Zusammenhang ist auch die horizontale Migration neben der vertikalen nicht zu vernachlässigen. Erstere kann z. B. über einem tonhaltigeren und damit dichteren Horizont zu horizontalen Stoffverlagerungen führen. Ein mögliches Beispiel für die Auswirkung von Substratgrenzen könnten die Bv-Horizonte Bv2 ... Bv4 des Bodenprofils Nassau 1 sein. Diese Horizonte wiesen bei der Beprobung sichtbare Solifluktuationsmerkmale auf (mit \* gekennzeichnet). In Bv3 und Bv4 liegt ein geringeres  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewicht vor als in den darüber- und darunterliegenden Verwitterungshorizonten, wo ein starker  $^{226}\text{Ra}$ -Überschuß besteht.

In den untersuchten Waldbodenproben lagen die RN der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe i. allg. im Gleichgewicht zueinander vor. Aufgrund der vergleichsweise kurzen Halbwertszeiten der  $^{232}\text{Th}$ -Folger (vgl. Kap. 3.1.4; Anhang A) sind Ungleichgewichte in derartigen Bodenproben auch nicht zu erwarten.

### Natürliche Radionuklide – Kalium ( $^{40}\text{K}$ )

Das Alkalimetall K ist ein lebenswichtiges Spurenelement für das Pflanzenwachstum und die Entwicklung der Mikroorganismen und Bodentiere. K ist der Nährstoff, der in Pflanzen mit dem höchsten Gehalt vorliegt. Das  $\gamma$ -spektrometrisch sehr gut auszuwertende K-Isotop  $^{40}\text{K}$  kann als Tracer für K im Boden verwendet werden.

Die Tiefenverteilungen des  $^{40}\text{K}$  stimmen an den vier Beprobungsstandorten in ihrem prinzipiellen Verlauf überein (Abb. 23, Abb. 28, Abb. 33, Abb. 39). Die  $^{40}\text{K}$ -Gehalte der L-Horizonte betragen rund 30 ... 40 Bq/kg. Die spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten der untersuchten Fichtennadeln dagegen liegen bei  $(262 \pm 3)$  Bq/kg (1994) bzw.  $(282 \pm 3)$  Bq/kg (1993) (Abb. 44). Die von Suworow (1994) im Freiburger Raum 1992 beprobten Fichtennadeln weisen spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten von 170 ... 690 Bq/kg mit einer fallenden Tendenz im Verlauf des Jahres auf. Die im Monat Juli gemessenen Werte (junge Nadeln  $(290 \pm 12)$  Bq/kg, alte Nadeln  $(209 \pm 14)$  Bq/kg) liegen in der Größenordnung der hier, in demselben Monat, bestimmten  $^{40}\text{K}$ -Gehalte. Im Gegensatz zu den hier untersuchten Proben sind die spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten der jungen Nadeln jedoch größer als die der alten Nadeln.

Eine sukzessive Abnahme der K-Konzentrationen mit zunehmendem Alter der Fichtennadeln konstatieren auch Wytenbach et al. (1995). Die Autoren stellen denselben Effekt auch, in noch stärkerem Maß, für Cs fest (die Gehalte stabilen K, Cs und Rb wurden mittels Neutronenaktivierungsanalyse gemessen). Die Mittelwerte der (aus den Gehalten stabilen K errechneten) spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten liegen bei 150 ... 240 Bq/kg für Nadeln des aktuellen Jahrs einer großen Anzahl von Standorten in der Schweiz und Süddeutschland. Aus dem Vergleich der Fichtennadelgehalte mit den Gesamtkonzentrationen in zugehörigen Bodenprofilen schließen Wytenbach et al. (1995), daß die Nadelgehalte des K (im Gegensatz zu denen des Cs) kaum von den K-Konzentrationen im Boden und den Adsorptionseigenschaften der jeweiligen Standortböden abhängen. Die Streuung der Nadelgehalte ist dabei am größten für Cs und am kleinsten für K. Demzufolge kann für die hier durchgeführten Untersuchungen an allen Waldstandorten ein, bezüglich der spezifischen Aktivität, vergleichbarer K-Eintrag über die Nadelstreu angenommen werden.

Im Rahmen des seit 1966 im Solling durchgeführten Projekts zur Ökosystemforschung („Sollingprojekt“) untersuchte ein- und mehrjährige Fichtennadeln sowie Nadelstreu lassen vergleichbare Beobachtungen zu (Ulrich et al. 1986). Die aktuellen, d. h. einjährigen Nadeln weisen spezifische  $^{40}\text{K}$ -

Aktivitäten von bis zu 300 Bq/kg auf, die zweijährigen 230 Bq/kg und die fünfjährigen 150 Bq/kg (aus den Gehalten stabilen Kaliums errechnet). Die in Netzen aufgefangene Nadelstreu unterschiedlichen Alters liegt bei 80 Bq/kg, und damit noch doppelt so hoch wie die in der vorliegenden Arbeit bestimmten  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten der L-Horizonte. Die in Fichtenreinbeständen des Osterzgebirges 1962–65 und 1991–94 bestimmten K-Gehalte der Nadelstreu (Sammlung in Streufängen) zeigen Variationsbreiten von 46 ... 190 Bq/kg (Dietrich 1968) und 49 ... 220 Bq/kg (Hofmann u. Nebe 1996). Dietrich (1968) beobachtet dabei eine gegenläufige Abhängigkeit des K-Gehalts der Streu von den vor der Probenahme gefallen Niederschlagsmengen, wobei v. a. Niederschläge, die kurz vor der Probenentnahme in die Streufänge fallen, Auswirkung auf die K-Werte zeigen.

Die häufig beobachtete große Diskrepanz zwischen den K-Gehalten in den Fichtennadeln und der Streulage der Böden kann wie folgt erklärt werden. Die erste Phase der Humifizierung und Mineralisierung der pflanzlichen Substanz beginnt schon kurz vor oder unmittelbar nach dem Absterben der Pflanzenorgane. In enzymatischen Reaktionen organismeneigener Stoffe werden im Zellinneren hochpolymere Verbindungen in Einzelbausteine zerlegt. Dabei wird ein großer Teil der mineralischen Nährstoffe, wie Fe, Mg und K, freigesetzt und kann mit dem Regenwasser ausgewaschen werden (Turkey 1970; Schachtschabel et al. 1992). Während lebende Fichtennadeln am Baum kontinuierlich K aufnehmen und in ihrem Stoffwechsel verwenden, werden diese Prozesse vor dem Nadelfall unterbrochen und die Nadeln so auf das Abstoßen vom Baum vorbereitet. Das durch die Spaltöffnungen der Blätter ausgeschiedene K kann somit bereits aus der alternenden Nadel stark ausgewaschen werden und ist in der Humusaufgabe unter dem Einfluß der Niederschläge mit dem Sickerwasser im Boden leicht nach unten verlagerbar (vgl. Dietrich 1963, 1968; Ulrich et al. 1986). Die genannten Freisetzungs- und Auswaschungsprozesse sowie auch die Interzeptionswirkung des Kronenraums und die Interzeptionsverdunstung von Niederschlagswasser können generell eine Konzentrationserhöhung im Niederschlagswasser des Bestands bewirken (Ulrich et al. 1986). In Langzeituntersuchungen zeigte sich, daß die Konzentrationen von z. B. K und Mn im Kronendurchlaß eines Buchenbestands ein sechs- bzw. elfaches der Gehalte des Freilandniederschlags betragen; der Freilandniederschlag dagegen wies im Vergleich zum Kronendurchlaß höhere Konzentrationen an Schwermetallen wie Co und Zn auf, während sich die Konzentrationen von Schwermetallen wie Cd und Pb in den beiden Niederschlagsarten nur geringfügig unterschieden (Ulrich et al. 1986).

Neben der Auswaschung in der Streu bzw. den Auflagehorizonten – welche allerdings auch von einer neuerlichen Aufnahme des Nährstoffs durch die Wurzeln der Pflanzen gefolgt ist – liegt der Hauptgrund für die mit der Tiefe ansteigende Konzentration des K in den Bodenprofilen in dem zunehmenden Anteil mineralischer Substanz der Horizonte. Die spezifischen Aktivitäten nähern sich in den Verwitterungshorizonten einem konstanten Wert an bzw. erreichen ihn, je nach Beprobungstiefe der Profile. Während dieser Endwert in den erzgebirgischen Bodenprofilen  $> 800 \dots 1200 \text{ Bq/kg}$  beträgt, liegt er für das süddeutsche, über glazigenen Sedimenten gebildete Profil bei  $< 400 \text{ Bq/kg}$ . Ein Vergleich der spezifischen Aktivitäten des  $^{40}\text{K}$  in den untersuchten Verwitterungshorizonten mit Literaturwerten der chemischen Zusammensetzung sächsischer bzw. erzgebirgischer Grundgesteine (Nebe 1964, 1970) zeigt eine tendenzielle Übereinstimmung der Werte. Aus den in der Literatur aufgeführten  $\text{K}_2\text{O}$ -Gehalten (in Masse-%) errechnen sich spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten von  $(1030 \pm 100) \text{ Bq/kg}$  ( $\text{K}_2\text{O}$ :  $4.02 \pm 0.38$ ,  $n = 4$ ) für Fläje Granit (vgl. Holzhau),  $(1490 \pm 140) \text{ Bq/kg}$  für osterzgebirgischen Granitporphyr ( $\text{K}_2\text{O}$ :  $5.81 \pm 0.56$ ,  $n = 14$ ; vgl. Nassau 1) und  $(1040 \pm 160) \text{ Bq/kg}$  für erzgebirgische Graue Gneise ( $\text{K}_2\text{O}$ :  $4.04 \pm 0.62$ ,  $n = 23$ ; vgl. Nassau 2). Im Fall des Profils Holzhau fällt die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität des zusätzlich aus 33 cm Tiefe beprobten Bodenmaterials mit etwa  $960 \text{ Bq/kg}$  (vgl. Kap. 7.1.1) in den Variationsbereich der entsprechenden Literaturwerte. Von diesem Wert abgesehen liegen die in der Literatur angegebenen K-Gehalte für die Grundgesteine jedoch über denen der hier in geringerer Bodentiefe beprobten Verwitterungshorizonte. Grund hierfür könnte eine Abreicherung des K im verwitterten Gesteinsmaterial im Vergleich zum Ausgangsgestein sein.

### Kosmogene Radionuklide – Beryllium ( $^7\text{Be}$ )

Das kosmogen erzeugte  $^7\text{Be}$  ist in den untersuchten Fichtenwaldböden in der Humusauflage, im Profil Nassau 1 auch noch im humosen Oberboden Ah nachweisbar (bis in 2 ... 5 cm Tiefe). Die maximalen spezifischen Aktivitäten sind im L-Horizont zu finden und variieren stark (170 ... 460 Bq/kg). Das Maximum in der Streulage wird durch die atmosphärische  $^7\text{Be}$ -Deposition bewirkt (Kap. 2.2; Kap 4.1 u. Kap. 5.2). Der wasserlösliche Tracer kann während bzw. nach der Deposition auf die Waldbodenoberfläche von Niederschlagswasser mitgespült und tiefer in die Humusauflage eingetragen werden. Es ist zu erwarten, daß das Element aufgrund seiner hohen Ladungsdichte eine starke Affinität für Kationenaustauschplätze, z. B. von Tonmineralen oder der organischen Substanz, aufweist (vgl. Fairhall 1960; Baes u. Mesmer 1976; Reimann u. Caritat 1998). Die charakteristische, steil abfallende  $^7\text{Be}$ -Tiefenverteilung in den Bodenprofilen ist somit sowohl der (anfänglichen) Migration als auch einer starken Festlegung im Boden und, aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit des  $^7\text{Be}$  von nur 53 d, dem Zerfall des Nuklids zuzuschreiben.

Wallbrink u. Murray (1996) konnten  $^7\text{Be}$  in verschiedenen Böden Australiens (z. B. Grasland, Waldböden ohne Streulage) nur bis in maximal 2 cm Tiefe nachweisen. An Beprobungsorten mit Streulage (Eukalyptuswälder) verblieben bis zu 100 % des  $^7\text{Be}$  in der Streu. Physikalischen Eigenschaften wie Bewuchs, Bodendichte und Bodenstruktur werden in den Untersuchungen als die kontrollierenden Faktoren für das Eindringungsvermögen des  $^7\text{Be}$  in den Boden angesehen. Auch in Bodenproben aus Idaho, USA, blieb der Nachweis des  $^7\text{Be}$  auf die oberen 1 ... 2 cm beschränkt (Bonniwell et al. 1999). Neben der kurzen Halbwertszeit wird auch hier die schnelle Sorption des  $^7\text{Be}$  an Bodenpartikeln als eine Ursache für den Rückhalt des Nuklids nahe der Oberfläche angeführt.

Die auf das jeweilige Beprobungsdatum zerfallskorrigierten  $^7\text{Be}$ -Inventare der Waldbodenprofile ermöglichen einen Vergleich der Standorte (Tabelle 20;  $A_F$ -Werte gerundet). Die errechneten Inventare unterscheiden sich sehr stark und nehmen in der Reihenfolge Holzhau–Nassau 2–Nassau 1 zu (280 ... 720 Bq/m<sup>2</sup>). Das Inventar des Bodenprofils Eggwald liegt unter den Inventarwerten der anderen Profile und ist, wie in der Ergebnisdarstellung erläutert, vermutlich unvollständig.

Die Inventare liegen prinzipiell in der Größenordnung der relativ spärlichen Literaturwerte vergleichbarer Untersuchungen. Aus den von Bonniwell et al. (1999) an Bodenprofilen (inklusive Bewuchs) des Gold Fork River Einzugsgebiets (Idaho, USA) bestimmten  $^7\text{Be}$ -Inventaren läßt sich ein Mittelwert von  $140 \pm 20$  Bq/m<sup>2</sup> errechnen. Olsen et al. (1985) ermittelten  $^7\text{Be}$ -Inventare für Boden- und Marschlandprofile (Virginia und Tennessee, USA) von 110 ... 670 Bq/m<sup>2</sup>. Die von Wallbrink u. Murray (1996) errechneten Mittelwerte der  $^7\text{Be}$ -Inventare verschiedener, im wesentlichen anthropogen unbeeinflusster Lokaltäten in Australien liegen im Bereich 90 ... 410 Bq/m<sup>2</sup>, mit Einzelwerten von bis zu 620 Bq/m<sup>2</sup>. Dabei führen die Autoren an, daß eine „vollständige“ Erfassung des  $^7\text{Be}$ -Inventars am ehesten bei Bodenproben mit intaktem Grasbewuchs erfolgte, und schließen zudem, daß die Interzeptionswirkung des Kronenraums einen wichtigen Faktor für die Verringerung des  $^7\text{Be}$ -Flusses zum Waldboden darstellen könnte (Wallbrink u. Murray 1996). Interessanterweise würde dies im Gegensatz zu der für andere Elemente beobachteten Eintragserhöhung durch die auskämmende Wirkung von Waldbeständen (Matschullat u. Bozau 1996; Matschullat et al. 2000) stehen.

Die unterschiedlichen (Wald)Standorte und Beprobungsjahre sind als mögliche Ursachen für die teilweise großen Unterschiede in den Inventarwerten anzusehen. Der Jahresgang der atmosphärischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitätskonzentrationen mit einem Maximum im Frühjahr/Sommer und einem Minimum im Herbst/Winter (Kap. 2.2) ist weder in den hier bestimmten noch den in der Literatur dargestellten  $^7\text{Be}$ -Tiefenverteilungen bzw. Inventaren direkt erkennbar. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, daß sich die saisonalen Variationen des atmosphärischen Eintrags auch in Form zeitlich variierender  $^7\text{Be}$ -Inventare im Boden niederschlagen; das aktuelle Inventar an einer Probennahmelokalität würde in diesem Fall eine gewisse Abhängigkeit von der Wahl des Beprobungszeitpunkts aufweisen. In diesem Kontext ist zu beachten, daß der  $^7\text{Be}$ -Eintrag stark von den herrschenden Witterungsbedingungen gesteuert wird; wie in Kap. 2.2 angesprochen, trägt dabei die trockene Deposition i. allg. nur zu < 10 % zur  $^7\text{Be}$ -Gesamtdeposition bei (Brown et al. 1989; Todd et al. 1989; Wallbrink u. Murray 1994). In



humiden Klimaregionen steigt die Deposition von  $^7\text{Be}$ -Aktivität auf der Erdoberfläche generell mit steigenden Regenmengen, wobei jedoch, erwartungsgemäß, während eines Niederschlagsereignisses die spezifische Aktivität im Regen mit steigender Regenintensität i. allg. sinkt (Schumann u. Stoeppler 1963; Wallbrink u. Murray 1994). Dies ist darauf zurückzuführen, daß zusätzlich zu der Auswaschung innerhalb der Wolken („rainout“) zu Beginn des Regenereignisses eine Auswaschung der Atmosphäre unterhalb der Wolkenbasis erfolgt („washout“). Auch Resuspensionseffekte tragen zum Input bei (Papastefanou et al. 1995). Deren Ausmaß wird an Waldstandorten u. a. von Faktoren wie dem Bestandesalter und der Bestockungsdichte beeinflusst.

Tabelle 20:  $^7\text{Be}$ -Gesamtinventare (inklusive Vegetation) an den untersuchten Fichtenwald- und Hochmoorstandorten sowie spezifische  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten oberflächennaher Proben

Bodenprofil bzw. Beprobungsort	Datum	$A_F^{2)}$ Bq/m <sup>2</sup>	Probe <sup>1)</sup>	$A_{\text{spez}}^{2)}$ Bq/kg
Holzhau	29.4.94	280 ± 10	L-Horizont	169 ± 2
	15.7.94	–	Fichtennadeln, mehrjährig (1993 und älter)	28.4 ± 2.6
	15.7.94	–	Fichtennadeln, einjährig (1994)	35.9 ± 1.0
Nassau 1	28.8.96	720 ± 10	L-Horizont	463 ± 4
Nassau 2	5.9.96	430 ± 10	L-Horizont	352 ± 3
Eggwald	8.7.94	250 ± 10 <sup>3)</sup>	L-Horizont	311 ± 6
Georgenfeld	25.10.94	200 ± 20	Vegetation	114 ± 3
Schwarze Heide	30.8.95	630 ± 50	Vegetation	539 ± 17
Kl. Kranichsee	11.7.96	590 ± 50	Schicht 1	680 ± 5
	28.9.97	–	Torfmoose (rezente Abschnitte)	752 ± 34
	28.9.97	–	Scheidiges Wollgras (oberirdische Abschnitte / Blätter; gewaschen)	168 ± 15
Radauer Born	3.11.95	570 ± 50	Schicht 1	501 ± 26

<sup>1)</sup> ungewaschen verarbeitet und gemessen, sofern nicht anders vermerkt

<sup>2)</sup> zerfallskorrigiert auf den Tag der Probennahme

<sup>3)</sup>  $^7\text{Be}$  ist nur in zwei Beprobungshorizonten nachweisbar, das Inventar ist eventuell unvollständig.

Tabelle 21: Literaturangaben spezifischer  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten unterschiedlicher Vegetation

Beprobungsort	Datum	Probe (Probenanzahl n) <sup>1)</sup>	$A_{\text{spez}}^{2)}$ Bq/kg	Zitat
Freiberger Raum (04/92–10/92)	1992	Fichtennadeln, einjährig (n = 2)	12 ... 18	Suworow 1994
	1992	Fichtennadeln, mehrjährig (n = 4)	9.0 ... 59	
	1992	Kiefernadeln, einjährig (n = 4)	3.2 ... 47	
	1992	Kiefernadeln, mehrjährig (n = 2)	11 ... 37	
	1992	Birkenblätter (n = 7)	12 ... 133	
	1992	Eichenblätter (n = 3)	26 ... 56	
	1992	Lindenblätter (n = 9)	12 ... 167	
	1992	Löwenzahnblätter (n = 4)	85 ... 189	
Muldenhütten	25.5.92	Erlenblätter (n = 1)	26.7 ± 3.2	
Schneckenstein, Westerzgebirge	10.9.97	Erlenblätter (n = 7)	180 ... 430	C. Brackhage, TU Dresden, pers. Mitt. 1999
Altdorfer Wald, Oberschwaben	4.7.91	Brombeerblätter	68	Drissner 1991

<sup>1)</sup> ungewaschen verarbeitet und gemessen, sofern nicht anders vermerkt

<sup>2)</sup> zerfallskorrigiert auf den Tag der Probennahme; Minimum ... Maximum (n > 1)

Anhand jahrelanger detaillierter Aufzeichnungen der täglichen Wetterentwicklung in dem Forstrevier, dem alle drei osterzgebirgischen Beprobungspunkte angehören (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1999), sind Zusammenhänge zwischen den meteorologischen Gegebenheiten im Zeitraum vor der Probennahme und den beobachteten Inventarunterschieden ersichtlich. Die Wintermonate, die der Probennahme Holzhau am 29.4.1994 vorangingen, wiesen Niederschläge hauptsächlich in Form von Schnee auf, waren jedoch ansonsten niederschlagsarm und teilweise von Tauwetter geprägt. In den Sommermonaten 1996 dagegen dominierte nasse und kühle Witterung. Den Probenahmen Nassau 1 (28.8.1996) und Nassau 2 (5.9.1996) ging somit eine längere Phase starker Niederschläge vorweg. Beide Standorte weisen im Vergleich zum Profil Holzhau höhere spezifische Aktivitäten in L und höhere Gesamtinventare auf, unterscheiden sich jedoch auch untereinander deutlich.

Die unterschiedliche Lage der drei Beprobungsorte – bei vergleichbaren Parametern wie Bestandesalter und Bestockungsdichte – resultiert in variierenden klimatischen Bedingungen. In der Reihenfolge Holzhau=Nassau 2–Nassau 1 nimmt die meteorologische Exposition zu: Während der Beprobungspunkt Holzhau trotz geringerer Entfernung zum exponierten Gebirgskamm im Lee liegt, ist Nassau 1 in luvseitiger Kuppenlage am zur Hauptwetterrichtung freiliegenden und damit besonders niederschlagsreichen Kannelberg positioniert (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1999). Letzteres Profil weist sowohl die höchste spezifische Aktivität in der Streulage auf als auch das höchste Inventar.

Der Eintrag durch Fichtennadeln ist aufgrund der kurzen Halbwertszeit des  $^7\text{Be}$  nur in Zeiten intensiven Nadelfalls von Bedeutung. Die spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten der untersuchten Fichtennadeln (Beprobungsgebiet Holzhau) betragen gemittelt 32 Bq/kg. Im Vergleich zu dem Wert des L-Horizonts des Profils Holzhau sind das nur knapp 20 % (Tabelle 20; Abb. 44). Die spezifischen Aktivitäten der Nadelproben liegen in der Größenordnung der 1992 im Freiburger Raum von Suworow (1994) gemessenen ein- und mehrjährigen Fichtennadeln.

Der Vergleich der  $^7\text{Be}$ -Gehalte verschiedener Nadel- und Blattarten macht deutlich, daß die Werte generell stark variieren (Tabelle 20, Tabelle 21). Dabei scheinen Blätter tendenziell höhere Werte aufzuweisen als Nadeln, wie v. a. die Originaldaten indizieren. Auffallend sind die wesentlich höheren spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten der 1997 im Westerzgebirge (Schneckenstein; > 800 m ü. NN) gesammelten Erlenblätter (C. Brackhage, TU Dresden, pers. Mitt. 1999; Mittelwert  $300 \pm 100$  Bq/kg), auch im Vergleich zu 1992 im Freiburger Raum (Muldenhütten) beprobten Erlenblättern (Suworow 1994). Die Struktur der Vegetations- und Bodenoberfläche (z. B. Rauigkeit) könnte einen wesentlichen Einfluß auf die Adsorption des atmosphärisch eingetragenen Nuklids ausüben. Erlenblätter sind im Vergleich zu Birken- und Lindenblättern fester, mit einer stärkeren Aderung versehen und teilweise lignifiziert; zudem ist die schmutzabweisende Cuticula der Blätter unterschiedlich stark ausgeprägt (Schauer u. Caspari 1996; C. Brackhage, TU Dresden, pers. Mitt. 1999). Allerdings sind auch die unterschiedlichen Beprobungsstandorte zu beachten (z. B. Freiberg–Erzgebirgskamm oder freie Wiesenfläche–Waldgebiet). Zudem kann davon ausgegangen werden, daß die Position der Nadeln bzw. Blätter am Zweig, in der Baumkrone oder im gesamten Kronenraum einen Einfluß auf die  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten der entsprechenden Pflanzenteile hat. Während anhand der wenigen Fichtennadelproben unterschiedlicher Standorte im Freiburger Raum weder der Jahresgang der atmosphärischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitätskonzentrationen noch jahreszeitliche Variationen der spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten der Nadeln nachweisbar sind, deuten die Ergebnisse der monatlich (April–September 1992) an einem Standort beprobten Linden- und Birkenblätter (Suworow 1994) auf ein Maximum der spezifischen Aktivitäten in den Sommermonaten hin (wobei nicht erkennbar ist, ob dies auf jahreszeitliche Schwankungen des  $^7\text{Be}$ -Eintrags oder auf eine fortschreitende Akkumulation des  $^7\text{Be}$  an den Blättern zurückzuführen ist).

## Künstliche Radionuklide

Die Tiefenverteilungen der künstlichen RN in Fichtenwaldböden weisen relativ ausgeprägte Maxima in unterschiedlichen Horizonten auf. Ähnlich den kosmogenen RN wurden auch die künstlichen RN aus der Atmosphäre deponiert. Während erstere jedoch konstant gebildet und nachgeliefert werden, wurden zweite mehr oder weniger  $\delta$ -förmig eingetragen. Die in Kap. 2.3 erläuterten zeitlichen Rahmenbedingungen der Deposition durch die Kernwaffentests (1945–80 mit Maximum 1963) und den Tschernobyl-Unfall (1986) beeinflussen die RN-Verteilung im Boden. Die Horizontierung des Fichtenwaldbodens und die sehr unterschiedlichen Eigenschaften der Horizonte wirken sich darüber hinaus wesentlich auf die Mobilität und die Fixierung der Nuklide aus.

### Cäsium ( $^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ und $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ )

Die genannten Einflußgrößen sind gut sichtbar in den Tiefenverteilungen der spezifischen Aktivitäten der Cs-Isotope  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  bzw. der  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile des Kernwaffen- und des Tschernobyl-Fallouts,  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  (Abb. 26, Abb. 31, Abb. 36, Abb. 41). Die Maxima des Tschernobyl-bürtigen  $^{134}\text{Cs}$  und damit auch die des aus dem  $^{134}\text{Cs}$  errechneten  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  sind in den vier untersuchten Bodenprofilen deutlich ausgeprägt und liegen im Bereich des Humifizierungshorizonts Oh. Dabei ist der Schwerpunkt bei den Profilen mit feiner unterteilten organischen Horizonten im oberen Bereich des Oh-Horizonts (Oh(Of)-Beprobungshorizonte der Profile Holzau und Nassau 2) zu finden. Die Bodentiefen der Beprobungshorizonte maximaler spezifischer Cs-Aktivitäten dagegen unterscheiden sich und liegen im Bereich 1 ... 4.5 cm. Betrachtet man die Verteilungen der Aktivitätskonzentrationen ( $A_{\text{konz}}$  in  $\text{Bq}/(\text{m}^2 \text{ cm})$ ; o. Abb.), so befindet sich das  $^{134}\text{Cs}$ -Maximum nur im Profil Holzau in demselben Horizont (Oh(Of)), in den anderen Profilen dagegen im Ah-Horizont, und damit im Bereich 1 ... 7.5 cm. Insgesamt legen die Ergebnisse eine eher horizont- statt tiefenspezifische Verteilung des  $^{134}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  nahe, was sich im Vergleich zur Literatur bestätigt.

In zahlreichen Untersuchungen an Waldböden Oberschwabens (Institut für Angewandte Forschung, Schwerpunkt Strahlungsmeßtechnik, FH Ravensburg-Weingarten) konnten schon in den Jahren 1991–93, also vor den Beprobungen der vorliegenden Arbeit, die maximalen  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Konzentrationen ungedüngter Fichtenwaldböden im Mittel in den Oh-Horizonten gemessen werden (z. B. Diplomarbeiten von Zimmerer 1992, Bürmann 1993 und Heider 1994; s. auch Drissner et al. 1992; Lindner et al. 1994). Schimmack et al. (1991, 1997a) stellten in einem Waldgebiet 50 km nordwestlich von München (Höglwald; Fichte, 80 a, podsolige Parabraunerde) fest, daß sich das  $A_{\text{konz}}$ -Maximum des  $^{134}\text{Cs}$ , welches 1987 im unteren Bereich des Of-Horizonts gelegen hatte, 1991 im Oh-Horizont befand. In 1990 entnommenen Profilen desselben Waldgebiets ist  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  hauptsächlich im (unteren Bereich des) Of-, dem Oh- und dem oberen Bereich des A-Horizonts nachzuweisen (Bunzl et al. 1992). Aus den Originaldaten der zuvor zitierten Weingartner Diplomarbeiten ist erkenntlich, daß sich die Maxima der spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten in den 1991 untersuchten Profilen in den Of-Horizonten befinden (Eggwald; Zimmerer 1992), 1992 in Of und Oh mit Tendenz zu Oh (Altdorfer Wald; Bürmann 1993) und 1993 im Oh (Ochsenhausener Staatsforst; Heider 1994). Das hier vorgestellte, Mitte 1994 ebenfalls im Eggwald beprobte Profil weist das  $A_{\text{spez}}$ -Maximum des  $^{134}\text{Cs}$  im Oh-Horizont auf, wobei dieser Wert jedoch nur geringfügig über dem des Ah-Horizonts liegt. Aus diesen Ergebnissen könnte auf eine vertikale Wanderung des Cs im Zuge des fortlaufenden Umwandlungsprozesses der organischen Materie im Boden geschlossen werden. Diese Hypothese wird in Zusammenhang mit den Tiefenverteilungen des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  diskutiert (s. u.).

$^{134}\text{Cs}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) ist in allen Profilen von der Streulage L bis in den Bereich der Verwitterungshorizonte Bv bzw. BsBt detektierbar. In den Bodenprofilen Holzau und Eggwald ist dies die jeweilige Endtiefe (12 cm bzw. 18 cm). Im Profil Nassau 2 ist  $^{134}\text{Cs}$  unterhalb des BvBs2-Beprobungshorizonts nicht mehr nachweisbar (max. 12 cm). Die geringen Probenmengen der drei Bv-Proben aus größerer Tiefe wurden in WD-Probenbehältern  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen, woraus höhere Nachweisgrenzen resultieren. Nur am Beprobungspunkt Nassau 1 ist die  $^{134}\text{Cs}$ -Tiefenverteilung komplett umfaßt (durchgehend MB-Probenbehälter). Sie reicht hier bis in den Bv2-Horizont (26 cm). Auch in den 1991–93 in

Oberschwaben untersuchten Fichtenwaldprofilen war  $^{134}\text{Cs}$  in den mineralischen Horizonten detektierbar (Zimmerer 1992; Bürmann 1993; Heider 1994). Zu beachten ist, daß inzwischen der Nachweis einer zunehmenden Cs-Verlagerung mit der Tiefe durch die relativ kurze Halbwertszeit des  $^{134}\text{Cs}$  erschwert wird.

In weiten Gebieten Süddeutschlands erfolgte ein wesentlicher Teil der Aktivitätsdeposition nach dem Tschernobyl-Unfall durch starke Regenfälle (vgl. Kap. 2.3). In dem oben erwähnten bayerischen Waldgebiet Höglwald zeigten sich die Auswirkungen eines heftigen Regenschauers am 30.4.1986 in einer starken anfänglichen Infiltration des Fallouts in die Humusaufgabe (Schimmack et al. 1989). Schon zwei Wochen nach der Deposition war ein geringer Prozentsatz des  $^{134}\text{Cs}$  in den mineralischen Horizonten nachweisbar (Bunzl et al. 1989b). In später beprobten Bodenprofilen (1990) konnten in den mineralischen Horizonten (bis 20 cm Tiefe beprobt) geringe  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Konzentrationen detektiert werden (Bunzl et al. 1992). Laborsimulationen der Deposition von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  auf Kiefernwaldbodenkernen zeigten, daß sowohl die Regenintensität als auch die Sorptionseigenschaften der RN – auch bei starkem Regenfall – einen deutliche Einfluß auf die anfängliche Tiefenverteilung der Nuklide haben (Schimmack et al. 1994). Im Vergleich der hier vorgestellten Profile Süddeutschlands und des Osterzgebirges sind derartige Infiltrationseffekte nicht direkt sichtbar. Dennoch ist die schnelle Verlagerung durch Makroporen, Kanäle, Brüche und Risse des Bodens, teilweise auch ohne merkliche Sorption, für die Migration von RN allgemein nicht zu vernachlässigen, (vgl. Frissel u. Pennders 1983; Schimmack et al. 1997b).

Die Tiefenprofile des kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  weisen im Gegensatz zu denen der Cs-Isotope des Tschernobyl-Fallouts ein wesentlich geringer ausgeprägtes, verbreitertes bis plateauartiges Maximum im Bereich der Oh-, Ah- und oberen B-Horizonte (beachte Ah-Fahnen, z. B. BsBt1 ... BsBt3 des Profils Eggwald) auf ( $A_{\text{konz}}$ : Maximum in den Ah- und oberen B-Horizonten). In der Streulage L und z. T. auch den Of- und Oh-Horizonten ist  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  nicht mit Sicherheit nachweisbar. Unterhalb der Tiefen, in denen  $^{134}\text{Cs}$  detektierbar ist, entsprechen sich das gemessene  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  und das aus der Differenz zu  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  berechnete  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ . Nur das Profil Nassau 1 erfaßt die Tiefenverteilung des  $^{137}\text{Cs}$  komplett (bis Bv5, Tiefe 48 cm). In den anderen Profilen ist  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  jeweils bis zur Endtiefe der Probennahme nachweisbar (Holzhau: 33 cm; Nassau 2: 32 cm; Eggwald 18 cm).

Diese Ergebnisse werden durch Literaturangaben unterstützt: Auch im Höglwald war  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  1986 und 1990 nicht in der Streulage nachweisbar und konnte in den mineralischen Horizonten bis mindestens 20 cm Tiefe detektiert werden (Schimmack et al. 1989; Bunzl et al. 1992). Die höchsten Konzentrationen des Nuklids lagen in den Oh- (Schimmack et al. 1989) und oberen A-Horizonten („Aeh“; Bunzl et al. 1992). In Kiefernwaldböden und in Gras- bzw. Weideland konnte  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  auch noch in den mineralischen Horizonten unterhalb von 30 cm bzw. 40 cm in geringeren Konzentrationen bestimmt werden (Kirchner u. Baumgartner 1992; Bunzl et al. 1994a, 1995b). Obwohl der  $^{137}\text{Cs}$ -Eintrag durch oberirdische Kernwaffentests einen deutlichen Peak aufweist – in Westeuropa wurden 1962–65 etwa 70 % der  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtdeposition eingetragen, 50 % alleine in den Jahren 1963/64 (Bachhuber et al. 1982; Dörr u. Münnich 1991) – so spiegelt sich dieser ursprünglich doch sehr konzentrierte Input in den  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Tiefenverteilungen im Vergleich zu denen des  $^{134}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  oft nicht wider (vgl. z. B. Schimmack et al. 1989; Bunzl et al. 1994a, 1995b).

Obwohl eine horizontspezifische Verteilung des Cs sichtbar wird, können die vorliegenden Untersuchungen nicht eindeutig klären, ob der Übergang der spezifischen Aktivitäten oder Aktivitätskonzentrationen zu benachbarten Horizonten so sprunghaft ist, wie dies z. T. in der Literatur (z. B. Bürmann 1993) angegeben wird. Zimmerer (1992) verweist auf (Kontroll)Messungen ungemischter Einzelproben angrenzender Horizonte und gibt an, einen sprunghaften Übergang der Aktivitätskonzentrationen an Horizontgrenzen nachgewiesen zu haben. Die Bodenhorizonte der hier untersuchten Profile wurden zwar bei der Beprobung, soweit möglich, noch weiter unterteilt, aber insgesamt liegen nicht ausreichend Profildaten vor, um einen derartigen Effekt signifikant nachzuweisen.

Die hier vorgestellten und die aus der Literatur stammenden Untersuchungsergebnisse zum Verhalten der Cs-Isotope in verschiedenen Böden demonstrieren einerseits die Vielfalt der einwirkenden

Faktoren – z. B. den pH- und KAK-Werten, den Nährstoffgehalten und Korngrößenverteilungen sowie der Art und den Gehalten des organischen Materials, der Tone und der Carbonate (Livens u. Loveland 1988; Andolina u. Guillitte 1990; Valcke u. Cremers 1994; Wauters et al. 1994; He u. Walling 1996; Bunzl et al. 1998a) – und zeigen andererseits auch auf, daß sich die dominierenden Prozesse mit der Zeit gewandelt haben und weitere Veränderungen zu erwarten sind (De Brouwer et al. 1994). Die initialen Wechselwirkungen des Cs im Ökosystem Wald waren u. a. geprägt von der Eintragsform (hauptsächlich an natürliche Aerosole adsorbiert, vgl. Kap. 2.3; in Regenwasser hauptsächlich in kolloidaler Form und nur zu einem geringen Prozentsatz in ionischer Form, Shapiro et al. 1993), den jeweiligen Depositionsbedingungen (z. B. den oben genannten Regenschauern, die deutliche Infiltrationseffekte verursachten, Schimmack et al. 1989, 1994) und den Sorptionseigenschaften der Bodenoberfläche, d. h. der Streulage inkl. Vegetation. Mit dem Erreichen tieferer Bodenbereiche unterschiedlicher Zusammensetzung und Charakteristika ist das Alkalimetall weiteren Mechanismen unterworfen, wobei Adsorption, Desorption und Fixierung sowie Löslichkeit stark von den Eigenschaften der Bodenmatrix abhängen. Weitere Faktoren sind Rücktransfer- und Kreislaufprozesse, z. B. durch Nadelfall, und neuerlicher Eintrag durch Resuspension, entweder direkt durch Bodenpartikel oder indirekt durch kontaminiertes Pflanzenmaterial wie Pollen (Aarkrog 1988a; Cambray et al. 1989; Hötzel et al. 1992; Bunzl et al. 1993, 1995a).

Aufgrund einer starken Fixierung des Cs an Tonmineralen (Sawhney 1972; Francis u. Brinkley 1976; Cremers et al. 1988) erwies sich das RN in Böden hoher mineralischer Gehalte, wie Ackerböden oder den Sedimenten von Hartwasserseen, als nur geringfügig mobil (Livens u. Loveland 1988; Petersen et al. 1990; Ritchie u. McHenry 1990; Lindner et al. 1993; Nisbet 1993; Robbins et al. 1992; Schimmack et al. 1997b). Dabei sind nur einige Tone, im besonderen Illit, das dominante Tonmineral in den Böden Westeuropas, verantwortlich für die nahezu irreversible Fixierung des Cs (Tamura u. Jacobs 1960; Lomenick u. Tamura 1965; Evans et al. 1983; Cremers et al. 1988). Die selektive Adsorption an illitischen Tonmineralen ist u. a. in den vergleichsweise kleinen Radien in hydratisiertem Zustand und der geringen Hydratisierungsenergie des  $\text{Cs}^+$ -Ions begründet (Sawhney 1972).

Drei bekannte Sorptionsplätze für kleine, nur schwach hydratisierte Alkalikationen wie  $\text{K}^+$ ,  $\text{Rb}^+$  und  $\text{Cs}^+$  sind, mit steigender Selektivität, an den Außenflächen der Tonmineralpartikel lokalisiert (Regular Exchange Sites = RES) sowie in Positionen zwischen den Silikat-Schichtebenen, entweder nahe der keilförmig aufgeweiteten Rändern der Tonminerale (Frayed Edge Sites = FES) oder im Inneren, i. allg. zwischen kollabierten Schichten (kollabierte Zwischenschichtpositionen; teilweise ebenfalls als FES bezeichnet) (Rich 1964; Brouwer et al. 1983; Evans et al. 1983; Cremers et al. 1988; De Brouwer et al. 1994). Die Bindungsplätze in Zwischenschichtregionen sind sehr spezifisch für Cs und können eine dauerhafte Fixierung bewirken (Sawhney 1972; Brouwer et al. 1983; Comans et al. 1991; Comans u. Hockley 1992). Normalerweise adsorbieren K-Ionen an diesen Austauschplätzen. Die Cs-Ionen sind in der Lage, K-Ionen, die einen ähnlichen Ionenradius aber höhere Hydratisierungsenergien aufweisen, aus der Zwischenschicht zu verdrängen. Werden genügend Ionen zwischen den Silikatschichten eingelagert, so kontrahieren bzw. kollabieren die Elementarschichten, eine energetisch sehr stabile Struktur entsteht, in der die Ionen fixiert sind. Die wesentlich größeren, stark hydratisierten zwei- und dreiwertigen Kationen wie  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{Ca}^{2+}$  dagegen können diese Sorptionsplätze nicht besetzen. Sie bewirken eine Aufweitung der Zwischenschichten, und werden infolgedessen weder selektiv sorbiert noch dauerhaft fixiert (Rich 1964; Sawhney 1972).

Während Tonminerale Cs an bestimmten Bindungsplätzen durch spezifische Adsorption zu fixieren vermögen, weist die organische Substanz unspezifische Austauschplätze auf, z. B. an Huminstoffen, an denen K- und Cs-Ionen gleichermaßen ohne Unterscheidung durch Kationenaustausch reversibel gebunden werden können (teilweise ebenfalls als RES bezeichnet) (Cremers et al. 1988; Schachtschabel et al. 1992; Valcke u. Cremers 1994).

Die unterschiedliche Bindung des Cs durch die mineralische und die organische Bodenfraktion resultiert prinzipiell in einer unterschiedlichen Verfügbarkeit des Nuklids in den beiden Phasen. In Böden hoher organischer Gehalte ist Cs i. allg. sehr bioverfügbar. Dies wird deutlich in einem hohen Transfer des Cs aus dem Boden in eine Vielzahl von Pflanzen, wobei Pflanzen auf Torfböden oft eine

deutlich gesteigerte Cs-Aufnahme zeigen (Livens u. Loveland 1988; Sandalls u. Bennett 1992; Wirth et al. 1994). Dies wird auch durch die hier durchgeführten Untersuchungen an Fichtennadeln bestätigt, wobei die einjährigen Nadeln noch höhere  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Werte aufweisen als die mehrjährigen (Abb. 44). Bunzl et al. (2000) konnten keine signifikante Korrelation zwischen den spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten in Pflanzen und den Inventaren der zugehörigen Böden für alpines Weideland feststellen. In Fichtenwäldern mit dicken organischen O-Horizonten erwiesen sich  $^{137}\text{Cs}$ -Transferfaktoren Boden–Pflanze (sogenannte aggregierte TF in  $\text{m}^2/\text{kg}$ ) allerdings um Größenordnungen höher als in Laubwäldern, deren Böden keine O-Horizonte aufweisen (maximal für Farnpflanzen, nicht so ausgeprägt für Moose, Heider 1994; Brombeerblätter, Drissner 1991; Drissner et al. 1992).

Desorptionsexperimente (s. u.) ließen jedoch keinen Zusammenhang zwischen der Desorbierbarkeit des Cs aus dem Boden und dem Transfer in die Pflanze erkennen, was einen komplexeren Transportmechanismus als einfachen Ionenaustausch in der Bodenlösung impliziert (Drissner et al. 1998). Drissner et al. (1992) und Heider (1994) führten Desorptionsversuche am Bodenmaterial von organischen und mineralischen Horizonten oberschwäbischer Fichtenwald- und Laubwaldböden durch (Kationenaustausch mit  $\text{NH}_4^+$ , Adsorbent Giesesalz in Dialyseschlauch; vgl. Wauters et al. 1994). Während aus dem Bodenmaterial der oberen mineralischen Horizonte beider Waldtypen (Ah, B1) nur < 1 % des  $^{137}\text{Cs}$  desorbiert werden konnte, lagen die Desorptionsgrade in den organischen L-, Of- und Oh-Horizonten der Fichtenwälder bei etwa 7 %. Anschließend vergleichbare Untersuchungen an 15 Fichtenwaldstandorten (Of, Oh, Ah) ergaben im Mittel die höchsten Desorptionsgrade für Oh-Horizonte mit 4 ... 6 % und die niedrigsten für Ah mit 1 ... 3 % (Drissner et al. 1998).

De Brouwer et al. (1994) vermochten mittels vierstufiger sequentieller Extraktion ( $\text{CaCl}_2$ ,  $\text{CH}_3\text{COONH}_4$  (im folgenden mit  $\text{NH}_4\text{Ac}$  bezeichnet),  $\text{CuCl}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ ; jede Stufe mehrfach ausgeführt) an künstlich kontaminierten Mischproben organischer Horizonte (Fichtenwald; Of + „OAh“) ebenfalls nur 8 % des Cs entfernen, an mineralischem Bodenmaterial (B-Horizont) dagegen mindestens 40 %. Die Extraktionsergebnisse für das mineralische Substrat unterstützen die oben ausgeführte bevorzugte Bindung des Cs an spezifischen Adsorptionsplätzen (FES) der Tonminerale im Gegensatz zu den Außenflächenpositionen – während im ersten Extraktionsschritt (Außenflächenpositionen) nur 1 % des gesamten Cs-Gehalts extrahiert wurden, waren es im zweiten mindestens 25 % (spezifische Adsorptionsplätze). Im dritten Schritt, der sich auf die Bindungsplätze an organischem Material bezieht, konnte erwartungsgemäß nur ein vernachlässigbarer Anteil des Cs extrahiert werden. Das aggressive  $\text{HNO}_3$ , welches die Mineralstrukturen verändern kann, entfernte bei mehrfacher Anwendung fortwährend Cs; es wird angenommen, daß so auch das gesamte restliche, an Tonminerale gebundene Cs entfernt werden könnte. Bei den organischen Proben konnten nur jeweils etwa 1.5 % in den ersten zwei Stufen, d. h. an Austauschplätzen gebundenes Cs, extrahiert werden, und der Anteil des durch Schritt 3 entfernten Cs lag ebenfalls bei nur 0.5 %. Selbst  $\text{HNO}_3$  extrahierte bei mehrfacher Anwendung nur einen geringen Anteil des gesamten Cs. De Brouwer et al. (1994) leiten daraus die Existenz eines sehr spezifischen Cs-Fixierungsmechanismus in den organischen Horizonten ab.

Detailliertere Untersuchungen an den einzelnen Horizonten (De Brouwer et al. 1994) zeigen im „OAh“-Horizont eine vernachlässigbare Cs-Extraktion durch die Reagentien  $\text{CaCl}_2$  und  $\text{NH}_4\text{Ac}$ , im Of dagegen werden Cs-Anteile von ca. 20 % bzw. 30 % freigesetzt. In den Ah- und B-Horizonten hat nur  $\text{NH}_4\text{Ac}$  einen deutlichen Effekt, dieser liegt bei ca. 3 % bzw. 18 %. In den zugehörigen Bodenlösungen ist Cs nur im Of mit über 1 % des gesamten gebundenen Cs nachweisbar. Aus den Ergebnissen wird wiederum auf einen Cs-spezifischen Bindungsmechanismus der rein organischen Substanz geschlossen, der sich schon im Of bemerkbar macht (wo nur 30 % durch  $\text{NH}_4\text{Ac}$  extrahierbar sind), und in den Horizonten, in denen zersetztes organisches Material angereichert ist, besonders effizient ist. Ebenfalls deutlich wird die spezifische Adsorption des Cs an Tonmineralen, sowohl im B-Horizont als auch im Ah-Horizont, wo geringere Gehalte mineralischer Substanz vorliegen. De Brouwer et al. (1994) folgern, daß sich die organischen und mineralischen Bindungsmechanismen in Ah und OAh gegenseitig verstärken und somit das Cs-Fixierungspotential der Bodensubstanz erhöhen.

Die Ergebnisse derartiger Untersuchungen können allerdings variieren, wie zweistufige Extraktionsanalysen (z. B.  $\text{NH}_4\text{Cl}$  oder  $\text{NH}_4\text{Ac}$  und  $\text{H}_2\text{O}_2$ ; Extraktion austauschbaren Cs und Zerstörung der

organischen Substanz) an Fichtenwaldböden und Torfwiesen zeigen (Heider 1994; Zibold et al. 1995), haben jedoch gemeinsam, daß ein großer Prozentsatz des Cs in der organischen Substanz durch die Extraktion nicht freigesetzt werden kann. Die Analysen zeigen beispielsweise, daß in Of- und Oh-Horizonten nur maximal 25 % des Gesamt-Cs extrahiert werden können (Heider 1994). Ein Grund für die Unterschiede der durch  $\text{NH}_4^+$ -Ionen freigesetzten Cs-Anteile mineralischen Bodenmaterials könnte in der Verschiedenheit der Proben durch z. B. Ah-Fahnen oder unterschiedliche Entnahmetiefen und Verwitterungsgrade liegen. Auch eventuelle Unterschiede durch methodische Variationen, z. B. verschiedene Konzentrationen der Reagentien, die mehrfache Ausführung der einzelnen Extraktionsschritte oder die künstliche Kontamination der Bodensubstanz (z. B. De Brouwer et al. 1994) sind nicht zu vernachlässigen.

Den Schluß eines Cs-spezifischen Bindungsmechanismus der organischen Substanz ziehen auch Passeck et al. (1995) aus Extraktionsexperimenten ( $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{CsCl}$ ) und Ultrafiltrationsuntersuchungen an verschiedenen organischen Horizonten. Den durch Wasser extrahierten  $^{137}\text{Cs}$ -Fraktionen (max. 7 %) werden unspezifische Bindungsplätze der organischen Matrix mit einer geringen Affinität für Cs zugeschrieben. Über die Salzlösung konnten etwa 10 ... 60 % des Cs mittels Ionentausch von Austauschplätzen (auch spezifischen) extrahiert werden. Das verbleibende Cs ist mit dieser Methode nicht zugänglich – entweder durch eine zu starke Bindung an die organische Matrix oder durch Aufnahme in die Zellen (Streu, Pflanzengewebe, Wurzeln, Mikroorganismen) (Passeck et al. 1995). Die genauen Fixierungsmechanismen sind noch unbekannt, es werden jedoch spezielle Struktureinheiten des gelösten organischen Kohlenstoffs (DOC) für möglich gehalten, die Cs ähnlich den makrozyklischen Polyethern (z. B. Kronenether) fixieren können (Pedersen u. Frensdorff 1972).

Andolina u. Guillitte (1990) schreiben Lignin eine wichtige Rolle für den Cs-Rückhalt in den O-Horizonten von Waldböden zu. Die Anteile verfügbaren Cs, die anhand von  $\text{NH}_4\text{Ac}$ -Extraktionen freigesetzt werden konnten, lagen bei < 25 % in den O-Horizonten und bei < 10 % in den Ah-Horizonten. Bei der Fraktionierung der organischen Substanz (O-Horizonte) erwies sich eine wesentliche Fraktion des Cs (> 70 %) an Lignine gebunden und geringere Anteile an die Fulvo- und Huminsäuren, welche vollständig löslich sind (< 24 % bzw. < 10 %). Letztere Anteile stimmten sehr gut mit der anhand von Extraktionsexperimenten bestimmten Cs-Verfügbarkeit in diesen Horizonten überein.

In Böden, in denen sowohl mineralisches als auch organisches Material vorliegt, kann eine gegenseitige Beeinflussung des Bindungsverhaltens beider Fraktionen beobachtet werden. Untersuchungen zur Auswirkung verschiedener Huminstoffe auf die Cs-Adsorption an Tonmineralen (Illit, Montmorillonit) ergaben eine geringere Cs-Affinität der Ton-Huminstoff-Komplexe als des reinen Tons, wobei dieser Effekt für höhere Konzentrationen der einzelnen Huminstoffe noch verstärkt wurde (Staunton u. Roubaud 1997; Dumat u. Staunton 1999). Aufgrund der Beobachtungen stellen die Autoren die Hypothese auf, daß die Affinität der Tonoberfläche durch die organischen Makromoleküle modifiziert wird. Chang et al. (1993) schreiben Huminsäuren die Fähigkeit zu, irreversible Bindungsplätze besetzt zu halten, die sonst für Cs verfügbar wären. Hird et al. (1995) erklären eine im Vergleich zu mineralischen Böden größere Anzahl „potentieller“ Cs-Fixierungsplätze der mineralischen Fraktion saurer organischer Böden damit, daß in den darin enthaltenen Illiten große Anteile der Zwischenschichtregionen in expandiertem Status vorliegen, verursacht durch die Anwesenheit von organischem Material in den Zwischenschichten. Die Autoren betonen jedoch, daß das (mittels sequentieller Sorptionsexperimente im Labor bestimmte) Gesamtpotential eines Bodens Cs zu fixieren keine direkte Aussage dazu zuläßt, inwieweit dieses Potentials in der natürlichen Umgebung auch umgesetzt wird. Auch De Brouwer et al. (1994) schreiben dem organischen Material bzw. den organomineralischen Komplexen einen wesentlichen Einfluß auf das Verhalten des Cs in den „halborganischen OAh-Horizonten“ zu, und stellten in ihren Untersuchungen zudem fest, daß Cs, auch im Vergleich zum K, eigene Verhaltensmuster aufweist. Demnach fungieren diese Horizonte in Waldböden einerseits als Barriere, die den Cs-Transfer im Bodenprofil verhindern, andererseits weisen sie ein „quasi-absolutes Rückhaltevermögen“ auf. Kruyts et al. (2004) sehen in dem Grad der Vermischung organischen Materials mit unterschiedlichen Anteilen mineralischer Substanz, im besonderen Cs-fixierenden Tonmineralen, und in den jeweils resultierenden Humustypen wesentliche Einflußgrößen für die Festlegung des Cs im

Waldboden; dabei wird der Bioturbation eine Schlüsselrolle zugesprochen.

Generell erweisen sich die organischen Horizonte in Waldökosystemen als Cs-Senke, mit einer dennoch hohen Cs-Verfügbarkeit (Valcke u. Cremers 1994). Den Abbauprozessen der organischen Bodensubstanz, welche diese Horizonte definieren und tiefgreifend beeinflussen, wird dabei ein dominanter Einfluß auf den Cs-Transport bzw. die Cs-Fixierung zugeschrieben (Dörr u. Münnich 1989, 1991; Tegen et al. 1991; Brückmann u. Wolters 1994; Wirth et al. 1994; Passeck et al. 1995; Rafferty et al. 2000). Dörr u. Münnich (1989, 1991) konnten einen Zusammenhang feststellen zwischen der abwärtsgerichteten Wanderungsgeschwindigkeit des Cs und der des organischen Bodenmaterials (letztere wird verursacht durch Sedimentation des organischen Bodenmaterials und die nachfolgende Umsetzung in CO<sub>2</sub>), ergänzt durch eine zusätzliche Geschwindigkeitskomponente, die abhängig ist von der Umsetzungsrate des organischen Bodenmaterials und auf einem chemischen Austausch zwischen der organischen und wäßrigen Phase beruht. Die jährliche Zersetzungsrate wiederum wird u. a. bestimmt durch die Zusammensetzung der Streu, das Klima und dem davon bedingten pH-Wert. Tegen et al. (1991) stellten in Waldbodenprofilen (Buchen-Fichtenwald) eine positive Korrelation der Cs-Mobilität mit der Bodentemperatur fest (Kerne im Laborversuch), und bestimmten höhere Cs-Konzentrationen im Sickerwasser in den Sommermonaten (Lysimeterversuche im Freiland). Diese Ergebnisse werden mit einem gesteigerten Umsatz des organischen Bodenmaterials bei höheren Temperaturen erklärt – auch sichtbar an der erhöhten CO<sub>2</sub>-Produktion in den Bodenprofilen und der höheren DOC-Konzentrationen im Sickerwasser der Profile. Eine derartige Temperaturabhängigkeit ist typisch für die mikrobielle Zersetzung von organischem Bodenmaterial (Dörr u. Münnich 1987a) und die Auflösung von organischem Kohlenstoff in Sickerwasser (vgl. Desaggregation von Huminsäure in Wasser (Schimmack u. Bunzl 1979). Es ist denkbar, daß Cs durch die mikrobielle Zersetzung und die Lösung organischer C-Komponenten in Sickerwasser sowohl mobilisiert als auch neuerlich gebunden wird. Eine Verlagerung des Cs mit dem Sickerwasser würde demnach bevorzugt im Sommer geschehen, wenn die mikrobielle Zersetzung und die Lösung des organischen Bodenmaterials in Sickerwasser hoch ist (Tegen et al. 1991). Dabei erwies sich Cs als an der gelösten organischen Fraktion des Sickerwasser gebunden (Tegen et al. 1991).

Passeck et al. (1995) schreiben der mikrobiellen Aktivität ebenfalls einen entscheidenden Einfluß auf die Freisetzung von Cs aus der organischen Matrix zu. In den Wasserextrakten (vgl. oben) von LOf- und Oh-Horizonten wurde durchgehend organisch gebundenes <sup>137</sup>Cs identifiziert. In den Horizonten mit den höchsten DOC-„Mobilitäten“ (definiert als Verhältnis extrahierter Gehalte zu Gesamtgehalten) konnten jeweils auch die höchsten <sup>137</sup>Cs-„Mobilitäten“ bestimmt werden; in den Eluaten dieser Horizonte lagen zudem ein beträchtlicher Anteil des DOC in niedermolekularer Form und Cs in ionischer Form (< 500 Dalton) vor. In Horizonten mit hochmolekulargewichtigem DOC betrug der Anteil an organisch gebundenem <sup>137</sup>Cs bis zu 40 %. Ein Vergleich der Wasser- und Salzextraktionen zeigt einen Wechsel der Bindungsplätze in Abhängigkeit von den Zersetzungs- und Humifizierungsgraden im Bodenprofil, und die Extraktionsgrade allgemein lassen auf eine Abhängigkeit von der Art der Humusaufgabe und der entsprechenden mikrobiellen Aktivitäten schließen. Obwohl nur < 5 % der <sup>137</sup>Cs-Gesamtaktivität mit wasserlöslicher organischer Substanz assoziiert sind, ist diese Menge doch relevant für den Cs-Transport im Boden. Neuere Untersuchungen (Bunzl et al. 1998a) zeigen Cs in leicht zersetztem Pflanzenmaterial nur an eine einzige niedermolekulare Fraktion der gelösten organischen Substanz gebunden, in stark zersetztem organischem Material dagegen mit allen Fraktionen gleichermaßen assoziiert; dieses Ergebnis konnte jedoch nicht erklärt werden.

Eine noch weitgehend ungelöste Fragestellung ist die Rolle der Mykorrhizierung bezüglich der Akkumulation des Cs in den organischen bzw. humushaltigen Horizonten der Waldböden und des Pflanzentransfers. Die Symbiose mit den Mykorrhizapilzen ermöglicht es Pflanzen (z. B. Fichten), den Boden wesentlich wirkungsvoller zu erschließen als durch die reine Aufnahme von Nährstoffen über die eigenen Wurzelhaare. Es wäre denkbar, daß die Mykorrhizen die Cs-Aufnahme der Pflanzen verstärken, indem sie organische Substanz zersetzen und dabei Cs mobilisieren oder aber Cs aufnehmen und den Transport in die Pflanze vermitteln (Drissner et al. 1998). Damit könnten Mykorrhizen als Senke für freie Ionen im Boden wirken, so daß nur eine geringe Menge an Ionen im Profil ausgespült



und Cs im Waldboden folglich bioverfügbar verbleiben würde (Zibold et al. 1995). Cs könnte durch organische Substanzen komplexiert werden, wie sie Pilzmycel oder auch Bodenorganismen, wie Strahlenpilze (Streptomyceten), erzeugen, z. B. durch (als Carrier fungierende) makrozyklische Antibiotika (vgl. Eisenman et al. 1969; Pedersen u. Frensdorff 1972; Passeck et al. 1995; Langer et al. 1997). Ein Beispiel ist die Komplexierung des Cs durch die Hutfarbstoffe des Maronenröhlings (*Xerocomus badius*) (Aumann et al. 1989).

Diese Hypothesen werden unterstützt durch die Beobachtung, daß die Fruchtkörper vieler Pilzspezies (z. B. des symbiotisch lebenden Maronenröhlings) seit dem Tschernobyl-Unfall fortwährend hohe Cs-Konzentrationen aufweisen (Řanda et al. 1990; Römmelt et al. 1990; BfS 1992a; Suworow 1994; Steiner u. Wirth 1997; Zibold et al. 2001; eigene unveröff. Untersuchungsergebnisse 1994, 1995). Anhand von  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen einer Vielzahl symbiotischer und saprophytischer Pilzspezies (1987–89, Südbayern) schließen Römmelt et al. (1990), daß symbiotische Pilze  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  effektiver akkumulieren als saprophytische; diese Erkenntnis wird durch nachfolgende Untersuchungen der Autoren gestützt (Wirth et al. 1994; Steiner u. Wirth 1997). Witkamp (1968) konnte nachweisen, daß auch das Mycel eines saprophytischen Pilzes (*Trichoderma viride*)  $^{137}\text{Cs}$  aus organischen Streubestandteilen und aus der Bodenlösung aufkonzentrieren kann. Römmelt et al. (1990) folgern zudem aus ihren Untersuchungen, daß die Cs-Aktivitäten in Pilzen tendenziell abnehmen, je tiefer deren Mycel im Boden wächst, und ziehen Parallelen zur den mit der Bodentiefe abnehmenden Cs-Aktivitäten und der zunehmenden Cs-Fixierung (vgl. auch Steiner u. Wirth 1997). Diese Aussage wird unterstützt durch Řanda et al. (1990), deren Ergebnisse darauf hindeuten, daß die Mycel geringer kontaminierter Pilzspezies ihre Nährstoffe aus tieferen, geringer kontaminierten Bodenschichten beziehen. Andolina u. Guillitte (1990) sehen eine mögliche Erklärung für die hohen Cs-Gehalte von Pilzen in der Fähigkeit der Pilze, Lignine zu zersetzen (denen sie eine wichtige Rolle für den Cs-Rückhalt in den O-Horizonten zuschreiben, s. o.). Somit würde diesen Organismen Cs zur Verfügung stehen, das für andere Pflanzen nicht verfügbar ist.

Enslin (1994), Zibold et al. (1995) und Drissner et al. (1998) untersuchten die Hyphendichte (als Gesamtlänge der Mykorrhizahyphen pro Bodentrockenmasse) in den Of-, Oh- und Ah-Horizonten an zwei Fichtenwaldstandorten, deren Transferfaktoren für Farn um den Faktor 4 variierten (s. Werte für aggregierte TF in  $\text{m}^2/\text{kg}$  in Drissner et al. 1998) und bestimmten eine doppelt so hohe Hyphendichte an dem Standort mit höherem Transferfaktor (Drissner et al. 1998). Zudem ergab sich in einem Fichtenwald eine um den Faktor 10 größere Hyphendichte als an einem Laubwaldstandort (Zibold et al. 1997), wo keine vergleichbaren O-Horizonte wie im Fichtenwald ausgeprägt sind und auch niedrigere Transferfaktoren für Farne vorliegen (Zibold et al. 1995). In erweiterten Folgeuntersuchungen (Klemm et al. 1999) konnte allerdings keine Korrelation gefunden werden zwischen den aggregierten bzw. horizonspezifischen Transferfaktoren verschiedener Pflanzen und der Hyphendichte der zugehörigen Waldbodenhorizonte. Die Autoren verweisen auf weitere mögliche Einflußgrößen wie den Mykorrhizierungsgrad der Wurzeln.

An die hier vorliegende Arbeit anschließend wurden 1999 zusätzliche Bodenprofile an den drei osterzgebirgischen Waldstandorten entnommen, um die darin vorliegenden Mykorrhiza-Arten und deren Dichte im Boden zu bestimmen. Die angesprochenen Spezies (C. Baum, TU Dresden, pers. Mitt. 1999) wurden jedoch nicht horizontweise zugeordnet, sondern nur der gesamten Humusaufgabe des Profils. Zudem konnten keine Cs-Gehalte dieser Proben bestimmt werden, sondern nur Vergleiche mit den zuvor gemessenen Profilen dieser Standorte durchgeführt werden.

Der zuvor erwähnte zeitliche Wandel der dominierenden Mechanismen und die lokal oft stark variierenden Bedingungen könnten auch die teilweise widersprüchlich wirkenden Angaben zur Mobilität des Cs erklären.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  erwies sich in Fichtenwaldböden (Beprobung 1986/87) je nach Horizont um einen Faktor 3–6 weniger mobil als  $^{134}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  (Bunzl et al. 1989b). Auch Tegen et al. (1991) bestimmten (im Laborversuch) eine höhere Beweglichkeit des Tschernobyl-bürtigen Cs. Kirchner u. Baumgartner (1992) dagegen fanden drei Jahre nach dem Tschernobyl-Unfall in norddeutschen Böden keine signifikanten Unterschiede der (mittels Kompartimentmodell und Dispersionsgleichung berechneten) Migrationsraten von  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ . Wie zuvor angesprochen, bewirkten

heftige Regenschauer, wie sie z. B. im Münchner Raum nach dem Tschernobyl-Unfall niedergingen, starke Infiltrationseffekte und verursachten dadurch vergleichsweise hohe anfängliche Migrationsraten des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  im Boden; zudem wird auch auf eine sehr geringe anfängliche Fixierungsrate des Cs im Boden geschlossen (Livens u. Baxter 1988; Bunzl et al. 1989b; Schimmack et al. 1989; Dörr u. Münnich 1991).

In diesem Zusammenhang ist zu beachten, daß die Speziation eines Elements beim Eintrag generell einen deutlichen Einfluß auf die (v. a. anfängliche) Mobilität ausübt. Die Cs-Isotope  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{134}\text{Cs}$ , welche als Folge sowohl der Kernwaffentests als auch des Tschernobyl-Unfalls hauptsächlich mit Aerosolen assoziiert transportiert und deponiert wurden (Kap. 2.3), liegen im Niederschlag i. allg. ionisch bzw. kolloidal vor (Shapiro et al. 1993). Bei der Deposition auf die Waldbodenoberfläche kommt Cs mit der Streu bzw. „jungem“ organischem Bodenmaterial in Kontakt und wird hier hauptsächlich durch organische Komplexe gebunden. Da das organische Material der Bodenaufgabe bezüglich Zersetzung und Lösung weniger stabil ist, ist Cs direkt nach der Deposition noch mobiler als in größerer Bodentiefe (Tegen et al. 1991). Laut Santschi et al. (1988), Dörr u. Münnich (1991), Tegen et al. (1991) und Kirchman et al. (1993) wurde jedoch eventuell ein geringer, mit zunehmender Entfernung vom Unfallsort abnehmender Prozentsatz des Tschernobyl-bürtigen Cs als unlösliche Aerosole in die Umwelt eingetragen – im Schweizer Raum gehen Santschi et al. (1988) von etwa 10 ... 20 % aus, möglicherweise in Form kleiner Kernbrennstoffpartikel – was von den Autoren als eine Ursache unterschiedlicher Mobilitäten von  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  bzw.  $^{134}\text{Cs}$  angesehen wird.

Faßt man obige Ausführungen zusammen, so lassen sich zur Erklärung der gemessenen Cs-Tiefenverteilungen, welche sich als charakteristisch für Fichtenwaldböden erwiesen, folgende Aussagen machen. Prinzipiell sind Mobilität und Fixierung der  $\text{Cs}^+$ -Kationen von der Art negativ geladener Bindungsplätze der Bodensubstanz und Bodenlösung abhängig. An der Streu ist Cs nach der Deposition nicht sehr fest gebunden und kann somit durch mikrobielle Aktivität als leicht austauschbares Kation freigesetzt werden. Es folgt die Aufnahme in die Biomasse, wie Wurzeln oder Pilze, und eine stärkere Sorption an der organischen Matrix wird wichtiger. In den organischen Horizonten ist die Beweglichkeit des Cs stark von Zersetzungs-, Humifizierungs- und Mineralisierungsprozessen geprägt. Die Bodenbildung in den hier untersuchten Fichtenwaldböden ist ein vergleichsweise langsamer Prozeß, v. a. aufgrund des schwer zersetzbaren Ausgangssubstrats (Nadelstreu, z. B. hohe Ligningehalte) und den klimatischen Bedingungen. Dabei nimmt die Größe der Oberfläche der organischen Substanz mit zunehmender Zersetzung von der Streu L bis in den Humifizierungshorizont Oh zu, woraus eine größere Anzahl an Bindungsplätzen – sowohl der unspezifischen, der Austausch- als auch der Fixierungsplätze – mit zunehmender Tiefe resultiert. In Zellen aufgenommenes Cs (Streu, Pflanzengewebe, Wurzeln, Mikroorganismen) dagegen wird zunehmend freigesetzt.

Die nur ansatzweise geklärten Bindungsmechanismen der organischen Substanz verursachen einen scheinbaren Widerspruch zwischen hoher Mobilität des Cs einerseits und starker Fixierung andererseits. Während einerseits in der organischen Substanz unspezifisch und reversibel gebundenes Cs mobil und stark pflanzenverfügbar bleibt, scheint andererseits eine sehr spezifische Festlegung des Cs im organischen Bodenmaterial eine Akkumulation des Nuklids zu bewirken, wie sich an den hohen Aktivitäten in den Humifizierungshorizonten zeigt. Aus der hohen Verfügbarkeit in den Horizonten, in denen die Feinwurzeln der Vegetation konzentriert sind und im wesentlichen die Nahrungsaufnahme der Pflanzen stattfindet, resultiert somit ein starker Rücktransfer des Cs über die Vegetation und deren Streu, was zu einem Kreislauf des Cs im Ökosystem führt (vgl. Nadeluntersuchungen, Abb. 44). Eine Beeinflussung des Rückhaltevermögens durch die Mykorrhizen und durch von Bodenorganismen produzierte Substanzen, welche fixierende Eigenschaften haben, ist denkbar. Im humushaltigen Oberbodenhorizont Ah könnte eine starke gegenseitige Beeinflussung der organischen und mineralischen Bodenfraktionen eine verstärkte längerfristige Festlegung des Cs bewirken, wie die Verteilungen des kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}$  indizieren.

Die fixierten Anteile des Cs nehmen an der weiteren Bodenbildung teil. Bei den Zersetzungsprozessen kann Cs sowohl in ionischer Form als auch an gelöste organische Substanz (DOC) gebunden

freigesetzt werden. Durch Transport bzw. Auswaschung mit dem Boden- bzw. Sickerwasser z. B. in Mikroporen und/oder Bodenrissen, auch durch Starkregeneinflüsse, kann Cs bis in die mineralischen Horizonten verlagert werden. Dort kann Cs freigesetzt werden – entweder durch die Zersetzung der Trägerpartikel (chemisch-physikalische Zersetzung, aber auch in diesen Tiefen noch Bakterien) oder direkt durch Austausch an Tonmineralen – und dann in der mineralischen Substanz irreversibel fixiert werden. Für den Cs-Transport in organischer Form kann eine Akkumulation dort erwartet werden, wo der organische Carrier sorbiert wird, z. B. in Akkumulationshorizonten (wie Bhs- u. Bsh-Horizonte, vgl. Passeck et al. 1995).

Die vergleichsweise tiefe Reichweite des Cs könnte auch durch einen langsameren Verlauf mineralischer im Vergleich zu organischer Bindungen erklärt werden: Studien zur Sorptionskinetik zeigten, daß in Böden sehr hoher Gehalte organischen Materials die Cs-Adsorption innerhalb von Stunden vervollständigt ist (Bindungsplätze der organischen Substanz), wohingegen in Böden, in denen die Bindung des Cs an FES-Plätzen stattfindet, die Sorption über zwei bis drei Wochen hinweg fortschreitet (Valcke u. Cremers 1994). Diese Prozesse werden im Vergleich der Tiefenverteilungen von Tschernobyl- und kernwaffenbürtigem Cs deutlich. Trotz der bevorzugten Akkumulation des Cs in stark zersetztem organischen Material führten die mobilen Anteile mit der Zeit zu einer Verbreiterung der Verteilung. Der zeitliche Aspekt ist auch in der Wanderung der Maxima sichtbar: Das an die organische Substanz fixierte Cs gelangte allmählich in Ah- und oberen Verwitterungshorizonte.

Geht man davon aus, daß Cs in den tiefgreifend von Zersetzungsprozessen beeinflussten organischen Horizonten inzwischen in einen biogeochemischen Kreislauf eingetreten ist, so ist die physikalisch-chemische Stabilität dieser Horizonte für die Zukunft von großem Interesse – Veränderungen könnten zur Kontamination der benachbarten Kompartimente, der Vegetation oder dem Grundwasser führen (De Brouwer et al. 1994). Trotz der Vielzahl von Untersuchungen zum Verhalten des Cs in der Natur – von denen nur einige hier genannt werden konnten – sind die Mechanismen von Cs-Rückhalt und Cs-Mobilisierung im Bodenkomplex allerdings bisher nur ansatzweise geklärt (Staunton u. Roubaud 1997; Dumat u. Staunton 1999; Klemm et al. 1999; Bunzl et al. 2000; Rafferty et al. 2000; Kruyts et al. 2004). Da der Beitrag des  $^{137}\text{Cs}$  von aus dem Ökosystem Wald stammenden Produkten (Nahrungsmitteln etc.) zur (internen) Strahlenexposition des Menschen jedoch prinzipiell nicht zu vernachlässigen ist, ist das Verständnis dieser Prozesse sowohl für die Entwicklung realistischer Prognosemodelle als auch angemessener Gegenmaßnahmen von Bedeutung (Bunzl et al. 1998b; Zibold et al. 2001). In diesem Kontext sind im speziellen Untersuchungen zur Auswirkungen möglicher Gegenmaßnahmen, wie Kalk- oder K-Düngung, auf die Cs-Fixierung zu nennen (z. B. Andolina u. Guillitte 1990; Schimmack et al. 1991, 1997a; Konoplev et al. 1993; Nisbet 1993; Lindner et al. 1994; Wauters et al. 1994).

### Antimon ( $^{125}\text{Sb}$ )

Wie  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  wurde auch  $^{125}\text{Sb}$  mit dem Tschernobyl-Fallout deponiert. Die Lagen der maximalen spezifischen Aktivitäten dieser RN stimmen gut überein: Die Maxima des  $^{125}\text{Sb}$  liegen ebenfalls im Bereich des Oh-Horizonts mit einer Tendenz zum unteren Bereich des Of (Tiefenbereich ca. 1 ... 4.5 cm), wobei dies für  $^{125}\text{Sb}$  noch etwas ausgeprägter ist (vgl. Profile Holzhau und Nassau 2). Im Gegensatz zu  $^{134}\text{Cs}$  ergibt sich für  $^{125}\text{Sb}$  ein weitgehend übereinstimmendes Bild für  $A_{\text{spez}}$  und  $A_{\text{konz}}$  (nur geringfügige Verbreiterung des  $A_{\text{konz}}$ -Maximums nach unten für Nassau 1 und 2). Vergleicht man die  $^{134}\text{Cs}$ - (bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -) und  $^{125}\text{Sb}$ -Tiefenprofile miteinander, so weisen die etwas schmalere  $^{125}\text{Sb}$ -Maxima auf eine stärkere Immobilisierung des Sb hin. Die geringeren Maximaltiefen, in denen dieses Nuklid acht bis zehn Jahre nach dem Eintrag mit dem Tschernobyl-Fallout nachweisbar ist, könnten eine geringere Mobilität des Sb im Vergleich zum Cs indizieren. Allerdings ist zu beachten, daß sich die mit dem Tschernobyl-Fallout eingetragenen Aktivitäten der RN deutlich unterscheiden ( $A(^{134}\text{Cs}) > A(^{125}\text{Sb})$ , vgl. emittierte Aktivitäten des Tschernobyl-Unfalls, Tabelle 4) und beide Nuklide geringe Halbwertszeiten aufweisen ( $T_{1/2}(^{125}\text{Sb}) > T_{1/2}(^{134}\text{Cs})$ , Kap. 3.1.4).

Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit des  $^{125}\text{Sb}$  von  $< 3$  a ist das RN, wie auch  $^{134}\text{Cs}$ , in Boden-

proben inzwischen wesentlich schlechter nachzuweisen als noch zu Beginn dieser Arbeit. In den auf das jeweilige Probennahmedatum zerfallskorrigiert dargestellten  $^{125}\text{Sb}$ -Tiefenverteilungen der erzgebirgischen Bodenprofile Holzgau (1994) und Nassau 1 und 2 (1996) ist dies deutlich zu sehen (vgl. Abb. 25, Abb. 30 u. Abb. 35). Während  $^{125}\text{Sb}$  in den 1994 beprobten Bodenprofilen (Holzgau und Eggwald) noch in der Streulage L und den oberen Verwitterungshorizonten gemessen werden konnte, ist es in den zwei Jahre später untersuchten Profilen nur noch in den organischen Of- und Oh-Horizonten und dem humushaltigen Oberboden Ah mit deutlich geringeren spezifischen Aktivitäten nachweisbar. Anhand der Ergebnisse läßt sich allerdings nicht eindeutig klären, ob dies ein Nachweisproblem durch Zerfall des Nuklids oder ein Zeichen dafür ist, daß  $^{125}\text{Sb}$  bis 1996 schon nahezu vollständig aus der Streulage ausgetragen und/oder ehemals in den Verwitterungshorizonten vorhandenes  $^{125}\text{Sb}$  aus diesen ausgewaschen worden war (vgl. Kliashtorin et al. 1995).

Während des Tschernobyl-Unfalls wurde  $^{125}\text{Sb}$ , wie auch die beiden Cs-Isotope und das in den Bodenproben inzwischen nicht mehr nachweisbare  $^{106}\text{Ru}$ , durch Verdampfung von Kernbrennstoff freigesetzt und an natürliche Aerosole adsorbiert aus der Atmosphäre deponiert (vgl. Kap. 2.3). Die RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{106}\text{Ru}$  waren bezüglich des Strahlenschutzes nach dem Tschernobyl-Unfall allerdings eher von untergeordnetem Interesse. Im Gegensatz zum Cs beschäftigten sich nur wenige Untersuchungen mit der Verteilung und dem Verhalten dieser RN in der Umwelt. Da die chemische Speziation von Sb, Ru und Cs in Wasser jedoch unterschiedlich ist, unterscheiden sich auch ihre Transportpfade und Bindungsformen (vgl. Santschi et al. 1988; Robbins et al. 1992). Die Cs-Isotope  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$  liegen gelöst in kationischer Form vor ( $\text{Cs}^+$ ),  $^{106}\text{Ru}$  und  $^{125}\text{Sb}$  dagegen als anionische Oxide wie  $\text{RuO}_4^{2-}$  bzw. Hydroxide wie  $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$  (Andreae et al. 1981; Middelburg et al. 1988). Ru und Sb stellen somit eine eigene Tracergruppe dar, die von besonderem Interesse ist. Für die anionisch vorliegenden RN ist eine stärkere Wechselwirkung mit der organischen Substanz zu erwarten als für die kationischen. Dies wird durch die hier dargestellten Ergebnisse unterstützt, welche eine  $^{125}\text{Sb}$ -Akkumulation in den Fermentations- und Humifizierungshorizonten zeigen. Obwohl die Erkenntnisse aus Untersuchungen von Seesedimenten oder an stabilem Sb nicht direkt auf das Verhalten von  $^{125}\text{Sb}$  im Waldboden übertragen werden können, so können doch wesentliche Verhaltensmuster des Nuklids abgeleitet werden. Deshalb wird im folgenden auf entsprechende Literatur eingegangen.

Untersuchungen an den Sedimenten süddeutscher Süßwasserseen nach der Deposition des Tschernobyl-Fallouts zeigen, daß aus der unterschiedlichen Speziation der RN eine Fraktionierung von  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{106}\text{Ru}$  relativ zum  $^{137}\text{Cs}$  resultierte. Lindner et al. (1993) führten sequentielle Extraktionen an Bodenseesedimenten durch und Robbins et al. (1992) untersuchten in Sedimentationsfallen aufgefangenes Material. Die Analysenergebnisse legen nahe, daß als reaktive Phase für das Entfernen von  $^{106}\text{Ru}$  und  $^{125}\text{Sb}$  aus dem Bodenseewasser durch Sedimentation hauptsächlich die partikuläre organische Substanz (Particulate Organic Matter = POM) diene und daß die Sorptionskapazität der POM bezüglich des  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{106}\text{Ru}$  zudem höher ist als die der Tonpartikel bezüglich des  $^{137}\text{Cs}$  (Robbins et al. 1992; Lindner et al. 1993). In den Bodenseesedimenten und den sich absetzenden Partikeln waren dementsprechend auch die  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{106}\text{Ru}$ -Anteile, bezogen auf das ursprüngliche Falloutinventar, höher als die des  $^{137}\text{Cs}$  (Drissner et al. 1992; Robbins et al. 1992). Noch stärker zeigte sich diese Fraktionierung in den Sedimenten des Vorsees und des Schreckensees, zweier kleiner, flacher eutropher Seen mit moorigem Einzugsgebiet in Oberschwaben, deren Sedimente wesentlich höhere Gehalte organischer Substanz als die des Bodensees aufweisen (Drissner et al. 1992; Lindner et al. 1993). Des weiteren konnten mit zunehmendem Gehalt organischer Substanz in den Sedimenten auch steigende  $^{125}\text{Sb}/^{137}\text{Cs}$ - und  $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisse im Vergleich zu denen des initialen Tschernobyl-Fallouts festgestellt werden. Für Süßwasserseen schlagen Lindner et al. (1993) folgenden Mechanismus der Wechselwirkung von  $^{125}\text{Sb}$  mit der organischen Substanz vor:  $^{125}\text{Sb}$  in seinem anionischen Status könnte sich den Phosphationen vergleichbar verhalten und am Phytoplanktonmetabolismus teilnehmen.

Ebenfalls als größtenteils immobil erwies sich Sb, das aus der Feinpartikelfraktion der Schornsteinemissionen einer britischen Metallhütte stammte, im umliegenden Grasland (Ainsworth u. Cooke 1991). Allerdings handelte es sich hierbei um in Form von Sb-Oxiden (z. B.  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ ) emittiertes stabiles

Sb. Die Untersuchungen mittels sechsstufiger sequentieller Extraktion ergaben, daß nur ein geringer Prozentsatz des Sb in den Extraktionsstufen extrahiert wurde, welche leichter mobilisierbare Anteile erfassen, d. h. die löslichen oder an Ionenaustauschplätzen gebundenen (1. Stufe,  $\text{NH}_4\text{Ac}$ ), die an Carbonate gebundenen und die leicht reduzierbaren Fraktionen. Der Transfer in den Grasbewuchs erwies sich als vernachlässigbar klein – das Sb in den Pflanzensprossen stammte nahezu ausschließlich aus der Atmosphäre (vgl. Ainsworth et al. 1990). Ainsworth u. Cooke (1991) geben als mögliche Erklärung für die Akkumulation des Sb nahe der Oberfläche (0 ... 5 cm), meist in immobilisierter Form, an, daß der größte Teil als unreaktives Oxid erhalten geblieben ist, während die leicht erhöhten Anteile verfügbareren Sb in größerer Bodentiefe (15 ... 20 cm) eine Abwärtsbewegung des Sb nach Umwandlung in mobilere Formen widerspiegeln könnten.

In den Böden von Wiesen- und Waldstandorten innerhalb eines 30 km-Umkreises des Tschernobyl-Reaktors konnte  $^{125}\text{Sb}$  (wie auch  $^{144}\text{Ce}$  und  $^{106}\text{Ru}$ ) in zweistufigen Extraktionsanalysen ( $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{NH}_4\text{Ac}$ ) ebenfalls nur zu einem sehr geringen Prozentsatz extrahiert werden (Kliashtorin et al. 1995). Das Nuklid war dabei nur in wasserlöslicher, nicht jedoch in austauschbarer Form (2. Stufe,  $\text{NH}_4\text{Ac}$ ) im Boden nachweisbar, und das auch nur im Bereich bis 5 cm Tiefe. Als Erklärungsansätze werden einerseits eine kontinuierliche irreversible Absorption der mobilen Formen aus der Bodenlösung diskutiert, andererseits eine sofortige Auswaschung aus den untersuchten Bodenschichten. Letztere Hypothese wird – zumindest für  $^{106}\text{Ru}$ , basierend auf Lysimeterversuchen, – von den Autoren favorisiert (Kliashtorin et al. 1995).

In ebenfalls innerhalb der 30 km-Zone durchgeführte Untersuchungen an Waldböden und deren Bewuchs (Beerenpflanzen, Farne und Pilze) einer kooperierenden Arbeitsgruppe (Lux et al. 1995) erwiesen sich die  $^{125}\text{Sb}$ -Transferfaktoren (hier  $A_{\text{spez}}(\text{Pflanze})/A_{\text{spez}}(\text{Of-Horizont})$ ) unabhängig von sowohl Pflanzentyp als auch Beprobungsort und lagen durchgehend deutlich unter denen des  $^{137}\text{Cs}$ .

Aus der Literatur geht somit hervor, daß sich Sb im Boden eher immobil verhält. Die organische Substanz weist eine hohen Sorptionskapazität für Sb auf und fördert damit die Akkumulation von Sb.

### Americium ( $^{241}\text{Am}$ ) und Plutonium ( $^{238}\text{Pu}$ , $^{239,240}\text{Pu}$ )

Angeichts der langen Halbwertszeiten von  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  wurden sämtliche gemessenen Aktivitäten nicht zerfallskorrigiert; die Werte der 1994–96 entnommenen Proben sind direkt miteinander vergleichbar. Der radioaktive Zerfall von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  wirkte sich in der seit der Deposition verstrichenen Zeit noch nicht merklich auf die Aktivitäten aus. Seit 1963/64 wären 23 % der damals deponierten  $^{238}\text{Pu}$ -Aktivität zerfallen, dies ist für die im folgenden durchgeführte Diskussion jedoch nicht von wesentlicher Bedeutung. Im Fall des  $^{241}\text{Am}$  ist prinzipiell die Neubildung über den Zerfall des  $^{241}\text{Pu}$  ( $T_{1/2} = 14.4$  a) im Boden zu beachten. Die mit dem Tschernobyl-Fallout in Böden eingetragene  $^{241}\text{Am}$ -Gehalte sind vernachlässigbar, die des  $^{239,240}\text{Pu}$  sind sehr gering im Vergleich zu denen des globalen Fallouts (vgl. Kap. 2.3). Dies wird in sehr geringen  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationen deutlich, die Bunzl et al. (1992) in L-, Of- und Oh-Horizonten (Fichtenwald) als Folge des Tschernobyl-Unfalls bestimmen konnten.

Im Gegensatz zu dem ebenfalls aus dem Kernwaffenfallout stammenden  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  weisen  $^{241}\text{Am}$  und  $^{238}\text{Pu}$  bzw.  $^{239,240}\text{Pu}$ , ähnlich den Tschernobyl-bürtigen Nukliden  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{134}\text{Cs}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ), in den in der vorliegenden Arbeit untersuchten Fichtenwaldböden ausgeprägte Maxima auf. Dies stimmt mit den vertikalen  $^{241}\text{Am}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Verteilungen in den von Bunzl et al. (1992) untersuchten Fichtenwaldböden überein (auch scharfe Peaks); allerdings sind dort die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Tiefenverteilungen nicht verbreitert, wohl aber in den ebenfalls untersuchten Kiefernwaldbodenprofilen (Bunzl et al. 1995b). Die Unterschiede könnten in der unterschiedlichen Boden- bzw. Horizontausprägung begründet sein. Beim Vergleich ist zudem zu beachten, daß diesen Profilen strenge horizontweise Beprobungen zugrundeliegen, während die Horizonte der hier untersuchten Bodenprofile meist weiter unterteilt wurden.

In den erzgebirgischen Bodenprofilen sind die spezifischen  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten im Bereich der Oh- und Ah-Horizonte maximal (ebenso  $A_{\text{konz}}$ ). Dabei unterscheiden sich die mittleren Tiefen der Maxima deutlich voneinander, die entsprechenden Beprobungshorizonte liegen im Bereich 1 ... 6 cm. Das

$^{241}\text{Am}$ -Maximum befindet sich stets in größerer Tiefe als die Maxima des  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{134}\text{Cs}$  (auch bzgl.  $A_{\text{konz}}$ ). Die maximalen spezifischen  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten der Profile Holzau und Nassau 2 stimmen im Rahmen ihrer Standardabweichungen überein (Mittelwert 5.8 Bq/kg); der Maximalwert des Profils Nassau 1 liegt um etwa 60 % unter diesem Mittelwert. Im Profil Eggwald ist die Lage des  $^{241}\text{Am}$ -Maximums nicht mit Sicherheit festzustellen, da das Nuklid oberhalb des Ah-Horizonts nicht nachweisbar ist (vgl. Ergebnisdarstellung, Abb. 40). Die spezifische  $^{241}\text{Am}$ -Aktivität im Ah-Horizont ist jedoch deutlich höher als in den darunterliegenden Horizonten und bewegt sich in der Größenordnung der maximalen Werte der Profile Holzau und Nassau 2 (auch  $A_{\text{konz}}$ ).

In sämtlichen Profilen erstrecken sich die  $^{241}\text{Am}$ -Tiefenverteilungen von den Of- oder Oh- bis in die Ah- bzw. AeAh-Horizonte. Die Maximaltiefen variieren dabei von knapp 5 cm bis über 10 cm. Im oberen Bereich der Verwitterungshorizonte ist  $^{241}\text{Am}$  nur nachweisbar, sofern Anteile des humushaltigen Ah-Horizonts eingemischt sind oder dominieren (Holzau Ah(Bv1) und Eggwald BsBt1 und BsBt2 mit Ah-Fahnen, vgl. Kap. 6.1). Da die Pu-Analysen nur in den Bodenproben Oh(Of) ... Ah2 des Bodenprofils Nassau 2 durchgeführt wurden, kann zu den Aktivitäten in darüber- und darunterliegenden Horizonten keine Aussage gemacht werden. Die  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Verteilungsmaxima liegen im Oh-Beprobungshorizont (ca. 4.5 cm Tiefe) und damit direkt über dem entsprechenden  $^{241}\text{Am}$ -Maximum in Ah(Oh) – allerdings sind die Werte des  $^{241}\text{Am}$  und der Pu-Isotope jeweils in beiden Horizonten hoch. Betrachtet man die Aktivitätskonzentrationen, so verbreitert sich das  $^{241}\text{Am}$ -Maximum auf Oh und Ah(Oh); die Pu-Maxima bleiben in Oh, in Ah(Oh) findet sich ebenfalls ein höherer Pu-Wert. In den darunterliegenden Ah- und AeAh-Horizonten fallen die  $^{241}\text{Am}$ - und Pu-Werte mit der Tiefe ab.

Diese Ergebnisse stimmen prinzipiell mit denen aus der Literatur überein. Für die Bodenprofile eines bayerischen Fichtenwalds (podsolige Parabraunerde) geben Bunzl et al. (1992) eine Akkumulation von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  in den oberen 2 cm des dort mit „Aeh“ bezeichneten Mineralbodens an (also ein von Podsolierung geprägter Ah-Horizont). In Kiefernwaldböden (Podsol) dagegen lagen die  $^{241}\text{Am}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Maxima in „Ofh“, und damit über „Aeh“ (Bunzl et al. 1995b). In der Fichtenstreu („LOf1“) ist nur Tschernobyl-bürtiges  $^{239,240}\text{Pu}$  in äußerst geringen Konzentrationen nachweisbar (Bunzl et al. 1992), in der Streulage des Kiefernwalds („Olf“) dagegen sowohl  $^{239,240}\text{Pu}$  als auch  $^{241}\text{Am}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  (Bunzl et al. 1995b). Allerdings sind Fichten- und Kiefernwaldböden nur ansatzweise miteinander vergleichbar. Die beprobten Standorte unterscheiden sich in ihren klimatischen Gegebenheiten und den Bodentypen, in den Artikeln werden jedoch keine tiefergehenden Beschreibungen des Bodenmaterials vorgenommen. Unterschiede zwischen den beiden Waldtypen zeigten sich z. B. auch in der Geschwindigkeit der RN-Deposition vom Kronenraum auf die Bodenoberfläche nach dem Tschernobyl-Unfall: Im Kiefernwald betrug die Zeitspanne bis zum vollständigen Eintrag der Gesamtaktivität etwa zwei Monate im Vergleich zu zwei Jahren im Fichtenwald (untersucht anhand von  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$ ; Bunzl et al. 1989a, 1995b). Die nicht nachweisbaren oder nur sehr geringen  $^{239,240}\text{Pu}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Gehalte der L- und Of-Horizonte könnten u. a. damit erklärt werden, daß diese Horizonte im Zeitraum seit der Deposition des Waffenfallouts weitgehend zersetzt und in den Oh-Horizont umgewandelt wurden. Dies wird für die von Bunzl et al. (1992, 1995b) untersuchten Fichten- und Kiefernwaldbodenprofile durch relativ geringe Aufenthaltshalbwertszeiten bzw. hohe Migrationsraten (errechnet anhand eines Kompartimentmodells) unterstützt.

In den aus der Literatur vorliegenden Profilen sind  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  in sehr geringen Konzentrationen bis in die jeweils tiefsten Beprobungshorizonte der mineralischen Bodenbereiche nachweisbar: in den Profilen des Fichtenwalds bis in 10 ... 20 cm („Al“; Bunzl et al. 1992), im Kiefernwald bis 20 ... 30 cm („Bsv“; Bunzl et al. 1995b), im ungestörten Grasland sogar bis 30 ... 40 cm („Bt“; Bunzl et al. 1994a). In Ackerbodenprofilen (innerhalb der 30 km-Zone um Tschernobyl, 1994) waren  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  nur bis max. 5 cm Tiefe detektierbar, unterhalb dieser Tiefe lagen die Gehalte der Proben unter der Nachweisgrenze des verwendeten Meßsystems (Ollui Mboulou et al. 1998). Diese Unterschiede sind einerseits mit den variierenden Endtiefen der Beprobungen zu begründen, andererseits aber auch mit den unterschiedlichen Nachweisgrenzen der verwendeten Meßsysteme für die Nuklide. Im Vergleich der  $^{241}\text{Am}$ -Werte der vorliegenden Arbeit mit denen von Bunzl et al. (1992, 1994a, 1995b) wird die höhere Empfindlichkeit des Am-Nachweises über radiochemische Aufberei-

tung und  $\alpha$ -Spektrometrie im Gegensatz zur  $\gamma$ -Spektrometrie deutlich.

Prinzipiell ist die Akkumulation von Am und Pu in den Oh- und/oder Ah-Horizonten der Waldböden als das Ergebnis der starken Komplexbildung der Aktiniden mit Huminstoffen zu sehen (Choppin 1988, 1999; Ramsay 1988; Pavlotskaya et al. 1991a). Speziell für Pu belegen das zudem Untersuchungen von Nishita u. Haug (1979), Yamamoto et al. (1981), Livens et al. (1987), Livens u. Baxter (1988), Goryachenkova et al. (1991), Pavlotskaya et al. (1991b) und Bunzl et al. (1998b). Auch die starke Komplexbildung von Am(III) mit Humin- und Fulvosäuren unter entsprechenden Umweltbedingungen zeigt sich anhand der jeweiligen Stabilitätskonstanten (Bertha u. Choppin 1978; Torres u. Choppin 1984; Kim et al. 1989; Buckau 1991). In vielen Böden sind diese Nuklide hauptsächlich an ungelöste Huminstoffe gebunden und ihre Mobilität ist sehr gering, wie z. B. in den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit (vgl. Schleich et al. 2000) und den zuvor genannten Untersuchungen von Bunzl et al. (1992, 1994a, 1995b) zu erkennen ist (vgl. auch Pavlotskaya et al. 1991a). Die sehr starke Sorption der Aktiniden an die Huminstoffe der Bodensubstanz wird mit physikalischer Adsorption und möglicherweise auch ionischer Assoziation begründet (Manning 1979; Nash et al. 1981; Choppin 1999).

Als Erklärungsansatz für die Akkumulation von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  in unterschiedlichen Horizonten der Profile bayerischer Fichten- und Kiefernstandorten („Aeh“ bzw. „Ofh“; Bunzl et al. 1992, 1995b) verweisen Bunzl et al. (1995b) auf Verteilungen des Fe(III), welches vergleichbare organische Komplexe bildet. Aus einer Anreicherung des Fe im Ofh-Horizont des Kiefernwalds im Gegensatz zu dem wesentlich geringeren Wert des entsprechenden Fichtenwaldbodenhorizonts schließen die Autoren auf eine hohe Konzentration organischer Liganden für Fe in dem Ofh-Horizont des Kiefernbestands. Wie oben dargestellt, variieren die Horizonte maximaler  $A_{\text{spez}}$ - und auch  $A_{\text{konz}}$ -Werte des Am in den osterzgebirgischen Profilen zwischen Oh und Ah. Da über die bodenkundliche Ansprache hinausgehend keine weiteren Daten vorliegen, kann eine unterschiedliche Charakteristik dieses Horizontes, z. B. in Bezug auf die Natur der organischen Substanz oder die Nährstoffsituation, als Grund für die Verteilungsunterschiede nur vermutet werden.

Auf den Erkenntnissen aus der Literatur basierend ließe sich eine höhere Mobilität des Am im Vergleich zu der des Pu erwarten (Cleveland u. Rees 1976; Routson et al. 1977; Bertha u. Choppin 1978). In sauren Böden zeigte Pu deutlich höhere Sorptionskoeffizienten als Am (Routson et al. 1977). Auch Bertha u. Choppin (1978) verwiesen darauf, daß Am in sauren Böden mobiler sein könnte, da Am(III) wesentlich weniger leicht hydrolysiert als Pu(IV) (vgl. Cleveland u. Rees 1976). Anhand der hier präsentierten Untersuchungen am Profil Nassau 2 ist jedoch keine Aussage zu einer eventuellen unterschiedlichen Mobilität der beiden Aktiniden möglich. Auch der Vergleich der Migrationsraten in Profilen an Fichtenwald-, Kiefernwald- und Graslandstandorten (Bunzl et al. 1992, 1994a, 1995b) bewies generell keine signifikant höhere Beweglichkeit des  $^{241}\text{Am}$  im Vergleich zu der des  $^{239,240}\text{Pu}$ ; einzig im Oh-Horizont (Fichte) war eine leicht erhöhte Mobilität zu verzeichnen (Bunzl et al. 1992). Den Autoren nach implizieren diese Ergebnisse jedoch nicht unbedingt, daß Am in den anderen Horizonten dieselbe Mobilität aufweist wie Pu. Es wird darauf hingewiesen, daß die jeweils beschränkte Anzahl der untersuchten Profile (je fünf) einen zu geringen Datensatz darstellen könnten, um eventuelle Unterschiede in der Beweglichkeit der beiden RN, sofern sie überhaupt existieren, signifikant nachzuweisen.

Die mit zunehmender Tiefe abnehmenden Gehalte des  $^{241}\text{Am}$  und der Pu-Isotope gehen einher mit geringer werdenden Gehalten organischer Substanz in den mineralischen Horizonten und damit auch einer dementsprechend abnehmenden Anzahl an organischen Bindungsplätzen. Zudem besitzen Tonminerale nicht die Fähigkeit, Aktiniden ähnlich den Cs-Ionen zu adsorbieren. Dies könnte auch die höheren Migrationsraten von  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  im Vergleich zu denen des  $^{137}\text{Cs}$  in den mineralischen Horizonten erklären (Bunzl et al. 1992, 1995b).

Eine weitere Einflußgröße für die Mobilität der Nuklide ist auch die Assoziation mit der gelösten organischen Substanz, obwohl die Aktinidgehalte in der Bodenlösung i. allg. sehr gering sind (vgl. Cleveland u. Rees 1976). In den Horizonten sowohl leicht als auch stark zersetzten Pflanzenmaterials von podsoligem Mischwaldboden und podsoligen und torfigen Graslandböden waren  $^{239,240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  hauptsächlich mit den hochmolekularen Fraktionen des DOC assoziiert (Agapkina et al. 1995;

Bunzl et al. 1998a). Die Sorption von Pu und Am erwies sich in diesen Untersuchungen als wesentlich unabhängiger von der Art der organischen Bodensubstanz als die des Cs. In Untersuchungen eines alluvialen Gleys (Cumbria, England) wiesen Livens et al. (1987)  $^{239,240}\text{Pu}$  bevorzugt in der hochmolekularen Fraktion von Huminsäuren nach; in den Fulvosäuren, welche geringere Molekulargewichte aufwiesen, war das Aktinid dagegen ausgewogener über das gesamte Molekulargewichtsspektrum verteilt. Auch Nisbet et al. (1993) fanden in Ultrafiltrationsexperimenten an den Bodenlösungen künstlich kontaminierter Lehm-, Torf- und Sandböden  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  zu einem hohen Prozentsatz mit den kolloidalen und hochmolekulargewichtigen Fraktionen assoziiert.

Aus diesen Ergebnissen ergeben sich zudem Implikationen für die Pflanzenverfügbarkeit der Aktiniden. Es wird davon ausgegangen, daß Aktiniden kaum von Pflanzen aufgenommen werden, wobei Pu in noch geringerem Maß pflanzenverfügbar zu sein scheint als Am (Bunzl u. Kracke 1987; Pavlotskaya et al. 1991a; Nisbet et al. 1993; Lux et al. 1995). Ein Rücktransfer von Pu und Am über die Vegetation in den Boden, wie es für die Kreisläufe der Nährstoffe und des Cs zu beobachten ist, ist somit weitestgehend auszuschließen.

### Vergleich der auf den 1.5.1986 zerfallskorrigierten Aktivitäten ( $^{125}\text{Sb}$ , $^{134}\text{Cs}$ und $^{137}\text{Cs}$ )

In den in Kap. 6.1 präsentierten Diagrammen sind die spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ -,  $^{137}\text{Cs}$ - und  $^{125}\text{Sb}$ -Aktivitäten auf das jeweilige Probenahmedatum zerfallskorrigiert dargestellt. Zur vergleichenden Diskussion der Werte ist jedoch die Zerfallskorrektur von  $A_{\text{spez}}$  (bzw.  $A_{\text{konz}}$ ) auf ein gemeinsames Datum hilfreich; es wurde der 1.5.1986 verwendet (o. Abb.). Die so zerfallskorrigierten maximalen spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Aktivitäten der osterzgebirgischen Profile stimmen sehr gut überein ( $A_{\text{konz}}$  ebenfalls relativ gut, im Rahmen der jeweiligen Unsicherheiten). Auch die maximalen spezifischen  $^{125}\text{Sb}$ -Aktivitäten der Profile Nassau 1 und 2 stimmen sehr gut überein (ebenso  $A_{\text{konz}}$ ); der Wert des Profils Holzhaus ist um etwa 40 % höher (mehr als doppelt so groß für  $A_{\text{konz}}$ ). Im Vergleich zum erzgebirgischen Mittelwert sind die  $A_{\text{spez}}$ -Maximalwerte des süddeutschen Profils um den Faktor 2.7 ( $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ;  $A_{\text{konz}}$  Faktor 2.5) bzw. 1.9 ( $^{125}\text{Sb}$ ;  $A_{\text{konz}}$  Faktor 1.1, nur Nassau 1 und 2: Faktor 1.5) höher. Die  $A_{\text{spez}}$ -Maximalwerte des kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  aller vier Profile dagegen liegen in demselben Größenbereich und variieren nur um ca.  $\pm 20\%$  (für  $A_{\text{konz}}$  keine Angabe möglich, da z. T. mehrere Horizonte ähnlich erhöhte Werte aufweisen).

Aus der Gegenüberstellung der Verteilungsmaxima werden schon die im Vergleich zum Osterzgebirge lokal höheren Depositionsraten des Tschernobyl-Fallouts in Süddeutschland deutlich (vgl. Kap. 2.3 u. Kap. 4), welche in den nächsten Abschnitten anhand der berechneten Inventare diskutiert werden. Für die aus den Kernwaffentests stammenden RN sind zwar prinzipiell vergleichbare Flächenaktivitäten in beiden Regionen zu erwarten, standortbedingte Depositionsunterschiede sind jedoch wahrscheinlich. Aufgrund der seit dem Eintrag verstrichenen Zeit können vielfältige Faktoren, wie Bodencharakteristika und Klimaeinflüsse, (lokal) variierende Verteilungen im Boden bzw. dem gesamten Ökosystem bewirkt haben.

### Künstliche Radionuklide – Bodeninventare

Das Inventar eines RN (in  $\text{Bq/m}^2$ ) stellt ein Maß für die insgesamt im Boden gespeicherte Aktivität dar und ermöglicht den direkten Vergleich verschiedener Standorte. Aus der Gegenüberstellung der eingetragenen Flächenaktivität und des Bodeninventars kann eine Aussage über die Speicherkapazität des Bodens und eventuelle Austräge aus dem Boden in die Vegetation und das Grundwasser gewonnen werden. Voraussetzungen für die Berechnung eines vollständigen Inventars sind eine ausreichend tiefe Beprobung und definierte Volumina der Beprobungshorizonte (vgl. Kap. 2.4.2 u. Kap. 6.1). In Tabelle 22 sind die Inventare der untersuchten künstlichen RN an den Beprobungsorten im Osterzgebirge und in Süddeutschland zusammengestellt (Werte gerundet). Zur Berechnung der  $^{125}\text{Sb}$ -,  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Inventare wurden die auf den 1.5.1986 zerfallskorrigierten spezifischen Aktivitäten verwendet. Die Aktivitäten des  $^{241}\text{Am}$  und der Pu-Isotope gingen ohne Zerfallskorrektur ein. Eine Übersicht wesentlicher zur Diskussion verwendeter Literaturangaben für  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -,  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -,  $^{241}\text{Am}$ - und



$^{239,240}\text{Pu}$ -Inventare ist in Anhang D.2 gegeben. Wie in Kap. 3.3.2 erläutert, wurden sämtliche  $\gamma$ -spektrometrische Messungen an den Feinbodenanteilen durchgeführt. In der Literatur wird diese Form der Probenaufbereitung (speziell Siebung,  $\varnothing$  2 mm), v. a. für mineralische Horizonte, ebenfalls des öfteren gewählt (Livens u. Baxter 1988; Bunzl et al. 1994a, 1995b; Bürmann et al. 1994; Lindner et al. 1994; Schimmack et al. 1997b). Somit beziehen sich die berechneten Inventare ebenfalls auf die Feinbodenfraktion. Sollte die Annahme, daß der Grobboden der Waldböden i. allg. nur gering bzw. nicht mit künstlichen RN kontaminiert ist, nicht korrekt sein, so wären die hier errechneten Inventare – je nach Verteilung des Nuklids mit der Tiefe – teilweise zu klein. Im Gegensatz dazu wurde für die Untersuchungen der Moorböden jeweils die gesamte Bodenmasse verwendet. Die daraus resultierenden Inventare sind tendenziell sogar noch kleiner als die der Waldböden, was jedoch auch andere Gründe haben kann (vgl. Kap. 7.2).

Tabelle 22: Inventare  $A_F$  (in  $\text{Bq/m}^2$ ) der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ) (alle zerfallskorrigiert auf den 1.5.1986) sowie  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  und  $^{238}\text{Pu}$  in den beprobten Fichtenwaldböden im Osterzgebirge und in Süddeutschland

Standort	$^{125}\text{Sb}$	$^{134}\text{Cs}$	Inventar $A_F$ ( $\text{Bq/m}^2$ )		$^{241}\text{Am}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$
			$^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$	$^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$			
			$^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$				
Holzhaus	$310 \pm 20$	$1580 \pm 20$ <sup>1)</sup>	$3000 \pm 80$ <sup>1)</sup>	$1900 \pm 70$ <sup>2)</sup>	$27 \pm 3$	–	–
			$4900 \pm 60$ <sup>2)</sup>				
Nassau 1	$360 \pm 40$	$2380 \pm 100$	$4510 \pm 200$	$4240 \pm 200$	$27 \pm 2$	–	–
			$8750 \pm 100$				
Nassau 2	$330 \pm 20$	$2420 \pm 30$ <sup>1)</sup>	$4590 \pm 80$ <sup>1)</sup>	$2890 \pm 100$ <sup>2)</sup>	$36 \pm 1$	$70 \pm 2$ <sup>2)</sup>	$1.7 \pm 0.2$ <sup>2)</sup>
			$7480 \pm 80$ <sup>2)</sup>				
Eggwald	$740 \pm 40$	$6660 \pm 100$ <sup>1)</sup>	$12660 \pm 340$ <sup>1)</sup>	$2600 \pm 250$ <sup>2)</sup>	$35 \pm 5$ <sup>1)</sup>	–	–
			$15200 \pm 200$ <sup>2)</sup>				

Anhand der Tiefenverteilungen der spezifischen Aktivitäten und der Aktivitätskonzentrationen kann zwischen vollständigen (ohne Markierung), <sup>1)</sup> zu über 90 % erfaßten und <sup>2)</sup> unvollständigen Inventaren unterschieden werden.

Die osterzgebirgischen Inventare des Tschernobyl-bürtigen  $^{125}\text{Sb}$  stimmen gut überein (Tabelle 22; Mittelwert  $(330 \pm 30) \text{ Bq/m}^2$ ). Der Wert des süddeutschen Profils ist um den Faktor 2.2 größer. Literaturangaben zu  $^{125}\text{Sb}$ -Inventaren sind nur spärlich. 1990 durchgeführte  $\gamma$ -spektrometrische Untersuchungen an Sedimentkernen des Bodensees (Seewald 1991) ergaben variierende  $^{125}\text{Sb}$ -Inventare großer Unsicherheiten, u. a. aufgrund kurzer Meßzeiten, wobei die höchsten Werte in zwei Kernen mit etwa  $(550 \pm 200) \text{ Bq/m}^2$  vorlagen (zerfallskorrigiert auf den 1.5.1986). Anhand längerer Messungen zweier Mischproben aus je drei Kernen wurde ein mittleres  $^{125}\text{Sb}$ -Inventar von  $(246 \pm 60) \text{ Bq/m}^2$  bestimmt. Robbins et al. (1992) gaben den  $^{125}\text{Sb}$ -Eintrag in den Raum des Überlinger Sees mit  $(300 \pm 75) \text{ Bq/m}^2$  an (May 1986). Der Wert basiert auf zehn 1987 in der Umgebung des Sees genommenen Bodenproben und wurde aus dem mittleren  $^{137}\text{Cs}$ -Inventar dieser Proben, unter Verwendung des direkt nach dem Tschernobyl-Unfall in Konstanz bestimmten  $^{125}\text{Sb}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses (ebenfalls anhand von Bodenmaterial), errechnet. In den darauffolgenden Jahren wurden im Überlinger See mehrfach Sedimentkerne gezogen (Robbins et al. 1992). Das gemittelte  $^{125}\text{Sb}$ -Inventar der Kerne betrug  $(160 \pm 100) \text{ Bq/m}^2$  (1.5.1986). Das im Vergleich zu diesen Werten höhere Bodeninventar des Profils Eggwald könnte u. a. erklärt werden mit einer stärkeren Kontamination des Altdorfer Waldes durch den Tschernobyl-Fallout – aus dem Kartenmaterial BGA (1991) läßt sich entnehmen, daß die  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Bodenkontamination 1986 im Gebiet des Altdorfer Walds um den Faktor 1.5–2 höher als am Bodensee war – und der starken Interzeptionswirkung von Waldgebieten (s. u. Diskussion der  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare).

Wie aus der vorangehenden Diskussion der  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Tiefenprofile hervorgeht, sind die Verteilungen nur im Profil Nassau 1 vollständig erfaßt, in Nassau 2 zu etwa 95 %. Die entsprechenden

Inventare liegen in derselben Größenordnung (Tabelle 22). Da die tiefsten Beprobungshorizonte der beiden anderen Bodenprofile sehr geringe  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten aufweisen, kann auch hier von über 90 % vollständig erfaßten Bodeninventaren ausgegangen werden. Am Beispiel des Profils Nassau 1 läßt sich demonstrieren, zu welchem Prozentsatz das  $^{134}\text{Cs}$ -Inventar im Fall einer unvollständigen Beprobung jeweils erfaßt worden wäre: Bis zur Unterkante des Horizonts BvBs1 in knapp 11 cm Tiefe sind 74 % des Gesamtinventars erfaßt, bis BvBs2 (13 cm) 81 % und bis Bv1 (20 cm) 91 %. Dies mag für andere Profile variieren. Das im Vergleich zu Nassau 1 und 2 um etwa 30 % niedrigere Inventar am Beprobungsort Holzhau könnte durch eine geringere meteorologische Exposition verursacht worden sein (vgl. Diskussion  $^7\text{Be}$ ). Die  $^{125}\text{Sb}$ -Inventare bestätigen dies jedoch nicht eindeutig, obwohl auch hier das Inventar am Standort Holzhau im Vergleich den kleinsten Wert aufweist.

Da zu den Tschernobyl-bürtigen  $^{134}\text{Cs}$ -Flächenaktivitäten bzw. Bodeninventaren im Osterzgebirge im Prinzip keine Literaturwerte vorliegen, werden die Cs-Werte anhand der  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Inventare diskutiert (s. u.). Die in BfS (1992a) enthaltene Karte zur  $^{134}\text{Cs}$ -Inventarverteilung auf dem Territorium der damaligen DDR weist eine sehr grobe Rasterfläche auf, und die Position der Beprobungsgebiete im Osterzgebirge ist schwer auszumachen; für die Region kann demnach auf Inventarwerte von bis zu  $3000 \text{ Bq/m}^2$  geschlossen werden (Mai 1986). Das  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Inventar des Profils Eggwald liegt in der Größenordnung weiterer im Altdorfer Wald bestimmter Werte (Bürmann 1993), wohingegen höherkontaminierte Gegenden Süddeutschlands noch deutlich größere Werte aufweisen (Bunzl et al. 1992, 1994a; Heider 1994). Das Verhältnis des süddeutschen  $^{134}\text{Cs}$ -Inventars zu dem des Profils Nassau 1 beträgt etwa 2.8, bzw. ist eher mit 3 anzusetzen, da das Inventar des Profils Eggwald nicht vollständig ist. Prinzipiell ist das Verhältnis somit vergleichbar mit dem der  $^{125}\text{Sb}$ -Inventare; beide Werte verweisen auf den vergleichsweise höheren RN-Eintrag in Süddeutschland als Folge des Reaktorunfalls 1986.

Das  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventar Nassau 1 liegt deutlich über den Werten der anderen Bodenprofile (Tabelle 22). Nur in diesem Profil ist die Tiefenverteilung des  $^{137}\text{Cs}$  und damit auch die des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  vollständig erfaßt: Im tiefsten Beprobungshorizont ist  $^{137}\text{Cs}$  nicht mehr nachweisbar. In den unteren Beprobungshorizonten der drei anderen Profile dagegen sind die spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten noch relativ hoch. Zudem konnten die tieferliegenden Bodenbereiche teilweise nicht volumendefiniert beprobt werden, so daß diese Anteile nicht im Inventar enthalten sind. Dennoch ist zu erkennen, daß die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare in der Größenordnung der Literaturwerte liegen (Anhang D.2; beim Vergleich muß beachtet werden, daß nicht alle Werte, wenn überhaupt, auf dasselbe Datum zerfallskorrigiert wurden). Dörr u. Münnich (1991) beispielsweise beprobten nach 1986 insgesamt 49 ungestörte Waldstandorte Westeuropas und führten  $\gamma$ -spektrometrische Messungen an dem Bodenmaterial durch (keine Angabe bzgl. Zerfallskorrektur). Aus den in den Untersuchungen bestimmten  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventaren läßt sich ein arithmetischer Mittelwert von  $(1830 \pm 920) \text{ Bq/m}^2$  errechnen, wobei der höchste Inventarwert bei knapp  $4000 \text{ Bq/m}^2$  liegt. Für die 15 Probennahmepunkte innerhalb eines 20 km-Umkreises von Heidelberg ergibt sich ein mittleres Inventar von  $(2180 \pm 820) \text{ Bq/m}^2$ . Den Werten von Dörr u. Münnich (1991) lag ein Tschernobyl-Faktor von 2.1 zugrunde (Dörr u. Münnich 1987b), mit dem hier verwendeten Faktor ( $f_{\text{Tsch}} = 1.9$ ) wären diese Inventare also noch größer. Die 1984 ... 1991, d. h. sowohl vor als auch nach dem Tschernobyl-Unfall, in verschiedenen Böden in Bayern bestimmten  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare betrugen  $1830 \dots 3800 \text{ Bq/m}^2$  (arithmetische Mittelwerte, z. T. ohne Zerfallskorrektur,  $f_{\text{Tsch}} = 1.75$ ; Bunzl u. Kracke 1988; Bunzl et al. 1989b, 1992, 1994a, 1995b); die Inventarwerte von Rühm et al. (1996) für einen südbayerischen Fichtenwald liegen mit  $(1660 \pm 840) \text{ Bq/m}^2$  im unteren Bereich dieser Werte (1.5.1986,  $f_{\text{Tsch}} = 1.75$ ). Auch die in Oberschwaben bestimmten  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare ( $f_{\text{Tsch}} = 1.75$  bzw. 1.72) fügen sich gut in dieses Bild, z. B. die Werte des Altdorfer Walds (Bürmann 1993), des Mochenwanger Waldes oder des besonders stark kontaminierten Gebiets um Ochsenhausen (Heider 1994). Vergleichbare Werte ergaben auch die an Sedimentkernen des Bodensees bestimmten  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare, z. B. 1990 (Seewald 1991).

Dörr u. Münnich (1987b) geben  $2000 \dots 3000 \text{ Bq/m}^2$  als typischen Wertebereich für  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare in Waldböden an; die Autoren verweisen allerdings auch darauf, daß die in Waldböden bestimmten Inventare eher einen oberen Schätzwert der Gesamtd deposition darstellen. Dies wird unter-

stützt durch die vergleichenden Untersuchungen von Bunzl u. Kracke (1988) auf Fichtenwaldböden, Gras- und Ackerland an 25 Standorten in Südbayern (1984). Die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare der Waldböden liegen dabei signifikant, im Mittel um 30 %, über den Werten der beiden anderen Standorte. Ein vergleichbares Ergebnis ergaben Untersuchungen zweier Grasland- und Fichtenwaldstandorte (ca. 20 % höhere Gesamtdeposition im Waldgebiet; Bunzl et al. 1989a). Die Befunde können mit einer starken Interzeptionswirkung des Fichtenwalds allgemein und v. a. auch einer hohen Effizienz für trockene Deposition erklärt werden. Allerdings konnten in anderen Untersuchungen nur in Nadelwäldern signifikant erhöhte Inventare bestimmt werden, nicht jedoch in Laubwäldern (s. Diskussion in Bunzl u. Kracke 1988). Zudem fanden Bunzl u. Kracke (1988) eine signifikante Korrelation zwischen den  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventaren und der mittleren jährlichen Niederschlagsmenge auf Fichtenwald- und Graslandböden. Dabei unterscheiden sich die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare an beiden Standorten für denselben Jahresniederschlag um einen konstanten Wert von  $800 \text{ Bq/m}^2$ ; die resultierenden Regressionsgleichungen werden auch auf  $^{241}\text{Am}$  und die Pu-Isotope übertragen.

Auch die errechneten  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtinventare liegen in der Größenordnung der Literaturwerte (Tabelle 22). Übersichtskarten zur  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Bodenkontamination 1986 zeigen für den Erzgebirgsraum Werte von  $2000 \dots 5000 \text{ Bq/m}^2$  (BGA 1991) bzw.  $2000 \dots 4000 \text{ Bq/m}^2$  (Osterzgebirge; De Cort et al. 1998) und für das in Süddeutschland untersuchte Gebiet  $20000 \dots 30000 \text{ Bq/m}^2$  (BGA 1991) bzw.  $20000 \dots 40000 \text{ Bq/m}^2$  (De Cort et al. 1998). Für beide Veröffentlichungen liegen zwar derzeit keine Informationen z. B. über die Positionen, die Bodenart oder die Entnahmetiefe der zugrundeliegenden Beprobungen vor, die Karten ermöglichen jedoch einen prinzipiellen Vergleich. Ursachen für die im Vergleich zu diesen Literaturstellen relativ hohen  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Inventare der osterzgebirgischen Beprobungslokalitäten von bis zu  $> 8700 \text{ Bq/m}^2$  könnten die exponierte Lage am Erzgebirgskamm sein sowie die im vorangehenden Abschnitt erwähnte hohe Effizienz von Fichtenwäldern, trockene Deposition auszukämmen (Dörr u. Münnich 1987b; Bunzl u. Kracke 1988). Es wäre denkbar, daß die dem Kartenmaterial zugrundeliegenden Daten an Standorten geringerer Exposition bestimmt wurden. Daß die RN-Deposition regional stark variierte und daß die Annahme eines erhöhten RN-Eintrags in den hier untersuchten Gebieten nahe des Erzgebirgskamms plausibel ist, wird im Vergleich mit der regionalen Verteilung der spezifischen  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Aktivitäten in den Böden Thüringens und Sachsens (Barthel et al. 1995) sowie der  $^{134}\text{Cs}$ -Inventarverteilung auf dem Territorium der damaligen DDR (BfS 1992a) deutlich (auch bei diesen Referenzen ist die relativ geringe Meßpunktdichte von 6–8 Meßpunkten/ $100 \text{ km}^2$  bzw. sogar nur 1 Meßpunkt/ $100 \text{ km}^2$  zu beachten). Das  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Inventar des Profils Eggwald (Zerfallskorrektur auf Probennahmedatum ergibt ca.  $12600 \text{ Bq/m}^2$ ) stimmt sehr gut mit dem eines im näheren Umkreis des Probennahmepunkts einen Monat zuvor (7.6.1994) entnommenen Bodenprofils vergleichbarer Entnahmetiefe überein (Enslin 1994; Anhang D.2).

In diesem Zusammenhang ist anzumerken, daß das von Enslin (1994) bestimmte Inventar sowohl die Fein- als auch Grobanteile des Bodens umfaßt. Bürmann (1993) führte getrennte Messungen beider Fraktionen durch und bestimmte nicht unterhebliche Anteile des Gesamtinventars im Grobanteil der Fichtenwaldböden (23 ... 38 %). Der Prozentsatz des ausgesiebten Grobanteils ( $> \varnothing 2 \text{ mm}$ ) an der Trockenmasse des Gesamtprofils beträgt in diesen Untersuchungen jedoch bis zu 65 %, und liegt damit deutlich über den hier vorliegenden Verhältnissen (vgl. Kap. 3.3.2). Entsprechende Variationen können u. a. mit unterschiedlichen Durchwurzelungs- und Aggregierungsgraden der Proben, aber auch mit unterschiedlichen Aufbereitungstechniken erklärt werden. Bunzl u. Kracke (1988) beispielsweise zerkleinerten sämtliche Bodenproben, um sie durch ein Sieb der Maschenweite 2 mm zu passieren, und entfernten nur „größere Steine“ – ein derartiges Vorgehen führt natürlich zu einer wesentlich geringeren Masse des ausgesiebten Grobanteils als reines Sieben ohne Zerkleinerung der Proben, selbst bei gleicher Maschenweite. In den hier durchgeführten Untersuchungen wurde darauf geachtet, daß im Grobanteil nur mineralische Bestandteile  $> \varnothing 2 \text{ mm}$  sowie Wurzeln, Aststücke u. ä. enthalten sind, organische und angewitterte mineralische Bodenaggregate dagegen wurden vorsichtig beim Passieren durch das Sieb zerkleinert und sind in der mit Feinanteil bezeichneten Fraktion enthalten (Kap. 3.3.2). Es kann somit davon ausgegangen werden, daß das anhand dieser Feinanteile bestimmte Inventar die dem Boden zuzurechnende Aktivität relativ gut erfaßt. Generell könnte hierbei auch diskutiert werden,

inwieweit (lebende) Wurzeln und Aststücke der eingetragenen Flächenaktivität bzw. dem Bodeninventar per Definition zuzurechnen sind. Rein aus bodenkundlicher Sicht sind z. B. lebende Wurzeln nicht der organischen Substanz der Böden zuzurechnen (Schachtschabel et al. 1992).

Das Verhältnis der  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Bodenkontamination des Osterzgebirges zu der Oberschwabens errechnet sich anhand der Inventare der Profile Eggwald und Nassau 1 zu 1 : 1.7 (1.5.1986). Da das süddeutsche Inventar nicht vollständig ist, ist dieser Faktor noch geringfügig höher anzusetzen, wohl jedoch nicht über 1 : 2. Für dieses Verhältnis war – u. a. aufgrund eines generellen Mangels an Literaturwerten für die Erzgebirgsregion – vor Beginn der Untersuchungen ein höherer Wert von bis zu 1 : 10 erwartet worden. In den untersuchten Gebieten am Erzgebirgskamm wurden jedoch relativ hohe Inventare bestimmt. Gleichzeitig gehört das Waldgebiet Eggwald nicht zu den höchstkontaminierten Gebieten Süddeutschlands, wie der Vergleich mit den  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Inventaren anderer Waldgebiete Oberschwabens (Heider 1994) oder Bayerns (Bunzl et al. 1992) und entsprechender Übersichtskarten (BGA 1991; De Cort et al. 1998) zeigt.

Vielfältige Untersuchungen zeigen, daß die jeweiligen meteorologischen Bedingungen einen wesentlichen Grund für die teilweise starken lokalen Unterschiede der Deposition nach dem Tschernobyl-Unfall darstellten (vgl. Kap.1.4) und daß starke Regenereignisse eine hohe Depositionseffizienz aufwiesen – laut Santschi et al. (1988) 70 ... 80 % der  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Gesamtdeposition in der nördlichen Schweiz (vgl. Kap. 5.1). Jedoch erwies sich in einigen Gebieten trotz Regenfällen ein unerwartet hoher Prozentsatz der eingetragenen Aktivität durch trockene Deposition verursacht. Auf diesen Sachverhalt hingewiesen wird beispielsweise in Zusammenstellungen von Messungen des Fallouts auf dem Gebiet der damaligen DDR (SAAS 1987a, 1988b). Für den Mainzer Raum (wo Regenfälle schon am 3.5.1986 einsetzten) bestimmten Denschlag et al. (1987) den Beitrag der trockenen Deposition am  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Gesamteintrag (in  $\text{Bq}/\text{m}^2$ ) zu ca. 75 %; als eine mögliche Erklärung wird hier eine Verstärkung der Aerosoldeposition durch eine gleichzeitig auf den Mainzer Raum einwirkende Saharastaubwolke angesehen. Wie die hier gemessenen Inventarwerte zeigen, ist das Gesamtsystem der Einflußgrößen für die Verteilung der Radioaktivität nach dem Tschernobyl-Unfall generell so komplex, daß eine einfache Betrachtung, rein auf den Faktoren trockene und nasse Deposition des Fallouts basierend, nur einen sehr vereinfachten Hinweis auf die eventuelle lokale Kontamination eines Gebiets geben kann (vgl. Brandt 1998).

Im Gegensatz zu den Tschernobyl-bürtigen Nukliden  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{134}\text{Cs}$  sind die Inventare des kernwaffenbürtigen  $^{241}\text{Am}$  erwartungsgemäß an allen Standorten relativ gut vergleichbar (Tabelle 22). Der Mittelwert der erzgebirgischen Inventare liegt bei  $(30 \pm 5) \text{ Bq}/\text{m}^2$ ; das Inventar des Profils Eggwald ist, wie zuvor erläutert, nicht vollständig erfaßt. Die Werte für Nassau 2 und Eggwald erscheinen erhöht im Vergleich zu denen der beiden anderen Profile und auch der Literaturwerte (Bunzl u. Kracke 1988; Bunzl et al. 1992, 1994a, 1995b; Anhang D.2). Da die spezifischen  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitäten nur an den bezüglich des  $^{241}\text{Am}$ -Nachweises zentralen Beprobungshorizonten Oh(Of) ... Ah2 des Profils Nassau 2 bestimmt worden waren, sind die errechneten Inventare zu klein. Einer Abschätzung bzw. Extrapolation anhand plausibler Werte nach wären ca. 87 % des  $^{239,240}\text{Pu}$  und ca. 74 % des  $^{238}\text{Pu}$  erfaßt, die Gesamtinventare lägen dann bei etwa  $80 \text{ Bq}/\text{m}^2$  bzw.  $2.3 \text{ Bq}/\text{m}^2$ . Das  $^{238}\text{Pu}$ -Inventar würde demnach recht gut mit dem Wert von Bunzl et al. (1994a) für Graslandprofile übereinstimmen (entsprechende Inventarwerte für Waldbodenprofile liegen nicht vor). Ebenso paßt das  $^{239,240}\text{Pu}$ -Inventar sehr gut zu dem von Bunzl et al. (1992) an Fichtenwaldprofilen gemessenen Mittelwert; die  $^{239,240}\text{Pu}$ -Werte für Grasland (Bunzl u. Kracke 1988; Bunzl et al. 1994a) und Kiefernwald (Bunzl et al. 1995b) liegen unter diesen Werten. Wie zuvor diskutiert, können die Ursachen für derartige Variationen u. a. in unterschiedlichem Input an den Standorten als auch der unterschiedlichen Interzeptionsfähigkeit der Ökosysteme liegen. Für die hier beprobten Gebiete vergleichsweise hoher Jahresniederschlagssummen am Erzgebirgskamm (vgl. Tabelle 13, Tabelle 14 u. Anhang C.2) wären schon aufgrund der entsprechend Bunzl u. Kracke (1988) festgestellten Korrelation zwischen den  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventaren und der mittleren jährlichen Niederschlagsmenge (s. o) höhere Inventarwerte zu erwarten. Daß die kumulative Deposition lokal bzw. regional stark variieren kann, zeigen neben den Ergebnissen von Bunzl u. Kracke (1988) auch die Untersuchungen von Hölgye u. Filgas (1995) an 50 Graslandstandorten in der da-

maligen Tschechoslowakei (1990): Die  $^{239,240}\text{Pu}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ -Inventare der Bodenprofile lagen im Bereich 10 ... 109 Bq/m<sup>2</sup> bzw. < 0.5 ... 6.2 Bq/m<sup>2</sup>.

Im Vergleich zu der atmosphärischen Deposition von  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  durch die Kernwaffentests waren die Einträge mit dem Tschernobyl-Fallout im mitteleuropäischen Raum vernachlässigbar (vgl. Kap. 2.3) und die resultierenden Bodeninventare somit fast ausschließlich dem globalen Fallout zuzurechnen (Bunzl et al. 1992, 1994a, 1995b; Hölgye u. Malý 2000; Anhang D.2). Untersuchungen, die vor 1986 im Münchner Raum durchgeführt worden waren, hatten das  $^{239,240}\text{Pu}$ -Bodeninventar mit etwa 110 Bq/m<sup>2</sup> benannt (Hardy et al. 1973; Hötzl et al. 1987). In dieser Region war ein vergleichsweise hoher Tschernobyl-Input zu verzeichnen, dennoch erhöhte sich das schon vorhandene  $^{239,240}\text{Pu}$ -Bodeninventar nur unwesentlich, Hötzl et al. (1987) entsprechend um etwa 0.05 %. In einer neueren Veröffentlichung (Rosner et al. 1997) geben die Autoren die  $^{239,240}\text{Pu}$ -Deposition durch den Tschernobyl-Unfall – bei einem Gesamtinventar der Region von 50 ... 100 Bq/m<sup>2</sup> – mit 50 mBq/m<sup>2</sup> an (Aerosol- und Depositionsproben, naß und trocken, 29.4.–30.6.1986, München-Neuherberg). Durchschnittliche  $^{239}\text{Pu}$ -Inventare (für die oberen 20 cm Boden) in der Bundesrepublik Deutschland Anfang der 80er Jahre werden von Denschlag et al. (1987) mit 100 Bq/m<sup>2</sup> zitiert (dieser Wert kann lokal um eine Größenordnung variieren), die  $^{239}\text{Pu}$ -Deposition mit dem Tschernobyl-Fallout wird auf < 0.1 Bq/m<sup>2</sup> geschätzt. Laut Cambray et al. (1987) ist der  $^{239,240}\text{Pu}$ -Kernwaffenfallout typischerweise mit 75 Bq/m<sup>2</sup> pro 1000 mm Jahresniederschläge anzusetzen, selbst in Gegenden höchster Tschernobyl-Depositionen dagegen sollte der zusätzliche Eintrag 0.5 Bq/m<sup>2</sup> nicht überschreiten (UK; bodennahe Umgebungsluft und Niederschlag). Unter Verwendung eines atmosphärischen Transportmodells bestimmte Bennett (1978) die kumulative  $^{239,240}\text{Pu}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Deposition als Folge der Kernwaffentests (inklusive des aus dem  $^{241}\text{Pu}$ -Zerfall herrührenden  $^{241}\text{Am}$ ) für den Raum New York, wobei für das Jahr 1986 Werte von 82 Bq/m<sup>2</sup> bzw. knapp 25 Bq/m<sup>2</sup> extrapoliert werden.

Das  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis des Kernwaffenfallouts unterscheidet sich grundlegend von dem des Tschernobyl-Unfalls. Für den Zeitraum vor 1986 wird in der Literatur ein Verhältnis von 0.02 ... 0.04 angegeben (Hardy et al. 1973; Harley 1980; Holm et al. 1986; Holm 1988; Hirose u. Sugimura 1990; Rosner et al. 1997). Dabei ist zu beachten, daß dieser Wert v. a. aufgrund der Verteilung des SNAP-9A-Fallouts (Kap. 2.3) eine gewisse Breitengradabhängigkeit aufweist (Hardy et al. 1973; Holm et al. 1986). Hardy et al. (1973) bestimmten ein Verhältnis von 0.024 für den Zeitraum vor dem SNAP-9A-Unfall (1964). Anhand der Messungen von Bodenproben der Jahre 1970/71 (Hardy et al. 1973) errechnet sich für die nördliche Hemisphäre ein Faktor von  $0.036 \pm 0.006$  (zerfallskorrigiert 1997:  $0.029 \pm 0.005$ ) bzw. von  $0.036 \pm 0.011$  für 40°–50° nördlicher Breite (1997:  $0.029 \pm 0.009$ ). Für 60°–90° nördlicher Breite geben Holm et al. (1986) das Verhältnis mit  $0.034 \pm 0.002$  an (1980; 1997:  $0.030 \pm 0.002$ ). In Südbayern wurde 1982 ein Faktor von  $0.033 \pm 0.001$  bestimmt (1997:  $0.030 \pm 0.001$ ) (Ackerland; Bunzl u. Kracke 1987) und 1984 ein Wert von  $0.037 \pm 0.003$  (1997:  $0.033 \pm 0.003$ ) (Grasland- und Fichtenwaldböden; Bunzl u. Kracke 1988). Auch in Aerosol- und Depositionsproben (naß und trocken, 1985) betrug das  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis 0.03 (1997: 0.027) (München-Neuherberg; Rosner et al. 1997). Das anfängliche  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis im Tschernobyl-Fallout dagegen, welches noch nicht die spätere Bildung von  $^{238}\text{Pu}$  aus  $^{242}\text{Cm}$  beinhaltete, lag 1986 bei 0.42 (1997: 0.39) (München-Neuherberg; Hötzl et al. 1987; Rosner et al. 1997). Ein Faktor von etwa 0.4 konnte auch in Milford Haven, Großbritannien (Luftstaub, 2. Quartal 1986) und in Tsukuba, Japan (Mai 1986) bestimmt werden (Cambray et al. 1987, 1989; Hirose u. Sugimura 1990). Holm (1988) gibt den Wert mit etwa 0.45 an; anhand von Luftfilterproben wurde ein Verhältnis von  $0.43 \pm 0.03$  bestimmt (Dänemark, Mai 1986; 1997:  $0.39 \pm 0.03$ ).

Aus den in Tabelle 22 aufgeführten Inventarwerten des Profils Nassau 2 (Pu-Analysen durchgeführt 1997; Kap. 3.2.1) errechnet sich ein  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis von  $0.024 \pm 0.002$ , bei Verwendung der extrapolierten Inventarwerte (s. o.) ergibt sich ein Faktor von  $0.028 \pm 0.002$  (ohne Berücksichtigung der mit der Extrapolation verbundenen Unsicherheit). Dabei sinkt das Aktivitätsverhältnis in den einzelnen Horizonten mit der Tiefe von 0.041 auf 0.022 (Mittelwert  $0.031 \pm 0.008$ ). Diese Werte stimmen recht gut mit den zitierten, auf 1997 zerfallskorrigierten Literaturangaben für den Zeitraum vor dem Tschernobyl-Unfall (d. h. Kernwaffen- und SNAP-9A-Fallout) überein und deuten auf einen

vernachlässigbaren Tschernobyl-Anteil in diesen Horizonten hin. Vergleichbare Verhältnisse wurden auch in Grasland-, Kiefernwald- und Fichtenwaldböden bestimmt (Bunzl et al. 1992, 1994a, 1995b).

Das  $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnis berechnet sich für das Profil Nassau 2 zu  $0.49 \pm 0.02$  (nur Horizonte, in denen Pu bestimmt wurde),  $0.52 \pm 0.02$  (Am-Inventar komplett) bzw.  $0.46 \pm 0.02$  (Am-Inventar komplett und extrapoliertes Pu-Inventar; ohne Berücksichtigung der mit der Extrapolation verbundenen Unsicherheit). Die horizontweisen Verhältnisse liegen im Bereich  $0.36 \dots 0.56$  (Mittelwert  $0.49 \pm 0.09$ ), mit dem höchsten Wert im Am-Maximum, und sind damit teilweise größer als die Literaturwerte von etwa  $0.3 \dots 0.4$  für Grasland, Kiefern- und Fichtenwald in den Jahren 1984 bzw. 1990/91 (Bunzl u. Kracke 1988; Bunzl et al. 1992, 1994a, 1995b; vgl. Anhang D.2). Die Abweichungen können eventuell damit begründet werden, daß die Pu-Analysen nicht an allen Beprobungshorizonten durchgeführt werden konnten und das extrapolierte Pu-Inventar zu klein ist.

## 7 Moorbodenprofile: Ergebnisse und Diskussion

### 7.1 Tiefenverteilungen der Radionuklide in den Hochmoorböden

Wie in Kap. 3.3.1 erläutert, entsteht bei Moorböden, im Gegensatz zu allen anderen Böden, das Ausgangsmaterial bei der Bildung, weshalb sie als eine eigenständige bodensystematische Einheit definiert werden. In Hochmooren bildet sich aus der starken Akkumulation unvollständig zersetzten Pflanzenmaterials meist ein sehr mächtiger Torfkörper. Grund hierfür ist, daß die biologische Aktivität durch anaerobe Verhältnisse, niedrige pH-Werte, Nährstoffmangel und wahrscheinlich auch durch die Anwesenheit von Hemmstoffen fast ganz unterbunden ist (Clymo 1963; Overbeck 1975; Göttlich 1990; Schachtschabel et al. 1992). Es findet eine Humifizierung statt, die laut Schachtschabel et al. (1992) vorwiegend zur Bildung niedermolekularer Verbindungen führt, wie sie z. B. in den Fulvosäuren vorliegen („abiologische Humifizierung“). Auch in Podsolen bzw. podsolierten Böden, wie sie in den hier untersuchten Fichtenwäldern vorliegen, ist der Anteil dieser Humifizierung vermutlich relativ hoch. Im Unterschied zur den deutlich horizontierten Fichtenwaldböden zeichnen sich die Torfhorizonte nur durch variierende Humifizierungsgrade aus (Weiß- oder Schwarztorf; Ausnahme Vererdungshorizont bzw. Bunkerde nach Entwässerung). Darüber hinaus ist bei der Ansprache auf erkennbare Reste torfbildender Pflanzenarten zu achten (botanische Torfarteneinheiten). Die Beprobung wurde deshalb meist unabhängig von der jeweiligen Torfart in möglichst dünnen Schichten oder mit festen Bohrkernlängen durchgeführt.

Die Hochmoore des Erzgebirges entstanden meist durch Versumpfung flacher Mulden oder durch zu langsamen Wasserabfluß sanft geneigter Hänge. Infolge des Moorwachstums kann teilweise auch ein Übergreifen über Sättel und Kämme (Wasserscheidenmoore) verzeichnet werden. Die uhrglasförmige Wölbung des ombrogenen Hochmoors ist meist nur schwach angedeutet. Die untersuchten Hochmoore unterscheiden sich aufgrund ihrer individuellen Entwicklung am jeweiligen Standort deutlich in ihren Erscheinungsformen (s. Moortypen, Tabelle 14). Zudem sind die Moore unterschiedlich stark von anthropogenen Einflüssen gezeichnet, wie Maßnahmen der Wasserregulierung zum Torfabbau oder Wasserentzug für den Bergbau (Bauer et al. 1974; Hempel 1977; Hempel u. Schiemenz 1986; Wagenbreth et al. 1990; Thomasius 1994). Die moor- und standortspezifischen Charakteristika sind auch in den RN-Tiefenverteilungen zu erkennen. Neben der allgemeinen Übersicht der Beprobungen in Tabelle 14 sind in Anhang E.1 ergänzende Informationen zur Ansprache der beprobten Torfprofile und der Vegetation zusammengestellt. Als Basisliteratur zu Mooren allgemein und Hochmooren im speziellen dienen Overbeck (1975), Succow u. Jeschke (1986), Succow (1988), Göttlich (1990), Schachtschabel et al. (1992) und AG Boden (1994). Informationen zu den erzgebirgischen Hochmooren wurden u. a. Rudolph u. Firbas (1924), Naumann (1927), Frenzel (1930), Bauer et al. (1974), Hempel (1974, 1977), Hempel u. Schiemenz (1986), Böhnert et al. (1996) und Müller u. Uhlig (1997) entnommen; als Literatur zu den Hochmooren des Harzes lagen u. a. Henrion (1982), Jensen (1987, 1990) und Beug et al. (1999) vor.

In Moorböden ist die *in-situ* Profilentnahme, v. a. bezüglich eines definierten Volumens, schwieriger zu realisieren als in Fichtenwaldböden. Auch bei der in Kap. 3.3.3 erläuterten Zerlegung der entnommenen Torfblöcke im Labor ist die Bestimmung der Lagerungsdichte besonders in tieferen, schon stärker humifizierten Schichten problematisch. Dies wirkt sich noch stärker bei der Probenentnahme mit dem Moorkammerbohrer aus. In schwach konsolidierten, wasserreichen Torfen, wie sie bei den durchgeführten Bohrungen häufig vorlagen, ist beim Emporziehen des Bohrers mit einer Sackung der Torfe zu rechnen. Dies erschwert es, den Inhalt des Bohrers weiter zu unterteilen und die ursprüngliche Lagerungsdichte der Proben zu bestimmen. Die Umrechnung der spezifischen Aktivitäten in Aktivitätskonzentrationen bzw. Inventare ist in diesen Fällen mit großen Unsicherheiten behaftet oder unmöglich. Im folgenden sind deshalb die direkt aus der Messung der Moorproben gewonnenen spezifischen Aktivitäten dargestellt, vergleichbar den Waldbodenuntersuchungen (Kap. 6.1). Die  $A_{konz}$ -Tiefenverteilungen wurden jedoch soweit als möglich erstellt und gehen in die Diskussion mit ein. Zur Darstellung der Meßwerte in den Diagrammen sind der Tiefenachse gegenüberliegend die Schichtdik-

ken angezeichnet. Da es sich bei den Beprobungsschichten um eine willkürliche Einteilung durch die lagenweise Entnahme des Moorbodens handelt und nicht um Schichten oder Horizonte im bodenkundlichen Verständnis, wird bewußt auf eine Numerierung der Beprobungsschichten verzichtet. Um die Tiefenabhängigkeit zu betonen, sind auch im Text die Meßergebnisse i. allg. den entsprechenden Tiefenbereichen zugeordnet.

### **7.1.1 Die Hochmoorstandorte im Erzgebirge: Georgenfelder Hochmoor, Schwarze Heide und Kleiner Kranichsee**

#### **Das Hochmoor im Osterzgebirge: Georgenfelder Hochmoor**

Die erste Moorbeprobung im Rahmen dieser Arbeit fand Ende Oktober 1994 im osterzgebirgischen Georgenfelder Hochmoor statt (Schleich et al. 1995), einem ombrosoligen Einhangmoor, das deutliche Spuren anthropogener Eingriffe wie Entwässerungsmaßnahmen aufweist (Bauer et al. 1974; Hempel 1977; Hempel u. Schiemenz 1986; Wagenbreth et al. 1990). Dabei wurde erstmalig ein Profilblock *in-situ* entsprechend Kap. 3.3.3 entnommen (Lage des Beprobungspunkts u. bodenkundliche Ansprache s. Abb. 45 u. Anhang E.1.1). Der Moorboden wurde bis in eine Tiefe von etwa 50 cm in zwölf Schichten zerlegt.

Von der Maximaltiefe des Profils ausgehend wurden zwei parallele Bohrungen bis zum anstehenden Gestein durchgeführt (Endtiefe 220 cm). Jede Bohrung umfaßte drei aufeinanderfolgende Bohrkern von 50 cm Länge, wobei eine Länge von 18 cm vor dem letzten Kern unbeprobt ausgelassen wurde. Nur das Material des ersten Kerns wurde  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht; die geochemischen Analysen entsprechend Kap. 3.2.2 wurden an Materialanteilen beider Kerne durchgeführt.

Die beprobte Profilfläche war u. a. von Moosbeere, Rauschbeere, Heidekraut und Torfmoosen bewachsen. Die Pflanzen wurden direkt über der Mooroberfläche abgeschnitten und zerkleinert ebenfalls  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen. Die Ergebnisse sind in den Graphen bei Tiefe 0 cm aufgetragen.

Der deutlich sichtbare Übergangsbereich zwischen einem Vererdungshorizont (Bunkerde) und dem darunterliegenden Torf in etwa 18 cm Tiefe ist in den Diagrammen durch eine gestrichelte Linie angedeutet. Diese Grenze lag bei der Beprobung innerhalb der siebten Schicht, welche mit 7 cm Dicke vergleichsweise mächtig ist. Für die Untersuchung der Schicht wurde der Probenbehälter möglichst repräsentativ befüllt. Zusätzlich zu dieser Mischprobe wurde aus der gesamten Schicht in trockenem Zustand Material des oberen (7a) und des unteren Bereichs (7b) von Hand ausgelesen und gemessen. Die Meßergebnisse sind in den Diagrammen mit eingetragen und durch Pfeile markiert.

Die Ergebnisse der  $\gamma$ -spektrometrischen Messung einer Gesteinsprobe, die entsprechend Kap. 3.3.3 untersucht wurde, um einen Vergleich der RN-Gehalte tieferer Moorschichten mit denen des anstehenden Teplitz-Altenberger Quarzporphyrs (im folgenden Teplitzer Quarzporphyr genannt; vgl. Tabelle 14) zu ermöglichen, sind in den Diagrammen in Anschluß an die tiefste Bohrprobe in 230 cm Tiefe aufgetragen bzw. in der Ergebnisdarstellung mit aufgeführt.

Die Ergebnisse zusätzlicher Untersuchungen an dem Probenmaterial des Torfprofils (geochemische Analysen, Glühverlust, TC/TOC; Kap. 3.2.2) sind in Anhang E.2 zusammengestellt und gehen in die Diskussion mit ein.

Die Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen sowie des  $^{40}\text{K}$  (Abb. 46 u. Abb. 47) weisen in der obersten Moorschicht erhöhte spezifische Aktivitäten auf (vgl. Schleich et al. 1995). In der darüberliegenden rezenten Vegetation, deren Wert bei Tiefe 0 cm aufgetragen ist, sind geringere Werte zu finden. Das  $^{238}\text{U}$ -Maximum von  $(19.9 \pm 2.6) \text{ Bq/kg}$  ist deutlich sichtbar, darunter fallen die  $^{238}\text{U}$ -Werte mit zunehmender Tiefe ab. Unterhalb des Vererdungshorizonts, dessen untere Grenze durch eine gestrichelte Linie angedeutet ist, ist  $^{238}\text{U}$  nur in zwei weiteren Schichten detektierbar. In der tiefsten Bohrprobe beträgt die spezifische  $^{238}\text{U}$ -Aktivität  $(190 \pm 8) \text{ Bq/kg}$  und liegt damit prinzipiell in derselben Größenordnung wie der Wert der Gesteinsprobe von  $(132 \pm 7) \text{ Bq/kg}$ .



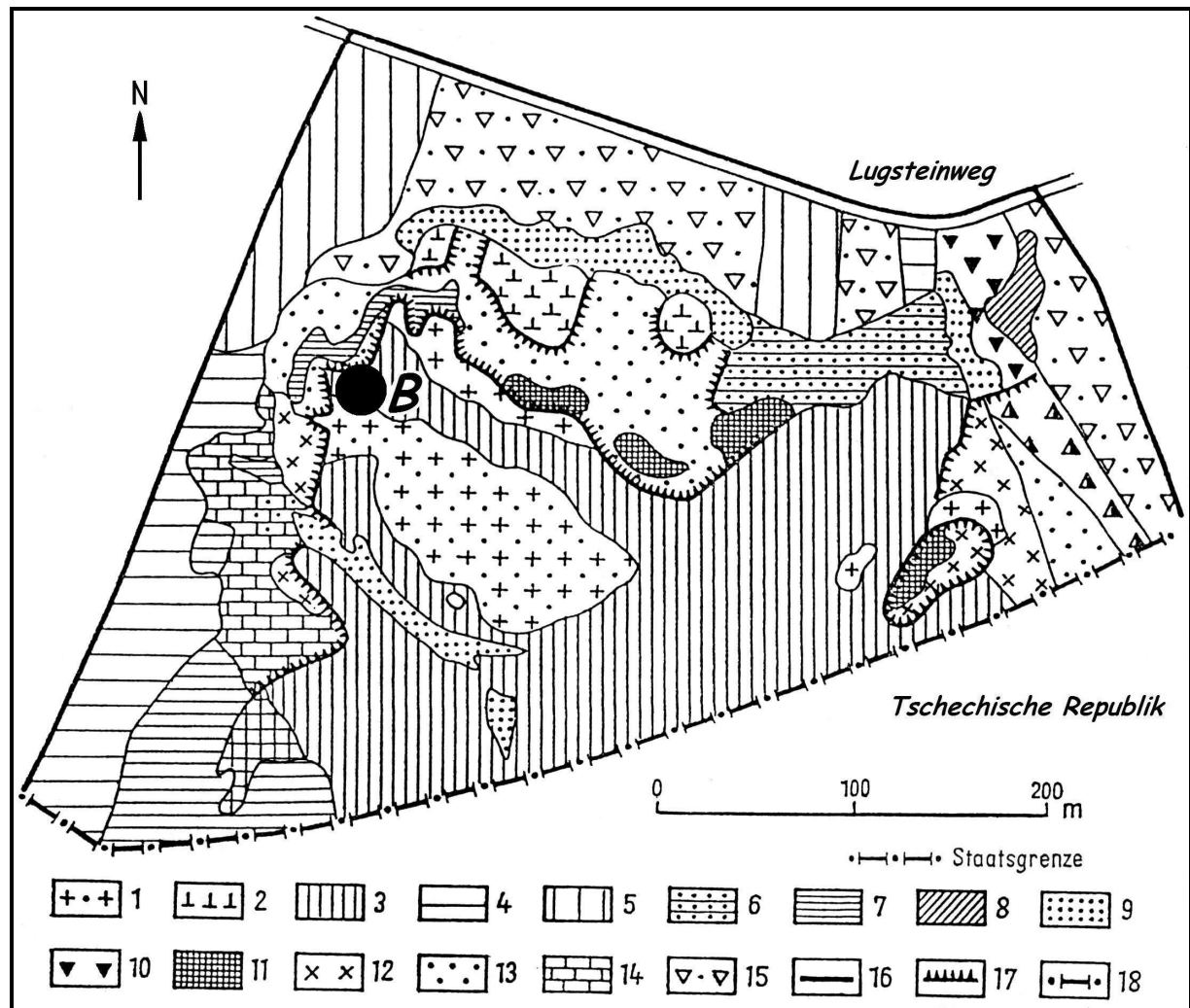


Abb. 45: Vegetationskarte des NSG Georgenfelder Hochmoor (nach Hempel u. Schiemenz 1986)

Der Beprobungspunkt (B) befindet sich an einer vergleichsweise trockenen, mit Ericaceen bewachsenen Stelle innerhalb eines von Moorkiefernbeständen gekennzeichneten Bereichs (3: Moorkiefernbestände, Latschengürtel (*Vaccinio-Mugetum*)), in etwa 8 m Entfernung zu einer nach Norden gerichteten Torfstichkante (17). Mit (1) ist die offene Hochmoorfläche mit Torfmoosgesellschaften (*Sphagnetum medii sphagnetosum nemorei*) benannt. Auf der gegenüberliegenden Seite der Torfstichkante befinden sich (13) Regenerationsflächen der Seitenkantenlaggs mit Pfeifengras (*Molinia caerulea*) und (7) Sickerwasserzüge mit Schmalblättrigem Wollgras (*Eriophorum angustifolium*) (Hempel u. Schiemenz 1986). Aus letztgenannten Bereichen der gefluteten Torfstiche nördlich des Beprobungspunkts entstammen die zusätzlich entnommenen Moorwasserproben (vgl. Kap. 3.3.4).

Im Gegensatz zu  $^{238}\text{U}$  sind die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  im gesamten Hochmoorprofil zu detektieren. Soweit bestimmbar, entspricht der Wert des  $^{226}\text{Ra}$  (186 keV-Linie) meist dem der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger. Ein  $^{226}\text{Ra}$ -Überschuß besteht nur in der Vegetation und der zweiten Moorschicht. Der Verlauf der spezifischen Aktivitäten der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger läßt ebenfalls einen Abfall zum Torfkörper hin erkennen, weist mit  $(7.6 \pm 0.3) \text{ Bq/kg}$  jedoch kein ausgeprägtes Maximum auf. Darunter sind die Werte bis etwa 150 cm durchweg kleiner als  $3.5 \text{ Bq/kg}$ . Der Wert in der untersten Beprobungsschicht ist mit  $(30.2 \pm 0.5) \text{ Bq/kg}$  wesentlich geringer als der des  $^{238}\text{U}$ , im Gestein dagegen liegt der Wert der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger mit  $(121 \pm 1) \text{ Bq/kg}$  nur geringfügig unter dem des  $^{238}\text{U}$ . Das gesamte Profil ist von  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewichten geprägt. Sowohl im Bereich bis 12 cm als auch in den beiden tieferen Proben in etwa 40 cm und 200 cm Tiefe besteht ein  $^{238}\text{U}$ -Überschuß. Der  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor beträgt 2.6 im Maximum und 6.3 in der tiefsten Bohrprobe.

Zudem weist das Profil mit Ausnahme von Moorschicht 7 (Mischprobe) und der Gesteinsprobe starke Ungleichgewichte zwischen den  $^{226}\text{Ra}$ -Folgern und  $^{210}\text{Pb}$  auf (Abb. 47). Mit der maximal spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität von  $(729 \pm 47) \text{ Bq/kg}$  errechnet sich ein  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor von 96 für die oberflächennahe Moorschicht. In der untersten Bohrprobe steigt der Wert auf  $(128 \pm 25) \text{ Bq/kg}$  an und stimmt gut mit dem Wert der Gesteinsprobe von  $(114 \pm 38) \text{ Bq/kg}$  überein. In der Gesteinsprobe sind die untersuchten RN der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe somit nahezu im Gleichgewicht (inkl.  $^{226}\text{Ra}$  über 186 keV), wobei nur ein minimaler  $^{238}\text{U}$ -Überschuß festzustellen ist.

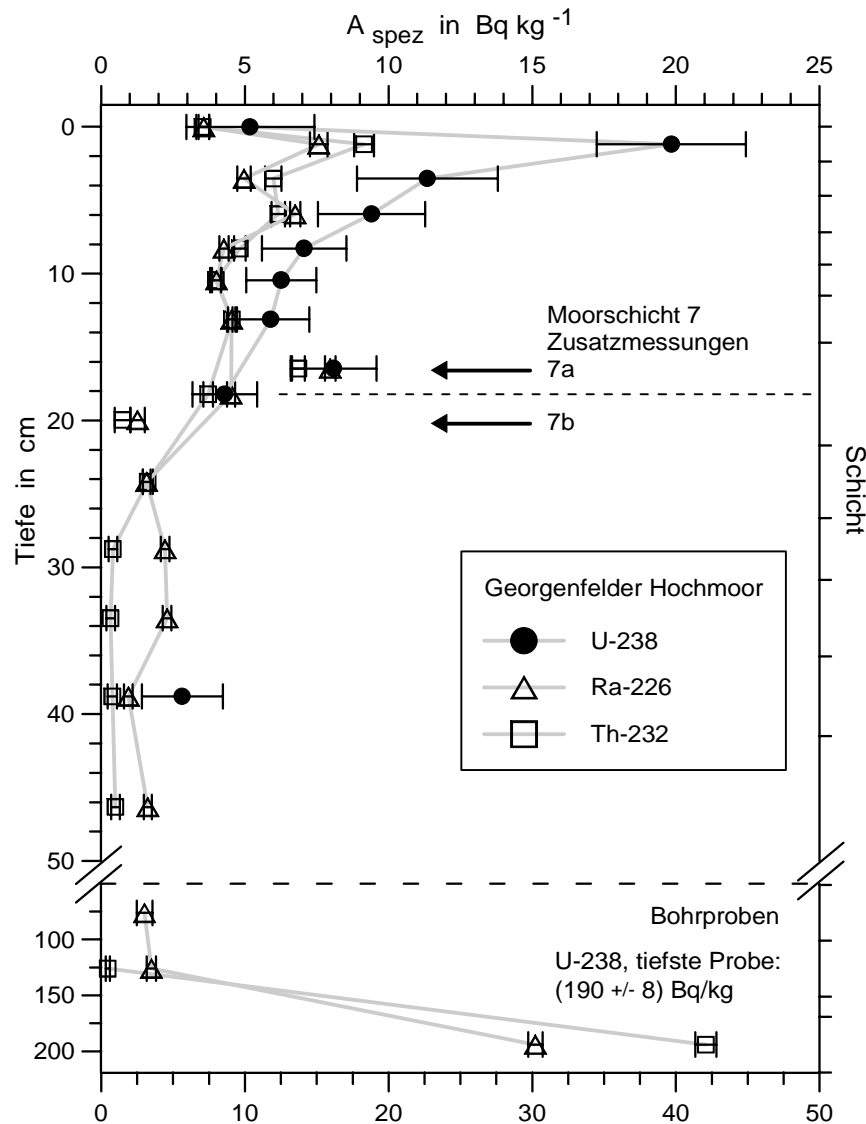


Abb. 46: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenprofile von  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Folgenukliden ( $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe) im Vergleich zu RN der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe (Profilblock und Bohrproben; verändert nach Schleich et al. 1995)

Die spezifischen  $^{238}\text{U}$ -Aktivitäten wurden über das Folgenuklid  $^{234}\text{Th}$  (und z. T.  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ), die des  $^{226}\text{Ra}$  über die Werte von  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  bestimmt. Die  $^{232}\text{Th}$ -Werte wurden aus denen der  $^{228}\text{Ra}$ - und  $^{228}\text{Th}$ -Folger gemittelt. Die Pfeile markieren die Meßwerte der beiden Einzelproben 7a und 7b aus dem Übergangsbereich Vererdungshorizont-Torfkörper (7a:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{232}\text{Th}$ , 7b:  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{232}\text{Th}$ ).

Die Folgenuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe liegen nicht in allen Schichten im Gleichgewicht vor: zumindest in der obersten Moorschicht und zwei weiteren Schichten in 6 cm und 24 cm Tiefe liegt ein signifikanter Überschuß der  $^{228}\text{Th}$ -Folger  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{208}\text{Tl}$  im Vergleich zum  $^{228}\text{Ra}$ -Folger  $^{228}\text{Ac}$  vor. Abb. 46 zeigt den gemittelten Wert für  $^{232}\text{Th}$ . Die erhöhte spezifische Aktivität in der obersten Moorschicht beträgt  $(9.2 \pm 0.3) \text{ Bq/kg}$ . Ähnlich der Verteilung des  $^{226}\text{Ra}$  fallen die Werte zum Torf hin ab und bewegen sich in den darunterliegenden Schichten unter  $1 \text{ Bq/kg}$ . Erst in der untersten Probe steigt der Wert auf  $(42 \pm 1) \text{ Bq/kg}$  an, liegt jedoch noch weit unter der spezifischen  $^{232}\text{Th}$ -Aktivität der Gesteinsprobe von  $(215 \pm 1) \text{ Bq/kg}$ .

Die  $^{238}\text{U}$ -,  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Meßergebnisse der beiden zusätzlich untersuchten Proben des Übergangsbereichs, 7a und 7b, unterstützen den in allen Tiefenverteilungen mehr oder weniger stark ausgeprägten Abfall der spezifischen Aktivitäten vom Vererdungshorizont zum Torfkörper hin. Der Mittelwert beider spezifischer Aktivitäten entspricht dem Meßwert der repräsentativen Gesamtprobe aus Schicht 7. In Probe 7a sind, wie auch in der Gesamtprobe,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  (über 186 keV) und seine Folger (ohne  $^{210}\text{Pb}$ ) im Gleichgewicht; in 7b ist  $^{238}\text{U}$  nicht nachweisbar. Im Vergleich zur direkt darüberliegenden Schicht sind die  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Werte von 7a deutlich erhöht. Für  $^{210}\text{Pb}$  dagegen entspricht der Wert von 7a dem der darüberliegenden Schicht, während die spezifische Aktivität in 7b erhöht ist. Der Wert der Gesamtprobe aus Schicht 7 liegt deutlich unter dem der Einzelmessungen.

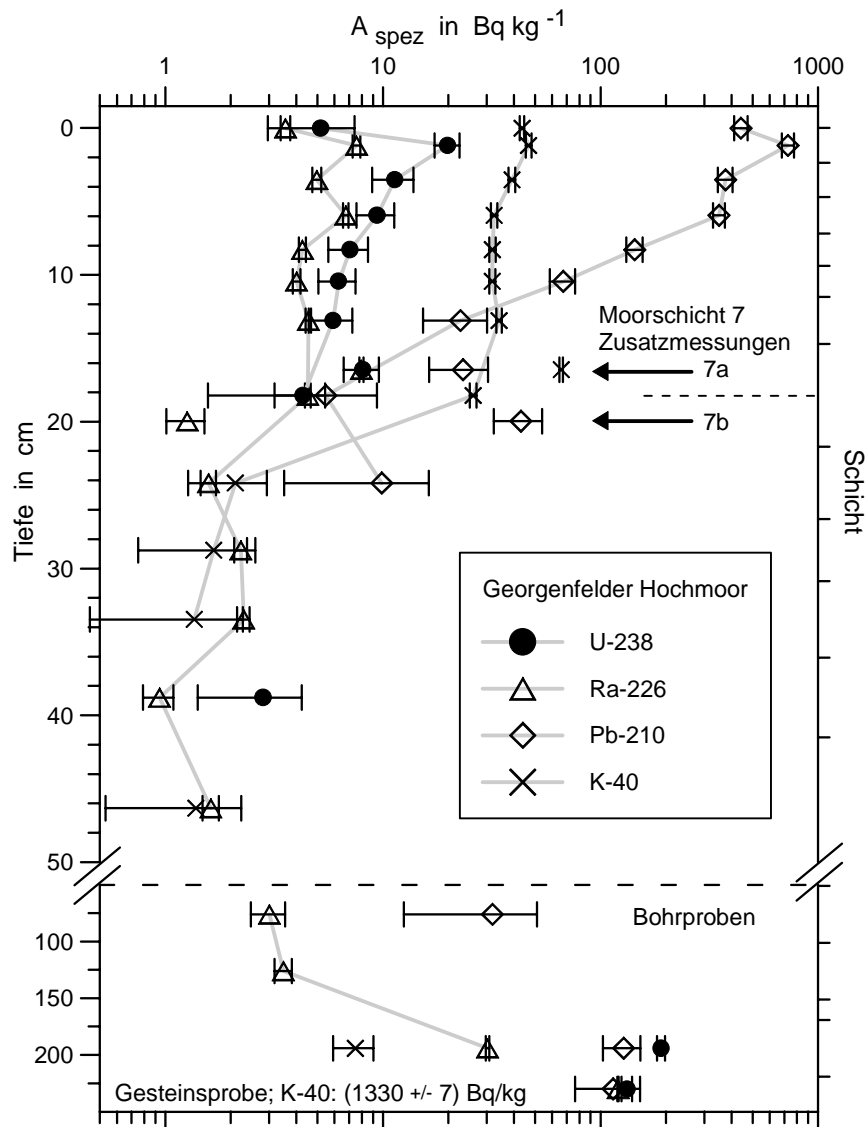


Abb. 47: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenprofile des  $^{210}\text{Pb}$  und des  $^{40}\text{K}$  in logarithmischer Darstellung (Profilblock, Bohrproben und Gesteinsprobe; verändert nach Schleich et al. 1995); zum Vergleich sind die spezifischen  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivitäten (entspr. Abb. 46) eingezeichnet

Die Pfeile markieren die Meßwerte der beiden Einzelproben 7a und 7b aus dem Übergangsbereich Vererdungshorizont–Torfkörper (7a:  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{40}\text{K}$ , 7b:  $^{210}\text{Pb}$  und  $^{226}\text{Ra}$ ). Die spezifischen  $^{238}\text{U}$ -,  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{210}\text{Pb}$ -Werte der Gesteinsprobe (Teplitzer Quarzporphyr) sind zum Vergleich in einer Tiefe von 230 cm aufgetragen

Die Tiefenverteilung des  $^{40}\text{K}$  ist in der obersten Moorschicht mit  $(47 \pm 1)$  Bq/kg maximal (Vegetation:  $(44 \pm 1)$  Bq/kg). Während die Werte im Bereich 5 ... 15 cm bei etwa 33 Bq/kg liegen, fallen sie an der Grenze zum Torf hin steil ab. Der Meßwert von Probe 7a ist mit  $(66 \pm 1)$  Bq/kg deutlich erhöht im Vergleich zu allen anderen Werten. In Probe 7b dagegen ist  $^{40}\text{K}$ , wie auch in einigen tiefergelegenen Proben, nicht nachweisbar. Somit entspricht der Mittelwert der Meßergebnisse von 7a und 7b wiederum dem Wert der Gesamtprobe aus Schicht 7. Im Torfkörper liegen die Werte durchgehend un-

ter 2 Bq/kg. Zum Mooruntergrund hin steigt die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität wieder leicht an und beträgt in der untersten Moorstecherprobe ( $7.5 \pm 1.6$ ) Bq/kg. Dieser Wert liegt jedoch weit unter dem der Gesteinsprobe von ( $1330 \pm 7$ ) Bq/kg.

Das kosmogene RN  $^7\text{Be}$  ist bis in 7 cm Tiefe nachweisbar (Abb. 48). Die spezifische  $^7\text{Be}$ -Aktivität ist in der rezenten Vegetation mit ( $114 \pm 3$ ) Bq/kg maximal. Im Moorboden ist der Wert deutlich geringer und sinkt mit zunehmender Tiefe steil ab.

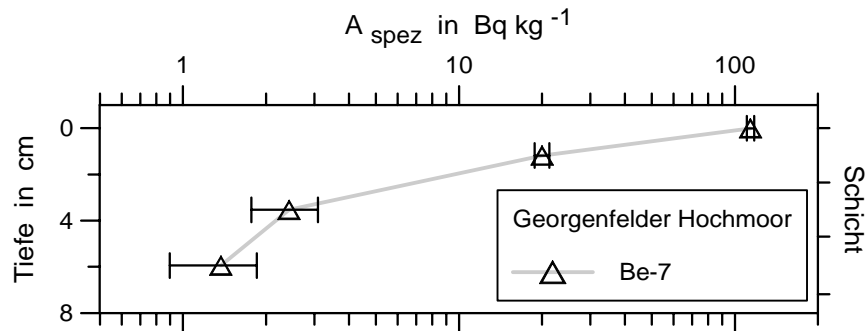


Abb. 48: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenverteilung des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (auf das Probennahmedatum 25.10.1994 zerfallskorrigiert; logarithmische Darstellung)

Die Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  sind in Abb. 49 dargestellt. Das Maximum des  $^{241}\text{Am}$  erstreckt sich über die beiden oberen Moorschichten (gemittelt ( $3.6 \pm 0.5$ ) Bq/kg; Tiefenbereich 0 ... 4.5 cm). Die maximale spezifische  $^{125}\text{Sb}$ -Aktivität von ( $11.4 \pm 0.5$ ) Bq/kg liegt in der obersten Moorschicht (0 ... 2.5 cm). Beide RN sind schon im Bewuchs detektierbar. Im Moorboden ist  $^{241}\text{Am}$  bis in 7 cm,  $^{125}\text{Sb}$  bis in 11 cm Tiefe nachweisbar.

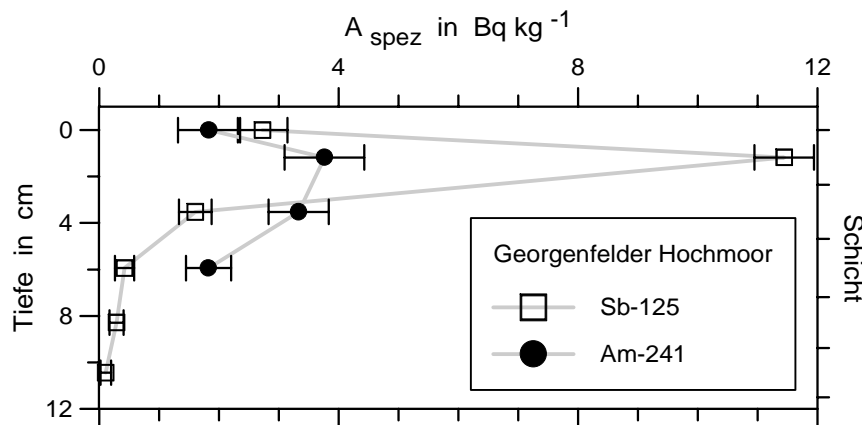


Abb. 49: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenprofile der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 25.10.1994)

Die Tiefenverteilungen der beiden  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile sind in Abb. 50 dargestellt. Die Maxima des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  liegen in der Vegetationsschicht mit spezifischen Aktivitäten von ( $72 \pm 22$ ) Bq/kg und ( $441 \pm 22$ ) Bq/kg ( $^{134}\text{Cs}$ : ( $16.2 \pm 0.2$ ) Bq/kg). Sowohl  $^{137}\text{Cs}$  als auch  $^{134}\text{Cs}$ , und damit  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ , sind in allen Schichten des Profilblocks bis in 50 cm Tiefe nachweisbar.  $^{137}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  ist darunter auch in den drei Bohrproben detektierbar (Schleich et al. 1995). Während die spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Aktivitäten kontinuierlich mit zunehmender Tiefe abnehmen, verlaufen die Werte des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  ungleichmäßiger. In etwa 18 cm Tiefe, dem sichtbaren Übergang zwischen Vererdungshorizont und Torfkörper, ist  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  nochmals leicht erhöht, um dann im darunterliegenden Bereich bis 100 cm bei einem Wert um knapp 5 Bq/kg zu liegen. Erst in der tiefsten Bohr-

probe ist die spezifische  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Aktivität auf  $(1.0 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  abgesunken, aber immer noch sehr gut zu detektieren. Ähnlich den  $^{238}\text{U}$ -,  $^{226}\text{Ra}$ -,  $^{232}\text{Th}$ - und  $^{40}\text{K}$ -Meßergebnissen der beiden zusätzlich untersuchten Proben 7a und 7b liegen die spezifischen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ - und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Aktivitäten in 7a deutlich über dem Wert der Gesamtprobe, in 7b dagegen deutlich darunter. Dabei entspricht der Mittelwert beider Messungen gut dem Wert der Gesamtprobe.

Das Tschernobyl-bürtige  $^{154}\text{Eu}$  (Kap. 2.3) ist sowohl in der Vegetations- als auch der obersten Moorschicht nachweisbar (o. Abb.). In der obersten Moorschicht konnte zudem das ebenfalls mit dem Tschernobyl-Fallout eingetragene  $^{106}\text{Ru}$  ( $^{106}\text{Rh}$ ) detektiert werden.

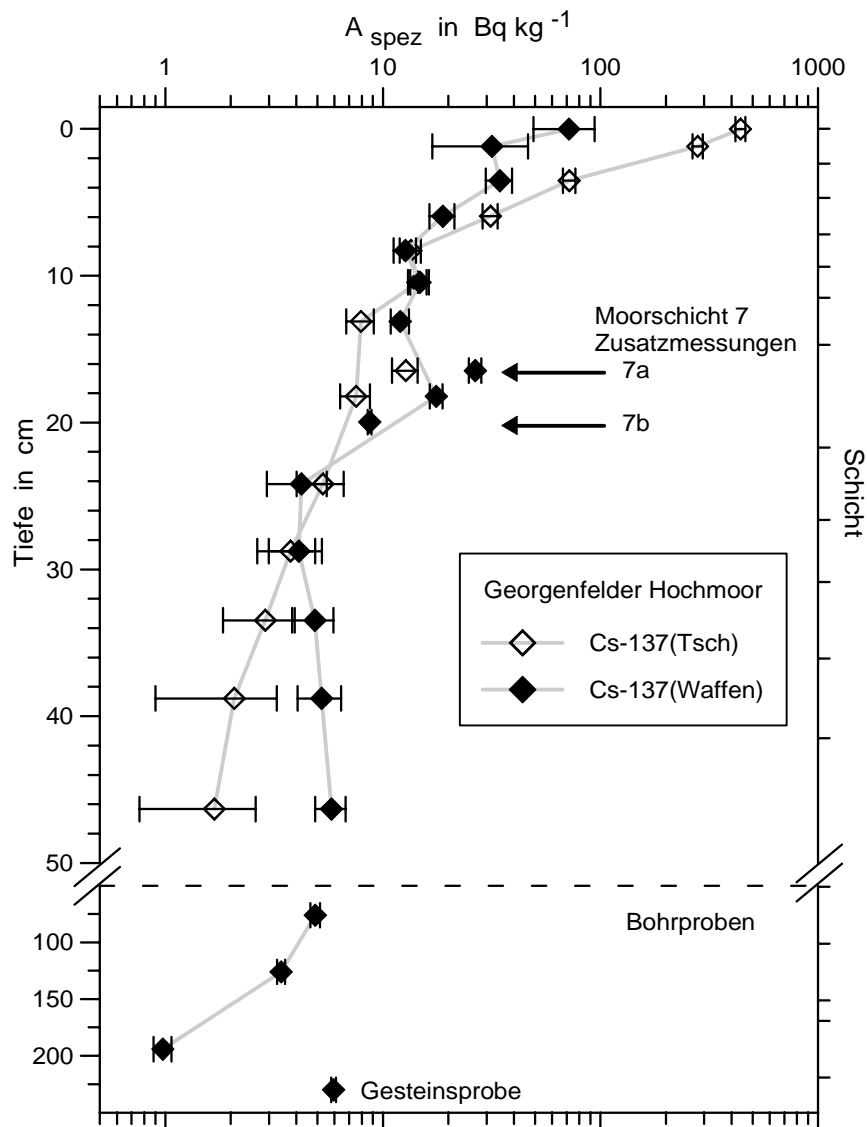


Abb. 50: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenverteilungen des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  (Profilblock und Bohrproben; zerfallskorrigiert auf das Probenahmedatum 25.10.1994; logarithmische Darstellung)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten. Die Pfeile markieren die Meßwerte der beiden Einzelproben 7a und 7b aus dem Übergangsbereich Veredungshorizont-Torfkörper.

### Das Hochmoor im Mittleren Erzgebirge: Schwarze Heide

Das nur etwa 9 ha große Hochmoor Schwarze Heide ist im mittleren Erzgebirge etwa 1 km nordwestlich von Rübenau gelegen (Abb. 51). Das ursprünglich als Quellmuldenmoor entstandene, inzwischen jedoch stagnierte Hochmoor befindet sich in einem dichten Waldgebiet (Kriegswald, Forstrevier Rübenau; intensive Waldpflege) ca. 2 km vom Kamm entfernt, der hier Höhen von 870 ... 900 m ü. NN erreicht. Das Moor ist von 15 ... 20jährigen Fichtenbeständen umgeben.

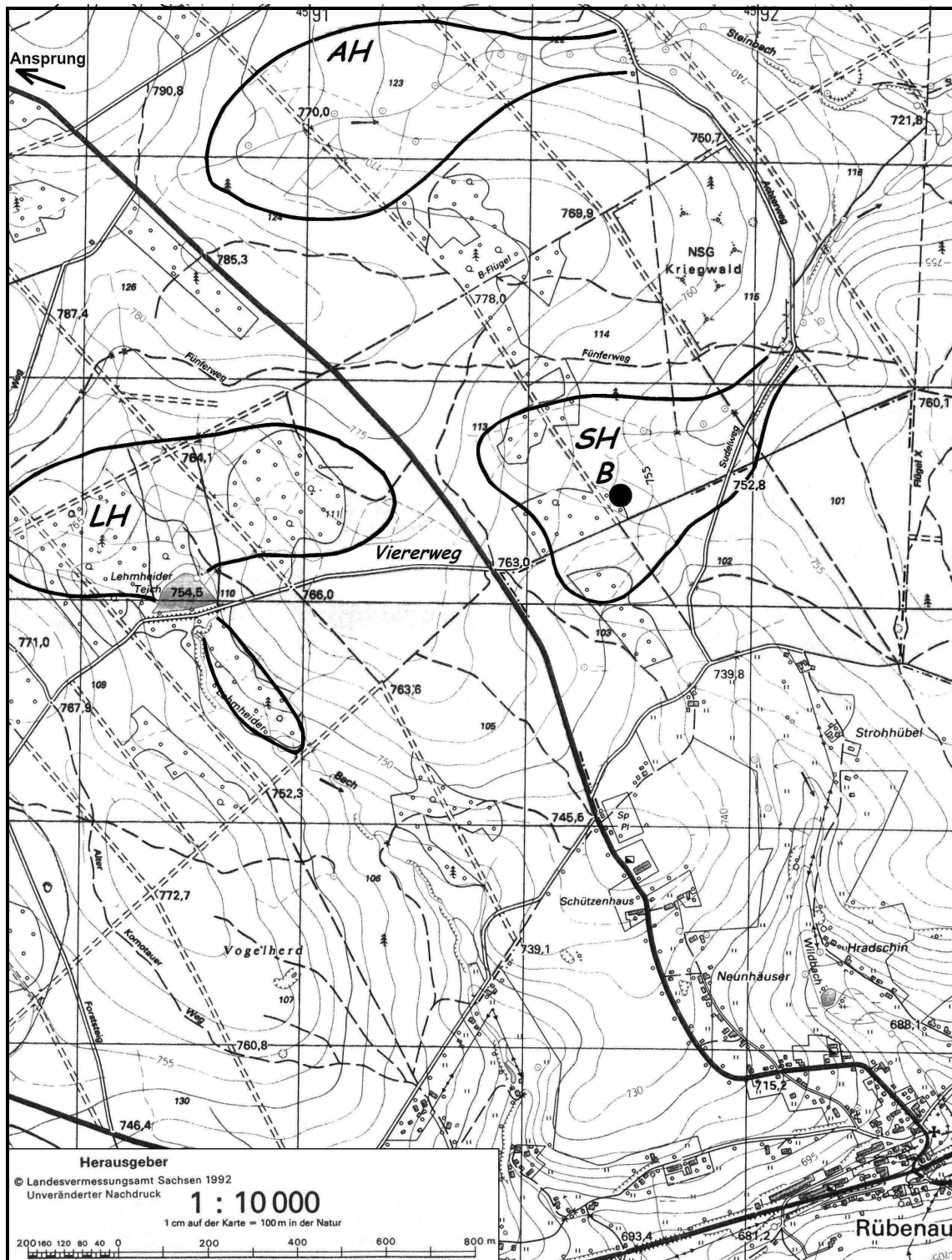


Abb. 51: Ausschnitt der Topographischen Karte 1:10000 (TK 10) 5345 Ansprung SO (Hrsg.: Landesvermessungsamt Sachsen 1992; Ausschnitt verkleinert, Karte verändert nach M. Seifert, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 1998) mit den im Kriegswald gelegenen Mooregebieten Achterheide (AH), Lehmheide (LH) und Schwarze Heide (SH)

Die Moorgrenzen sind durch stärker gezogene schwarze Linien gekennzeichnet. Nicht enthalten im Ausschnitt ist die Hühnerheide, deren nördlicher Teil sich etwa 0,5 km südwestlich der Lehmheide befindet. Der Moorkörper der Schwarzen Heide beginnt ca. 200 m östlich der Kreuzung Viererweg mit der Verbindungsstraße von Ansprung nach Rübenau. Der Beprobungspunkt in der Schwarzen Heide (B; entspricht Bohrung SH1 in Seifert 1997) liegt ca. 300 m von dieser Kreuzung nach Nordosten, ca. 75 m nördlich des Viererwegs, ca. 30 m östlich der Hauptschneise des Mooregebiets (Schneisen: unterbrochene Doppellinien). Die weißen Flächen mit den Kreissignaturen stehen für aufgelichteten Wald mit vereinzelter Baumgruppen.

Etwa 5 km nordöstlich des Naturschutzgebiets (NSG) Mothäuser Heide gelegen, ist die Schwarze Heide jedoch selbst nicht in dieser Weise unter Schutz gestellt. Gründe hierfür sind neben der geringen Größe auch die Nutzung des Standorts für die Forstwirtschaft, die im Moor ihre Spuren hinterlassen hat. Seit 1832 wurden in der Schwarzen Heide zwei Generationen Fichte gezogen (je 100 ... 120 a), das Moor war jedoch schon von Natur her Fichtenstandort (J. Heisig, Forstamt Olbernhau, pers. Mitt. 1998). Obwohl weder Torf gestochen noch Moorwasser für Bergbautätigkeiten entnommen wurde, führten mehrere (noch heute vorhandene) Entwässerungsgräben zu den typischen Sackungs- und Mineralisierungserscheinungen am Torfkörper, das Torfwachstum stagnierte. Da Fichten flach wurzeln und direkten Stand im sauren Moorwasser nicht vertragen, ist die Entwässerung unabdingbar für die Waldbewirtschaftung. Zur Bepflanzung wurde der Torf jedoch nicht großflächig umgewälzt, sondern nur jeweils ein passendes Loch für die etwa 40 cm hohen Setzlinge gegraben. Die Stubben der vorangehenden Baumgenerationen sind im Laufe der Zeit versunken oder verfault. Bei der Suche nach einem relativ ungestörten Beprobungsstandort wurde versucht, derartige Einflüsse durch Vorsondieren auszuschließen. Trotz Beforstung wurden weder Düngung noch Kalkung im Moor vorgenommen.

Heutzutage wachsen neben Birken (Moorbirke, vereinzelt Gemeine Birke; ca. 6 ... 20 a, Stand 1995) und Fichten (0.25 ha, 35 a) auch Latschenkiefern (2.34 ha, 4 a) und die nordamerikanische Murray-Kiefer (5.91 ha, 11 a) auf dem Moor (Seifert 1997; J. Heisig, Forstamt Olbernhau bzw. Marienberg, pers. Mitt. 1998, 2005). Auf der Mooroberfläche sind u. a. Preiselbeere, Heidelbeere, Weidenröschen, Labkraut, Drahtschmiele sowie verschiedene Torfmoos-, Seggen- und Flechtenarten (z. B. Becherflechte) zu finden.

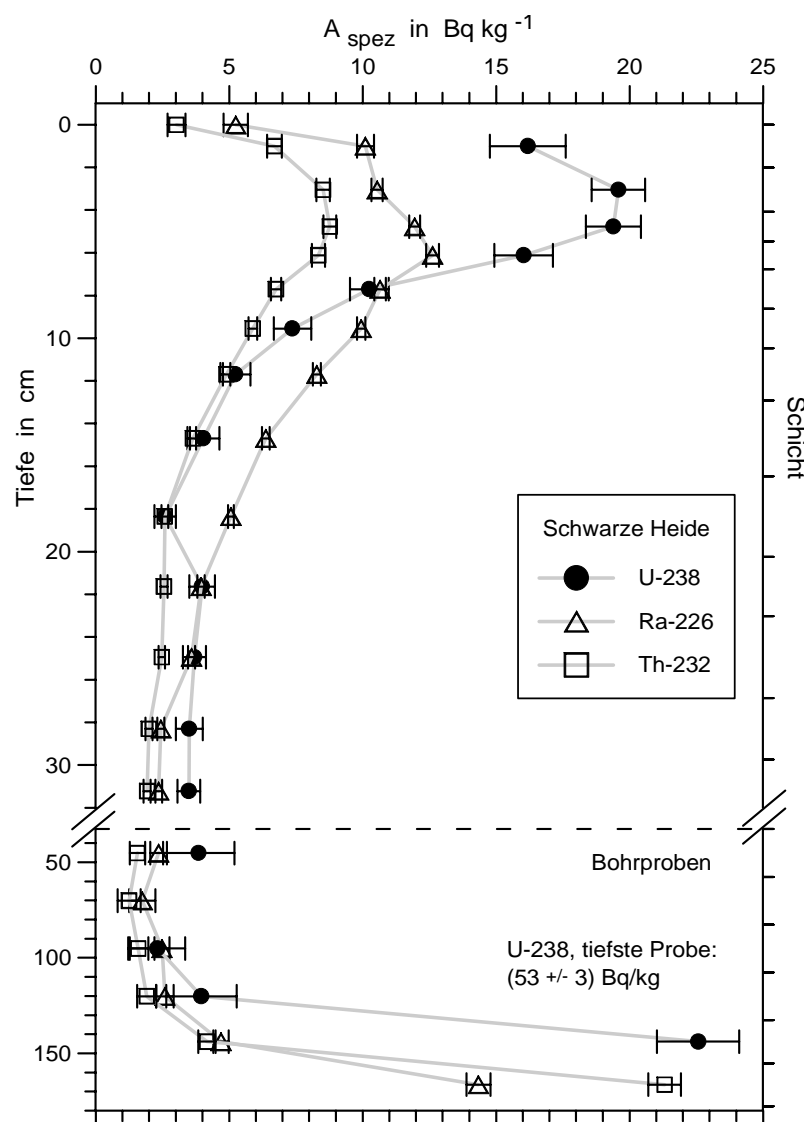


Abb. 52: Schwarze Heide. Tiefenprofile von  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Folgenukliden der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe im Vergleich zu RN der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe (Profilblock und Bohrproben)

Die spezifische  $^{238}\text{U}$ -Aktivität wurde über die Werte des  $^{234}\text{Th}$  und des  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  bestimmt,  $^{226}\text{Ra}$  über  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$ . Die  $^{232}\text{Th}$ -Werte wurden aus denen der  $^{228}\text{Ra}$ - und  $^{228}\text{Th}$ -Folger gemittelt.

Entsprechend Kap. 3.3.3 wurde das Bodenprofil vor Ort bis in eine Tiefe von 33 cm entnommen (13 Schichten; bodenkundliche Ansprache vgl. Anhang E.1.2). Das rezente Pflanzenmaterial wurde abgeschnitten bzw. aufgesen, zerkleinert und ebenfalls  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen. Diese Meßergebnisse sind in den Diagrammen bei Tiefe 0 cm aufgetragen. Von der Maximaltiefe des Profilblocks ausgehend wurden zwei parallele, lückenlos aufeinanderfolgende Bohrungen bis zum Liegenden des Moores, d. h. dem Verwitterungsmaterial des geologischen Untergrunds, vorgenommen (Endtiefe etwa 180 cm). Die Bohrkern von zweimal 50 cm und einmal 45 cm Länge wurden jeweils in der Mitte geteilt, so daß weitere sechs Proben, jeweils resultierend aus den Abschnitten beider Parallelbohrungen, vorlagen.

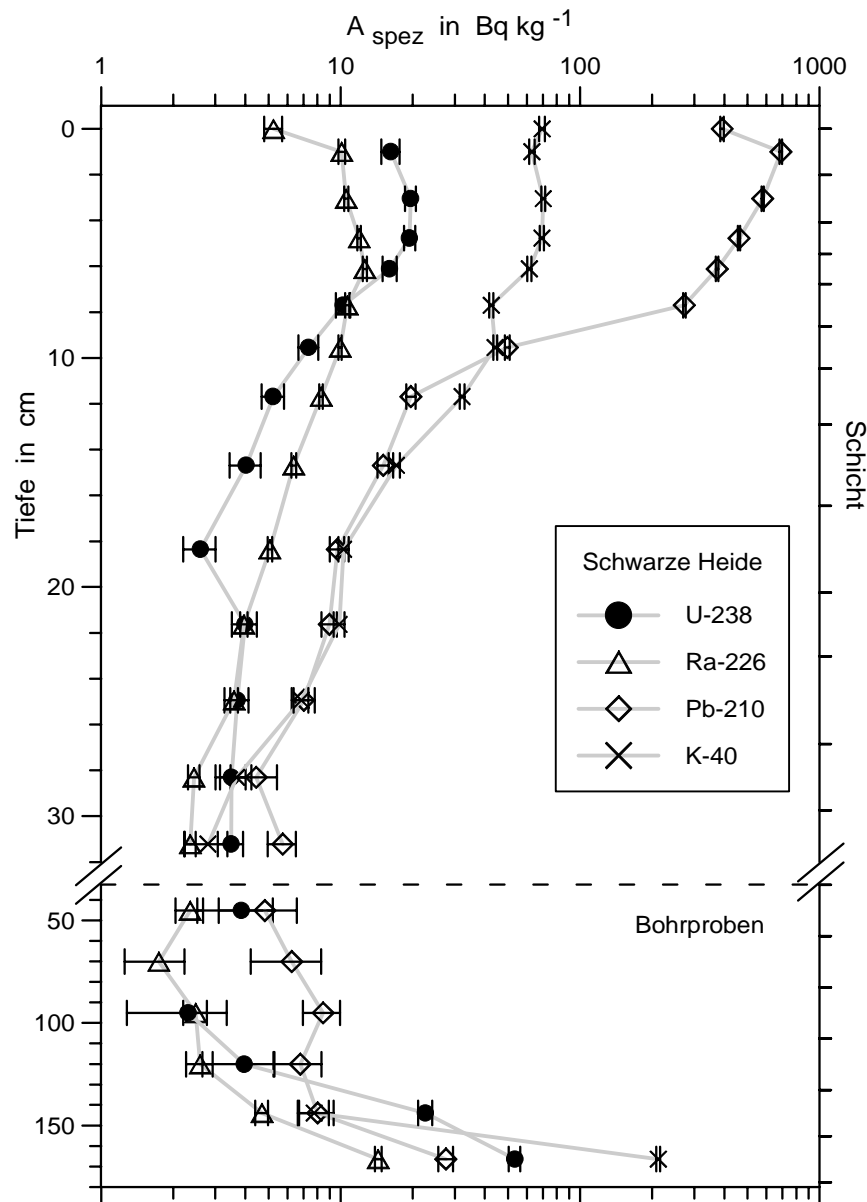


Abb. 53: Schwarze Heide. Logarithmische Darstellung der Tiefenverteilungen des  $^{210}\text{Pb}$  und des  $^{40}\text{K}$  (Profilblock und Bohrproben); zum Vergleich sind die spezifischen  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivitäten entsprechend Abb. 52 mit eingezeichnet

In Abb. 52 und Abb. 53 sind die Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen sowie des  $^{40}\text{K}$  dargestellt. In der Vegetation ist  $^{238}\text{U}$  nicht nachweisbar. In einer Tiefe von 2 ... 5.5 cm erreicht die  $^{238}\text{U}$ -Verteilung ein Maximum mit  $(19.5 \pm 1.0) \text{ Bq/kg}$ . Mit zunehmender Tiefe sinkt die spezifische  $^{238}\text{U}$ -Aktivität und liegt im Bereich 13 ... 130 cm unter 4  $\text{Bq/kg}$ . Unterhalb von 130 cm Tiefe steigen die  $^{238}\text{U}$ -Werte wieder an und erreichen einen Endwert von  $(53 \pm 3) \text{ Bq/kg}$  in der tiefsten



Bohrprobe, welche den oberen Bereich des liegenden Schluffs beinhaltet (vgl. Mooransprache, Anhang E.1.2). Die spezifischen  $^{214}\text{Pb}$ - und  $^{214}\text{Bi}$ -Aktivitäten ( $^{226}\text{Ra}$ ) sind in etwa 6 cm Tiefe mit  $(12.6 \pm 0.2)$  Bq/kg maximal und fallen darunter stetig ab. Im Bereich von 27 cm bis über 130 cm schwanken die Werte um knapp 2.5 Bq/kg und steigen zur Endtiefe hin auf  $(14.3 \pm 0.5)$  Bq/kg an. Das gesamte Profil ist von  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewichten geprägt. Während im oberen Profilbereich bis 7 cm ein  $^{238}\text{U}$ -Überschuß besteht, überwiegen darunter bis in 20 cm die spezifischen  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivitäten. Einen starken  $^{238}\text{U}$ -Überschuß weisen vor allem die beiden tiefsten Bohrproben auf. Der  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor beträgt etwa 1.7 im  $^{238}\text{U}$ -Maximum und 3.7 in der tiefsten Probe.

Die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten fallen von der Mooroberfläche ausgehend steil mit der Tiefe ab (Abb. 53). In der obersten Moorschicht ist  $^{210}\text{Pb}$  maximal mit  $(690 \pm 8)$  Bq/kg. Unterhalb von 25 cm Tiefe schwanken die Werte um etwa 6.5 Bq/kg und steigen erst in der tiefsten Bohrprobe wieder auf  $(27.5 \pm 2.0)$  Bq/kg. Über das gesamte Profil hinweg ist ein starkes Ungleichgewicht zwischen  $^{210}\text{Pb}$  und den vorangehenden RN der  $^{238}\text{U}$ -Reihe sichtbar, wobei stets  $^{210}\text{Pb}$  im Überschuß vorliegt. Der  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor in der obersten Moorschicht beträgt 68.

Der Verlauf des  $^{232}\text{Th}$  (Abb. 52) ähnelt dem der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger. Erhöhte spezifische Aktivitäten von  $(8.5 \pm 0.2)$  Bq/kg liegen im Tiefenbereich 2 ... 7 cm vor. Im Bereich von 27 cm bis über 130 cm schwanken die Werte um 1.7 Bq/kg und steigen zur Endtiefe hin auf  $(21.3 \pm 0.6)$  Bq/kg an.

In der Vegetation und den oberen 7 cm des beprobten Profils schwankt die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität um 67 Bq/kg (Vegetation  $(69 \pm 2)$  Bq/kg) (Abb. 53). Mit zunehmender Tiefe fällt der Wert kontinuierlich bis auf wenige Bq/kg ab. In den Bohrproben liegt  $^{40}\text{K}$  im Bereich der Nachweisgrenze und ist erst unterhalb von 130 cm wieder detektierbar. In der tiefsten Schicht steigt die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität abrupt auf  $(212 \pm 4)$  Bq/kg.

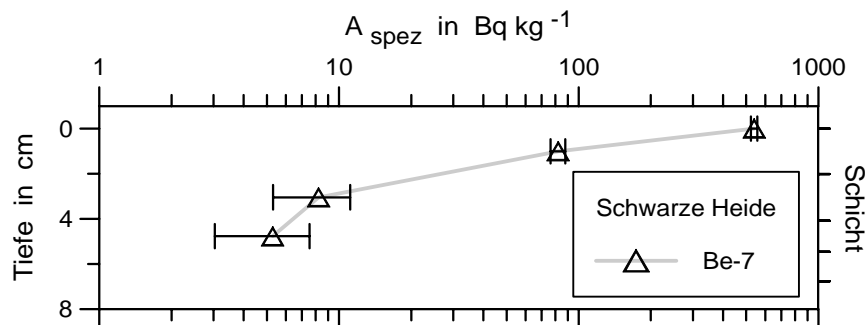
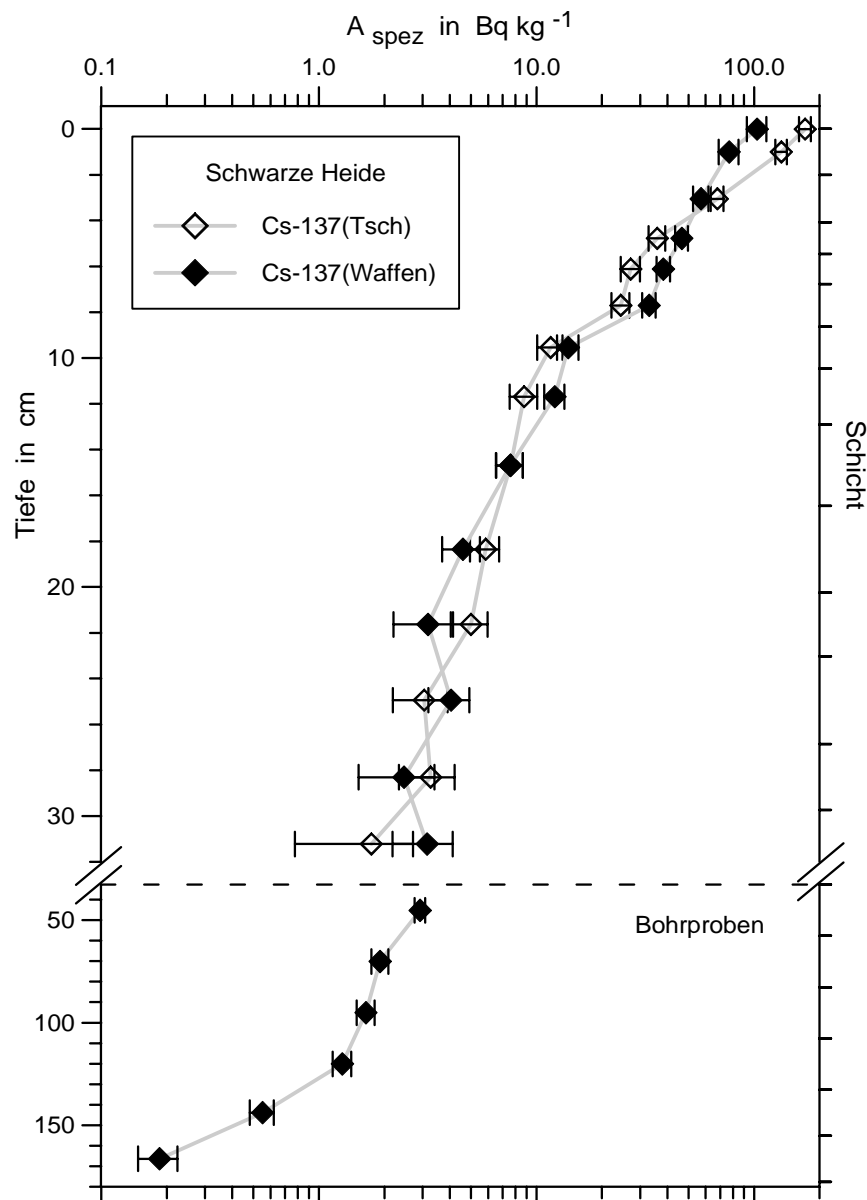
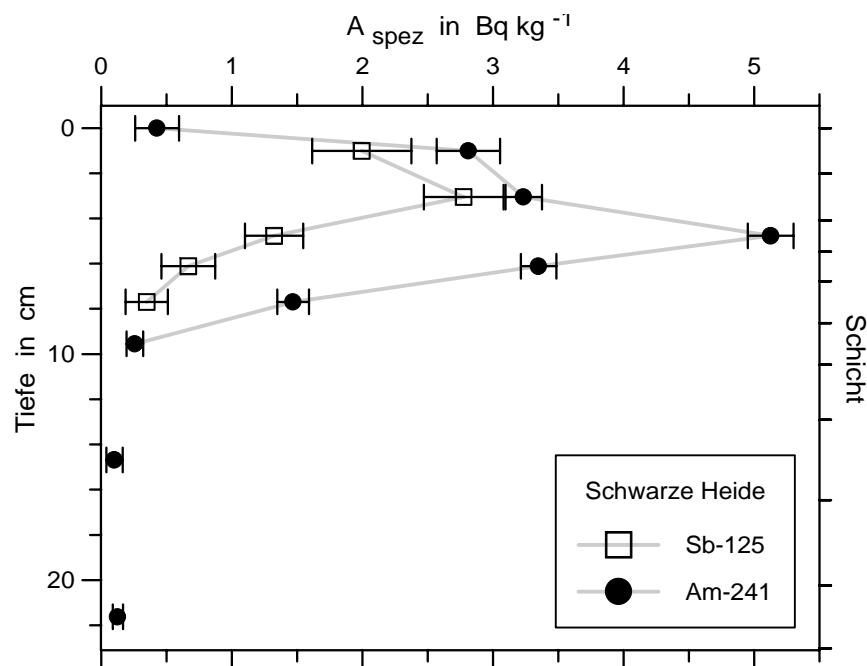


Abb. 54: Schwarze Heide. Tiefenverteilung des kosmogenen  $^{7}\text{Be}$  (zerfallskorrigiert auf das Probenahmedatum 30.8.1995; logarithmische Darstellung)

Das kosmogene  $^{7}\text{Be}$  ist bis in 5.5 cm Tiefe nachweisbar (Abb. 54). Die spezifische  $^{7}\text{Be}$ -Aktivität ist in der Vegetation mit  $(539 \pm 17)$  Bq/kg maximal. Im Moorboden ist der Wert deutlich geringer und sinkt steil ab.

Die  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Verteilungsmaxima liegen in aufeinanderfolgenden Torfschichten in etwa 3 cm bzw. 5 cm Tiefe und betragen  $(2.8 \pm 0.3)$  Bq/kg bzw.  $(5.1 \pm 0.2)$  Bq/kg (Abb. 55). Während  $^{125}\text{Sb}$  nur bis in eine Tiefe von 8.5 cm detektierbar ist, ist  $^{241}\text{Am}$  noch in vier tieferen Schichten bis 30 cm nachweisbar (ein Wert von etwa 0.1 Bq/kg in 28 cm Tiefe ist im Diagramm nicht dargestellt).

Die Tiefenverteilungen der beiden  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile sind in Abb. 56 dargestellt. Die Maxima liegen jeweils in der Vegetation mit Werten von  $(172 \pm 11)$  Bq/kg ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) bzw. von  $(103 \pm 11)$  Bq/kg ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ) ( $^{134}\text{Cs}$ :  $(4.9 \pm 0.2)$  Bq/kg). Mit zunehmender Tiefe sinken die spezifischen Aktivitäten ab. Bis in 4 cm Tiefe überwiegen die Werte des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ , darunter bis in 13 cm die des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ , im weiteren Verlauf überschneiden sich die Unsicherheiten der Meßwerte. In den Bohrproben ist  $^{134}\text{Cs}$ , und damit auch  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ , nicht mehr nachweisbar. Die Werte des  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ) sinken weiter stetig ab von knapp 3 Bq/kg auf bis zu  $(0.19 \pm 0.04)$  Bq/kg in der tiefsten Bohrprobe.



### Das Hochmoor im Westerzgebirge: Kleiner Kranichsee

Von den im Erzgebirge beprobten Hochmooren ist der Kleine Kranichsee am wenigsten von anthropogenen Eingriffen betroffen. Das Wasserscheiden- und Kammhochmoor weist einen vollständigen, rezent wachsenden Moorkern auf und wurde als Beispiel eines weitgehend intakten erzgebirgischen Hochmoors ausgewählt (Lage des Beprobungspunkts u. bodenkundliche Ansprache s. Abb. 57 u. Anhang E.1.3).

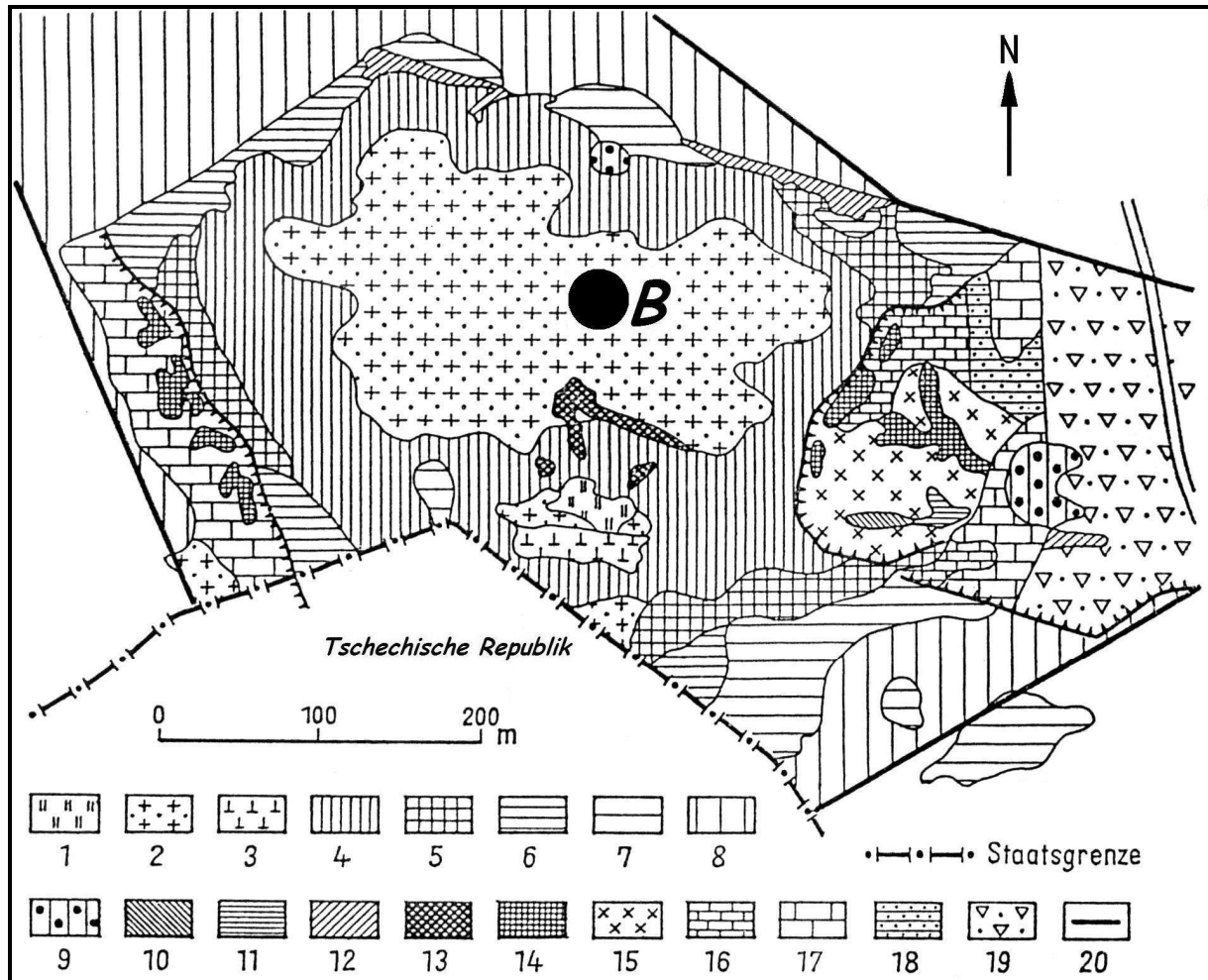


Abb. 57: Vegetationskarte des NSG Kleiner Kranichsee (nach Hempel u. Schiemenz 1986)

Der Beprobungspunkt (B) liegt etwa 70 m nördlich des Aussichtsturms im Bereich der Moorkiefer-Hochmoorgesellschaft (Böhnert et al. 1996). Nach Hempel u. Schiemenz (1986) bedeutet Signatur 2 das Optimalstadium von Torfmoos-Bultgesellschaften (*Sphagnetum medii sphagnetosum nemorei*) im Komplex mit Schlammseggen-Schlenkengesellschaften (*Caricetum limosae*).

Zum Zeitpunkt der Probennahme im Juli 1996 stand der mooreigene Wasserspiegel an dem flachen, bultähnlichen Standort bis dicht unter der Mooroberfläche. Da sich die schichtweise Beprobung großer Profile definierten Volumens im Gelände des Georgenfelder Hochmoors und der Schwarzen Heide als schwierig erwiesen hatte, wurde im Hochmoor Kleiner Kranichsee ein Torfblock gestochen und erst im Labor definiert in 15 Schichten zerlegt (Kap. 3.3.3). Wie die Ergebnisse zeigen, resultiert dies in einer besseren Auflösung der oberen Bodenbereiche (Schleich et al. 1998, 2000). Auf die Ergebnisse der Bohrungen, welche nicht bis auf den Moorgrund durchgeführt werden konnten, wird hier

nur im Einzelfall im Text eingegangen (vgl. Anhang E.1.3). Die Ergebnisse zusätzlicher Untersuchungen von Wollgras- und Torfmoosproben des Kleinen Kranichsees (Kap. 3.3.3) sind in Tabelle 23 dargestellt und gehen in die Diskussion (Kap. 7.2) ein.

Auf der beprobten Profilfläche wurden u. a. Rundblättriger Sonnentau (*Drosera rotundifolia*), Scheidiges Wollgras (*Eriophorum vaginatum*) und Gemeine Moosbeere (*Vaccinium oxycoccus*) bestimmt. Die Torfmoose konnten als *Sphagnum rubellum* und *Sphagnum fallax* angesprochen werden; zudem waren die Laubmoose *Aulacomnium palustre* und *Calliergon stramineum* vertreten (Ansprache der Moosproben unterstützt durch F. Müller, TU Dresden, pers. Mitt. 1997). Heidekraut (*Calluna vulgaris*) und andere Ericaceen wuchsen in der Umgebung des Probennahmepunkts.

Tabelle 23: Ergebnisse der  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen von Pflanzenproben des Kleinen Kranichsees (Beprobung 28.9.1997)

Pflanzenprobe	$^7\text{Be}$ <sup>1)</sup> Bq/kg	$^{134}\text{Cs}$ <sup>2)</sup> Bq/kg	$^{137}\text{Cs}$ <sup>2)</sup> Bq/kg	$^{40}\text{K}$ Bq/kg
Scheidiges Wollgras				
(1) Wurzeln	$(18 \pm 13)$ <sup>3)</sup>	$15.0 \pm 3.7$ <sup>3)</sup>	$2005 \pm 14$ <sup>3)</sup>	$859 \pm 43$ <sup>3)</sup>
(2) Wurzelstock bis Mooroberfläche, unterirdisch ohne Wurzeln	$6.4 \pm 3.9$	$2.1 \pm 0.6$	$260 \pm 2$	$162 \pm 8$
(3) oberirdische Abschnitte (Blätter)	$168 \pm 15$	$0.9 \pm 0.5$	$267 \pm 3$	$220 \pm 12$
Torfmoose	$752 \pm 34$	$13.0 \pm 1.9$	$995 \pm 8$	$102 \pm 12$

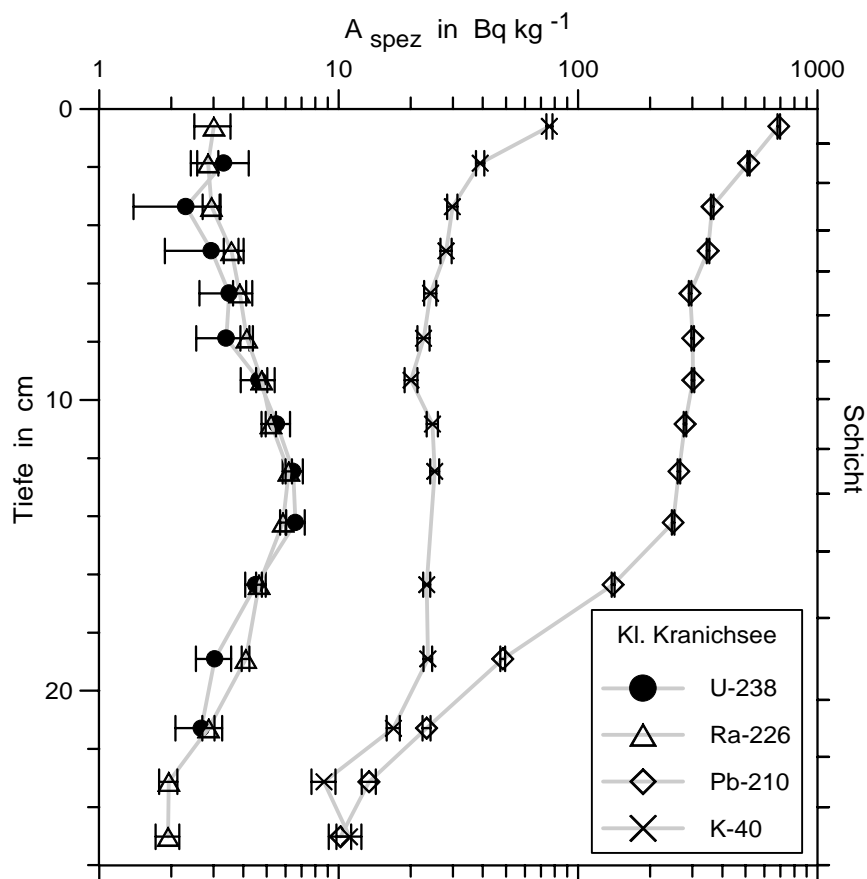
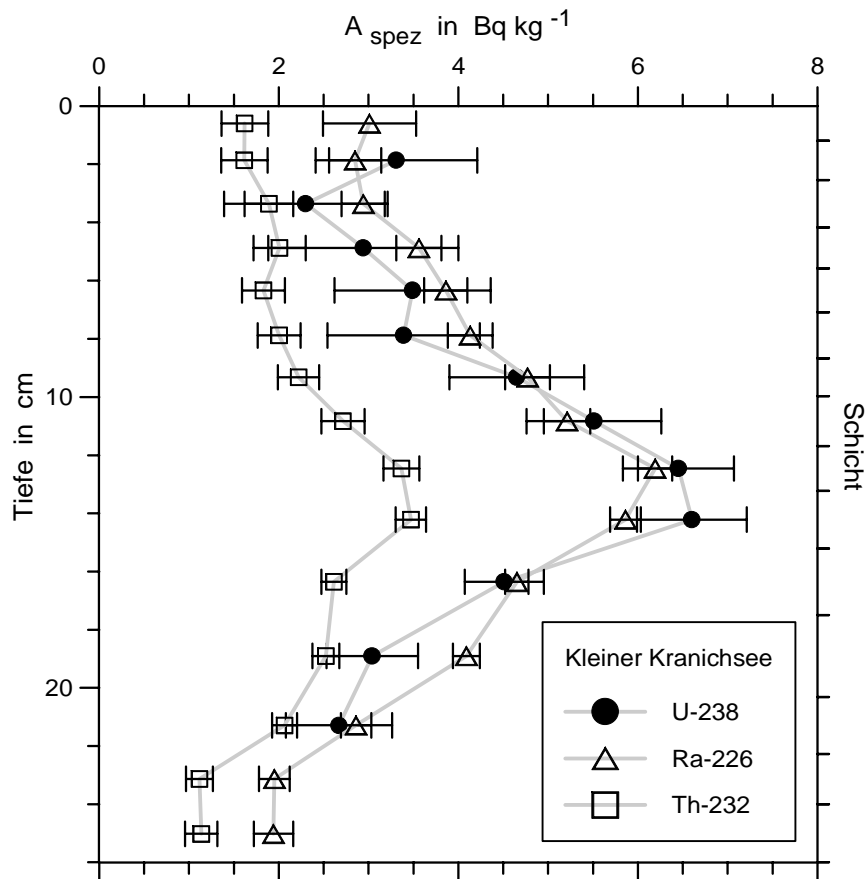
<sup>1)</sup> zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 28.9.1997

<sup>2)</sup> zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum des Gesamtprofils (11.7.1996), um einen direkten Vergleich zu ermöglichen

<sup>3)</sup> Aufgrund der geringen Füllhöhe bei der Messung der Wurzelprobe muß von etwa 30 ... 45 % kleineren spezifischen Aktivitäten ausgegangen werden (Kap. 3.3.3).

In Abb. 58 und Abb. 59 sind die Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen sowie des  $^{40}\text{K}$  dargestellt. Die Verteilung des  $^{238}\text{U}$  erreicht in einer Tiefe um 13 cm ein Maximum mit  $(6.5 \pm 0.6)$  Bq/kg. In der obersten Beprobungsschicht und den beiden untersten Schichten ist  $^{238}\text{U}$  nicht nachweisbar. Die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger weisen einen vergleichbaren Verlauf auf. Im Bereich 0 ... 4 cm liegen die spezifischen Aktivitäten bei knapp 3 Bq/kg. Das Maximum (12 ... 15 cm) beträgt gemittelt  $(6.0 \pm 0.2)$  Bq/kg.  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewichte in Form eines geringen  $^{226}\text{Ra}$ -Überschusses deuten sich nur in zwei Schichten oberhalb und unterhalb des Peaks an. Über den gesamten Profilblock hinweg liegt ein starkes Ungleichgewicht zwischen  $^{210}\text{Pb}$  und den vorangehenden RN der  $^{238}\text{U}$ -Reihe vor (Abb. 59). In der obersten Schicht ist  $^{210}\text{Pb}$  maximal mit  $(688 \pm 8)$  Bq/kg, der  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor beträgt hier 228. Im Bereich 0 ... 4 cm fällt die  $^{210}\text{Pb}$ -Verteilung steil, darunter bis 15 cm wesentlich flacher ab.

Die Folgenuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe liegen im Gleichgewicht vor, die gemittelten Werte sind in Abb. 58 dargestellt. Einzige Ausnahme stellt die oberste Schicht mit einem  $^{228}\text{Ac}$ -Überschuß dar (Faktor 1.9). In den rezenten und schwach humifizierten Moorschichten bis 9 cm Tiefe schwanken die spezifischen Aktivitäten um einen Wert von 1.8 Bq/kg. Den Verteilungen der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Folger vergleichbar, weisen auch die Folgenuklide des  $^{232}\text{Th}$  erhöhte spezifische Aktivitäten in 12 ... 15 cm Tiefe auf. Das Maximum beträgt  $(3.4 \pm 0.2)$  Bq/kg.



$^{40}\text{K}$  ist in der obersten Schicht, der rezenten Torfmoos- und Vegetationsschicht, mit  $(76 \pm 2) \text{ Bq/kg}$  maximal. Nach einem erst steileren, dann flacheren Abfall ist die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität im Bereich 10 ... 20 cm relativ konstant, um  $24 \text{ Bq/kg}$ , sinkt darunter jedoch weiter ab.

Die spezifische  $^7\text{Be}$ -Aktivität ist in der obersten Beprobungsschicht maximal mit  $(680 \pm 5) \text{ Bq/kg}$  (Abb. 60). In den darunterliegenden Schichten fallen die  $^7\text{Be}$ -Werte steil ab. Das kosmogene RN ist bis in eine Tiefe von 10 cm nachweisbar.

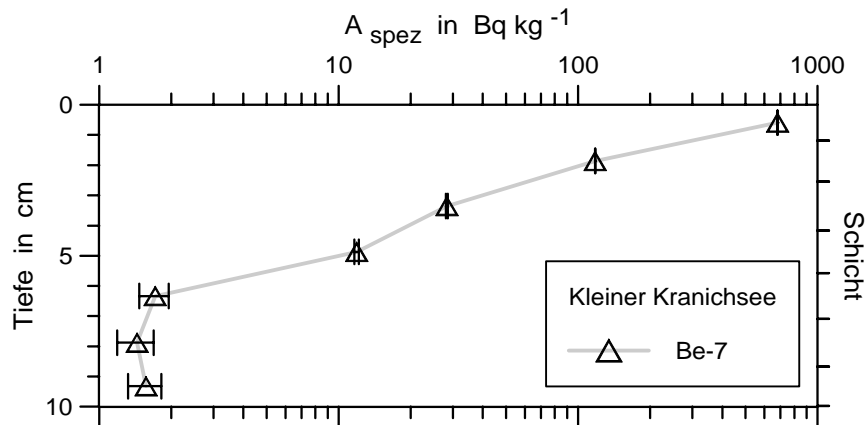


Abb. 60: Kleiner Kranichsee. Tiefenverteilung des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (zerfalls-korrigiert auf das Probenahmedatum 11.7.1996; logarithmische Darstellung; nach Schleich et al. 1997)

Abb. 61 zeigt die gemessenen Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $\gamma$ -spektrometrisch bestimmt) sowie  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  (radiochemische Aufbereitung und  $\alpha$ -Spektrometrie, Kap. 3.2.1). Die Pu-Analysen wurden nur an den Schichten durchgeführt, in denen  $^{241}\text{Am}$  gut nachweisbar ist. Die Maxima der Verteilungen des  $^{241}\text{Am}$  und der Pu-Isotope liegen in demselben Tiefenbereich 10 ... 13 cm, während das Maximum des  $^{125}\text{Sb}$ -Profils deutlich darüber im Abschnitt 2.5 ... 5.5 cm zu finden ist. Im unteren Bereich des  $^{125}\text{Sb}$ -Maximums ist zudem eine signifikante Erhöhung des  $^{239,240}\text{Pu}$ -Werts zu registrieren. Da an dem Material der darüberliegenden Schichten keine Pu-Analysen durchgeführt wurden, ist über den Verlauf der Verteilung zur Mooroberfläche hin keine Aussage möglich. Die maximalen spezifischen Aktivitäten betragen gemittelt  $(4.2 \pm 0.4) \text{ Bq/kg}$  ( $^{125}\text{Sb}$ ) und  $(4.2 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$  ( $^{241}\text{Am}$ ) bzw.  $(0.29 \pm 0.04) \text{ Bq/kg}$  ( $^{238}\text{Pu}$ ) und  $(9.9 \pm 0.1) \text{ Bq/kg}$  ( $^{239,240}\text{Pu}$ ). Während  $^{125}\text{Sb}$  schon in der obersten Schicht bis in 13 cm Tiefe detektierbar ist, kann  $^{241}\text{Am}$  erst ab 4 cm bis in 22 cm Tiefe nachgewiesen werden. Im Spektrum der Probe aus 19 cm Tiefe ist  $^{241}\text{Am}$  nicht eindeutig erkennbar.

Die Tiefenverteilungen der beiden  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile sind in Abb. 62 dargestellt. Die Maxima liegen jeweils in der obersten Schicht mit spezifischen Aktivitäten von  $(388 \pm 22) \text{ Bq/kg}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) ( $^{134}\text{Cs}$ :  $(8.4 \pm 0.2) \text{ Bq/kg}$ ) und  $(196 \pm 22) \text{ Bq/kg}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ). Mit zunehmender Tiefe sinken die Werte erst steiler, dann flacher ab.  $^{134}\text{Cs}$ , und damit auch  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ , ist bis in 20 cm nachweisbar. Bis in 10 cm Tiefe sind die spezifischen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Aktivitäten größer als die des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ , darunter ist es umgekehrt. In den Bohrproben (o. Abb.) ist  $^{137}\text{Cs}$  noch in einer Tiefe von etwa 4.5 m nachweisbar (Schleich et al. 2000). Inwieweit auch  $^{134}\text{Cs}$  über den hier dargestellten Tiefenbereich hinaus detektierbar ist, kann trotz mehrtägiger Meßzeiten der Bohrproben nicht angegeben werden – das Cs-Isotop liegt in den kleinen Probenmengen niedriger Dichte nur in sehr geringen Konzentrationen vor, zudem umfassen die Bohrabschnitte jeweils 25 cm.

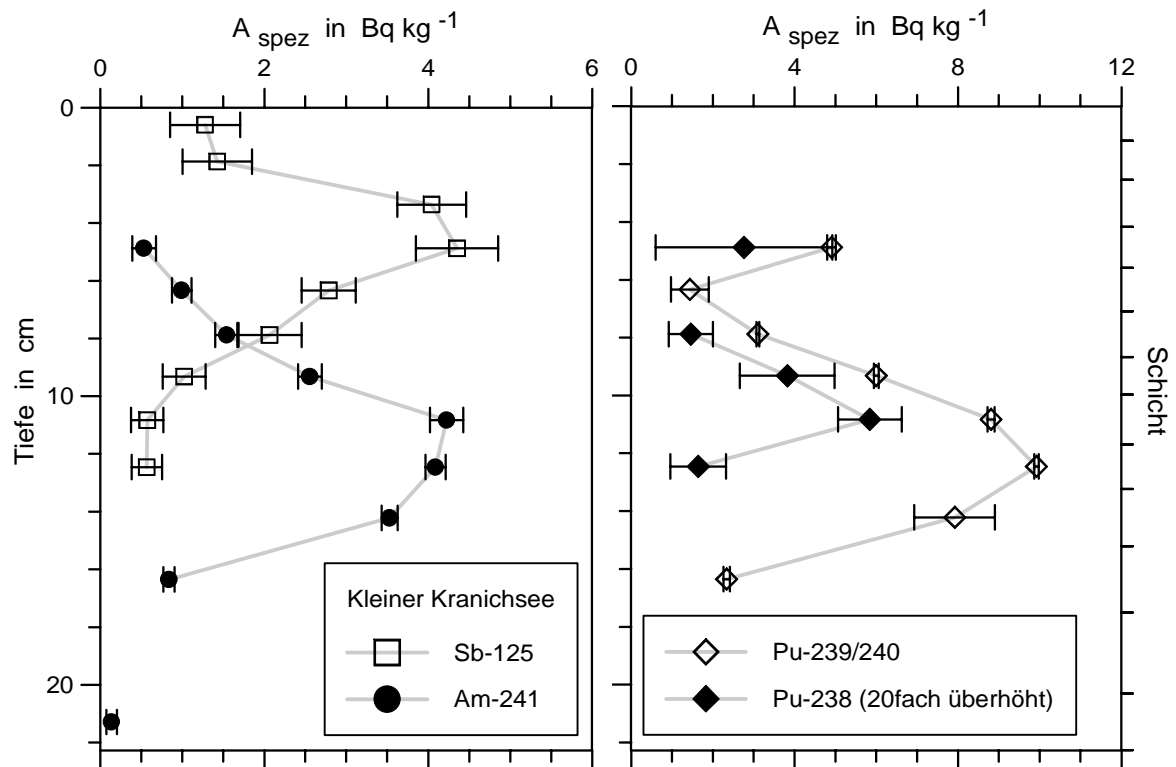


Abb. 61: Kleiner Kranichsee. Tiefenprofile der RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  sowie  $^{238}\text{Pu}$  (20fach überhöht) und  $^{239,240}\text{Pu}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 11.7.1996; nach Schleich et al. 2000)

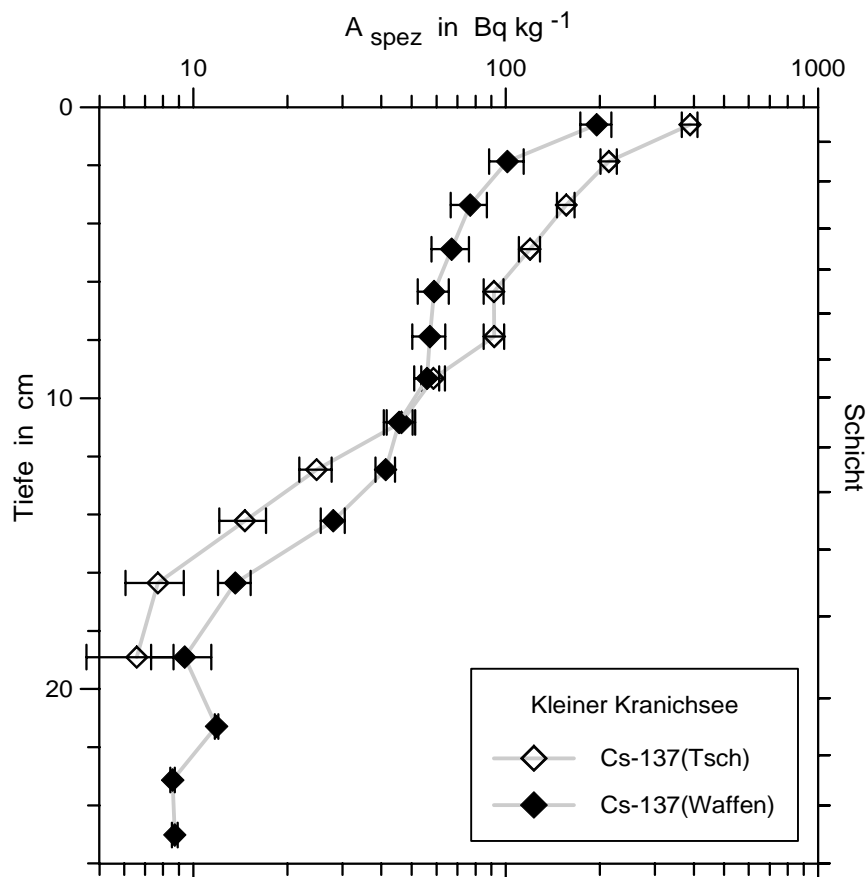


Abb. 62: Kleiner Kranichsee. Tiefenverteilungen des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  (zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 11.7.1996; logarithmische Darstellung; nach Schleich et al. 2000)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten.

### 7.1.2 Der Vergleichsstandort im Hochharz: Radauer Born

Als Vergleichsstandort zu den erzgebirgischen Hochmooren wurde ein vergleichsweise anthropogen unbeeinflusstes Hochmoor des Nationalparks Harz (Niedersachsen), das Radauer Born, beprobt (Henrion 1982; Jensen 1987, 1990). In dem von der Nationalparkverwaltung Harz genehmigten Beprobungsumfang konnte nur eine ungestörte Probe in Form eines Würfels von etwa 20 cm Kantenlänge von der Oberfläche aus entnommen und im Labor zerlegt werden (Lage des Beprobungspunkts u. bodenkundliche Ansprache s. Abb. 63 u. Anhang E.1.4). Das Gesamtprofil wurde mit einer Feldsonde bis in über 6 m Tiefe erbohrt (vgl. Kap. 3.3.3). Die Ansprache wurde unter Anleitung von L. Feldmann (TU Clausthal) *in-situ* (Bohrproben) bzw. im Labor (Profilblock) vorgenommen. Die zersetzungsfrei bzw. unter dem Einfluß von Zersetzung gebildeten Bereiche sind in der Ansprachetabelle (Anhang E.1.4) durch eine gestrichelte Linie getrennt; es handelt sich hier dementsprechend um ein Hochmoor (0 ... 583 cm) auf einem Moorgley (591 ... 614 (+) cm) (L. Feldmann, TU Clausthal, pers. Mitt. 1995).

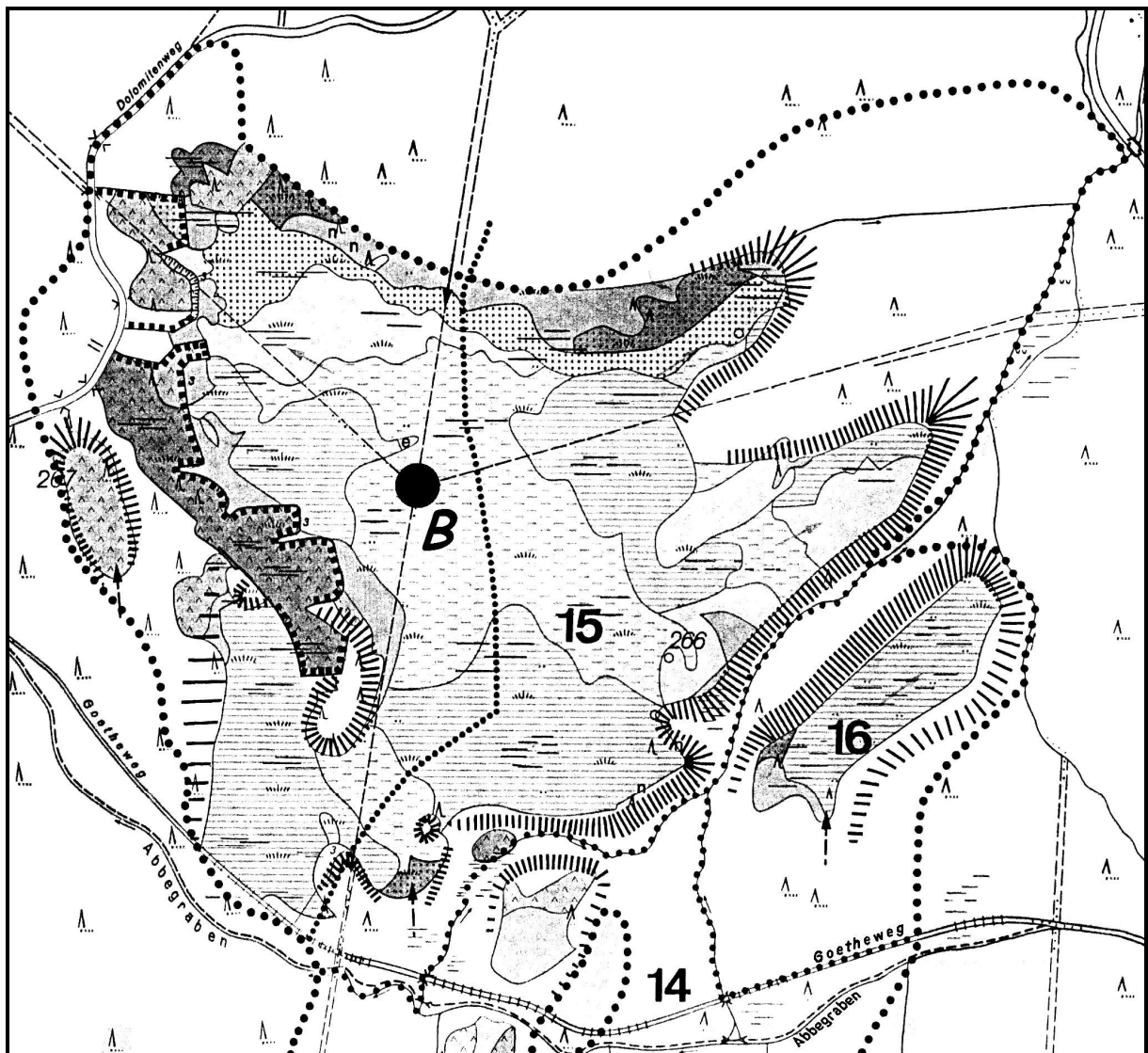


Abb. 63: Vegetationskarte der Mooregebiete nordöstlich des Magdbetts (835 m ü. NN, Hochharz) mit dem Radauer Born (15), dem Kleinen Torfhausmoor (16) und dem nördlichen Ende des Magdbettmoors (14) (verkleinerter Ausschnitt der Karte 1:5000, verändert nach Jensen 1990).

Der Beprobungspunkt (B) liegt etwa 1.5 m südlich des Gemarkungssteins auf 801 m ü. NN. Die Probennahmestelle liegt im Bereich der Hochmoorvegetation mit wachsenden und nichtwachsenden Anteilen („Regenerationskomplex“) (Jensen 1990).



In der Torfmoosdecke der Beprobungsstelle wuchsen u. a. Rundblättriger Sonnentau, Gemeine Moosbeere, Rosmarinheide und Scheidiges Wollgras, im Umkreis zudem Heidekraut, Rasige Haarsimse (*Trichophorum cespitosum*) und Schwarze Krähenbeere. Die oberste Probe des Profilblocks enthält neben den lebenden, grünen Teilen der Torfmoose (z. B. *Sphagnum rubellum*) auch die zerkleinerten Pflanzenteile der oben aufgeführten Vegetation und repräsentiert somit die rezent wachsende Torfmoos- und Vegetationsschicht.

Die Probenmengen der Profilschichten sind bei der hier beprobten Fläche von nur etwa  $20 \times 20 \text{ cm}^2$  sehr klein. Zudem setzen sie sich hauptsächlich aus rezenten Torfmoosen bzw. schwach bis mittel humifiziertem *Sphagnum*-Torf zusammen, welcher eine sehr geringe Trockendichte aufweist. Somit lagen zur Messung nur kleine Probenmassen vor, was die Detektion v. a. der sehr niedrigen spezifischen Aktivitäten von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ -Folgern und  $^{232}\text{Th}$  erschwert.

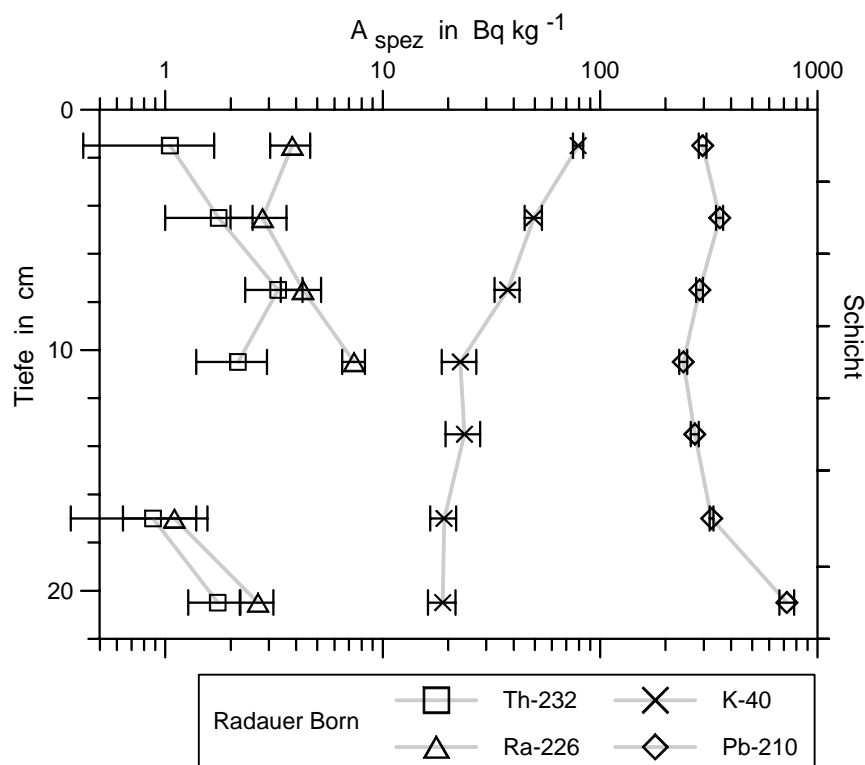


Abb. 64: Radauer Born. Logarithmische Darstellung der Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen und des  $^{40}\text{K}$

Die spezifischen Aktivitäten des  $^{226}\text{Ra}$  wurden über die  $^{214}\text{Pb}$ - und  $^{214}\text{Bi}$ -Werte bestimmt, die  $^{232}\text{Th}$ -Werte wurden aus denen der  $^{228}\text{Ra}$ - und  $^{228}\text{Th}$ -Folger gemittelt.

Abb. 64 zeigt die Tiefenverteilungen von RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen und des  $^{40}\text{K}$  in logarithmischer Darstellung. Die spezifischen Aktivitäten der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  sind in etwa 10 cm Tiefe auf  $(7.4 \pm 0.9) \text{ Bq/kg}$  erhöht. In dieser Beprobungsschicht und der darüberliegenden ist auch  $^{238}\text{U}$  erkennbar, jedoch nicht auszuwerten. Die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten weisen in 3 ... 6 cm ein lokales Maximum von  $(354 \pm 14) \text{ Bq/kg}$  auf. In der untersten Probe des Profilblocks steigt der Wert auf über  $700 \text{ Bq/kg}$  an (Messung auf P36 verwendet:  $(723 \pm 56) \text{ Bq/kg}$ ). Der  $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Überschußfaktor beträgt hier 271.

Von den Folgenukliden der  $^{232}\text{Th}$ -Reihe sind z. T. nur Töchter des  $^{228}\text{Th}$  detektierbar ( $^{212}\text{Pb}$  und  $^{208}\text{Tl}$ ). In den Schichten, in denen auch  $^{228}\text{Ac}$  nachweisbar ist, liegt Gleichgewicht vor. Die  $^{232}\text{Th}$ -Tiefenverteilung weist kein signifikantes Maximum auf, die spezifischen Aktivitäten betragen unter  $3.5 \text{ Bq/kg}$ . Im Bereich 12 ... 15 cm sind weder  $^{238}\text{U}$  und  $^{226}\text{Ra}$ , noch  $^{232}\text{Th}$ -Folger nachweisbar.

Die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität ist in der obersten Schicht maximal mit  $(79 \pm 4) \text{ Bq/kg}$ . Unterhalb einer Tiefe von 9 cm schwankt der Wert um  $21 \text{ Bq/kg}$ .

Das kosmogene RN  $^7\text{Be}$  ist bis in 12 cm Tiefe nachweisbar (Abb. 65). Die spezifische  $^7\text{Be}$ -Aktivität ist in der rezent wachsenden Torfmoos- und Vegetationsschicht mit  $(501 \pm 26) \text{ Bq/kg}$  maximal und sinkt mit zunehmender Tiefe annähernd exponentiell ab, wie der im Diagramm eingezeichnete Fit verdeutlicht.

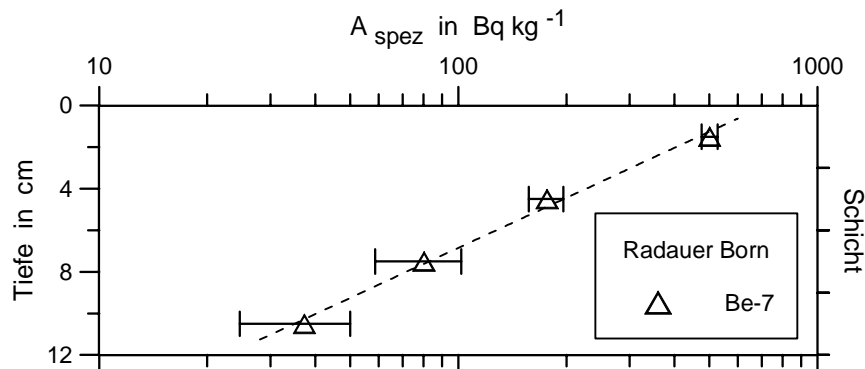


Abb. 65: Radauer Born. Tiefenverteilung des kosmogenen  $^7\text{Be}$  (zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 3.11.1995; logarithmische Darstellung)

Die Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  sind in Abb. 66 dargestellt.  $^{125}\text{Sb}$  ist unterhalb von 12 cm in drei Schichten mit spezifischen Aktivitäten von bis zu über 7  $\text{Bq/kg}$  detektierbar. Über die maximale spezifische  $^{125}\text{Sb}$ -Aktivität kann keine Aussage gemacht werden, da offensichtlich nicht die gesamte  $^{125}\text{Sb}$ -Verteilung erfaßt ist.  $^{241}\text{Am}$  ist nur in der tiefsten Schicht, d. h. ab 19 cm Tiefe, mit einem Wert von  $(1.9 \pm 0.4) \text{ Bq/kg}$  nachweisbar.

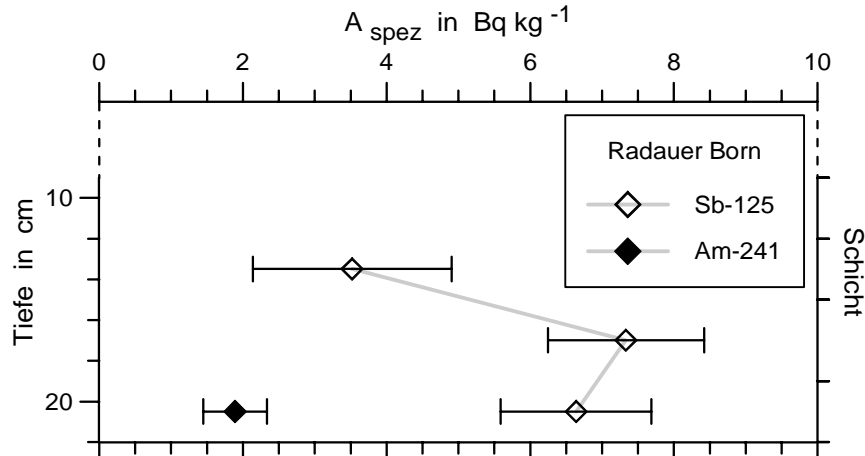


Abb. 66: Radauer Born. Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  ( $^{125}\text{Sb}$ : zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum 3.11.1995)

Abb. 67 zeigt die Tiefenverteilungen der beiden  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile (lineare Darstellung). Das Maximum des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  liegt mit  $(1131 \pm 62) \text{ Bq/kg}$  in der obersten Beprobungsschicht ( $^{134}\text{Cs}$ :  $(30 \pm 1) \text{ Bq/kg}$ ). Die Werte fallen bis auf unter  $350 \text{ Bq/kg}$  ab, steigen jedoch in den zwei tiefsten Schichten wieder an.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  dagegen weist durchgehend Werte kleiner  $100 \text{ Bq/kg}$  auf. Entsprechend der Auftrennung der beiden  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile über den Tschernobyl-Faktor nach Kap. 3.1.4 gehen in die Unsicherheit des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  die statistische Meßunsicherheit des  $^{134}\text{Cs}$  und die Unsicherheit des Faktors ein, in die Unsicherheit des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  die zuvor errechnete Unsicherheit des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und die statistische Meßunsicherheit des  $^{137}\text{Cs}$ . Im Fall des hier gezeigten Moorprofils liegen die spezifischen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Aktivitäten nur geringfügig unter den gemessenen  $^{137}\text{Cs}$ -Werten, so daß für drei Schichten die errechneten Unsi-

cherheiten des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  größer als der Wert sind. Die Wiederholung der Messungen auf dem Meßplatz N38 (mit kürzeren Meßzeiten) unterstützen diese Ergebnisse, allerdings ergibt sich für die zweite und dritte Schicht ein umgekehrtes Bild. Bis in eine Tiefe von 12 cm ist der Nachweis des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  somit nicht gesichert. Wie die hier nicht dargestellten Meßergebnisse der Bohrproben zeigen, ist  $^{137}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  auch über den dargestellten Tiefenbereich hinaus bis in etwa 6.0 m detektierbar (Schleich et al. 2000). Vergleichbar den Erklärungen zum Kleinen Kranichsee ist die  $^{134}\text{Cs}$ -Verteilung auch anhand des Bohrprofils kaum zu rekonstruieren – hier ist  $^{134}\text{Cs}$  nur in der obersten Bohrprobe (0 ... 20 cm) nachweisbar.

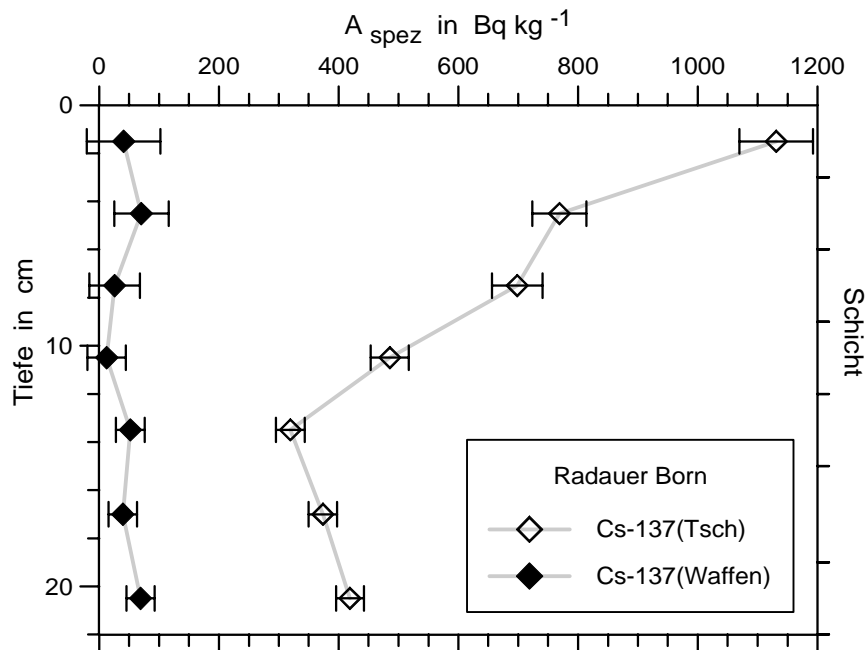


Abb. 67: Radauer Born. Tiefenprofile des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  (zerfallskorrigiert auf das Probenahmedatum 3.11.1995)

Die Auftrennung der Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests erfolgte über  $f_{\text{Tsch}}$  und die  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten.

## 7.2 Einflußgrößen der Tiefenverteilungen von Radionukliden in Hochmoorböden

Die Tiefenverteilungen der einzelnen RN stimmen in den untersuchten Hochmoorböden in Grundtendenzen überein. Auf den physikalisch-chemischen Eigenschaften sowohl der Nuklide als auch der verorteten Substanz basierend, ergeben sich unterschiedliche Wechselwirkungen, welche zur Bindung oder Mobilisierung der Nuklide führen (vgl. Göttlich 1990; Reimann u. Caritat 1998). In den vertikalen Verteilungen spiegeln sich zudem die jeweiligen Standortbedingungen wider. Wie aus Tabelle 14 zu ersehen ist, unterscheiden sich die vier Hochmoore in ihrem Typus und damit z. B. auch in den Nährstoffverhältnissen, den hydrologischen Gegebenheiten (mooreigener Wasserspiegel und Fluktuationen des Oberflächenwassers), der Zusammensetzung der rezenten Vegetation (Torfmoose und Gefäßpflanzen) und des daraus gebildeten Torfes sowie dem Humifizierungsgrad. Diese Faktoren können über die Fläche eines Moorkomplexes hinweg stark variieren, z. B. zwischen den Moorstrukturen Bult und Schlenke, und dadurch die vertikale Verteilung von Elementen im Boden deutlich beeinflussen (z. B. Damman 1978; Dalitz u. Jensen 1994).

Auch anthropogene Eingriffe und ihre oft deutlich sichtbaren Auswirkungen auf den Boden und die Vegetation der Hochmoore wirken sich auf die vertikale Verteilung der Elemente aus. Wird der Wasserhaushalt durch Entwässerungsmaßnahmen verändert, wie es v. a. im Georgenfelder Hochmoor und der Schwarze Heide in der Vergangenheit geschah, so verursacht der zeitweilig niedrigere Wasserspiegel aerobe Umsetzungsprozesse des organischen Materials in den oberflächennahen Schichten. Der mikrobielle Abbau der organischen Substanz (Mineralisierung) führt zum Schwund des Moores (Torfverzehr) und zur neuerlichen, d. h. sekundären Bodenbildung. In Abhängigkeit von der Intensität

der Entwässerung können Bodenhorizonte entstehen, wie der Vererdungshorizont im Profil des Georgenfelder Hochmoors. Die Mooroberfläche senkt sich und v. a. die obersten Torflagen sacken zusammen und verdichten (Moorsackung bzw. Moorsetzung) (Succow u. Jeschke 1986; Göttlich 1990; Roeschmann et al. 1993; Zeitz 1997).

Vergleicht man die Lagerungsdichten (bzgl. Trockenmasse, in  $\text{g/cm}^3$ ) der obersten Bodenschichten in den untersuchten Hochmooren, so zeigt sich dieser Effekt in den deutlich höheren Werten im Bereich 0 ... 15 cm der Schwarzen Heide und des Georgenfelder Hochmoors (Abb. 68; für tieferliegende Proben, v. a. der Bohrungen, konnten keine Dichten bestimmt werden). In der Schwarzen Heide ist die Dichte, von einem höheren Wert in etwa 12 cm Tiefe abgesehen, relativ konstant. Die Unterschiede an den beiden anthropogen überprägten Moorstandorten können sowohl mit der tiefergreifenden Entwässerung der Schwarzen Heide als auch dem im Vergleich trockeneren Standort des (inzwischen als „tot“ zu bezeichnenden) Quellmuldenhochmoors begründet werden.

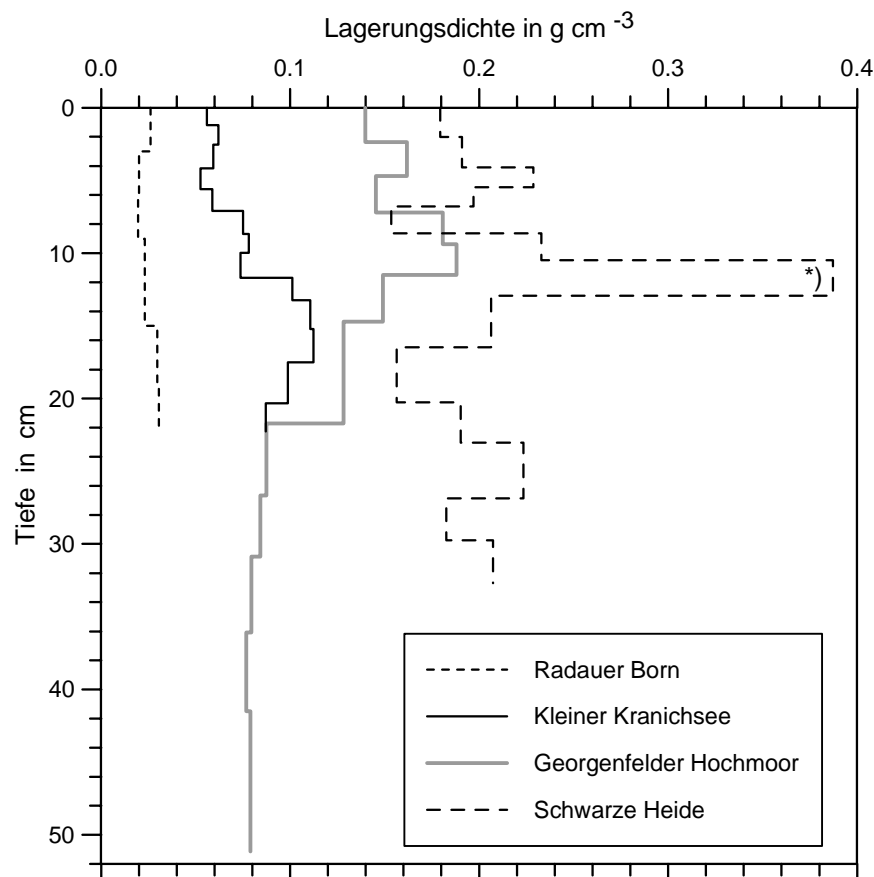


Abb. 68: Vergleich der Lagerungsdichten der Böden in den untersuchten Hochmooren (nur Profilblöcke)

Die Dichten sind aus der Trockenmasse und dem Volumen der einzelnen Beprobungsschichten errechnet und über den Tiefenabschnitt der jeweiligen Schicht aufgetragen.

\*) Aufgrund einer Störung durch einen eingebetteten Ast war die Beprobung in etwa 12 cm Tiefe erschwert und die Profilfläche mußte geteilt werden. Die Bestimmung einer zu kleinen Grundfläche nach Teilung des Profils wäre möglich, woraus eine etwas niedrigere Dichte als die hier aufgetragene resultierte; diese läge dennoch deutlich über den anderen Werten.

Im Georgenfelder Hochmoor nähern sich die Werte unterhalb des Vererdungshorizonts (Grenze in etwa 18 cm Tiefe) denen des Kleinen Kranichsees an. In beiden Mooren konnten in dieser Tiefe schwach bis mittel humifizierte Torfe angesprochen werden; hier passen die Lagerungsdichten gut zu den Literaturwerten für Weißtorf von etwa  $0.09 \text{ g/cm}^3$  (Schachtschabel et al. 1992). Auch die Dichten eines süddeutschen Hochmoorprofils bewegen sich bis 40 cm Tiefe im Bereich von  $0.06 \dots 0.13 \text{ g/cm}^3$  (Schick 1995).

Die Lagerungsdichten der rezenten bzw. schwach humifizierten Torfmoossschichten des intakten, nur in Randgebieten durch Torfstiche beeinflussten Radauer Borns liegen weit unter allen anderen Werten bei  $0.02 \dots 0.03 \text{ g/cm}^3$ . Vergleichbare Werte bestimmte Lütt (1992) an den rezenten, torfmoosdominierten Torfbildungen dreier Hochmoorreste Schleswig-Holsteins.

Weitere Literaturangaben aus Schachtschabel et al. (1992) sind Lagerungsdichten für Schwarزتorf von etwa  $0.12 \text{ g/cm}^3$ ; die Werte von Niedermooren liegen bei  $0.2 \dots 0.4 \text{ g/cm}^3$  und die von Mineralböden betragen meist  $>1.2 \text{ g/cm}^3$ . Im Vergleich dazu errechnen sich für die Horizonte der hier untersuchten Fichtenwaldböden (Kap. 6) Lagerungsdichten im Bereich von ca.  $0.04 \dots 0.12 \text{ g/cm}^3$  (L-Horizonte),  $0.09 \dots 0.21 \text{ g/cm}^3$  (Of),  $0.11 \dots 0.28 \text{ g/cm}^3$  (Oh),  $0.24 \dots 0.63 \text{ g/cm}^3$  (Ah) und  $> 0.39 \text{ g/cm}^3$  (B) bestimmt werden.

Eine weitere wesentliche Einflußgröße für die RN-Tiefenverteilung ist die Bodenacidität. Wie in der Diskussion der Fichtenwaldbodenprofile dargelegt, beeinflußt der pH-Wert z. B. die Bildung und Mobilisierung metallorganischer Komplexe (Kap. 6.2). Um Aussagen zu derartigen Prozessen in den Hochmoorböden zu ermöglichen, wurden im Georgenfelder Hochmoor und dem Kleinen Kranichsee die  $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ -Werte (entsprechend Kap. 3.3.6) für die Schichten der Profilblöcke, d. h. bis etwa 50 cm bzw. 26 cm, bestimmt (Anhang E.1.1 u. E.1.3; Tabelle 24).

Tabelle 24: Vergleich der pH-Werte in Boden-, Moorwasser- und Regenwasserproben an den Moorstandorten

Standort	Probe	Datum	pH <sup>1)</sup>
Georgenfelder Hochmoor	Profilblock, Schichten bis ca. 50 cm Tiefe, $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$	25.10.94	2.2 ... 2.4
	Moorwasser, im Profilaushub nach Entnahme der tiefsten Schicht (bis ca. 50 cm Tiefe) gesammelt	25.10.94	2.9 ... 3.1
	(Oberflächen)Moorwasser, aus geflutetem Torfstich geschöpft	25.10.94	ca. 3.0
	(Oberflächen)Moorwasser, aus geflutetem Torfstich geschöpft <sup>2)</sup>	15.3.95	3.8
Wetterstation ZG	Regenwasser (vgl. Kap. 5.1)	14.3.–2.5.95	3.9 ... 4.3
Kl. Kranichsee	Profilblock, Schichten bis ca. 25 cm Tiefe, $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$	11.7.96	2.8 ... 3.0
	Moorwasser, aus dem im Gelände entnommenen Profilblock aufgefangen	11.7.96	3.9
	Oberflächen(moor)wasser, aus Schlenke geschöpft	11.7.96	5.3
	Moorwasser, direkt aus dem Torfkörper entnommen	4.6.97	
	a) im Umkreis des Profilbeprobungspunkts (3 Proben) b) an einem Schlenkenstandort ca. 8 m S davon (1 Probe)		3.9 ... 4.1 4.3 / 5.5 <sup>3)</sup>

<sup>1)</sup> Die Meßtemperatur betrug  $20^\circ\text{C}$  (Proben aus dem Georgenfelder Hochmoor und von der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld) bzw.  $22^\circ\text{C}$  (Proben aus dem Kleinen Kranichsee)

<sup>2)</sup> Die Probennahme erfolgte nach vorangegangenen Schneefall.

<sup>3)</sup> Eine nach dem Setzen von fünf Rohren in der Schlenke testweise in einen Eimer gepumpte Probe wies einen pH-Wert von 4.3 auf (im Gelände gemessen; Meßtemperatur im Bereich  $10 \dots 15^\circ\text{C}$ ); der im Labor bestimmte pH-Wert des Moorwassers eines im Anschluß befüllten Kanisters lag bei 5.5.

Die Werte von um pH 3 und darunter sind über den jeweils analysierten Tiefenbereich hinweg relativ konstant und bestätigen das typischerweise sehr stark bis extrem saure Milieu in ombrogenen Hochmooren (Overbeck 1975; Succow 1988; Schachtschabel et al. 1992; AG Boden 1994; Zeitz 1997). Die Werte im Georgenfelder Hochmoor von pH 2.2 ... 2.4 liegen unter den von Bozau (1995) 1992/93 an zwei Beprobungspunkten nahe der hier beprobten Stelle in demselben Tiefenbereich bestimmten Werten (pH 2.7 ... 3.4 per Einstichelektrode; die  $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ -Werte sind normalerweise nur geringfügig, d. h. um etwa  $0.2 \dots 0.3$  pH-Einheiten, kleiner als die per Einstichelektrode gemessenen Werte, J. Matschullat, TU BAF, pers. Mitt. 2000). Die Werte des Kleinen Kranichsees von pH 2.8 ... 3.0 liegen im Bereich der von Succow (1988) angegebenen Werte (pH 2.9 ... 3.6; die niedrigeren Werte sind dabei für die oberflächennahen Torfschichten zu erwarten, liegen also in Einklang mit den Daten der vorliegenden Arbeit). Derart geringe Werte unter pH 3 sind keine Seltenheit für ausschließlich von Regenwasser gespeiste Moore, welche nach Succow (1988) bezeichnenderweise auch „oligotroph-sauer“ genannt werden.

Die untersuchten Moorwässer sind ebenfalls schwach bis stark sauer, die pH-Werte liegen jedoch

jeweils über denen des zugehörigen Moorbodens (Tabelle 24; Entnahme u. Messung s. Kap. 3.3.4 u. Kap. 3.3.6). Die Pufferkapazität des Moorwassers ist gering, so daß die enthaltenen Huminsäuren ein saures Milieu bewirken. Zudem liegen im Erzgebirge jedoch auch die pH-Werte des Niederschlags teilweise an der Grenze zum stark sauren Bereich, wie die 1995 an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld gesammelten Regenwasserproben (Mittelwert pH 4.1; vgl. Kap. 5.1) sowie vielfältige Literaturwerte (LfUG 1995, 1996, 1997, 1998; Conradt u. Horstmann 1996; Matschullat u. Bozau 1996; Matschullat et al. 2000; Zimmermann u. Zimmermann 2002) deutlich machen.

Das extrem saure Milieu der Hochmoore und ihre spezielle Vegetation bedingen sich gegenseitig. Die starke Akkumulation organischer Substanz und die unter anaeroben Bedingungen ablaufende Humifizierung führen zu vergleichsweise hohen Gehalten an Huminstoffen im Moorboden. Deren Säurecharakter ist zu einem großen Teil für die niedrigen pH-Werte verantwortlich (vgl. Schachtschabel et al. 1992; Zeitz 1997). Die charakteristischen Hochmoorpflanzen sind den niedrigen pH-Werten angepaßt bzw. fördern sie sogar noch, wie z. B. die Torfmoose (*Sphagnum*). Diese wichtigsten torfbildenden Pflanzen lebender ombrogener Hochmoore wachsen jedes Jahr einige Millimeter bis mehrere Zentimeter in die Höhe, während sie nach unten durch zunehmenden Lichtabschluß absterben und anaerob vertorfen (Overbeck 1975; Göttlich 1990; Lindholm 1990; Miller 1993). Im Gegensatz zu Gefäßpflanzen besitzen Torfmoose weder ein Wurzelsystem noch eine Cuticula, welche die lipophile Schicht aus Cutin und Wachsen ist, die das Abschlußgewebe eines Sprosses bedeckt (Wagenitz 1996). Ihren Bedarf an Nährstoffen decken Torfmoose mittels Ionenaustausch aus der Atmosphäre, dem umgebenden Wasser und bereits abgestorbenen Pflanzenteilen (Overbeck 1975; Malmer 1993). Gespeichert werden die Nährstoffe meist entweder in Chlorophyllzellen (N, P, K, S) oder an Austauschplätzen auf den Zellwänden des *Sphagnum* (Mg, Ca); Mikronährstoffe wie Fe, Cu und Zn sowie weitere Metalle wie Al und Pb dagegen sind hauptsächlich auf der Moosoberfläche in unspezifischer Weise (teilweise partikulär) angereichert (Malmer 1988, 1993). Die beiden letztgenannten Mechanismen werden als passive Prozesse angesehen. Der an der Zellwand lokalisierte Austauscher gibt bei der Adsorption von Kationen äquivalente Mengen von Wasserstoffionen ab (Anschütz u. Geßner 1954; Clymo 1963; Craigie u. Maass 1966). Somit ist die hohe Kationenaustauschkapazität der Torfmoose einerseits für das stark saure Milieu des Hochmoors, andererseits für die Festlegung von Metallen mitverantwortlich (vgl. Brehm 1971; Pietsch 1980; Wandtner u. Lötschert 1980).

### Natürliche Zerfallsreihen

Die Tiefenverteilungen der natürlichen RN (inkl.  $^{40}\text{K}$ ) in den Moorprofilen unterscheiden sich wesentlich von denen der untersuchten Fichtenwaldböden. Der prinzipielle Verlauf zeigt unterschiedlich stark erhöhte spezifische Aktivitäten bzw. Aktivitätskonzentrationen in den oberflächennahen Moorschichten, sehr geringe Werte im Torfkörper und unterschiedlich stark ansteigende Gehalte zum Untergrund hin. Darin spiegeln sich unterschiedliche Eintragspfade der natürlichen RN wider. Während die bodenbildenden Prozesse in Waldböden sowohl das Ausgangsgestein als auch den Humuskörper wechselwirkend einbeziehen, findet die Torfbildung im Hochmoor, von der Anfangsphase der Moorentstehung abgesehen, unbeeinflusst vom geologischen Untergrund an der Mooroberfläche statt. Der reine Hochmoorkomplex ist durch ein autonomes Wasserregime gekennzeichnet, welches ausschließlich durch Niederschläge gespeist wird. Daraus kann geschlossen werden, daß ein Großteil der mineralischen Bestandteile und Nährstoffe – und damit auch der natürlichen RN – der nassen und trockenen Deposition sowie dem eingetragenen Boden- oder Pflanzenmaterial entstammen. Laut Göttlich (1990) können Mineralstoffe auch über fortgesetzte Aufnahme durch die lebenden Pflanzen aus der darunterliegenden abgestorbenen, bereits vertorften Substanz in Richtung der Moorbodenoberfläche transportiert werden. Die mittleren Torfschichten verarmen dabei an Mineralstoffen. Da die Pflanzen in der frühen Phase der Moorentstehung direkt auf dem mineralstoffreichen Untergrund (Mineralboden oder Mudden) wachsen, können sich somit ursprünglich von dort stammende Mineralbestandteile in den jeweils oberflächennahen Torflagen ansammeln. Unabhängig davon, ob ein derartiger weiterreichender vertikaler Transport auch für die Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen stattfindet, kann von einer

direkten Beeinflussung der Basis des Torfkörpers durch den geologischen Untergrund ausgegangen werden.

Die Maxima von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ -Folgern (ohne  $^{210}\text{Pb}$ , s. nachfolgende Diskussion) und  $^{232}\text{Th}$ -Folgern stimmen in ihrer Position innerhalb eines Profils im wesentlichen überein. An den trockeneren bzw. anthropogen stärker beeinflussten Beprobungsorten, dem Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide, deuten die Verteilungen auf eine stärkere Akkumulation der RN in den durch Bodenbildung umgewandelten Bereichen hin. Die Maxima liegen hier in den oberflächennahen Schichten bis 5 cm; auffällig sind die deutlich überhöhten spezifischen  $^{238}\text{U}$ -Aktivitäten (etwa 20 Bq/kg). Die Messungen aus dem Übergang Vererdungshorizont–Torf des Georgenfelder Hochmoors (7a u. 7b; vgl. Abb. 46 ff.) in etwa 18 cm Tiefe deuten eine zusätzliche Erhöhung der spezifischen Aktivitäten von  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folgern,  $^{40}\text{K}$  und auch  $^{137}\text{Cs}$  im unteren Bereich des Vererdungshorizonts an. Der ursprüngliche Torf ist hier durch sekundäre aerobe Zersetzung vererdet, das braun-schwarze Substrat ist von krümeligem Gefüge. Die darüberliegenden Beprobungsschichten dagegen sind stärker von neuerlicher Torfbildung und der Durchwurzelung durch Gefäßpflanzen beeinflusst. Die höchste Trockendichte findet sich in etwa 10 cm Tiefe (Abb. 68). Im tiefsten Bereich dieses „begrabenen Vererdungshorizonts“ (Succow 1988) ist eine Anreicherung der RN verständlich.

Im intakten Hochmoor Kleiner Kranichsee liegen die Maxima in vergleichsweise größerer Tiefe, die spezifischen Aktivitäten und v. a. die Aktivitätskonzentrationen sind geringer (ähnliche Tendenzen deuten sich auch in den RN-Verteilungen des Radauer Borns an, Abb. 64). Dies könnte, unter Annahme von vergleichbarem Eintrag in die erzgebirgischen Moore und Immobilität der Nuklide, eine Folge höherer Wachstumsraten des torfmoosdominierten Bewuchses (vgl. Malmer 1993) und damit einer stärkeren „Verdünnung“ der eingetragenen Quantitäten sein. Weitere mögliche Einflußgrößen sind Wasserspiegelschwankungen oder eine Aufkonzentration der Elemente in den Wurzeln bestimmter Gefäßpflanzen (z. B. des tief- und starkwurzelnden Scheidigen Wollgrases, vgl. Overbeck 1975) in diesem Tiefenbereich (s. u.).

Als grundlegende Ursache der stark erhöhten Konzentrationen natürlicher RN im oberflächennahen Bereich der Moorprofile sind jedoch die anthropogen verursachten Einträge anzusehen. Dazu gehören die höhere Freisetzung terrestrischer Stäube als Folge von Rodungen und durch Bergbautätigkeiten und die Zunahme der Emissionen, z. B. durch die Verwendung von Braunkohle zur Energiegewinnung und als industrieller Rohstoff. Für die exponierten Regionen des Erzgebirgskamms und des Hochharzes spielt hierbei v. a. der atmosphärische Ferntransport eine Rolle (vgl. Kap. 5.2). Obwohl die heutzutage meist unter Naturschutz gestellten Hochmoore inzwischen von lokalen Quellen industriellen Stoffeintrags weitgehend unbeeinflusst sind, machen sich die Luftschadstoffeinträge in den Moor- und umgebenden Waldökosysteme dennoch stark bemerkbar, z. B. in Form von Fichtensterben oder Nadelvergilbung (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1996).

Tendenziell vergleichbare Tiefenverteilungen in Hochmooren weisen auch die im wesentlichen anthropogen eingebrachten Schwermetalle auf – je nach Mobilität ist die Konzentrationserhöhung im oberflächennahen Bereich dabei mehr oder weniger stark ausgeprägt (Damman 1978; Dalitz u. Jensen 1994; Bozau 1995). Dies wird u. a. dem Einfluß von Wasserspiegelfluktuationsen und dem damit wechselnden aerob-anaeroben Milieu zugeschrieben (vgl. Diskussion  $^{210}\text{Pb}$ ) (Damman 1978; Dalitz u. Jensen 1994). Ob in den RN-Tiefenverteilungen ein zeitlicher Gang des Eintrags von z. B. Braunkohleaschen aus dem böhmischen Becken erkennbar ist (vgl. Kap. 5.1 u. Kap. 5.2), kann im Kontext der in Kap. 7.3 dargestellten Datierungsergebnisse diskutiert werden (Abb. 71, Abb. 72 u. Abb. 70). Die Maxima der Tiefenverteilungen von  $^{238}\text{U}$ , den  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folgern im Profil des Kleinen Kranichsees beispielsweise liegen in etwa 12 ... 15 cm Tiefe. Anhand von  $^{210}\text{Pb}$ -Datierungen (deren Gültigkeit auch anhand anderer Datierungsmethoden überprüft wurde) wurden die entsprechenden Moorschichten den Jahren um 1943 und 1958 zugeordnet. Informationen zu entsprechenden, deutlich erhöhten Immissionen in das Untersuchungsgebiet innerhalb dieser Zeiträume liegen hier jedoch nicht vor, bzw. eindeutige Zusammenhänge sind nicht ersichtlich (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998). Auch Dalitz u. Jensen (1994) konnten in Untersuchungen der Schwermetallverteilungen in Mooren des Hochharzes keinen schlüssigen chronologischen Zusammenhang zwischen dem Alter der Torf-

schichten (basierend auf pollenanalytischen Datierungen) bzw. den Immissionsverhältnissen zur Zeit der Bildung der Torfschichten und den darin befindlichen Schwermetallanreicherungen nachweisen. Die Autoren schließen daraus auf eine Verlagerung der Metalle (Pb, Cd, Cu, Zn) in den untersuchten Moorböden seit der ursprünglichen Deposition. Eine Übereinstimmung zwischen den Tiefenverteilungen verschiedener Schwermetalle (Pb, Sb, As) und der zeitlichen Einordnung der Torfschichten bzw. entsprechender, historisch belegter Emissionen dagegen erkennen Shotyk et al. (1996, 1998) in den Profilen eines ombrogenen Hochmoors (Juragebirge, Schweiz).

Inwieweit die Gehalte natürlicher RN des Bewuchses, d. h. sowohl der Gefäßpflanzen als auch der rezenten Torfmoosabschnitte, durch Pflanzenaufnahme aus den vertorften oberflächennahen Schichten erhöhter Konzentrationen stammen, ist anhand der hier durchgeführten Untersuchungen nicht zu klären. In der Vegetationsschicht ist  $^{238}\text{U}$  nur im Georgenfelder Hochmoor nachweisbar, die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger und die Folgenuklide der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe sind dagegen in allen Oberflächenproben detektierbar (sämtliche  $A_{\text{spez}} < 5 \text{ Bq/kg}$ ). Dabei ist, im Vergleich zu den Werten im Moorboden, keine Erhöhung der Werte in den Vegetationsproben feststellbar. Es kann davon ausgegangen werden, daß der atmosphärische Eintrag eine wesentliche Rolle für die Elementgehalte der Vegetationsschicht spielt – die hier untersuchten Proben sind nur getrocknet, so daß z. B. anhaftender Staub mitgemessen wurde. Wie Untersuchungen an Torfmoosen zeigen, verbleiben auch vom anhaftenden Wasser herrührende Mineralstoffe nach der Trocknung an den Pflanzen (Brehm 1968, 1971; Overbeck 1975). Besonders kleine, dicht beieinanderstehende Bulttorfmoose wie z. B. *Sphagnum fuscum* haben die Fähigkeit, auch in vergleichsweise größerer Entfernung vom mooreigenen Wasserspiegel weiterzuwachsen, indem durch Kapillarkwirkung zwischen den Blättchen, Ästchen und Stämmchen das benötigte Wasser angehoben wird (Overbeck u. Happach 1957; Lindholm 1990). Dieser torfmoostypische Transportmechanismus für Mineralstoffe wie K könnte auch andere Substanzen – kleinere Schwebstoffe, Kolloide oder gelöste Ionen – in Richtung der Köpfchen verlagern.

Ein Transfer der RN der natürlichen Zerfallsreihen aus dem Boden in die Vegetation ist nicht auszuschließen. Die Aufnahme bzw. Absorption von Metallen durch Pflanzen ist relativ gut untersucht. Als Maß für die Aufnahme aus dem Boden in die Pflanze werden oft Transferfaktoren, zumeist als einheitenloses Konzentrationsverhältnis Pflanze/Boden, errechnet; für U, Th, Ra und Pb können z. B. Sheppard u. Evenden (1988), Linsalata et al. (1989) und Sam u. Eriksson (1995) genannt werden. Die physiologischen Grundlagen möglicher Aufnahmemechanismen für Schwermetalle allgemein bzw. für U, Th und Ra im speziellen sind jedoch bislang noch nicht ausreichend geklärt (Ibrahim u. Whicker 1988; Sheppard u. Evenden 1988; Linsalata et al. 1989; Streit u. Stumm 1993; Sam u. Eriksson 1995). Generell sind U und Th, wie auch Pb, in Pflanzen u. a. aufgrund von Adsorption an Zellwänden nur begrenzt mobil, woraus oft höchste Elementkonzentrationen an den Wurzeloberflächen sowie mit zunehmender Pflanzenhöhe abnehmende Konzentrationen im Pflanzengewebe resultieren (Sheppard u. Evenden 1988). Untersuchungen von Linsalata et al. (1989) und Sam u. Eriksson (1995) an einer Vielzahl von Gemüsearten weisen darauf hin, daß sowohl die einzelnen Pflanzenarten als auch verschiedene Pflanzenteile Ra in unterschiedlichem Maße akkumulieren. Die Ra-Aufnahme wird u. a. durch die jeweiligen Eigenschaften des Standorts (d. h. des Bodens, Mikroklimas etc.) beeinflusst, so daß der Ra-Gehalt im Boden selbst nur einen von mehreren Faktoren für den Transfer in die Pflanze darstellt (Sheppard u. Evenden 1988; Sam u. Eriksson 1995). Linsalata et al. (1989) beobachteten eine bevorzugte Pflanzenaufnahme von Ra im Vergleich zu Th (d. h. zweier Elemente unterschiedlicher stabiler Oxidationsstufen, +2 bzw. +4). Dabei nehmen die Konzentrationen des Ra (wie auch der Aktiniden) in verschiedenen Pflanzenteilen i. allg. in der Reihenfolge Wurzeln > Stämme/Stengel und Blätter > Samen und Früchte ab. Sam u. Eriksson (1995) schließen aus ihren Ergebnissen sowie weiteren Referenzen, daß die Endodermis der Wurzeln einen natürlichen Diskriminierungsmechanismus für aus dem Boden stammendes Ra aufweisen könnte. Die in Kap. 6.2 angesprochenen Untersuchungen von C. Brackhage (TU Dresden, pers. Mitt. 1999) unterstützen diese Theorie, lassen jedoch keinen entsprechenden Mechanismus für Th erkennen. Da zu letztgenanntem Projekt keine detaillierten Informationen vorliegen, kann nicht entschieden werden, ob der Befund für Th im Widerspruch zu den oben aufgeführten Ergebnissen von Sheppard u. Evenden (1988) und Linsalata et al. (1989) steht. Prinzipiell



könnte eine Akkumulation des Ra bzw. der Aktiniden in den Wurzeln von Gefäßpflanzen eine mögliche Erklärung für die hier beobachteten erhöhten spezifischen Aktivitäten in den oberflächennahen, von Durchwurzelung beeinflussten Bereichen der untersuchten Profile im Georgenfelder Hochmoor, der Schwarzen Heide, und auch dem Kleinen Kranichsee sein.

Im eigentlichen Torfkörper der Hochmoore sind die RN nur in sehr geringen Konzentrationen detektierbar ( $A_{\text{spez}}(^{238}\text{U}) < 4 \text{ Bq/kg}$ ,  $A_{\text{spez}}(^{226}\text{Ra-Folger}) < 3.5 \text{ Bq/kg}$ ,  $A_{\text{spez}}(^{232}\text{Th-Folger}) < 2 \text{ Bq/kg}$ ) bzw. liegen unter der jeweiligen Nachweisgrenze. Im Profil Georgenfelder Hochmoor fallen die Werte an der Untergrenze des Vererdungshorizonts zum Torf hin deutlich ab. Die geringen Konzentrationen im Torf könnten mit einem relativ geringen Eintrag auf die jeweilige Mooroberfläche in der weiter zurückliegenden Vergangenheit – vor und in der Anfangsphase der Besiedlung der umliegenden Gebiete – und einer anschließenden Bindung immobiler Nuklide (z. B. Pb-Verteilungen in Sheppard u. Evenden 1988 und Shotyk et al. 1998) bzw. einer starken Verdünnung mobiler Nuklide im Torfkörper (z. B.  $^{137}\text{Cs}$ , MacKenzie et al. 1997) erklärt werden. Im Vergleich zu den oberflächennahen Schichten deutlich verringerte Elementkonzentrationen im Torfkörper konnten auch Damman (1978), Dalitz u. Jensen (1994) und Bozau (1995) für Schwermetalle wie Cd, Cu und Zn nachweisen.

Organische Böden, und im speziellen huminstoffreiches Bodenmaterial wie Torfe, sind prinzipiell sehr effektiv darin, sowohl Pb (vgl. Kap. 6.2) als auch U und Th zurückzuhalten (Nash et al. 1981; Sheppard u. Evenden 1988). Die Anreicherung des U in Huminstoffen wird hauptsächlich der U-Fixierung mittels Kationenaustausch und Adsorption, in der Form von Uranylhumaten oder Uranylfulvaten, zugeschrieben (Gascoyne 1992). Es wird davon ausgegangen, daß Th noch stärkere Komplexe mit den einzelnen Huminstofffraktionen bildet als U (Nash et al. 1981; Choppin 1988, 1999; Buckau 1991). Wie die Vergleiche von Literaturwerten in Choppin (1988, 1999) und Buckau (1991) zeigen, kann die Stabilitätskonstante des Komplexes eines Aktinids mit einer Fulvosäure wesentlich kleiner sein als die mit einer Huminsäure desselben Ursprungs (z. B. desselben Seesediments). Für die hier vorliegenden niedrigen pH-Werte um pH 3 und darunter sind die Uranylhumate als unlöslich, d. h. ausgefällt, die Uranylfulvate dagegen als löslich anzunehmen (vgl. Gascoyne 1992; Schachtschabel et al. 1992). Humin- und Fulvosäuren (bzw. deren Komplexe mit z. B. Aktiniden) zeigen eine hohe Affinität für sowohl organische als auch inorganische Oberflächen (Nash et al. 1981; Ramsay 1988; Lieser et al. 1991; Schachtschabel et al. 1992; Choppin 1999). Die Assoziation der Fulvo- und Huminsäure-Aktiniden-Komplexe mit Sedimenten wird dabei hauptsächlich physikalischer Adsorption zugeschrieben; ebenfalls gebildet werden können Komplexe, in denen Carbonsäuregruppen als Brückenliganden dienen, v. a. bei hohen Konzentrationen von entweder Carbonaten oder Huminsäuren (Lieser et al. 1991). Da die spezifische Oberfläche von Böden u. a. mit dem Gehalt organischer Substanz steigt (Schachtschabel et al. 1992), kann prinzipiell eine starke Sorption der Huminstoff-Aktiniden-Komplexe an Hochmoortorfen erwartet werden.

Im Zusammenhang mit Untersuchungen zur Verteilung von Schwermetallen (Pb, Cd, Cu, Zn) in Mooren des Hochharzes gehen Dalitz u. Jensen (1994) von einer Remobilisierung der Schwermetalle – in Form von Fulvosäure-Metall-Komplexen – in begrenztem Umfang aus. Dies wird begründet mit einer steten Zufuhr niedermolekularer, mobiler Fulvosäuren aus den obersten Torfschichten der Vermoorungen, wobei erwartet wird, daß die geringere Humifizierung der Schichten einen (im Vergleich zu den tieferen, stärker humifizierten Schichten) höheren Gehalt an Fulvosäuren nach sich zieht; in diesem Zusammenhang wird auf Rump et al. (1977) verwiesen. Rump et al. (1977) schreiben der „Vertorfungszone“ (in ca. 5 cm Tiefe des Torfprofils eines Hochmoors der Rhön) einen relativ hohen Fulvosäureanteil zu und schließen eine aufwärtsgerichtete Wanderung einer gewissen Menge an Schwermetallen aus dieser Zone nicht aus, weisen aber darauf hin, daß eine entsprechende Verlagerung aus tiefergelegenen Zonen nicht möglich zu sein scheint. Laut Schachtschabel et al. (1992) führt die für das Hochmoor typische abiotische Humifizierung generell vorwiegend zur Bildung niedermolekularer Verbindungen wie Fulvosäuren; genauere Angaben zu den sich daraus ergebenden Anteilen der einzelnen Huminstofffraktionen in typischen Moorböden bzw. Torfen unterschiedlicher Humifizierungsgrade werden jedoch nicht gemacht. El-Daoushy (1988) entsprechend kann die Fulvosäurefraktion in „schwach zersetztem“ Torf bis zu 20 % betragen. Bridgham et al. (1998) bestimmten die

Huminstofffraktionen „schwach zersetzten“ Hochmoortorfs (Zersetzungsgrad nach v. Post: H 3) zu etwa 72 % Huminen, 11 % Fulvosäuren und 17 % Huminsäuren (Mittelwerte von jeweils fünf Profilen aus fünf Hochmooren; Minnesota, USA). In diesem Zusammenhang ist anzumerken, daß es laut Schachtschabel et al. (1992) problematisch wäre, von „Zersetzungsgrad“ anstatt von „Humifizierungsgrad“ zu sprechen, da auch bei geringem Humifizierungsgrad ein hoher Streuanteil vollständig abgebaut sein kann, z. B. bei Weißtorf durchaus 40 %, und zwar vor allem Zellinhaltsstoffe. Zu berücksichtigen ist zudem, daß im Torf im Prinzip jeweils der Humifizierungszustand konserviert wird, in dem das torfbildende Material in die wassergesättigten, reduzierenden Tiefenbereiche geraten war (Göttlich 1990; vgl. Kap. 3.3.1). Schwächer und stärker humifizierte Bereiche können sich somit über die Tiefe hinweg abwechseln. Es ist fraglich, ob und inwieweit sich in diesen Bereichen variierender Humifizierungsgrade jeweils auch ein unterschiedliches Huminäuren/Fulvosäuren-Verhältnis erhalten kann; den Untersuchungen von Rump et al. (1977) nach können die Verhältnisse der Huminstofffraktionen mit der Tiefe jedoch durchaus variieren. Die (plausible) Annahme einer fortschreitenden Polymerisation der Huminstofffraktionen in tieferliegenden Torfschichten (woraus ein steigender Anteil an Huminsäuren resultieren würde) beispielsweise scheint der genannten Konservierung des jeweiligen Humifizierungsgrades der Torfschichten zu widersprechen. In oberflächennahen, aufgrund von z. B. stärker wechselnden Moorwasserständen stärker humifizierten Torfschichten dagegen ist ein höherer Anteil an Huminsäuren denkbar; es ist jedoch nicht klar, ob sich dieses höhere Huminsäuren/Fulvosäuren-Verhältnis im Verlauf des weiteren Moorwachstums prinzipiell erhalten könnte.

Erst zum geologischen Untergrund hin steigen die spezifischen Aktivitäten wieder an (s. Profile Georgenfelder Hochmoor, Schwarze Heide). Die Werte der tiefsten Bohrproben sind im Vergleich zum Torfkörper deutlich erhöht, meist auch höher als die lokalen Maxima in den oberflächennahen Schichten. Wie stark und weitreichend der geogene Einfluß im Torfkörper ist, hängt u. a. von den RN-Gehalten im Gestein, der stofflichen Zusammensetzung und Beschaffenheit der direkt aufliegenden Bodenlagen (z. B. Gesteinszersatz) und des Torfkörpers sowie den hydrologischen Gegebenheiten, v. a. am Moorgrund, ab. Im Georgenfelder Hochmoor beispielsweise erwiesen sich die direkt dem Torf unterliegenden oberen Bereiche des Teplitzer Quarzporphyrs als verwittert und als Tonhorizont ausgeprägt (vgl. Rudolph u. Firbas 1924; Stebich 1995). Die durchgeführten Untersuchungen ermöglichen nur ansatzweise Aussagen zu den Akkumulations- und Transportprozessen am Moorgrund. Das direkt auf dem anstehenden Gestein liegende Bodenmaterial konnte mit dem Moorkammerbohrer meist nicht vollständig erfaßt werden, u. a. aufgrund der Bohrschnecke an der Kammerspitze. Zudem ist jeweils mindestens die Hälfte des Kammermaterials nötig, um eine ausreichende Probenmenge für die  $\gamma$ -spektrometrischen Untersuchungen zu erhalten (sofern nicht mehrere Parallelbohrungen vergleichend angesprochen und beprobt werden, wie im hier nicht dargestellten Bohrprofil des Radauer Borns); dies schließt auch eine weitergehende, der bodenkundlichen Horizontansprache entsprechende Untergliederung der Proben aus. Die untersuchten Bohrproben umfassen somit unterschiedlich lange Tiefenbereiche (vgl. Kap. 7.1), und ein direkter Vergleich der Beprobungsabschnitte ist nur bedingt möglich. So sind z. B. die spezifischen Aktivitäten der  $^{232}\text{Th}$ - und  $^{226}\text{Ra}$ -Folger und v. a. des  $^{238}\text{U}$  in der tiefsten Bohrprobe des Georgenfelder Hochmoors mit einer Kernlänge von 50 cm (Endtiefe 220 cm) größer als in der entsprechenden Probe der Schwarzen Heide mit einer Kernlänge von nur ca. 23 cm (Endtiefe 180 cm). Mögliche Schlußfolgerungen wären die Annahme eines stärkeren bzw. höher reichenden Einflusses des Untergrundgesteins im Georgenfelder Hochmoor, höhere Gehalte der genannten RN in diesem Gestein oder eine stärkere Akkumulation der RN im entsprechenden Gesteinszersatz. Eine derartige Tendenz, bezüglich der Gehalte im Gestein, wäre aus den Literaturwerten für Saure Vulkanite und Metagranitoide Sachsens (Kardel 1996; vgl. Abb. 1) jedoch nur für Th zu erkennen, die U-Werte stimmen weitestgehend überein.

Die spezifischen  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Aktivitäten der Gesteinsprobe (Teplitzer Quarzporphyr, Georgenfelder Hochmoor) von  $(132 \pm 7)$  Bq/kg und  $(215 \pm 1)$  Bq/kg liegen über den in Abb. 1 dargestellten arithmetischen Mittelwerten saurer Vulkanite Sachsens von  $(68 \pm 31)$  Bq/kg und  $(114 \pm 45)$  Bq/kg (Daten nach Kardel 1996). Der Stichprobenumfang für diesen Gesteinstyp beträgt jedoch nur  $n = 20$ . Wie die Minimal- und Maximalwerte von 36 Bq/kg und 136 Bq/kg ( $^{238}\text{U}$ ) sowie 65 und 231 Bq/kg

( $^{232}\text{Th}$ ) erkennen lassen, kann derselbe Gesteinstyp regional (und auch lokal) stark variierende Elementgehalte aufweisen (vgl. auch Haupt- und Spurenelemente in den Hauptgesteinstypen des Erzgebirges in Pälchen et al. 1987). Da es sich bei der Gesteinsprobe um außerhalb des Hochmoors aufgelesenes Material handelt, ist nicht gesichert, daß die RN-Gehalte denen des geogenen Untergrunds unter dem Moorkörper entsprechen. Aus demselben Grund können auch die Literaturwerte für Metagranitoide nur bedingt mit den untergrundnahen Werten des Bohrprofils der Schwarzen Heide verglichen werden. Die Entnahme und Messung sowohl einer geeigneten Gesteinsprobe als auch einer dem Untergrund direkt aufliegenden Bodenprobe – auch als Ergänzung der vom LfUG Freiberg durchgeführten moorstratigraphischen Untersuchungen (vgl. Kap. 7.3 u. Seifert 1997) – wäre hier wünschenswert.

Ein aussagekräftigerer Vergleich der RN-Gehalte in den tiefsten Torfproben mit den gemessenen bzw. aus der Literatur entnommenen Werten des geologischen Untergrundgesteins wäre u. U. über die volumenbezogenen Aktivitätskonzentrationen möglich. Da die schälende Wirkung des Moorkammerbohrers jedoch das Bodengefüge zerstört, ist die Lagerungsdichte des Torfes nicht zu bestimmen, so daß in diesen Tiefen nur die massebezogenen spezifischen Aktivitäten vorliegen. Dennoch sind diese Werte aufschlußreich, auch im Zusammenhang mit den festgestellten Ungleichgewichten innerhalb der Zerfallsreihen. In den tiefsten Bohrproben aus dem Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide besteht ein starkes Ungleichgewicht zwischen  $^{238}\text{U}$  und den  $^{226}\text{Ra}$ -Folgern. Die  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnisse betragen 6.3 bzw. 3.7 in der jeweils untersten Probe und weisen auf eine relative Anreicherung des  $^{238}\text{U}$  in den untergrundnahen Torfschichten hin; zudem übersteigen auch die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten die Werte der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger ( $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnis: 4.2 bzw. 1.9). In der Gesteinsprobe (Georgenfelder Hochmoor, s. o.) dagegen ist ein derartiges Ungleichgewicht nicht zu finden. Auch die  $^{232}\text{Th}$ -Folger liegen in den Torfproben beider Moore und im Gestein im Gleichgewicht vor. Vergleicht man die tiefste Bohrprobe des Georgenfelder Hochmoors mit der Gesteinsprobe, so fällt auf, daß der  $^{238}\text{U}$ -Wert im Torf weit über dem Gesteinswert liegt, wohingegen es für die  $^{226}\text{Ra}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folger genau umgekehrt ist. Daraus könnte ebenfalls auf eine relative Anreicherung des  $^{238}\text{U}$  im Torf geschlossen werden (ausschlaggebend bei dieser Betrachtung sind die Verhältnisse, ein direkter Vergleich der spezifischen Aktivitäten von Gestein und Torf dagegen ist kritisch zu betrachten; s. o.). Eine derartige Folgerung wird unterstützt durch vielfältige Beispiele für die Akkumulation von U in organischen Sedimenten wie Braunkohlen und Torfen aus dem Grundwasser oder U-reichem Untergrundgestein bzw. Gesteinszersatz (z. B. Sheppard u. Evenden 1988; Gascoyne 1992; Choppin 1999).

Das folgende Szenario ist hierbei vorstellbar: Im Zersatz des Untergrundgesteins bzw. in den aufliegenden Böden, welche einem in der Entstehung befindlichen Moor zugrunde liegen (im Kammgebiet des Osterzgebirges vorwiegend skelettreiche Verwitterungsböden), können v. a. längerlebige RN aufgrund der unterschiedlichen physikalischen und chemischen Eigenschaften und in Abhängigkeit von den Halbwertszeiten der einzelnen Nuklide der Zerfallsreihen von ihren Mutternukliden fraktioniert werden (in der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe z. B. Fraktionierung zwischen  $^{230}\text{Th}$  und  $^{234}\text{U}$  bzw.  $^{238}\text{U}$ , oder zwischen  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{230}\text{Th}$ ) (vgl. Koide et al. 1973; Szöghy u. Kish 1978; Megumi 1979; Gascoyne 1992; Osmond u. Ivanovich 1992; Bunzl et al. 1994b). Denkbar ist, daß mobilere Elemente, in Abhängigkeit von den jeweiligen hydrologischen Bedingungen, in den neu aufwachsenden Torfkörper diffundieren oder von Wasserströmungen im Moor transportiert werden. Auch die in der Moorneubildung wurzelnden Gefäßpflanzen können dabei eine Rolle spielen, sowohl durch Wurzeltätigkeiten als auch selektive Aufnahme von Spurenelementen (z. B. U-Anreicherung im Wurzelbereich, s. o.). Zu Beginn der Moorbildung kann von vorwiegend aerobem Milieu und oxidierenden Bedingungen ausgegangen werden, unter denen beispielsweise U (als sechswertiges Uranylion  $\text{UO}_2^{2+}$  bzw. entsprechender Uranylkomplexe, je nach physikalisch-chemischem Milieu und Anionenangebot) noch wesentlich mobiler ist als in dem anaeroben, stark sauren Milieu des aufwachsenden Hochmoors (Göttlich 1990; Gascoyne 1992; Osmond u. Ivanovich 1992; Schachtschabel et al. 1992; Reimann u. Caritat 1998). Folglich könnte U in wäbrigem Medium verlagert werden, z. B. von höhergelegenen Randbereichen zum Zentrum des jungen Moores hin, während sowohl Th und Ra unter den ursprünglich oxidierenden Verhältnissen immobilisiert vorliegen. Das überwiegend als vierwertiges Kation vorkom-

mende Th ist sowohl unter oxidierenden als auch reduzierenden Bedingungen kaum löslich und relativ immobil. Ra, welches stark an Tonminerale adsorbiert, könnte im Gesteinszersatz zurückgehalten werden (s. auch Kubach u. Weigel 1977). Mit Eintreten der Wassersättigung, unter den reduzierenden Verhältnissen der Moorbildung dagegen ist Ra löslich und wesentlich mobiler, während U als vierwertiges Ion ausfällt (vgl. Kubach u. Weigel 1977; Gascoyne 1992; Osmond u. Ivanovich 1992; Reimann u. Caritat 1998). Die mit fortschreitender Moorbildung einhergehenden Humifizierungsprozesse und somit verstärkte Produktion von Huminstoffen wiederum resultieren u. a. in der Komplexierung von U und Th mit Humin- und Fulvosäuren und entsprechender (Im)Mobilisierung (s. o.). Ra könnte somit innerhalb des Moores oder, über lange Zeiträume hinweg, sogar aus dem Moorkörper heraus transportiert werden. Wenngleich die Halbwertszeit des  $^{226}\text{Ra}$  von 1600 a in geologischen Zeiträumen betrachtet kurz ist, läßt sie doch, im Vergleich zu dem Alter der Moore, Verlagerungsprozesse zu. Zu Beginn der Moorbildung vorliegendes  $^{226}\text{Ra}$  ist inzwischen zwar schon weitestgehend zerfallen, das RN wird jedoch dort, wo  $^{238}\text{U}$  vorliegt, kontinuierlich nachproduziert. Im Verlauf der mehrere tausend Jahre dauernden Moorbildung – für das Georgenfelder Hochmoor werden > 5000 a angegeben (Stebich 1995; Müller u. Uhlig 1997) – können die Nuklide somit aufgrund ihrer unterschiedlichen chemischen Speziationsformen und Bindungsmechanismen wie Adsorption, Ionenaustausch und Komplexierung sehr unterschiedlichen Transport- und Verlagerungsprozesse unterworfen gewesen sein. In diesem Zusammenhang ist auch anzumerken, daß selbst im Hochmoor mit einer geringen Wasserbeweglichkeit zu rechnen ist (vgl. Overbeck 1975; Göttlich 1990; Dalitz u. Jensen 1994). Diese ist u. a. von der Torfart und der Torfdichte sowie dem Humifizierungsgrad abhängig und beeinflußt vertikale (hauptsächlich abwärts gerichtete) als auch horizontale Transportprozesse mobiler Substanzen. Auch die Hangneigung des Moores scheint eine Rolle zu spielen. Eine Beeinflussung höhergelegener Torfbereiche durch den Untergrund wird weitgehend durch den Wasserdruck verhindert, der von der Oberfläche ausgehend zu den Randbezirken und nach unten weist.

Ungleichgewichte in den Zerfallsreihen finden sich nicht nur am Moorgrund, sondern auch in den oberflächennahen Schichten und dem Torfkörper (vgl. Ergebnisdarstellung, Kap. 7.1). In den Profilen des Georgenfelder Hochmoors und der Schwarzen Heide beträgt das  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnis im  $^{238}\text{U}$ -Maximum etwa 2.6 bzw. 1.7. Das Profil der Schwarzen Heide legt dabei eine Verlagerung des  $^{226}\text{Ra}$  mit der Tiefe nahe: Während in den oberen 7 cm ein relativer  $^{238}\text{U}$ -Überschuß besteht, überwiegen darunter durchgehend bis 20 cm die  $^{226}\text{Ra}$ -Folger. Ein Vergleich der Inventare des  $^{238}\text{U}$  und der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger im Tiefenbereich 0 ... 20 cm zeigt zudem eine sehr gute Übereinstimmung der Werte (380 ... 390 Bq/m<sup>2</sup>). Aufgrund der zuvor diskutierten höheren Ra-Mobilität bzw. U-Festlegung unter reduzierenden Verhältnissen ist dieser Erklärungsansatz somit durchaus plausibel. In den Tiefenverteilungen des Profils aus dem Kleinen Kranichsee ist kein derartiges Ungleichgewicht zu beobachten. Die Verteilungen des Radauer Borns lassen entsprechende Betrachtungen nicht zu, da  $^{238}\text{U}$  in den untersuchten Profilschichten unterhalb der jeweiligen Nachweisgrenze liegt.

Geringfügige Ungleichgewichte in der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe sind in einzelnen Schichten der Profile aus dem Georgenfelder Hochmoor, der Schwarzen Heide und dem Kleinen Kranichsee erkennbar. In der obersten Moorschicht des Georgenfelder Hochmoors sowie drei weiteren oberflächennahen Profilproben (max. 15 cm Bodentiefe, d. h. oberhalb des Übergangsbereichs Vererdungshorizont–Torfkörper) beträgt das  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnis maximal 1.3. Die direkt unter dem Übergangsbereich anschließende Torfprobe (ca. 22 ... 27 cm Bodentiefe) weist jedoch ein  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnis von 2.9 auf. Ebenfalls nur sehr geringe  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnisse von maximal 1.2 zeigen mehrere Proben des Profils der Schwarzen Heide. Einzig die Bohrprobe aus ca. 58 ... 83 cm Bodentiefe weist ein Verhältnis von 2.7 auf, für die darunterliegende Bohrprobe (bis knapp 110 cm) kann das Aktivitätsverhältnis nicht errechnet werden, da  $^{228}\text{Ac}$  nicht detektierbar ist. Dies ist auch der Fall für zwei Proben des Profils aus dem Radauer Born, in denen nur  $^{228}\text{Th}$ -Folgenuklide nachweisbar sind. In der oberste Schicht des Kleinen Kranichsees dagegen dominiert  $^{228}\text{Ac}$  ( $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ -Aktivitätsverhältnis: 0.53). Plausible Ursachen für die beobachteten Ungleichgewichte sind die zuvor diskutierten unterschiedlichen Beweglichkeiten von Ra und Th in den Moorschichten aeroben und anaeroben Milieus und eventuell auch Unterschiede in der Pflanzenaufnahme und Pflan-

zenakkumulation der Elemente. Aufgrund der vergleichsweise kurzen Halbwertszeiten der  $^{232}\text{Th}$ -Folger sind Ungleichgewichte in der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallreihe prinzipiell Prozessen zuzuschreiben, welche in relativ kurzen Zeiträumen – z. B. in (jungen) Meeres- und Seesedimenten oder Mooren („organische Sedimente“) – ablaufen (vgl. Koide et al. 1973; Klös u. Schoch 1993; Chen u. Huh 1999; Ribeiro et al. 2001). Dabei kann beispielsweise  $^{228}\text{Ra}$ , das langlebigste  $^{232}\text{Th}$ -Folgenuklid ( $T_{1/2} = 5.75$  a), in der wäßrigen Phase transportiert werden, wohingegen die Th-Isotope  $^{232}\text{Th}$  und  $^{228}\text{Th}$  durch ihre Assoziation mit den organischen Rückständen, welche je nach Lokalität fortschreitenden Humifizierungs- und Mineralisierungsprozessen unterworfen sind, ebenfalls eine gewisse Mobilität aufweisen können.

### Natürliche Zerfallsreihen – $^{210}\text{Pb}$

Vergleichbar den Profilen der Fichtenwaldböden weisen auch die untersuchten erzgebirgischen Hochmoorböden eine charakteristische  $^{210}\text{Pb}$ -Tiefenverteilung auf. Diese ist ebenfalls durch den atmosphärischen Eintrag von freiem  $^{210}\text{Pb}$  und die Deposition organischen und anorganischen Materials, sowie das Migrationsverhalten und den Zerfall des  $^{210}\text{Pb}$  geprägt. Im Unterschied zu den Waldprofilen wirkt sich jedoch die vom  $^{238}\text{U}$ -Gehalt des Untergrundgesteins bestimmte geogene  $^{210}\text{Pb}$ -Komponente in den oberflächennahen Schichten und im Torfkörper, von den tiefsten Bereichen abgesehen, wenn überhaupt, nur geringfügig aus.

Der atmosphärische  $^{210}\text{Pb}$ -Eintrag wird in dem Maximum der Tiefenverteilungen deutlich, das in den erzgebirgischen Hochmooren stets in der obersten Moorschicht liegt, und den mit der Tiefe sehr steil abfallenden Werten. Die Aktivitäten des freien  $^{210}\text{Pb}$  liegen v. a. in den oberen Schichten nur geringfügig unter dem gemessenen Gesamtwert, da die Aktivitäten des  $^{226}\text{Ra}$  bzw. seiner Folgenuklide vergleichsweise gering sind. Für das Harzmoor Radauer Born läßt sich aufgrund des unvollständigen Profils nicht definitiv feststellen, ob der höchste Wert in 19 ... 22 cm Tiefe das Maximum darstellt. Die spezifische  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivität dieser Schicht stimmt jedoch sehr gut mit den Werten der anderen Maxima überein (um 700 Bq/kg).  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitätsmaxima direkt unterhalb bzw. nahe der Torfoberfläche von Hochmooren wurden auch in Untersuchungen von z. B. Malmer u. Holm (1984), Appleby et al. (1988) und Lütt (1992) festgestellt. In weiten Bereichen des Torfkörpers sind sowohl der atmosphärische als auch der geogene Einfluß sehr gering, dementsprechend betragen hier die spezifischen  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten  $< 10$  Bq/kg bzw. liegen teilweise unter der Nachweisgrenze. Erst zum Untergrund hin steigen die Werte unterschiedlich stark wieder an.

Betrachtet man die Beträge und Tiefenverteilungen der Aktivitätskonzentrationen, so liegt zwar auch hier das Maximum jeweils in der obersten Moorschicht, aber im Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide sind die maximalen Werte wesentlich höher als in den beiden anderen Mooren. Wird ein konstanter Input und eine starke Immobilität des  $^{210}\text{Pb}$  vorausgesetzt, so sinken die Aktivitätskonzentrationen bei höherem Moornachstum, d. h. stärkerer Biomasseproduktion. Bei stark verringertem oder stagniertem Wachstum dagegen wird Pb stärker akkumuliert. Im Vergleich zu den Profilen des Kleinen Kranichsees und des Radauer Borns, wo lebende, rezent wachsende Moorbereiche beprobt wurden, wäre in den höheren  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen der oberflächennahen Schichten des Georgenfelder Hochmoors und der Schwarze Heide somit u. a. das veränderte Wachstumsverhalten dieser Moore sichtbar.

Wenngleich die atmosphärischen  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen prinzipiell von der umgebenden Landmasse, meteorologischen Bedingungen und der Jahreszeit abhängig sind (Kap. 2.1), ist doch zu erwarten, daß auch die speziellen lokalen klimatischen Bedingungen und der Zeitpunkt der Probennahme eine Auswirkung auf die Depositonsraten an den beprobten Standorten haben. Um eventuelle Eintragsunterschiede an den Standorten zu erkennen, wurden die Inventare des freien  $^{210}\text{Pb}$  berechnet. Im Vergleich zeigt sich zwar der höchste Wert für die Schwarze Heide, daraus lassen sich jedoch keine generellen Eintragsunterschiede an den Standorten ableiten, da sämtliche  $^{210}\text{Pb}$ -Inventare mehr oder weniger unvollständig sind. Dies liegt hauptsächlich an der schon erwähnten Schwierigkeit, die Lagerungsdichte der Bohrproben zu bestimmen und damit deren Teilinventare zu berechnen. Denn auch in den tieferen, unterhalb der Profilblöcke genommenen Proben, in denen  $^{210}\text{Pb}$  nachweisbar ist, kann ein

$^{210}\text{Pb}$ -Überschuß bestehen. Bestes Beispiel ist das Profil der Schwarzen Heide, wo freies  $^{210}\text{Pb}$  über den gesamten Moorkörper hinweg bestimmbar ist. Zudem sind die meist sehr geringen  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentrationen im Torf v. a. in Bohrproben geringer Massen schwer zu detektieren. Insbesondere bei den Untersuchungen, die auf dem Meßplatz P36 durchgeführt wurden, liegt die  $^{210}\text{Pb}$ -Nachweisgrenze relativ hoch, wie z. B. die Ergebnisse des Georgenfelder Hochmoors zeigen. Im Fall des Kleinen Kranichsees ist zudem nicht die gesamte Moormächtigkeit bei der Beprobung erfaßt worden. Angesichts der vergleichsweise geringen Halbwertszeit des  $^{210}\text{Pb}$ , im Gegensatz zu dem hohen Alter der Moore von einigen tausend Jahren, legt der Nachweis von freiem  $^{210}\text{Pb}$  in größerer Tiefe eine gewisse Beweglichkeit des Nuklids in den entsprechenden Mooren nahe. Auch der geogene Einfluß ist, v. a. in den Torfschichten nahe des Untergrunds, nicht zu vernachlässigen. Ob hier ein nach oben gerichteter Transport stattfindet und welche Reichweite er hat, ist den Tiefenverteilungen nicht zu entnehmen.

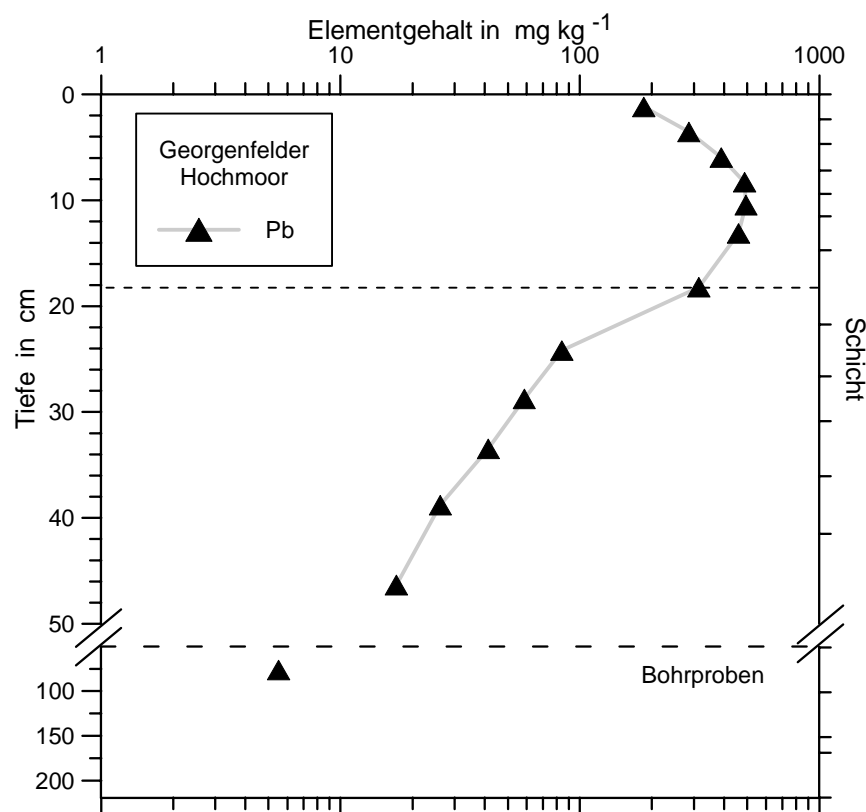


Abb. 69: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenverteilung der Pb-Gehalte (s. Anhang E.2).

Der Übergangsbereich Vererdungshorizont – Torfhorizont in etwa 18 cm Tiefe ist durch eine gestrichelte Linie angedeutet.

Im Vergleich der Tiefenverteilung des  $^{210}\text{Pb}$  mit der von stabilem Pb (Anhang E.2 u. Abb. 69) werden die Auswirkungen der oben genannten Einflußgrößen (atmosphärische Deposition und Zerfall des  $^{210}\text{Pb}$ , geogener Einfluß) deutlich. Während das sehr scharfe Maximum des kontinuierlich aus der Atmosphäre eingetragenen  $^{210}\text{Pb}$  in der obersten Moorschicht bis etwa 2 cm liegt (Abb. 47), ist das breiter angelegte Maximum des stabilen Pb erst in etwa 10 cm Tiefe zu finden (Abb. 69). Anstieg und Abfall der Pb-Kurve sind vergleichsweise flach. Die Lage bzw. Form des Maximums von stabilem Pb weisen sowohl auf anthropogene Quellen hin als auch auf einen eventuellen Einfluß der höheren Anteile mineralischer Substanz in den entsprechenden Moorschichten auf die Pb-Akkumulation (s. Glühverlust und TOC, Anhang E.2, Tabelle E.5; vgl. Shotyk et al. 1996). In dem steilen Abfall der  $^{210}\text{Pb}$ -Verteilung dagegen ist, unter der Voraussetzung geringer Mobilität, der Zerfall des Nuklids zu erkennen. Unterhalb des Maximums sinkt der Gehalt des stabilen Pb kontinuierlich mit der Tiefe im gesamten Torfkörper. Dies könnte, unter Berücksichtigung der zu erwartenden Alter tieferer Moorschichten (vgl. Kap. 7.3; Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Bozau 1995; Stebich 1995), eine gewisse Be-

weglichkeit (aktuell oder in der Vergangenheit) des Pb an diesem Standort implizieren. Vergleicht man allerdings den Wert der obersten Bohrprobe (5.5 mg/kg) mit den Pb-Gehalten, welche Shotyk et al. (1996, 1998) in den Profilen eines ombrogenen Hochmoors (Juragebirge, Schweiz) bestimmten und historisch belegten Emissionen zuordnen, so zeigt sich, daß der Wert zwischen den Pb-Konzentrationen liegt, die dem atmosphärischen Eintrag durch römische Bergbau- und Verhüttungsaktivitäten zugeschrieben werden, und denen älterer Torfschichten, die nur von Bodenstaubaerosolen (z. B. als Folge natürlicher Gesteinsverwitterung) herrühren. Der hier beobachtete Verlauf der Pb-Gehalte mit der Tiefe könnte somit durchaus einzig auf atmosphärischem Eintrag und anschließender Fixierung des Schwermetalls basieren.

Die Werte des Pb steigen, im Gegensatz zu denen des  $^{210}\text{Pb}$ , zum Untergrund hin nicht an. In den beiden tiefsten Bohrproben liegt der Pb-Gehalt unter der Nachweisgrenze von 5 mg/kg, so daß hier ein, zumindest weitreichender, geogener Einfluß auf die Gehalte im Torfkörper ausgeschlossen werden kann. In einem von Bozau (1995) nahe der hier beprobten Stelle im Georgenfelder Hochmoor entnommenen Moorkern (Entnahme mittels Torfbohrer; Endtiefe ebenfalls ca. 220 cm) steigen die Pb-Gehalte unterhalb von 190 cm zum Mooruntergrund hin nochmals leicht an (von 2 mg/kg auf max. 10 mg/kg). Den Untersuchungen liegen allerdings wesentlich kleinere Bohrkernabschnitte von 5 cm zugrund, woraus sich eine höhere Auflösung der Verteilung ergibt. Die Sedimente < 180 cm werden in diesem Profil als geogen beeinflusst charakterisiert (Bozau 1995).

Bindungsformen und Löslichkeitsverhalten des Pb sind stark vom pH-Wert und der stofflichen Zusammensetzung des Bodens beeinflusst. Wie in Kap. 6.2 dargelegt, nimmt die Löslichkeit des ansonsten sehr immobilen Pb bei niedrigen pH-Werten (< 4 ... 4.5) zwar zu, hohe Gehalte organischer Substanz schwächen diesen Effekt jedoch wieder deutlich ab (Herms u. Brümmer 1980, 1984). In Hochmooren sind Gehalte an organischer Substanz von bis nahezu 100 % zu erwarten. Dies wird durch die Analysen der Bodenschichten bis 50 cm des Georgenfelder Hochmoors bestätigt: Die Glühverluste (600°C und 1000°C) in den Proben betragen über 89 % und nehmen mit der Tiefe auf nahezu 100 % zu (Anhang E.2, Tabelle E.5). Die Gehalte organischen Kohlenstoffs (TOC), welche in diesen carbonatfreien Proben den Gesamtkohlenstoffgehalten (TC) entsprechen, liegen bei 48 ... 53 %. Laut AG Boden (1994) errechnet sich für Torfe der Gehalt der organischen Substanz aus dem organischen Kohlenstoffgehalt annäherungsweise über den Faktor 2 (vgl. Kap. 3.2.2). Aus den gemessenen TOC-Werten lassen sich hier somit Gehalte der organischen Substanz von etwa 90 ... 95 % in den oberflächennahen, anthropogen überprägten und teilweise mineralisierten Schichten bzw. dem Vererdungshorizont und von nahezu 100 % im darunterliegenden Torf abschätzen (diese Werte stimmen wiederum tendenziell gut mit den Gehalten organischer Substanz überein, welche sich aus den Glühverlusten ergeben). Zudem sind Hochmoore reich an Huminstoffen, welche eine große Bindungskapazität für Pb aufweisen (vgl. Corrin u. Natusch 1979; Zimdahl u. Hassett 1979; Sheppard u. Evenden 1988; Schachtschabel et al. 1992). Wie im Zusammenhang der Verteilungen von U- und Th-Isotopen der natürlichen Zerfallsreihen diskutiert, bilden sich schwerlösliche metallorganische Komplexe hoher Stabilität, wobei deren Bildung unter reduzierenden Bedingungen, im Vergleich zu oxidierendem Milieu, noch verstärkt ist.

Auch Wandtner u. Lötschert (1980) fanden bei der Untersuchung von *Sphagnum*-Polstern und den darunterliegenden Torfschichten verschiedener Hochmoore des Nationalparks Bayerischer Wald einen Anstieg des stabilen Pb von den lebenden, grünen Moosabschnitten zu den älteren; dieser Trend setzt sich in den folgenden, oberen Torfschichten (bis etwa 15 cm; Maximum) fort, mit größerer Tiefe nehmen die Gehalte im Torf wieder ab. Der Anreicherungshorizont wird einerseits mit dem Vorhandensein besonders stabiler Huminstoff-Schwermetall-Komplexe erklärt, andererseits mit einem geringen Gehalt an Fulvosäuren, welche eine Remobilisierung der Schwermetalle aus den Komplexen bewirken könnten (Wandtner u. Lötschert 1980). Der genannte Erklärungsansatz wird eventuell durch die zuvor diskutierten Schlußfolgerungen von Dalitz u. Jensen (1994) unterstützt, die von einer steten Zufuhr niedermolekularer, mobiler Fulvosäuren aus den obersten, geringer humifizierten Torfschichten der Vermoorungen ausgehen. Hierbei ist anzumerken, daß sich die Autoren beider Arbeiten auf dieselbe Referenz, Rump et al. (1977), stützen (s. o. Diskussion der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen).

Ein direkter Vergleich der von Wandtner u. Lötschert (1980) und Dalitz u. Jensen (1994) beprobten Moorstandorte ist allerdings aufgrund beschränkter Informationen, u. a. zur Torfansprache, nicht möglich, so daß nicht gesichert ist, ob z. B. jene Torfschichten, denen in den beiden Publikationen jeweils höhere bzw. geringere Gehalte an Fulvosäuren zugeschrieben werden, bezüglich ihres Humifizierungsgrads vergleichbar sind (obwohl dies anzunehmen ist). In *Sphagnum*-Torfen finnischer Hochmoore konnte ebenfalls ein Pb-Anreicherungs-horizont (in etwa 20 ... 50 cm Tiefe) bestimmt werden; es wird dabei angemerkt, daß ein Zusammenhang zwischen Pb-Konzentrationen und Humifizierungsgrad des Torfes nicht festgestellt werden konnte (Pakarinen u. Tolonen 1977). Pietsch (1980) untersuchte in Straßennähe beprobte *Sphagnum*- und Torfprofile aus vier verschiedenen Mooren der damaligen DDR, und fanden, daß bei einem Großteil der Proben der Gehalt an Pb, Cd, Fe und Cu in dem eigentlichen Torfsubstrat höher ist als in den lebenden Torfmoosrasen.

Generell sind bei dem Vergleich verschiedener Ergebnisse und Erklärungsansätze Unterschiede in der Untersuchungsmethodik sowie das komplexe Zusammenspiel der Standortfaktoren (wie Niederschläge, Moorwachstum, Zusammensetzung der Vegetation, Torfbeschaffenheit) zu beachten. So wirken sich beispielsweise die jeweiligen Redoxverhältnisse stark auf die Pb-Mobilität aus: In reduzierendem Milieu ist die Beweglichkeit des Pb prinzipiell noch geringer als unter oxidierenden Bedingungen (Reimann u. Caritat 1998). Die Untersuchungen von Dalitz u. Jensen (1994) an Bult- und Schlenkenstandorten ombrogener Hochmoore des Harzes verdeutlichen den Einfluß eines wechselnd aeroben-anaeroben Milieus (und damit wechselnder oxidierender und reduzierender Bedingungen) durch Wasserspiegelfluktuations auf die vertikale Pb-Verteilung. Die Profile verschiedener Untersuchungsjahre variieren und legen eine Abhängigkeit des Pb-Maximums vom Wasserstand nahe. In früheren Untersuchungen stabiler Elemente in skandinavischen Hochmooren schreibt Damman (1978) dem wechselnden Wasserstand ebenfalls eine wesentliche Rolle in der Akkumulation verschiedener Schwermetalle (Fe, Al, Zn, Pb) zu. Die Ergebnisse verweisen auf eine Rückhaltung von Ca, Al, Fe, Mn Pb und Zn in den trockeneren Bulten, die Akkumulation von Fe, Al, Zn und Pb in der Zone der Wasserspiegelschwankungen und Verluste aller Elemente unterhalb des Moorwasserspiegels (Damman 1978). Gegen eine verstärkte Pb-Mobilität durch Wasserstandsänderungen in torfmoosdominierten Hochmoorprofilen dagegen sprechen die experimentellen Untersuchungen von Vile et al. (1999). Die Autoren schließen, daß Pb aufgrund seiner starken Assoziation mit organischem Bodenmaterial in *Sphagnum*-Torf selbst unter dem Einfluß eines fluktuierenden mooreigenen Wasserspiegels weitgehend immobil ist. In diesem Zusammenhang wird auch darauf hingewiesen, daß die Kationenaustauschkapazität von Torf mehrere Größenordnungen über der von Waldboden liegt und somit generell eine sehr starke Bindung von Schwermetallkationen an der Torfsubstanz erwartet werden kann.

Wie die Untersuchungen und der Literaturvergleich zeigen, sind die Profile sowohl des  $^{210}\text{Pb}$  als auch des stabilen Pb zudem von der Zusammensetzung der Vegetation beeinflusst. Schwermetalle reichern sich in höheren und niederen Pflanzen in sehr unterschiedlichem Maße an, z. B. Cu, Pb und Zn stärker in Laub- und Lebermoosen, Mn stärker in höheren Pflanzen (vgl. Wandtner u. Lötschert 1980). Als Ursachen der unterschiedlichen Anreicherung werden neben Abweichungen in der Oberflächengröße und -gestaltung die verschiedenen Aufnahme- und Rückhalte-mechanismen für Schwermetalle angesehen. Für die Pb-Gehalte der Pflanzen ist in der Regel die Pb-Anreicherung in oder auf oberirdischen Pflanzenteilen durch Deposition aus der Luft von wesentlich größerer Bedeutung als die Pb-Aufnahme aus dem Boden (Schachtschabel et al. 1992). In skandinavischen Hochmooren stellte Damman (1978) eine Anreicherung von K, N und P in den Wachstumsspitzen der Torfmoose im Vergleich zu den darunterliegenden 5 cm Pflanze und dem Torfkörper fest; nicht oder nur ansatzweise konnte dieser Effekt für Mg, Na, Ca, Al, Mn, Pb, und Zn gefunden werden. Pakarinen u. Tolonen (1977) und Pakarinen (1978a) schlossen aus ihren Untersuchungen an Torfprofilen finnischer Hochmoore, daß die *Sphagnum*-Pflanzen Pb nicht aktiv aus dem organischen Substrat aufnehmen.



### Natürliche Radionuklide – Kalium ( $^{40}\text{K}$ )

Die  $^{40}\text{K}$ -Tiefenprofile ermöglichen einen Einblick in die Nährstoffverteilung in den Hochmoorböden. Prinzipiell sind Hochmoore nährstoffarme Standorte mit niedrigen K-Konzentrationen (Göttlich 1990). Die spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten der Vegetations- und Torfproben der hier untersuchten Profile liegen meist weit unter 80 Bq/kg (ca. 0.26 % K) und sind damit z. B. zumeist auch deutlich kleiner als die Werte der Oh- und Ah-Horizonte der untersuchten Fichtenwaldböden. Die höchsten Aktivitäten weisen erwartungsgemäß die von der rezenten Vegetation beeinflussten Bereiche der Moore auf (Ausnahme: geogen beeinflusste Torfschichten, s. u.). Auch in über 4 m mächtigen Torfen skandinavischer Hochmoore konnte der Anteil der oberen 5 cm an der K-Gesamtmasse im Profil zu etwa 10 % bestimmt werden (Damman 1978). Als eine wesentliche Einflußgröße für die Anreicherung des Nährstoffs in den obersten Moorbereichen sind dabei die über die Vegetation kontinuierlich ablaufenden Aufnahme- und Rücklösungsprozesse anzusehen (vgl. Kap. 6.2).

Die spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten der hauptsächlich aus den Wachstumsspitzen der Torfmoose bestehenden obersten Beprobungsschicht der Profile aus dem Kleinen Kranichsees und dem Radauer Born (bis 1 cm bzw. 3 cm Tiefe) betragen knapp 80 Bq/kg; für die reine Torfmoosprobe aus dem Kleinen Kranichsee konnte ein Wert um 100 Bq/kg bestimmt werden (Tabelle 23; rezente Torfmoosabschnitte von *Sphagnum rubellum* und *Sphagnum fallax*). Diese Aktivitäten liegen in der Größenordnung der aus den K-Gehalten errechneten  $^{40}\text{K}$ -Werte entsprechender Torfmoospezies skandinavischer und norditalienischer Hochmoore (Damman 1978; Pakarinen 1978b; Malmer 1988; Gerdol et al. 1994). In den genannten Untersuchungen wurden die K-Verteilungen in hauptsächlich *Sphagnum*-dominierten Torfprofilen oder entlang der Torfmoospflanzen selbst bestimmt. Die höchsten K-Konzentrationen befinden sich dabei in den jüngsten Pflanzenteilen bzw., sofern einzeln beprobt, in den Torfmoosköpfchen – z. B. nach Pakarinen (1978b) bis zu 230 Bq/kg in den grünen Segmenten des in Schlenken(randbereichen) wachsenden *Sphagnum balticum*. Malmer (1988) führt deutliche Variationen der Gehalte auf die geographische Lage (innerhalb Skandinaviens) zurück: Die K-Werte nehmen von Nord nach Süd und von der Küste zum Inland hin ab.

Die von Gefäßpflanzen dominierten Vegetationsschichten der Schwarzen Heide und des Georgenfelder Hochmoors weisen spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten von etwa 70 Bq/kg und 45 Bq/kg auf. Die K-Gehalte der oberirdischen Pflanzenteile des Moorbewuchses können generell sehr stark voneinander abweichen. Die Werte der Blätter des im Kleinen Kranichsee beprobten Scheidigen Wollgrases (*Eriophorum vaginatum*) liegen bei 220 Bq/kg (Tabelle 23). Damman (1978) bestimmte für Scheidiges Wollgras etwa 1.5mal größere K-Werte als für Heidekraut (*Calluna vulgaris*) (umgerechnet ca. 190 Bq/kg im Vergleich zu 125 Bq/kg). Auch ein Einfluß des jeweiligen Beprobungszeitpunkts ist denkbar (Schwarze Heide Ende August – Georgenfelder Hochmoor Ende Oktober). Dies bestätigt sich prinzipiell in Untersuchungen von Coughtrey et al. (1989b) auf Graslandflächen im Hochland von Cumbria (England; untersucht wurden Vegetation und Bodenprofile): Die K-Gehalte der Pflanzenspezies variieren stark, wobei Lokalitäten höherer Bodenvernässung tendenziell niedrigere K-Gehalte aufweisen und zudem ein Jahresgang der K-Konzentrationen festzustellen ist.

In den Profilen des Kleinen Kranichsees und des Radauer Borns sinken die  $^{40}\text{K}$ -Werte zum schwach bis mittel humifizierten Torf hin steil ab und liegen darunter im Bereich bis 20 cm konstant bei etwa 20 ... 25 Bq/kg. Die Verteilungen sind denen der skandinavischen Torfprofile vergleichbar (z. B. Damman 1978). Die Profile der anthropogen überprägten Moore dagegen weisen keinen derartigen Abfall der  $^{40}\text{K}$ -Verteilung in den oberen Moorschichten auf. Hier spiegeln die Tiefenverläufe die unterschiedliche Ausprägung der Vererdungshorizonte wider, die in beiden Mooren die ersten 20 cm umfassen. Im oberflächennahen, die Rasennarbe umschließenden Bereich des Profils Schwarze Heide sind die  $^{40}\text{K}$ -Werte relativ konstant (0 ... 7 cm; um 67 Bq/kg) und fallen in den darunterliegenden erdigen Torfabschnitten kontinuierlich ab. Im Profil des Georgenfelder Hochmoors fällt eine K-Akkumulation an der Unterkante des Vererdungshorizonts auf (Probe 7a:  $66 \pm 1$  Bq/kg); die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität der schwarzen, stark zersetzten Torfe übertrifft auch noch das Maximum in der obersten Moorschicht, während die Werte im Bereich dazwischen relativ konstant sind (um 33 Bq/kg).

Diese von neuerlicher Bodenbildung (Humifizierung und Mineralisierung) betroffenen Torfbereiche sind zudem rezent durchwurzelt. Der höhere Anteil an Gefäßpflanzen resultiert in den anthropogen überprägten Hochmooren in einer stärkeren und tieferen Durchwurzlung als in den Profilen des Kleinen Kranichsees und des Radauer Borns. Sämtliche rezent durchwurzelte Schichten weisen höhere  $^{40}\text{K}$ -Werte auf als die Torfproben tiefergelegener Bereiche (vgl. Georgenfelder Hochmoor). Wie z. B. die vergleichsweise hohe spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität der Wurzeln des im Kleinen Kranichsee beprobten Scheidigen Wollgrases verdeutlicht (Tabelle 23), ist zu erwarten, daß v. a. derartig starkwurzelnende Pflanzen die K-Gehalte der durchwurzelten Moorschichten beeinflussen.

Betrachtet man darüber hinaus die von der Lagerungsdichte des Bodenmaterials abhängigen Aktivitätskonzentrationen, und damit das Speichervermögen der jeweiligen Bodenkompartimente, so zeigt sich eine deutliche Abnahme der  $^{40}\text{K}$ -Werte in den oberflächennahen Schichten in der Reihenfolge Schwarze Heide > Georgenfelder Hochmoor > Kleiner Kranichsee > Radauer Born.

Zum Torf hin sinken die spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten mehr oder weniger steil ab. Besonders im Georgenfelder Hochmoor ist ein sehr abrupter Abfall an der Untergrenze des Vererdungshorizonts festzustellen. Im Torfkörper betragen die Werte < 3 Bq/kg. Zeitz (1997) gibt den mittleren K-Gehalt von Hochmoortorf mit < 0.05 %  $\text{K}_2\text{O}$  an, was einer spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivität von < 13 Bq/kg entspricht. Torfproben skandinavischer Hochmoore wiesen umgerechnet  $^{40}\text{K}$ -Werte von  $(12 \pm 9)$  Bq/kg (Malmer 1988) bzw. < 10 Bq/kg (Damman 1978) auf. Der charakteristische steile Abfall der K-Gehalte in den Moorprofilen wird damit erklärt, daß K ein sehr bewegliches Element ist und leicht aus totem und lebendem Pflanzengewebe ausgewaschen wird (Tukey 1970; Damman 1978; vgl. Kap. 6.2).

Sofern die Beprobung tief genug durchgeführt wurde, sowie in Abhängigkeit von der Geologie, können auch die an der Basis des Moores liegenden Schichten erhöhte  $^{40}\text{K}$ -Werte aufweisen. Die spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität der tiefsten Bohrprobe aus der Schwarzen Heide liegt bei > 200 Bq/kg (Kernlänge ca. 23 cm). Diese Probe umfaßt einen Holz- und einen Schluffhorizont an der Basis des Moorkörpers. Der Wert der darüberliegenden Probe (oberer Abschnitt desselben Bohrkerns, Kernlänge ebenfalls 23 cm) dagegen beträgt nur etwa 8 Bq/kg. Eine dem letzteren Wert vergleichbare Aktivität konnte für die tiefste Bohrprobe des Georgenfelder Hochmoors (Kernlänge 50 cm) bestimmt werden. Aus den Angaben zur chemischen Zusammensetzung osterzgebirgischer Quarzporphyre nach Nebe (1964, 1970) ergibt sich für den  $\text{K}_2\text{O}$ -Gehalt (in Masse-%) des Teplitzer Quarzporphyrs ein arithmetisches Mittel von  $5.4 \pm 1.2$  ( $n = 16$ ), woraus sich eine spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität von  $(1380 \pm 320)$  Bq/kg errechnet; die hier gemessene Georgenfelder Gesteinsprobe liegt mit  $(1330 \pm 7)$  Bq/kg sehr gut innerhalb des Variationsbereichs dieser Werte. Aus den entsprechenden  $\text{K}_2\text{O}$ -Literaturwerten für Graue Gneise (Nebe 1964, 1970) ergibt sich ein Mittelwert von  $4.04 \pm 0.62$  ( $n = 23$ ) bzw. eine spezifische  $^{40}\text{K}$ -Aktivität von  $(1040 \pm 160)$  Bq/kg. Daraus können auch höhere K-Gehalte für den Gesteinszersatz abgeleitet und somit der deutlich erhöhte  $^{40}\text{K}$ -Wert der tiefsten Bohrprobe des Profils Schwarze Heide, deren geologischer Untergrund diesem Grundgesteinstyp zuzuordnen ist, erklärt werden.

### Kosmogene Radionuklide – Beryllium ( $^7\text{Be}$ )

Das kosmogen erzeugte  $^7\text{Be}$  ist nur in den oberen Moorschichten nachweisbar. Den Tiefenverteilungen in Fichtenwaldböden vergleichbar, sind die spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten maximal in der Oberflächenprobe, welche hier die lebenden Pflanzenteile der entsprechend dem Standort unterschiedlich zusammengesetzten rezenten Vegetation (inkl. Torfmoose) umfaßt. Das Nuklid ist in den Moorböden bis in Tiefen von maximal 5 ... 12 cm nachweisbar und damit tiefer als in den Waldbodenhorizonten (max. 2 ... 5 cm; vgl. Kap. 6). An den Beprobungspunkten rezent wachsender Torfmoose im Kleinen Kranichsee und dem Radauer Born ist  $^7\text{Be}$  tiefer migriert (bis 10 cm bzw. 12 cm) als an den beiden vergleichsweise trockeneren Standorten stagnierten Moorwachstums (max. 7 cm). Es kann davon ausgegangen werden, daß  $^7\text{Be}$  in dem Harzmoor sogar noch tiefer gewandert war, in tieferen Proben jedoch nicht mehr nachgewiesen werden konnte; dieses Profil wurde erst nach über zwei  $^7\text{Be}$ -Halbwertszeiten gemessen und umfaßt zudem nur kleine Probenmengen sehr geringer Trockendichten (*Sphagnum*!).

Eine Erklärung für die beobachteten Unterschiede könnte sein, daß das mit dem Niederschlag vor-

wiegend gelöst eingetragene  $^7\text{Be}$  in den Tiefenbereichen lebender Torfmoospflanzen und schwach humifizierten Torfes (anfänglich) mobiler ist als in den vergleichsweise stärker umgewandelten, verdichteten und durchwurzelter oberen Bodenschichten des Georgenfelder Hochmoors und der Schwarzen Heide. Für letztere Böden ist eine größere spezifische Oberfläche bzw. höhere potentielle Kationenaustauschkapazität zu erwarten – und damit auch eine stärkere Fixierung des Be, welches aufgrund seiner hohen Ladungsdichte eine starke Affinität für Kationenaustauschplätze sowohl organischer als auch mineralischer Substanz aufweisen sollte (vgl. Kap. 6.2). Ein Vergleich der Trockenlagerungsdichten zeigt, daß die Dichten der anthropogen überprägten Schichten bzw. der Vererdungshorizonte im Moorboden denen der Oh- und Ah-Horizonte geringerer Dichte entsprechen (Abb. 68 u. zugehöriger Text). Auch in letztgenannten Waldbodenhorizonten, die ebenfalls hohe spezifische Oberflächen besitzen, erscheint Be von geringerer Beweglichkeit, wie die Ergebnisse in Kap. 6.1 deutlich machen.

Eine weitere Ursache für eine eventuell höhere Be-Mobilität, v. a. in den Torfschichten ungestörter, rezent wachsender ombrogener Hochmoore, könnte die wesentlich stärkere Vernässung der Hochmoorböden im Vergleich zu den Waldböden sein. Verwendet man testweise die  $^7\text{Be}$ -Meßwerte ähnlich denen des  $^{210}\text{Pb}$  zur Datierung der Torfschichten unter Annahme von Immobilität des  $^7\text{Be}$  und einer konstanten Inputrate (vgl. CRS-Datierungsmodell, Kap. 3.1.4 u. Kap. 7.3), so erhält man erwartungsgemäß viel zu geringe Alter. Die  $^7\text{Be}$ -Verteilung wird hier somit primär durch Migrationsprozesse und den radioaktiven Zerfall bestimmt. Das Ausmaß der Festlegung des Nuklids im Boden ist dabei stark abhängig von Faktoren wie dem Moortypus, der Torfart und dem Humifizierungsgrad des Torfes sowie der Entwicklungsgeschichte des Moores (inkl. anthropogener Einflüsse und daraus resultierender Veränderungen der Moorcharakteristika).

Des weiteren ist der standortspezifischen Vegetation (Gefäßpflanzen, Moose) eine Rolle in Transfer und Festlegung der Aktivitäten zuzuschreiben; denkbar sind sowohl die Absorption des wasserlöslichen Elements über die Pflanzenoberflächen (v. a. Blattoberflächen) als auch die Wurzelaufnahme, gefolgt von entweder Speicherung oder weiterer Verlagerung (vgl. Kirchman et al. 1993). Wie die Meßergebnisse der Wollgrasproben aus dem Kleinen Kranichsee zeigen (Tabelle 23), ist  $^7\text{Be}$  auch im Wurzelstock (und in sehr geringem Maße evtl. auch in den Wurzeln) nachweisbar; obwohl diese Pflanzenproben vor dem Trocknen unter fließendem Wasser gereinigt worden waren, ist nicht eindeutig, ob die verbliebenen, gemessenen Aktivitäten von in die Pflanzen aufgenommenem oder an der Oberfläche adsorbiertem  $^7\text{Be}$  herrühren. Generell ist die relativ kurze Halbwertszeit des  $^7\text{Be}$  als ein zeitlich beschränkender Faktor jeglicher Transportprozesse, sowohl im Boden als auch in der Vegetation, zu berücksichtigen.

Prinzipiell wird die  $^7\text{Be}$ -Depositionsrate von jahreszeitlichen Schwankungen und den klimatischen Bedingungen bestimmt (Kap. 2.2). Es ist zu erwarten, daß zudem die Beschaffenheit der Bodenoberfläche und der bedeckenden Vegetation einen großen Einfluß auf die  $^7\text{Be}$ -Adsoption ausübt und daß die von der Vegetation „ausgekämmten“ Aktivitäten insbesondere von der Artenzusammensetzung und Altersstruktur, und damit von der Größe und Oberfläche (z. B. Rauigkeit) der Blätter abhängig sind (vgl. Kap. 6.2). In Untersuchungen verschiedener Boden- und Marschlandprofile (Virginia und Tennessee, USA) beobachteten Olsen et al. (1985), daß  $^7\text{Be}$  an Beprobungspunkten, die Bewuchs aufweisen, tiefer in den Boden eingedrungen war und daß diese Lokalitäten höhere  $^7\text{Be}$ -Inventare aufwiesen, welche eher den gemessenen atmosphärischen Eintragungswerten entsprachen. Die Autoren schließen auf einen starken Einfluß sowohl des Vorhandenseins von Vegetation als auch der jeweiligen Wasserstände auf die entsprechenden Tiefenverteilungen und Inventare des  $^7\text{Be}$ . Drissner (1991) folgert aus der gemessenen spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivität von Brombeerblättern (Altdorfer Wald), daß  $^7\text{Be}$  an den Blättern „besonders gut haftet“, möglicherweise aufgrund der feinen Haare auf der Blattoberfläche.

Dieser Fragestellung folgend, sind in Tabelle 20 und Tabelle 21 die maximalen spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten und die errechneten  $^7\text{Be}$ -Gesamtinventare der untersuchten Moor- und Waldbodenprofile, sowie Untersuchungsergebnisse an Nadel- und Blattproben zum Vergleich zusammengestellt. Die spezifischen  $^7\text{Be}$ -Aktivitäten der Oberflächenproben liegen im Bereich 110 ... 680 Bq/kg (Moor, rezente Vegetation) bzw. 170 ... 460 Bq/kg (Wald, Streulage L). Die Gesamtinventare betragen etwa 200 ... 630 Bq/m<sup>2</sup> (Moor) bzw. 280 ... 720 Bq/m<sup>2</sup> (Wald). Während die Gesamtinventare der Wald-

bodenprofile stark variieren, liegen die Werte der Moorstandorte, mit Ausnahme des Georgenfelder Hochmoors (ca. 200 Bq/m<sup>2</sup>), bei etwa 600 Bq/m<sup>2</sup> (und damit ebenfalls in der Größenordnung der von Olsen et al. (1985) ermittelten <sup>7</sup>Be-Inventare; Kap. 6.2).

Es ist vorstellbar, daß – zusätzlich zur exponierten Höhenlage – auch die hohe Anzahl an Nebeltaugen über den Hochmoorflächen (vgl. Anhang C.2) für vergleichsweise hohe <sup>7</sup>Be-Inventare sorgen. Ein direkter Zusammenhang zwischen der Struktur der Bodenoberflächen (inkl. Vegetation bzw. Streu; vgl. Ansprachen) und den spezifischen <sup>7</sup>Be-Aktivitäten bzw. den Inventaren ist jedoch nicht feststellbar. Allerdings weisen sowohl die Torfmoosprobe aus dem Kleinen Kranichsee als auch die oberste Beprobungsschicht des dort entnommenen Profils relativ hohe spezifische <sup>7</sup>Be-Aktivitäten auf – um 750 Bq/kg im Vergleich zu 680 Bq/kg (Werte zerfallskorrigiert auf das jeweilige Probandatum, 28.9.1997 und 11.7.1996, Proben ungewaschen untersucht; Tabelle 20 u. Tabelle 23) – und eine verstärkte <sup>7</sup>Be-Adsorption an den stark verzweigten Oberflächen der Köpfchen und Stämmchen und der feingliedrigen Struktur mit folglich großer Gesamtoberfläche von Torfmoospolstern ist nicht auszuschließen. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit des <sup>7</sup>Be wäre auch eine sichtbare Auswirkung der jahreszeitlichen Schwankungen des Inputs auf die maximalen spezifischen Aktivitäten oder auch das aktuelle Bodeninventar denkbar. Eine Abhängigkeit der Werte von dem jeweiligen Probennahmedatum ist ebenfalls nicht ersichtlich. Offen bleibt mit den hier durchgeführten Untersuchungen auch die Frage, ob <sup>7</sup>Be nur oberflächlich adsorbiert oder in die Pflanze aufgenommen wird. Umfangreiche Messungen an ungewaschenem und mit Wasser oder EDTA gewaschenen Erlenblättern zeigten jedoch eine deutliche Reduktion der spezifischen <sup>7</sup>Be-Aktivitäten nach den Waschdurchgängen (C. Brackhage, TU Dresden, pers. Mitt. 1999).

Die Kenntnis der Zusammenhänge zwischen <sup>7</sup>Be-Deposition und vertikaler bzw. horizontaler <sup>7</sup>Be-Verteilung im Boden ist von großem Interesse v. a. im Hinblick auf innovative Anwendungsmöglichkeiten, welche sich in den vergangenen Jahren in der Geoökologie und Landschaftsökologie – im besonderen der Bodenerosionsforschung – eröffnet haben (z. B. Wilson et al. 2003).

### Künstliche Radionuklide

Trotz unterschiedlicher Bindungsformen, Mobilisierungs- und Retentionsmechanismen weisen die Tiefenverteilungen der künstlichen RN <sup>125</sup>Sb, <sup>241</sup>Am, <sup>238</sup>Pu und <sup>239,240</sup>Pu, ähnlich den Profilen der untersuchten Fichtenwaldböden, in den Hochmooren deutliche Peaks auf. Die vertikalen Verteilungen des Cs dagegen weichen in den Mooren von diesem Schema ab. Bezüglich des tendenziellen Verlaufs und der Lage der Maxima stimmen die Tiefenverteilungen der spezifischen Aktivitäten mit denen der Aktivitätskonzentrationen (letztere ohne Vegetationsschicht) für die einzelnen RN gut überein (Ausnahmen sind jeweils vermerkt). Wie in Kap. 6 liegen der vergleichenden quantitativen Diskussion für <sup>125</sup>Sb, <sup>134</sup>Cs und <sup>137</sup>Cs die auf den 1.5.1986 zerfallskorrigierten Werte als einheitliche Bezugsbasis zugrunde.

### Antimon (<sup>125</sup>Sb), Americium (<sup>241</sup>Am) und Plutonium (<sup>238</sup>Pu, <sup>239,240</sup>Pu)

Die Maxima von <sup>125</sup>Sb, <sup>241</sup>Am und den Pu-Isotopen sind in den Moorprofilen zumeist in unterschiedlichen, mehr oder weniger gut voneinander differenzierbaren Tiefen zu finden. Vor allem im Profil Kleiner Kranichsee sind die Peaks gut aufgelöst sichtbar (Abb. 61). Die meist scharf ausgeprägte Form der Peaks ist ein Indiz dafür, daß Sb, Am und Pu im Torf weitgehend immobil sind. Die Annahme eines Zusammenhangs zwischen Peakposition und dem Jahr des maximalen Inputs der jeweiligen RN ist naheliegend und wird in Kap. 7.3 u. a. im Kontext einer <sup>210</sup>Pb-Datierung der Schichten diskutiert.

Die maximalen spezifischen Aktivitäten (und auch Aktivitätskonzentrationen) variieren zwischen den Standorten teilweise sehr stark. Den höchsten <sup>125</sup>Sb-Wert weist das Profil Georgenfelder Hochmoor auf, den des <sup>241</sup>Am die Schwarze Heide (im Maximum, zum Vergleich zerfallskorrigiert auf den 1.5.1986; ebenso  $A_{konz}$ ). Diese Tendenzen finden sich auch in den Inventaren wieder (vgl. Tabelle 25). Die <sup>125</sup>Sb- und <sup>241</sup>Am-Tiefenverteilungen des Radauer Borns sind nicht vollständig erfaßt und können somit nur bedingt zum Vergleich herangezogen werden. Ob der untersuchte Tiefenabschnitt das <sup>125</sup>Sb-

Maximum einschließt, ist anhand der Werte nicht zu klären.

Die Tiefenbereiche, in denen die RN nachweisbar sind, unterscheiden sich ebenfalls deutlich. Während sich die  $^{125}\text{Sb}$ -Verteilungen in den erzgebirgischen Hochmooren bis maximal 13 cm erstrecken, beginnt im Radauer Born das  $^{125}\text{Sb}$ -Profil erst in vergleichbarer Tiefe. Dieselbe Sonderstellung nimmt das Harzmoor auch in der Verteilung des  $^{241}\text{Am}$  ein, das in etwa 20 cm Tiefe erstmalig zu messen ist, wohingegen das  $^{241}\text{Am}$ -Profil des Kleinen Kranichsees in diesem Bereich endet. Beide RN sind zudem teilweise in der obersten Beprobungsschicht nachweisbar:  $^{125}\text{Sb}$  im Kleinen Kranichsee,  $^{241}\text{Am}$  in der Schwarze Heide und beide Nuklide im Georgenfelder Hochmoor.

Die Zahl vergleichbarer Untersuchungen an Hochmoorprofilen in der Literatur ist gering. Appleby et al. (1988) beispielsweise bestimmten ebenfalls mittels  $\gamma$ -Spektrometrie einen definierten  $^{241}\text{Am}$ -Peak im Torfprofil eines ombrogenen Hochmoors (südliche Pennines, England). Die maximale spezifische Aktivität in 3 cm Tiefe beträgt ca. 4 Bq/kg und liegt damit in der Größenordnung der hier gemessenen Werte. Mittels radiochemischer Aufbereitung und  $\alpha$ -Spektrometrie untersuchten Oldfield et al. (1979) die vertikale  $^{239}\text{Pu}$ -Verteilung in einem ombrogenen nordirischen Hochmoor (County Tyrone, westliches Nordirland). Das Profil ist bis 12 cm Tiefe dargestellt, der tiefste Wert beträgt noch 4 Bq/kg. Der maximale Wert von ca. 25 Bq/kg in 5 cm Tiefe übersteigt um einen Faktor von  $> 2.5$  den des Profils Kleiner Kranichsee.  $^{210}\text{Pb}$ -Datierungen weisen dieser Tiefe jedoch ein Alter vor 1963 zu, woraus Oldfield et al. (1979) auf die Notwendigkeit einer weitergehenden Evaluierung von Datierungen mittels  $^{239}\text{Pu}$  schließen. Ein Zusammenhang der  $^{239}\text{Pu}$ -Aktivitäten in dem Hochmoor mit den Emissionen der britischen Wiederaufbereitungsanlage Sellafield wurde nicht untersucht, könnte allerdings aufgrund der relativ geringen Entfernung ( $< 250$  km Luftlinie) von Bedeutung sein (vgl. Livens u. Baxter 1988; Appleby u. Luttrell 1993). Ein Vergleich der  $A_{\text{konz}}$ -Werte ist nicht möglich, da die genannten Zitate keine Dichteangaben enthalten.

In neueren Untersuchungen zur Am- und Pu-Retention in *Sphagnum*-Torf (norditalienische Alpen) konnten maximale spezifische  $^{241}\text{Am}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitäten in 5 cm (*Sphagnum compactum*) bzw. 15 ... 16 cm Tiefe (*Sphagnum nemoreum*) bestimmt werden (Testa et al. 1999). Die  $A_{\text{spez}}$ -Werte der Maxima betrugen dabei ca. 4 Bq/kg bzw. knapp 9 Bq/kg ( $^{241}\text{Am}$ ) sowie etwa 40 Bq/kg bzw. 17 Bq/kg ( $^{239,240}\text{Pu}$ ). Die entsprechenden Moorschichten konnten dem Zeitraum 1960–65 zugeordnet werden ( $^{210}\text{Pb}$ -Datierung), was wiederum auf eine starke Immobilisierung der Nuklide in den Torfprofilen hinweist und zudem deutlich unterschiedliche Wachstumsraten für die Torfmoosspezies implizieren. Generell wird die Annahme einer nur sehr geringen Mobilität von Am und Pu in Hochmoorböden durch die zuvor diskutierte starke Komplexbildung der Aktiniden mit Huminstoffen sowie eine hohe Affinität der Huminstoffe bzw. der Huminstoff-Aktiniden-Komplexe für organische und inorganische Oberflächen unterstützt (Nash et al. 1981; Lieser et al. 1991; Pavlotskaya et al. 1991a; Schachtschabel et al. 1992; Choppin 1999).

Die Unterschiede zwischen den Ergebnissen lassen sich u. a. mit dem jeweiligen Hochmoortypus und den variierenden Bedingungen an den Beprobungsorten begründen. Je mehr das Hochmoor dem Idealzustand eines „intakten“, d. h. lebenden, rezent wachsenden ombrogenen Hochmoors, v. a. im Umkreis des Beprobungspunkts, entspricht, desto höher ist hier meist die Wachstumsrate der rezenten Torfmoose – wobei deren Wachstumsraten sich ebenfalls stark unterscheiden können (vgl. Overbeck u. Happach 1957; Overbeck 1975; Damman 1978; Pakarinen 1978b; Lindholm 1990; Gerdol et al. 1994; Testa et al. 1999). Aus den somit mächtigeren Ablagerungen vertorfenden organischen Materials resultiert eine höhere zeitliche Auflösung mit der Tiefe (vgl. Kap. 7.3). Dies wirkt sich auf die Verteilung weitestgehend immobiler Substanzen aus, wie die Tiefenprofile des Kleinen Kranichsees und des Radauer Borns zeigen. Anthropogene Beeinflussungen wie Entwässerung und nachfolgende Bodenbildung und Moorsackung bewirken einen gegensätzlichen Effekt. Wie zuvor dargelegt, sind die obersten Bodenschichten des Georgenfelder Hochmoors und der Schwarzen Heide aufgrund von Austrocknungsphasen vergleichsweise stark verdichtet (vgl. Lagerungsdichten, Abb. 68). Es ist denkbar, daß immobile anorganische Substanzen in den betroffenen Bodenbereichen stärker konzentriert werden, woraus höhere Aktivitätskonzentrationen und schmalere, dichter beieinander liegende Verteilungspeaks resultieren könnten. An den Beprobungsstandorten im Georgenfelder Hochmoor und der

Schwarzen Heide wächst zudem – auch als Folge eines veränderten Wasserregimes – ein höherer Anteil an Gefäßpflanzen. Auswirkungen auf die vertikale Stoffverteilung sind sowohl durch die teilweise tiefe reichenden Wurzeltätigkeiten als auch den veränderten Wachstumsmodus des Torfes durch höhere Pflanzen zu erwarten. Um den Einfluß der einzelnen Faktoren auf die RN-Tiefenverteilungen im Boden abzuschätzen, werden die vertikalen  $^{125}\text{Sb}$ -,  $^{241}\text{Am}$ - und  $^{238}\text{Pu}$ - bzw.  $^{239,240}\text{Pu}$ -Profile in Kap. 7.3 anhand einer zeitlichen Einordnung der Torfschichten mittels verschiedener Datierungs- und Markierungsmethoden diskutiert.

Die Durchwurzelung der oberen Bodenschichten bzw. des Vererdungshorizonts könnte eine Aufnahme von  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  bzw.  $^{241}\text{Pu}$  in die Pflanzendecke erklären. In der Literatur wird jedoch i. allg. davon ausgegangen, daß Am und Pu kaum von der Vegetation aufgenommen werden (Bunzl u. Kracke 1987; Pavlotskaya et al. 1991a; Nisbet et al. 1993; Lux et al. 1995). Auch für  $^{125}\text{Sb}$  kann ein nur sehr geringer Transfer in die Vegetation erwartet werden – allerdings liegt zu diesem RN lediglich eine sehr spärliche Anzahl von Untersuchungen vor, welche zudem nicht an Hochmoorstandorten durchgeführt wurden (z. B. Lux et al. 1995; vgl. Kap. 6.2). Ein Transport der Nuklide über die wurzellosen Torfmoose in die oberste Moorschicht ist ebenfalls nicht zu erkennen, wie z. B. das vergleichsweise gering von Gefäßpflanzen bewachsene Profil des Radauer Borns, die oberste Beprobungsschichten des Kleinen Kranichsees (für  $^{241}\text{Am}$ ) oder die oben diskutierten Untersuchungen von Testa et al. (1999) zeigen; in letzterer Publikation sind  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  in *Sphagnum nemoreum* erst unterhalb von 10 cm Tiefe detektierbar. Auch in den 1997 beprobten und  $\gamma$ -spektrometrisch gemessenen Torfmoos- und Wollgrasproben des Kleinen Kranichsees (rezente Torfmoosabschnitte von *Sphagnum rubellum* und *Sphagnum fallax* sowie einzelne Pflanzenabschnitte des *Eriophorum vaginatum*; Tabelle 23) konnten weder  $^{241}\text{Am}$  noch  $^{125}\text{Sb}$  (eindeutig) nachgewiesen werden (die Nachweisgrenzen liegen aufgrund der vergleichsweise geringen Probenmengen trotz mehrtägiger Messungen relativ hoch).

In den von Oldfield et al. (1979) und Appleby et al. (1988) Anfang der 70er bzw. 80er Jahre untersuchten Torfprofilen ombrogener Hochmoore waren  $^{239}\text{Pu}$  bzw.  $^{241}\text{Am}$  jeweils (noch) in der obersten analysierten Schicht nachweisbar. Allerdings sind im Fall des  $^{241}\text{Am}$  die Unsicherheiten bei allen Proben außer der des maximalen  $A_{\text{spez}}$ -Werts so groß, daß der Nachweis eventuell nicht als gesichert angesehen werden kann. Zudem ist in beiden Artikeln keine genauere Profilansprache aufgeführt, so daß die Zusammensetzung der obersten Probe nicht bekannt ist. Coughtrey et al. (1989a) konnten  $^{125}\text{Sb}$ , wie auch  $^{106}\text{Ru}$ , in einer Torfmoosprobe nachweisen, welche im September 1986 beprobt worden war – aufgrund der nur kurzen Zeitspanne, die seit dem Tschernobyl-Unfall verstrichen war, läßt dies ebenfalls keine Rückschlüsse auf einen eventuellen Transfer der Nuklide in den Moospflanzen zu.

Im Profil der Schwarzen Heide erstreckt sich die  $^{241}\text{Am}$ -Verteilung bis 30 cm Tiefe. Dieser auffällige Ausläufer läßt sich in dem Moor, dessen Torfwachstum schon im 19. Jahrhundert durch starke Entwässerungen stagnierte, nicht mit der Gesamtdauer des Eintrags von  $^{241}\text{Am}$  bzw. seines Mutternuklids  $^{241}\text{Pu}$  durch die Kernwaffentests erklären. Mögliche Ursachen sind Wurzeltätigkeiten oder Löslichkeitsänderungen durch Trockenphasen in den vergangenen fünf Jahrzehnten. Zudem ist das  $^{241}\text{Am}$ -Inventar hier deutlich höher als an den anderen Moor- und auch Waldstandorten (Tabelle 25), was mit einem lateralen Eintrag des  $^{241}\text{Am}$  bzw.  $^{241}\text{Pu}$  erklärt werden könnte. Allerdings sind in den vertikalen Verteilungen der anderen RN in diesem Profil keine Hinweise auf derartige Einflüsse zu erkennen.

### Cäsium ( $^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ und $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ )

Im Gegensatz zu  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und den Pu-Isotopen sind die spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten stets in der obersten Beprobungsschicht maximal, unabhängig von der anteiligen Zusammensetzung des Bewuchses aus Gefäßpflanzen und Torfmoosen. Die Verteilungen sinken kontinuierlich mit der Tiefe, im oberen Bereich sehr steil, darunter flacher.  $^{134}\text{Cs}$  (und damit auch  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) ist nur in den Schichten der Profilblöcke, d. h. bis maximal 50 cm, nachweisbar. Geringe Konzentrationen des  $^{137}\text{Cs}$  dagegen sind noch in Torfschichten in mehreren Metern Tiefe detektierbar: im Georgenfelder Hochmoor bis 2.2 m, in der Schwarzen Heide bis 1.8 m, im Kleinen Kranichsee bis etwa 4.5 m und im Ra-

dauer Born bis 6.0 m (Schleich et al. 2000). In letztgenanntem Moorprofil ist  $^{137}\text{Cs}$  in dem nur wenige Zentimeter mächtigen, dem Untergrund aufliegenden fAh-Horizont nicht mehr zu erkennen (vgl. Anhang E.1.4). Das als Folge der Kernwaffentest deponierte  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  ist in den erzgebirgischen Hochmooren ebenfalls in der obersten Beprobungsschicht maximal und weist einen tendenziell vergleichbaren, jedoch meist flacheren Verlauf als das  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  auf (dies wird anhand des Vergleichs von auf das Maximum normierten Werten sichtbar; o. Abb.). Im Radauer Born dagegen bietet sich ein konträres Bild. In den rezenten bzw. schwach humifizierten Torfschichten bis 12 cm Tiefe ist, wie im Ergebnis (Kap. 7.1.2) dargelegt, der Nachweis des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  nicht gesichert. Erst unterhalb von 12 cm Tiefe weist  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  auch im Rahmen der errechneten Unsicherheiten positive Werte auf (Abb. 67).

Die Beobachtung eines Maximums der spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten in den oberflächennahen Schichten und eines starken Abfalls mit der Tiefe decken sich mit den Untersuchungsergebnissen in einem oberschwäbischen und einem österreichischen Hochmoor (Pausch 1995; Schick 1995). Allerdings wurden an den dortigen Standorten nur Bohrkern ( $\varnothing$  8 cm) einer Maximaltiefe von 30 cm bzw. 50 cm gezogen. An Beprobungspunkten, die nicht zu intakten, rezent wachsenden Moorkomplexen gehören, zeigen die  $^{137}\text{Cs}$ -Tiefenverteilungen einen ungleichmäßigeren Verlauf, z. T. mit einem tieferliegenden Maximum. Die Ursachen liegen u. a. in anthropogenen Einflüssen wie Entwässerung zum Torfabbau oder zur Nutzung als Futterwiese, mit einhergehender Düngung oder Wühltätigkeit von Tieren.

Auch Oldfield et al. (1979) und Appleby et al. (1988) fanden in zumeist *Sphagnum*-dominierten Torfprofilen ombrogener Hochmoore in England und Nordirland vergleichbare vertikale  $^{137}\text{Cs}$ -Verteilungen mit maximalen  $A_{\text{spez}}$ -Werten an der Mooroberfläche; dasselbe trifft für die Profile dreier schottischer Moore zu (MacKenzie et al. 1997). Letztgenannte Autoren führten ebenfalls eine Auftrennung der  $^{137}\text{Cs}$ -Anteile Tschernobyls und der Kernwaffentests durch (unter Verwendung von  $f_{\text{Tsch}} = 1.82$ ; Probennahmen 1988–91). Die entsprechenden  $A_{\text{spez}}$ -Tiefenverteilungen eines der Moore sind prinzipiell vergleichbar mit denen der hier untersuchten Profile aus dem Georgenfelder Hochmoor, der Schwarzen Heide und dem Kleinen Kranichsee:  $^{134}\text{Cs}$  (und damit  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) ist nachweisbar in allen Schichten (Endtiefe 14 cm), und beide Cs-Isotope,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{134}\text{Cs}$ , sind in der obersten Beprobungsschicht maximal und fallen in etwa exponentiell mit der Tiefe ab (MacKenzie et al. 1997). In dem Profil eines zweiten Hochmoors dagegen konnte  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  erst in den Schichten unterhalb von 4 cm Tiefe bestimmt werden; die Tiefenverteilungen weisen somit Ähnlichkeit mit denen des Profils aus dem Radauer Born auf (Abb. 67). Leider geben MacKenzie et al. (1997) keine genaueren Informationen zum Moortyp, der Beprobungslokalität oder zur Ansprache der Bodenprofile, so daß nicht geprüft werden kann, inwieweit die Übereinstimmungen in den Cs-Verteilungen auf vergleichbare Moorstandorte zurückzuführen sind.

Betrachtet man die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Tiefenverteilung des Profils aus dem Georgenfelder Hochmoor (Abb. 50), so fällt der vergleichsweise unregelmäßige Verlauf im Bereich des begrabenen Vererdungshorizonts und der deutliche Abfall der spezifischen Aktivitäten in etwa 18 cm Tiefe, dem Übergang zwischen Vererdungshorizont und Torfkörper, auf. Wie anhand von Zusatzmessung 7a ersichtlich ist, zeigt  $A_{\text{spez}}$  im unteren Bereich des Vererdungshorizonts ein lokales Maximum. Dort ist der ursprüngliche Torf durch sekundäre aerobe Zersetzung vererdet, das braun-schwarze Substrat ist von krümeligem Gefüge. Entsprechend steigen die Werte der Glühverluste und TOC-Gehalte der Profilschichten vom Vererdungshorizont zum Torf hin deutlich an (Anhang E.2, Tabelle E.5; der sprunghafte Anstieg von Schicht 6 zu Schicht 8 ist anhand des Glühverlusts deutlicher sichtbar als anhand der TOC-Gehalte). Die Befunde weisen auf einen effektiveren, wenngleich nicht vollständigen Cs-Rückhalt in Moorschichten höherer Gehalte mineralischer Substanz hin.

Wie in Kap. 6.2 diskutiert, kann in Böden, in denen sowohl mineralisches als auch organisches Material vorliegt, eine gegenseitige Beeinflussung des Bindungsverhaltens beider Fraktionen beobachtet werden. Dabei kann einerseits zwar eine geringere Cs-Affinität von Ton-Huminstoff-Komplexen im Vergleich zu reinem Ton festgestellt werden (Chang et al. 1993; Staunton u. Roubaud 1997; Dumat u. Staunton 1999), andererseits scheinen sich aber auch die organischen und mineralischen Bindungsmechanismen, z. B. in „halborganischen OAh-Horizonten“ von Waldböden, gegenseitig zu verstärken

und somit das Cs-Fixierungspotential der Bodensubstanz zu erhöhen (De Brouwer et al. 1994; Hird et al. 1995). Untersuchungen an Torfen geringer Aschegehalte (d. h. hoher Glühverluste) zeigen, daß die mineralischen Bodenkomponenten – obwohl sie nur einen geringen Anteil der Bodensubstanz ausmachen – dennoch einen wichtigen Einfluß auf die Cs-Festlegung ausüben (Shand et al. 1994). Diese Erklärungsansätze werden unterstützt durch die Untersuchungen von MacKenzie et al. (1997) an einem Moorprofil, welches von höheren Gehalten mineralischer Substanz charakterisiert ist. Während  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  nur in der obersten Schicht nachweisbar ist, befindet sich das  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Maximum im Tiefenabschnitt 2 ... 4 cm. Diese Schicht wurde mittels  $^{210}\text{Pb}$ -Datierung dem Zeitabschnitt 1950–70 zugeordnet, was auf den maximalen  $^{137}\text{Cs}$ -Input durch die Kernwaffentests um 1963 verweist. Dennoch ist auch hier  $^{137}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ , wie in den beiden anderen Profilen, noch bis zur Endtiefe von 14 cm sehr gut nachweisbar ( $^{137}\text{Cs}$  bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ : knapp 20 Bq/kg) (MacKenzie et al. 1997).

Die vertikalen Cs-Verteilungen in Hochmoorprofilen weisen einerseits auf ein starkes pflanzenbedingtes Rückhaltevermögen für Cs in den oberflächennahen Schichten und andererseits auf eine hohe Mobilität des Cs im Torfkörper hin. Erklärungsansätze bieten u. a. die Torfbildungsprozesse und die Physiologie der torfbildenden Pflanzen, v. a. der *Sphagnen*. Die Verteilung des essentiellen Nährelements K, hier über das zuvor diskutierte  $^{40}\text{K}$  erfaßt, gibt einen Einblick in den Stoffhaushalt des Moores. Aus vergleichbaren chemischen Eigenschaften der Alkalimetalle K und Cs ließe sich auf ähnliche Transport- und Akkumulationsmechanismen schließen.  $^{40}\text{K}$  zeigt ebenfalls die höchsten Werte in den oberflächennahen Schichten. In den torfmoosdominierten Profilen des Kleinen Kranichsees und des Radauer Borns ähneln sich die Verläufe der spezifischen  $^{40}\text{K}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten in den oberen 10 cm bzw. 12 cm. Im Georgenfelder Hochmoor und der Schwarzen Heide dagegen sinkt die spezifische Aktivität des  $^{40}\text{K}$  im Gegensatz zu der des  $^{137}\text{Cs}$  in den anthropogen überprägten Bereichen bis etwa 18 cm bzw. 12 cm Tiefe flacher oder ist sogar über einige Zentimeter relativ konstant. Vergleichende Untersuchungen der Verteilung der beiden Alkalimetalle zeigen auch in anderen Ökosystemen teilweise ähnliche Trends (z. B. radiale Verteilung in den Jahresringen einer Fichte, Haas u. Müller 1995), teilweise voneinander abweichendes Verhalten (z. B. Verhältnis von Fichtennadel- und Bodengehalten, Wytenbach et al. 1995).

Es kann davon ausgegangen werden, daß die aktive Pflanzenaufnahme eine wesentliche Rolle in der Anreicherung beider Elemente in den obersten Moorbereichen und der rezenten Vegetation spielt. Wie K wird Cs sowohl von den verschiedenen Gefäßpflanzen als auch in den einzelnen Pflanzenteilen (Wurzeln, Blätter usw.) unterschiedlich stark akkumuliert (Coughtrey et al. 1989a, 1989b; Strandberg 1994; Lux et al. 1995; Jones et al. 1998). Letzteres wird unterstützt durch die  $^{40}\text{K}$ -,  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Werte der einzelnen Pflanzenabschnitte des im Kleinen Kranichsee beprobten Scheidigen Wollgrases (*Eriophorum vaginatum*; Tabelle 23). Oldfield et al. (1979) interpretieren ein verbreitetes  $^{137}\text{Cs}$ -Maximum eines Hochmoortorfprofils, dessen Bewuchs von Scheidigem Wollgras dominiert wird, als Auswirkung des speziellen Wachstumsmodus dieser starkwurzelnden Pflanze. Dies ist ein plausibler Erklärungsansatz, wie auch die vergleichsweise hohen spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten der Wurzeln des Scheidigen Wollgrases aus dem Kleinen Kranichsee zeigen (Tabelle 23). Jones et al. (1998) entsprechend repräsentieren Wurzeln den Hauptpfad des  $^{137}\text{Cs}$  aus der pflanzlichen Biomasse, gleichzeitig werden jedoch durch sowohl interne als auch externe Stoffkreisläufe – u. a. ermöglicht aufgrund der typischen Wuchsform des Scheidigen Wollgrases – relativ hohe Cs-Gehalte aufrechterhalten. An den Profilen von Streuwiesen über Torfaufgabe und Mooren in Oberschwaben läßt sich ein höherer Cs-Transfer mit zunehmendem Moorcharakter (d. h. zunehmenden organischen Anteilen, Wassergehalten und Nährstoffarmut sowie abnehmenden pH-Werten) nachweisen (Schick 1995). Die Transferfaktoren der verschiedenen Pflanzenarten erweisen sich dabei mehr oder weniger standortabhängig. Hohe Faktoren konnten z. B. für Wollgras und Moosbeere bestimmt werden.

Torfmoose dagegen, die kein Wurzelsystem wie Gefäßpflanzen haben, akkumulieren anorganische Substanzen mittels der zuvor beschriebenen Mechanismen, d. h. entweder durch direkte Aufnahme von Elementen hauptsächlich in die Chlorophyllzellen, durch Adsorption von Ionen an den Austauschplätzen der Zellwände oder durch eine unspezifischere Anreicherung der Elemente, teilweise als Partikel, an der Pflanzenoberfläche (Malmer 1988; Malmer 1993). In lebenden *Sphagnen* sind Ca und



Mg bevorzugt am Austauscher fixiert, während Na und K ins Zellinnere transportiert werden. Darüber hinaus sind alle vier Mineralstoffe stark im anhaftenden Wasser der Torfmoosköpfchen, dem „Quetschwasser“, angereichert (Rudolph u. Brehm 1965; Brehm 1968; Overbeck 1975). Die Akkumulation des K in den Köpfchen kann zudem durch kontinuierliche interne Verlagerungs- und Transportprozesse von den tieferliegenden älteren Teilen der Torfmoospflanze zur Wachstumsspitze erklärt werden (Damman 1978; Malmer 1988). Extern können Wasser bzw. dessen Inhaltsstoffe über den zuvor genannten, auf Kapillarwirkung basierenden Transportmechanismus zu den Köpfchen hin transferiert werden.

Um sowohl die Annahme eines ähnlichen Verhaltens von Cs und K als auch die Rolle der Torfmoose bezüglich der Cs-Aktivitäten der Vegetationsschicht zu prüfen, wurden die Meßergebnisse der obersten Schicht (bis ca. 0.5 ... 1.5 cm Tiefe) des Profils aus dem Kleinen Kranichsee mit denen der Fläche nahe des Probennahmepunkts verglichen, wo nur die Köpfchen und die grünen Abschnitte der Torfmoos-Stämmchen gesammelt und gemessen worden waren (Länge ca. 0.5 ... 2 cm; Kap. 3.3.3 u. Tabelle 23). Die spezifische  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität der reinen Torfmoosprobe ist um den Faktor  $1.70 \pm 0.01$  höher als die der Oberflächenprobe des Profils (990 Bq/kg im Vergleich zu 580 Bq/kg; Werte zerfallskorrigiert auf das Probennahmedatum des Profils, 11.7.1996), im Vergleich zu einem entsprechenden Faktor von  $1.34 \pm 0.17$  für  $^{40}\text{K}$  (100 Bq/kg bzw. 76 Bq/kg); für  $^{134}\text{Cs}$  errechnet sich ein Wert von  $1.56 \pm 0.24$  (8.4 Bq/kg bzw. 13 Bq/kg; 11.7.1996). Diese Ergebnisse verweisen darauf, daß die lebenden, grünen Teile der Torfmoose eine dominante Rolle darin spielen, Cs, wie auch K, in der Vegetationsschicht des Hochmoors zu konzentrieren. Gerdol et al. (1994) schließen aus Untersuchungen zur Verteilung von  $^{137}\text{Cs}$  und K in Torfmoospflanzen auf eine kontinuierliche Verlagerung des  $^{137}\text{Cs}$ , vergleichbar der des K, zum Köpfchen hin. Die Maxima der spezifischen  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitäten sind in den 1988 beprobten Pflanzen meist nicht in den Köpfchen, sondern in tieferen Abschnitten nachweisbar, die darüberliegenden Segmente weisen aber ebenfalls hohe Werte auf. Die Konzentrationen der beiden Elemente in den Segmenten zeigen jedoch keine signifikante Korrelation, woraus Gerdol et al. (1994) doch voneinander abweichende Akkumulationsmuster für K und Cs – trotz ihrer chemischen Ähnlichkeit – ableiten.

Während die abwärtsgerichtete Diffusion des Cs in den obersten Schichten den pflanzenspezifischen Prozessen untergeordnet ist, kann sie im Torfkörper selbst als der vorherrschende Mechanismus angesehen werden. Auch der Einfluß advektiver Vorgänge ist nicht ganz auszuschließen, da, wie zuvor angesprochen, selbst im Hochmoor mit einer geringen Wasserbeweglichkeit zu rechnen ist; Art und Ausmaß derartiger dynamischer Vorgänge wird jedoch von einer Vielzahl an standortabhängigen Faktoren wie den Materialeigenschaften des Torfes und der Reliefform des Geländes bestimmt (vgl. Overbeck 1975; Göttlich 1990; Dalitz u. Jensen 1994). Wie K ist Cs sehr mobil und wird leicht aus abgestorbenem Pflanzengewebe gelöst. Da die Torfmoospflanzen kontinuierlich wachsen und dabei ihre eigenen älteren, tieferliegenden Teile von Licht und Sauerstoff isolieren, werden K und Cs im Verlauf der resultierenden Humifizierungs- und Torfbildungsprozesse freigesetzt. Die rückgelösten Kationen sind im Torf wiederum für die Pflanzenaufnahme verfügbar (vgl. Malmer 1993). Wie in Kap. 6.2 dargelegt, ist Cs an den unspezifischen Austauschplätzen der organischen Substanz nur reversibel gebunden (Cremers et al. 1988; Schachtschabel et al. 1992; Valcke u. Cremers 1994). Zudem sind die Torfkörper v. a. anthropogen weitestgehend unbeeinflusster Hochmoore stark verarmt an Tonmineralen, deren Bindungsmechanismen in anderen Böden für eine starke Cs-Fixierung verantwortlich sind (Sawhney 1972; Francis u. Brinkley 1976; Cremers et al. 1988). In Hochmooren resultiert daraus eine sehr starke Cs-Bioverfügbarkeit, die sich z. B. in hohen Transferfaktoren Boden–Pflanze niederschlägt (Livens u. Loveland 1988; Sandalls u. Bennett 1992; Schick 1995), sowie eine relativ hohe Mobilität des Cs-Ions im Torfkörper.

Das Harzmoor weist einen mehrere Meter mächtigen Torfkörper und eine vergleichsweise hohe Wachstumsrate der rezenten und vertorfenden Mooschichten auf (vgl. Kap. 7.3). Eine mögliche Erklärung für die von den anderen Profilen abweichende  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Verteilung wäre eine starke, auch tiefgründige Verlagerung des kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}$ -Isotops im gesamten Torfkörper seit dem Eintragszeitpunkt, wobei sich der „Verdünnungseffekt“ in diesem Moor v. a. auch in den oberflächenna-

hen Schichten hoher Biomassezuwachsrate bemerkbar macht. Obwohl die Torfmoose hohe spezifische  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Aktivitäten aufweisen, wäre dadurch der  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Anteil nur gering. Zudem ist das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten von  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  zu  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  wesentlich größer als in den Torfprofilen der erzgebirgischen Moore, so daß sich bei der rechnerischen Aufteilung des  $^{137}\text{Cs}$  eine große Unsicherheit für die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Werte ergibt. Die spezifischen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Aktivitäten unterhalb 12 cm Tiefe entsprechen jedoch durchaus denen der anderen Profile in oberflächennaheren Schichten.

Generell läßt sich die hohe Mobilität des Cs in den untersuchten Hochmoorböden anhand der zeitlichen Einordnung der Beprobungsschichten mittels verschiedener Datierungs- und Markierungsmethoden aufzeigen (vgl. Kap. 7.3). Auch MacKenzie et al. (1997) konnten den tiefsten Schichten der untersuchten Moorprofile (s. o.; bis max. 18 cm), in denen sich  $^{137}\text{Cs}$  noch als sehr gut detektierbar erwies,  $^{210}\text{Pb}$ -Alter aus der ersten Hälfte des 19. Jahrhunderts zuweisen, was die Annahme einer relativ schnellen abwärtsgerichteten Cs-Migration in diesen Böden unterstützt. Aufgrund des Vergleichs errechneter (scheinbarer) Diffusionskoeffizienten schließen die Autoren auf eine anfänglich raschere, mit der Zeit jedoch verlangsamende Cs-Migration in den Moorböden. Allerdings sind diese Ergebnisse eventuell mit Vorbehalt zu betrachten, da die untersuchten Profile offensichtlich nur den oberen Bereich der jeweiligen Moorböden und somit auch der entsprechenden Cs-Tiefenverteilungen umfassen.

### Künstliche Radionuklide – Bodeninventare

In Tabelle 25 sind die Inventare der künstlichen RN an den vier Moorstandorten zusammengestellt (Werte gerundet). Wie zu Kapitelbeginn dargelegt, erfordert die Berechnung der Inventare volumendefiniert beprobte Moorlagen. Die Angaben beziehen sich deshalb nur auf die Profilblöcke, beinhalten jedoch die flächendefiniert beprobte rezente Vegetation. Der 22 cm mächtige Torfwürfel des Radauer Borns erfaßt die Inventare nicht vollständig, so daß ein Vergleich der Einträge künstlicher RN im Erzgebirge mit denen im Hochharz nur eingeschränkt möglich ist; im Rahmen der Diskussion sind diese Ergebnisse dennoch von Interesse.

Tabelle 25: Inventare  $A_F$  (in  $\text{Bq/m}^2$ ) der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$  ( $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$  und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ ) (alle zerfallskorrigiert auf den 1.5.1986) sowie  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  und  $^{238}\text{Pu}$  an den untersuchten Moorstandorten im Erzgebirge und dem Harz

Hochmoor	$^{125}\text{Sb}$	$^{134}\text{Cs}$	Inventar $A_F$ ( $\text{Bq/m}^2$ )		$^{241}\text{Am}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$
			$^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$	$^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$			
			$^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$				
Georgenfeld	$420 \pm 40$	$1320 \pm 70$ <sup>1)</sup>	$2500 \pm 150$ <sup>1)</sup>	$1000 \pm 80$ <sup>2)</sup>	$34 \pm 4$	–	–
			$3500 \pm 160$ <sup>2)</sup>				
Schw. Heide	$260 \pm 30$	$910 \pm 40$ <sup>1)</sup>	$1730 \pm 90$ <sup>1)</sup>	$1540 \pm 80$ <sup>2)</sup>	$55 \pm 3$	–	–
			$3270 \pm 130$ <sup>2)</sup>				
Kl. Kranichsee	$220 \pm 20$	$730 \pm 30$	$1380 \pm 60$	$1020 \pm 50$ <sup>2)</sup>	$28 \pm 1$	$65 \pm 4$ <sup>1)</sup>	$0.9 \pm 0.1$ <sup>1)</sup>
			$2400 \pm 80$ <sup>2)</sup>				
Radauer Born	$190 \pm 30$ <sup>2)</sup>	$2050 \pm 90$ <sup>2)</sup>	$3900 \pm 190$ <sup>2)</sup>	$300 \pm 100$ <sup>2)</sup>	$1.7 \pm 0.4$ <sup>2)</sup>	–	–
			$4200 \pm 170$ <sup>2)</sup>				

Die Inventarwerte umfassen die beprobten Profilblöcke inkl. Vegetation: Georgenfelder Hochmoor 0 ... 51 cm, Schwarze Heide 0 ... 33 cm, Kleiner Kranichsee 0 ... 26 cm, Radauer Born 0 ... 22 cm.

Anhand der Tiefenverteilungen der spezifischen Aktivitäten bzw. der Aktivitätskonzentrationen kann zwischen vollständigen (ohne Markierung), <sup>1)</sup> zu über 95 % ( $^{134}\text{Cs}$ ) bzw. (90 %) ( $^{137}\text{Cs}$ ) erfaßten und <sup>2)</sup> unvollständigen Inventaren ( $\leq 90$  %) unterschieden werden.

Vergleicht man die erzgebirgischen  $^{125}\text{Sb}$ -Inventare, so fällt auf, daß der Wert des Georgenfelder Hochmoors mehr als das 1.5fache über den Werten des Kleinen Kranichsees und der Schwarzen Heide liegt. Auch die Inventare der untersuchten Fichtenwaldböden des Osterzgebirges (Kap. 6.2) sind größer als die Werte der mittel- und westergebirgischen Moore, liegen aber ebenfalls unter dem Wert des

Georgenfelder Hochmoors bzw. entsprechen ihm im Rahmen der Unsicherheiten. Die  $^{125}\text{Sb}$ -Verteilung im Profil Radauer Born ist nicht vollständig erfaßt; eine plausible Extrapolation ist mit den vorhandenen Werten nur schwer möglich, so daß keine Aussagen zum  $^{125}\text{Sb}$ -Gesamtinventar an diesem Standort gemacht werden können.

Die  $^{134}\text{Cs}$ - und damit auch die  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Inventare der erzgebirgischen Moore sind entweder vollständig erfaßt (Kleiner Kranichsee) oder zu über 95% (Georgenfelder Hochmoor und Schwarze Heide). An den beiden letztgenannten Standorten liegen die spezifischen  $^{134}\text{Cs}$ -Aktivitäten der jeweils tiefsten Schichten der Profilblöcke im Bereich der Nachweisgrenze, in den darunterliegenden Bohrproben ist das Nuklid nicht mehr detektierbar. Die  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Inventare sind kleiner als die der Fichtenwaldböden. Die Verhältnisse der  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Inventare der drei erzgebirgischen Hochmoore untereinander stimmen jedoch gut mit denen des ebenfalls Tschernobyl-bürtigen  $^{125}\text{Sb}$  überein. Die  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Tiefenverteilungen des Harzmoors umfassen zwar nicht die gesamten Inventare, aus den errechneten Teilinventaren ist im Vergleich jedoch schon ein wesentlich höherer Tschernobyl-Input als im Erzgebirge zu ersehen. Dies wird durch Literaturwerte unterstützt: Die Übersichtskarten BGA (1991) und De Cort et al. (1998) zur  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Bodenkontamination 1986 geben für das Harzgebiet  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Werte bis zu  $15000 \text{ Bq/m}^2$  an, für den Erzgebirgsraum dagegen Werte von  $2000 \dots 5000 \text{ Bq/m}^2$ . Obwohl aus BGA (1991) keine Unterschiede für die drei Moorstandorte hervorgehen, könnten die im Vergleich höheren Werte der  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Inventare des Georgenfelder Hochmoors durch eine geländeklimatisch besonders exponierte Lage verursacht worden sein.

Da das aus den Kernwaffentests herrührende  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  auch in den Bohrproben nachweisbar ist, stellen die für die Profilblöcke berechneten Werte nur Teilinventare dar. Welchen Prozentsatz des Gesamtinventars sie ausmachen, ist u. a. aufgrund der sehr unterschiedlichen Moormächtigkeiten nur schwer abzuschätzen. Zudem können auch die Torflagerungsdichten über die Tiefe hinweg deutlich variieren. Für das Profil der Schwarzen Heide beispielsweise errechnet sich für den mit dem Moorbohrer beprobten Bereich zwischen 33 cm und 180 cm ein  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Teilinventar (bezogen auf das Inventar des Profilblocks, d. h. bis 33 cm Tiefe) von  $< 6 \%$  unter Verwendung geringer Lagerungsdichten (z. B.  $0.07 \text{ g/cm}^3$  für die Bohrproben bis knapp 160 cm Tiefe und  $0.15 \text{ g/cm}^3$  für die darunterliegende tiefste Bohrprobe; vgl. Abb. 68 u. zugehöriger Text). Bei Annahme vergleichsweise starker Verdichtung (z. B. sämtliche Bohrproben  $0.2 \text{ g/cm}^3$ ) würde dieser Wert auf bis zu  $16 \%$  ansteigen. Für das Profil des Georgenfelder Hochmoors ergibt sich unter Verwendung plausibler, relativ geringer Lagerungsdichten der Bohrproben (z. B.  $0.07 \text{ g/cm}^3$  bis 170 cm Tiefe und  $0.12 \text{ g/cm}^3$  für den darunterliegenden Bereich bis zur Endtiefe) ein entsprechendes  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Teilinventar von  $< 15 \%$  (bezogen auf das Inventar des Profilblocks, d. h. bis ca. 50 cm Tiefe). Dennoch liegen auch die so korrigierten  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Inventare (in den genannten Beispielen errechnen sich maximal  $4000 \text{ Bq/m}^2$ ) deutlich unter denen der Fichtenwaldböden.

Dies kann teilweise mit der starken Interzeptionswirkung des Fichtenwalds allgemein und dessen hoher Effizienz für trockene Deposition im speziellen erklärt werden (vgl. Kap. 6.2). Ein weiterer Erklärungsansatz ließe sich in möglichen Verlusten durch aus dem Torfkörper abfließendes Moorwasser finden. In oberschwäbischen Seen mit moorigem Einzugsgebiet konnten sowohl  $^{137}\text{Cs}$ -Rücklösungsprozesse aus den Sedimenten hoher organischer Gehalte als auch saisonal bedingte  $^{137}\text{Cs}$ -Austräge über die huminstoffhaltigen Wässer der Seeabflüsse sowie erhöhte  $^{137}\text{Cs}$ -Einträge aus den Moorbereichen in den See beobachtet werden (Drissner et al. 1992; Lindner et al. 1993; Kaminski et al. 1994). Im Gegensatz dazu wird Cs im Ökosystem Fichtenwald über die Vegetation, im speziellen die Nadelstreu, kontinuierlich wieder in den Boden zurückgeführt. Das im Torfkörper sehr mobile Cs ist, wie die Tiefenverteilungen zeigen, im Moor tiefgründig verteilt, woraus sehr niedrige spezifische Aktivitäten bzw. Aktivitätskonzentrationen resultieren (Verdünnungseffekt). Dies erschwert den Nachweis des  $^{137}\text{Cs}$  und vor allem, aufgrund der kürzeren Halbwertszeit, den des  $^{134}\text{Cs}$  in den Torflagen geringer Dichte.

Das höchste  $^{241}\text{Am}$ -Inventar aller in dieser Arbeit untersuchten Bodenprofile liegt für die Schwarze Heide vor. Die Werte des Georgenfelder Hochmoors und des Kleinen Kranichsees dagegen stimmen

sehr gut mit denen der Fichtenwaldböden von 27 ... 36 Bq/m<sup>2</sup> überein. Appleby et al. (1988) bestimmten das <sup>241</sup>Am-Inventar des Profils eines ombrogenen Hochmoors (südliche Pennines, England) zu 14.8 Bq/m<sup>2</sup> und das des Seesedimentkerns eines Hochlandsees (Mittelwales) zu 18.5 Bq/m<sup>2</sup>.

Da die Pu-Analysen nur an dem Bodenmaterial der Beprobungsschichten durchgeführt wurden, in denen <sup>241</sup>Am nachweisbar ist (mit Ausnahme einer tiefergelegenen Probe), sind die errechneten Inventare nicht vollständig. Für drei Schichten liegt die <sup>238</sup>Pu-Nachweisgrenze zudem so hoch, daß die Werte nicht in die Berechnung eingehen können (vgl. Anhang B.1). Einer Abschätzung bzw. Extrapolation anhand plausibler Werte nach wären etwa 96 % des <sup>239,240</sup>Pu und 91 % des <sup>238</sup>Pu erfaßt, die Gesamtinventare lägen damit bei 67 Bq/m<sup>2</sup> und 1.0 Bq/m<sup>2</sup>. Vergleicht man diese extrapolierten Werte mit denen des Waldbodenprofils Nassau 2, so ergibt sich für den Moorstandort ein um ca. 15 % kleineres <sup>239,240</sup>Pu-Inventar, das <sup>238</sup>Pu-Inventar dagegen wäre nur halb so groß. Die Inter- bzw. Extrapolation der <sup>238</sup>Pu-Verteilung beinhaltet allerdings auch größere Unsicherheiten, da eine geringere Anzahl an Werten vorliegt (s. o., hohe <sup>238</sup>Pu-Nachweisgrenzen für drei Proben). Aufgrund des unvollständigen <sup>239,240</sup>Pu-Inventars ist es zudem nicht bzw. nur mit großen Unsicherheiten möglich abzuschätzen, zu welchem Prozentsatz das in der Umwelt nachweisbare <sup>241</sup>Am aus dem Zerfall des <sup>241</sup>Pu der Kernwaffentests stammt (vgl. Kap. 2.3 u. Kap. 3.2.1).

Für den erhöhten <sup>239,240</sup>Pu-Wert der vierten Beprobungsschicht (s. Tiefenverteilung, Abb. 66) läßt sich anhand des extrapolierten <sup>239,240</sup>Pu-Gesamtinventars und der Inventarwerte der beprobten Schichten ein Anteil am Gesamtinventar von etwa 5 % errechnen. Da jedoch, wie in der Diskussion der Pu-Gehalte in den Waldbodenprofilen dargestellt, das <sup>239,240</sup>Pu-Bodeninventar durch den Reaktorunfall nur geringfügig erhöht worden war (< 0.1 %; vgl. Hötzl et al. 1987; Rosner et al. 1997), kann der Tschernobyl-Fallout nicht ohne weiteres als Ursache für diese Erhöhung angesehen werden – obwohl in dieser Bodentiefe auch das <sup>125</sup>Sb-Maximum liegt. Dies wird unterstützt durch die <sup>238</sup>Pu/<sup>239,240</sup>Pu-Verhältnisse der einzelnen Beprobungsschichten. Diese liegen bei 0.024 ... 0.033 mit einem Mittelwert von  $0.029 \pm 0.004$  und stimmen somit sehr gut mit den in Kap. 6.2 zitierten, auf 1997 zerfallskorrigierten Literaturangaben für den Zeitraum vor dem Tschernobyl-Unfall (d. h. Kernwaffen- und SNAP-9A-Fallout) überein.

### 7.3 Die Verwendung der Radionuklide in der Moorstratigraphie

Ein wesentliches Ziel der Moorstratigraphie ist es, die Entwicklung der lokalen und teilweise auch regionalen Vegetation zu rekonstruieren, um damit auf den Wandel des Klimas und anderer Umwelteinflüsse zu schließen. Dabei können auch die Auswirkungen menschlicher Siedlungstätigkeit auf die umgebende Vegetation und auf die Torfbildung selbst erfaßt werden (Göttlich 1990). Während die Pollenanalyse ein relatives Datierungsmittel zur zeitlichen Einordnung von Torfschichten darstellt (Kap. 3.2.3), können mittels <sup>14</sup>C-Analysen einzelner Torfschichten numerische Zeitmarkierungen gesetzt werden (Kap. 3.2.4). Die Kombination verschiedener relativer und numerischer Datierungsmethoden verbessert die Rekonstruktion des zeitlichen Torfwachstums und ermöglicht eine Kontrolle der einzelnen Verfahren. Zudem können Einschränkungen der einzelnen Methoden (wie der datierbare Zeitrahmen) ausgeglichen werden. So sind beispielsweise <sup>14</sup>C-Analysen für Alter < 300 ... 400 a i. allg. ungeeignet, und oberflächennahe, mineralisierte Bereiche anthropogen überprägter Moore sind mittels Pollenanalyse kaum zeitlich aufzulösen. Für diesen Zeitrahmen dagegen bieten sich <sup>210</sup>Pb-Datierungen an, welche Alter bis max. 200 a erfassen. Die in den vorangehenden Kapiteln dargestellten Ergebnisse der Untersuchungen künstlicher RN in Moorböden legen eine Verwendung von <sup>125</sup>Sb, <sup>241</sup>Am und der Pu-Isotope zur Markierung des Zeitpunkts ihrer Deposition nahe („Altersmarkierung“). Wesentliche Voraussetzung für die Datierung ist die Immobilität oder genau bekannte Mobilität des jeweils verwendeten Nuklids. Im Vergleich zueinander und vor dem Hintergrund bekannter Fakten zur Entwicklung der Hochmoore und eventueller anthropogener Einflüsse wird im folgenden eine Einordnung der verschiedenen Datierungsergebnisse vorgenommen und die Eignung der Methoden geprüft.

## Palynologische Untersuchungen – Pollendiagramme

Parallel zu den in Kap. 7.1 vorgestellten  $\gamma$ -spektrometrischen Untersuchungen an einem Bodenprofil des Hochmoors Schwarze Heide wurden an einem zweiten, im Abstand von etwa 1 m entnommenen Bohrprofil Pollenanalysen durchgeführt (Kap. 3.2.3). Eine verkürzte Fassung (d. h. mit ausgewählten Taxa) eines der beiden resultierenden Pollendiagramme ist in Anhang E.3, Abb. E.3 dargestellt. Die auf der Berechnungsbasis „Baumpollen ohne Hasel = 100 %“ errechneten Gehalte der verschiedenen Pollenarten sind über der Beprobungstiefe aufgetragen. Das Pollendiagramm ist von links nach rechts untergliedert in die Pollenarten der Gehölze, Kräuter und Wasserpflanzen. Die botanischen Namen der im Diagramm aufgeführten Pflanzen sind in Anhang E.3, Tabelle E.6 zusammengestellt und werden in den folgenden Abschnitten entsprechend verwendet.

Aus dem Vergleich der Pollenkurven untereinander und im Kontext älterer, z. T. unveröffentlichter palynologischer Untersuchungen erzgebirgischer Hochmoore (Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Stebich 1995; M. Seifert, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 1995, 1998, 2005) sind die Pollenzonen Va bis X nach Firbas (1949) erkennbar (Tabelle 26). Dabei entspricht die beobachtete Vegetationsentwicklung im wesentlichen der in den von Rudolph u. Firbas (1924), Frenzel (1930) und Firbas (1949) untersuchten Erzgebirgsmooren; auftretende Abweichungen könnten evtl. durch die Profillage innerhalb des Moores bedingt sein oder aber durch die geographische Position des Moores selbst. Auf dem im Anhang gezeigten Pollendiagramm basierend, ergänzt durch die zusätzlichen Diagramme und tabellierten Werte in Seifert (1997), werden im folgenden die wesentlichen Erkenntnisse zur Vegetationsentwicklung kurz diskutiert.

Zone <sup>1)</sup>	Klimaabschnitt <sup>1)</sup>	Waldvegetation <sup>2)</sup> Schwerpunkt Erzgebirge	Konv. <sup>14</sup> C-Alter <sup>3)</sup> a BP
<b>X</b>	Jüngeres <b>Subatlantikum</b>	Rezente Fichtenzeit	... 2500/2800
<b>IX</b>	Älteres	Buchen-Tannenzeit	
<b>VIII</b>	<b>Subboreal</b>	Buchen-Fichtenzeit	... 4500
<b>VII</b>	Jüngeres <b>Atlantikum</b>	Eichenmischwald-Fichtenzeit	... 7500
<b>VI</b>	Älteres		
<b>Vb</b>	<b>Boreal</b>	Eichenmischwald-Kiefern-Haselzeit	... 8500/8800
<b>Va</b>		Kiefern-Haselzeit	
<b>IVb</b>	Jüngeres <b>Präboreal</b>	Kiefern-Birkenzeit	... 10100
<b>IVa</b>	Älteres	Kiefernzeit	

Tabelle 26: Stratigraphische Übersichtstabelle der holozänen Vegetations- bzw. Waldentwicklung im Erzgebirgsraum, unter Berücksichtigung von Angaben aus Rudolph u. Firbas (1924), Frenzel (1930), Firbas (1949, 1952), Overbeck (1975), Göttlich (1990) und Lang (1994) sowie pers. Mitteilung von M. Seifert, LfUG Freiberg, 1998, 2005

<sup>1)</sup> Biostratigraphische Zonen (Pollenzonen) und chronostratigraphische Gliederung (Klimaabschnitte) nach Firbas (1949)

<sup>2)</sup> Die Benennung der Phasen der Waldentwicklung im Erzgebirge basiert auf Rudolph u. Firbas (1924), Firbas (1949) und pers. Mitteilung von M. Seifert LfUG Freiberg, 1998, 2005.

<sup>3)</sup> Konventionelle <sup>14</sup>C-Alter (in a BP) nach Firbas (1949) und Lang (1994)

Das tiefste mit dem Kammerbohrer gezogene Bodenmaterial – d. h. die minerogene Basisprobe aus blaugrauem schluffigen Gneiszersatz (vgl. bodenkundliche Ansprache, Anhang E.1.2) – weist einen auswertbaren Polleninhalte mit einem hohen Anteil an Nichtbaumpollenkörnern auf (Seifert 1997). Aus dem Pollenspektrum kann geschlossen werden, daß sich zum damaligen Zeitpunkt in der Krautschicht sowie auf nassen und versumpften Flächen u. a. Blasenbinse (*Scheuchzeria*), verschiedene Gräser (Poaceen), Sauergräser (Cyperaceen) und Torfmoose (*Sphagnum*) ausbreiteten. Zudem waren Ampfer (*Rumex acetosella*-Typ), Beifuß (*Artemisia*), Mädesüß (*Filipendula*) und Labkraut (*Galium*-Typ) häu-

fig vertreten. In der Umgebung des Untersuchungsgebietes wuchsen Kiefer (*Pinus*), Birke (*Betula*), Hasel (*Corylus*) und vereinzelt schon Vertreter des Eichenmischwalds – d. h. Eiche (*Quercus*), Linde (*Tilia*) und Ulme (*Ulmus*) – sowie die im hier vorgestellten Pollendiagramm nicht enthaltene Esche (*Fraxinus*). Der Zersatz des anstehenden Gneises wirkte als Stauhorizont und ermöglichte dadurch die Entstehung des Moores. In den zwei nach oben anschließenden, z. T. holzreichen Proben (155 ... 165 cm Tiefe) ist einerseits ein leichter Anstieg der Eichenmischwaldwerte, andererseits ein Rückgang des Nichtbaumpollens zu verzeichnen. Dieser Profilbereich, der durch hohe *Pinus*- und steigende *Corylus*-Werte charakterisiert ist, kann der Kiefern-Haselzeit (Zone Va) des Boreals zugeordnet werden (vgl. Firbas 1949). Die Annahme, daß das Ende des Präboreals (Zone IVb) in der Basisprobe erfaßt sei, stellte sich aufgrund anschließender Untersuchungen, z. B. im Pfahlbergmoor (2000), als nicht haltbar heraus (M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 2005).

Der Beginn der borealen Eichenmischwald-Kiefern-Haselzeit (Vb) ist durch den steilen Anstieg der *Corylus*-Kurve und der Eichenmischwaldkurve (Summenkurve von *Quercus*, *Tilia* und *Ulmus*; vgl. Einzelkurven) gekennzeichnet. In dieser Zone beginnt die eigentliche *Sphagnum*-Torfbildung; Holzreste wurden nicht mehr beobachtet. *Corylus* und der Eichenmischwald erreichen maximale Verbreitung (vgl. Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Firbas 1949). Auch in den Untersuchungen von Rudolph u. Firbas (1924) und Frenzel (1930) fielen relativ hohe *Tilia*-Werte in der zweiten Hälfte des Boreals, und damit zu Beginn der Moorbildung einer ganzen Reihe von Erzgebirgsmooren, auf. *Betula* und auch *Pinus* sind noch bedeutend, weichen aber mit dem beginnenden Anstieg der Fichtenkurve (*Picea*) immer stärker zurück. Der geringer werdende Nichtbaumpollenanteil wird jetzt hauptsächlich von Poaceen und Cyperaceen gestellt; *Sphagnum* nimmt weite Flächen ein.

Steil abfallende *Corylus*-Werte und eine sich immer stärker durchsetzende *Picea* (s. Schnittpunkt mit *Pinus*-Kurve) markieren den Übergang zum älteren Atlantikum (VI) (vgl. Rudolph u. Firbas 1924; Firbas 1949). Zu Beginn der Eichenmischwald-Fichtenzeit erreichen auch Tanne (*Abies*) und Buche (*Fagus*) kleine Gipfel, danach sinken die Werte beider Gehölze jedoch wieder unter 1 %. Ein entsprechendes Verhalten von *Abies* und *Fagus* wurde in den von Rudolph u. Firbas (1924), Frenzel (1930), Lange et al. (2005), und M. Seifert-Eulen (LfUG Freiberg, unveröff. Untersuchungsergebnisse 2005) untersuchten Erzgebirgsmooren nicht beobachtet; welche Faktoren hierbei eine Rolle spielen, kann erst im Zusammenhang weiterer Untersuchungen in diesem Raum geklärt werden. Kriterien für den Übergang zum jüngeren Teil des Atlantikums (VII) sind nicht deutlich ausgebildet. Im Verlauf bzw. gegen Ende der Zone VII bildet *Corylus* markante jüngere Gipfel (vgl. Firbas 1949). Der Kurvenverlauf einiger Gehölze unterliegt hier größeren Schwankungen. Auch *Abies* und *Fagus* zeigen neuerliche Gipfel und im Anschluß steigt *Fraxinus* erstmalig auf Werte über 1 % an (o. Abb.).

Die Buchen-Fichtenzeit (VIII) ist durch eine deutliche Veränderung des Waldbildes gekennzeichnet: Auffallend ist die dominierende Rolle der Fichte, während die *Corylus*- und *Pinus*-Werte zurückgewichen sind (vgl. Firbas 1949). An der Waldvegetation ist noch der Eichenmischwald beteiligt (häufig *Ulmus* und *Tilia*, weniger *Quercus*). *Fagus* weist leicht erhöhte Werte auf, während die von *Abies* unter 1 % bleiben, nachdem im Übergangsbereich der Zonen VII/VIII ein Wert von 22 % erreicht wurde. Ab dem Subboreal ändert sich auch der Torf. Ein brauner, schwach zersetzter *Scheuchzeria*-Torf zu Beginn des Subboreals geht nach oben hin in einen stärker durch *Sphagnum* geprägten Torf über.

Der Übergang zum älteren Subatlantikum (IX) ist ebenfalls nicht eindeutig, kann aber vermutlich in den Bereich des starken Rückgangs von *Picea* und des neuerlichen Anstiegs der *Quercus*-Kurve gelegt werden. Der Torf ist hier schwarzbraun, mittel zersetzt und feucht. Wie *Betula* zeigt auch *Corylus* in Zone IX nochmals einen jüngeren Gipfel, danach liegen die *Corylus*-Werte meist unter 2 %. Siedlungseinflüsse, sofern überhaupt vorhanden, prägen sich hier noch nicht eindeutig aus (Seifert 1997). Obwohl der steile Anstieg und die sehr ausgeprägten Gipfel der *Fagus*- und *Abies*-Werte wohl ebenfalls noch der Buchen-Tannenzeit des Subatlantikums zugerechnet werden können (vgl. Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Firbas 1949), verweisen siedlungszeitige Formen in den entsprechenden Proben, darunter teilweise Roggenpollen (*Secale cereale*, hier in der Getreidepollenkurve beinhaltet, s. Cerealialia), entweder schon auf das jüngere Subatlantikum (X) oder aber auf einen Ferntransport von

Pollen aus den Altsiedelgebieten beidseitig des Erzgebirges. Die Abgrenzung der jüngeren Pollenzonen wird u. a. durch eine geringe zeitliche Auflösung der oberflächennahen Schichten erschwert. Wie in Kap. 7.1 und Kap. 7.2 angesprochenen, resultierten tiefgreifende Entwässerungsmaßnahmen in der Vergangenheit und der generell vergleichsweise trockene Standort der Schwarzen Heide in Sackungs- und Mineralisierungserscheinungen, die z. B. in relativ hohen Trockenlagerungsdichten zum Ausdruck kommen (Abb. 68).

Der Steilanstieg der *Picea*-Kurve verweist auf die rezente Fichtenzeit (X) (vgl. Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Firbas 1949). Das Gebiet, in dem sich die Schwarze Heide befindet, wurde im wesentlichen erst ab dem späten Mittelalter stärker, d. h. planmäßig und geschlossen, besiedelt (vgl. Barth u. Zühlke 1985; Blaschke 1990; Wagenbreth et al. 1990; Thomasius 1994). Das Moor liegt östlich eines „Böhmischen Steiges“, der nahe Rübenau die Paßhöhe auf dem Erzgebirgskamm überquerte. Der Fernweg verband das sächsische Altsiedelland über das Erzgebirge hinweg mit Böhmen und führte von Leipzig über Rochlitz, Chemnitz, Zschopau, Zöblitz und Rübenau in Richtung Prag. Dabei verzweigten bzw. verbanden sich dieser und andere Wege jedoch im Laufe der Zeit, so daß entsprechende Literaturangaben z. T. voneinander abweichen (Barth u. Zühlke 1985; Blažek et al. 1995; Christl u. Simon 1995; Ruttkowski 2002). Im Zusammenhang mit der Kolonisation entwickelten sich die Fernwege zu Siedelbahnen in das obere Bergland bzw. über die Paßhöhen (Christl u. Simon 1995; Geupel 1995; Ruttkowski 2002). Im 12. Jahrhundert wurden derartige Steige teilweise schon urkundlich erwähnt, z. B. der sog. „Chomutov/Komotauer Weg“ um 1150 im Hersfelder Kopialbuch (Blažek et al. 1995; V. Geupel, Landesamt für Archäologie Sachsen, pers. Mitt. 1997). Die erste urkundliche Erwähnung des Ortes Reitzenhain (als „Reiczenstein“) dagegen ist erst 1401 zu finden, die von Olbernhau (als „Albernhaw“) 1434; Kühnhaide wurde erstmalig 1552 erwähnt (als „Kynheide“) und die Ortsgründung von Rübenau erfolgte erst um 1580 (Barth u. Zühlke 1985).

Inwieweit sich die einzelnen Siedlungsphasen in den Moorschichten widerspiegeln, kann anhand eines einzelnen Profils nicht geklärt werden. Im oberflächennahen Bereich des Diagramms ist deutlich ein anthropogener Einfluß erkennbar, u. a. durch Pollenkörner von *Secale*, *Cerealia*, Spitzwegerich (*Plantago lanceolata*, o. Abb.; vgl. *Plantago*-Kurve). Es können sowohl eine graduelle Zunahme der Nichtbaumpollenkörner (vgl. Kurve der Summe aller Kräuter) beobachtet werden als auch eine prinzipielle Änderung der Waldzusammensetzung, charakterisiert durch einen starken *Picea*-Anstieg und den Rückgang des Eichenmischwalds (v. a. *Tilia* und *Ulmus*, weniger *Quercus*, deren Werte aufgrund von Siedlungsaktivitäten einen leichten Wiederanstieg in der obersten Probe aufweisen). Gleichzeitig setzt eine drastische Reduktion des *Abies*- und etwas später auch des *Fagus*-Pollens ein. Vergleichbare Tendenzen sind auch in den Pollendiagrammen anderer Erzgebirgsmoore zu beobachten (Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Firbas 1949), z. B. des osterzgebirgischen Georgenfelder Hochmoors (Steibich 1995; M. Seifert, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 1995, 1998) und des am Fichtelberg gelegenen Pfahlbergmoors (M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 2005). Siedlungsaktivitäten, inklusive des Beginns von Ackerbau und Bergbau, und die damit verbundenen Rodungen sowie wirtschaftsbedingte Förderungen bestimmter Holzarten werden als die hauptsächlichen Ursachen des Rückganges von Buche und Tanne (Verwendung als Brenn- und Bauholz), verbunden mit dem Anstieg des Fichten- und Nichtbaumpollens (*Cerealia*!), angesehen (Rudolph u. Firbas 1924; Frenzel 1930; Firbas 1949; Wagenbreth et al. 1990; Thomasius 1994; Blažek et al. 1995).

Im Kontext weiterer palynologischer Untersuchungen in erzgebirgischen Hochmooren, z. B. in der Mothäuser Heide (Lange et al. 2005), im Pfahlbergmoor, der Siebensäure und der Hühnerheide (M. Seifert-Eulen, unveröff. Untersuchungsergebnisse 2005), könnte geschlossen werden, daß das vorliegende Pollendiagramm der Schwarzen Heide nur den Zeitraum bis ins späte Mittelalter erfaßt – allerdings ist hierbei auch die geringe Auflösung aufgrund relativ großer Probenintervalle von 5 cm zu berücksichtigen. Ein Klimawandel, wie er in anderen Mooren, z.B. der Mothäuser Heide (Lange et al. 2005), nachgewiesen werden konnte, läßt sich aus dem Pollenprofil der Schwarzen Heide nicht ableiten.

### <sup>14</sup>C-Altersbestimmungen an ausgewählten Torfproben

Die Ergebnisse der Radiokohlenstoffdatierungen sind in Tabelle 27 dargestellt. Die Proben des Georgenfelder Hochmoors wurden mittels LSC analysiert, die der Schwarzen Heide und des Kleinen Kranichsees per AMS (s. Kap. 3.2.4). Aus den Analysen ergeben sich die <sup>14</sup>C-Konzentrationen (in pMC), aus denen sich direkt die konventionellen <sup>14</sup>C-Alter (in a BP) herleiten. Die hier interessierenden kalibrierten, „wahren“ Alter (in a cal BC bzw. a cal AD) wurden unter Verwendung von Kalibrierungskurven (Pearson u. Stuiver 1986; Stuiver u. Pearson 1986; Stuiver u. Becker 1993; Hebert 1997; O. Nitzsche, TU BAF, pers. Mitt. 1996, 1998) aus den <sup>14</sup>C-Konzentrationen (in pMC) bzw. den konventionellen <sup>14</sup>C-Altern (in a BP) bestimmt. Dabei ergeben sich häufig mehrere Schnittpunkte, und/oder die Zeitabschnitte, welche der 1 $\sigma$ -Standardabweichung des unkalibrierten <sup>14</sup>C-Werts entsprechen, liegen asymmetrisch um einen Schnittpunkt oder sind mehrmals unterbrochen. Um diskutierfähige Angaben zu erhalten, sind die Werte, wo möglich bzw. vertretbar, in Form eines „mittleren <sup>14</sup>C-Alters mit Bereichsangabe“ angegeben – die Bereichsangabe ist nicht im Sinne einer Standardabweichung zu verstehen, sondern definiert den wahrscheinlichen Altersbereich. Soweit nicht anderweitig vermerkt, werden im folgenden nur die kalibrierten <sup>14</sup>C-Alter diskutiert.

Tabelle 27: Ergebnisse der <sup>14</sup>C-Datierungen ausgewählter Proben der Profile Georgenfelder Hochmoor (LSC) sowie Schwarze Heide und Kleiner Kranichsee (AMS)

Hochmoor	Schicht	Tiefe cm	<sup>14</sup> C pMC	Konv. <sup>14</sup> C-Alter a BP	Kalibriertes <sup>14</sup> C-Alter <sup>2)</sup> a cal AD
Georgenfelder Hochmoor	0/Veg.	0	113.9 $\pm$ 1.7	–	1990 $\pm$ 1, 1959 $\pm$ 1
	2	2.5 – 4.5	125.1 $\pm$ 1.8	–	1981 $\pm$ 1, 1978 $\pm$ 1, 1961 $\pm$ 1
	6	11.5 – 14.5	93.9 $\pm$ 1.5	–	1440 (1320 ... 1620)
	8	21.5 – 26.5	82.9 $\pm$ 1.4	–	600 (430 ... 670)
	12	41.5 – 51	81.8 $\pm$ 1.4	–	450, 490 (270 ... 630)
Schwarze Heide <sup>1)</sup>	3	4 – 5.5	98.5 $\pm$ 0.3	120 $\pm$ 30	1954 ... 1955, 1908 ... 1928, 1809 ... 1895, 1686 ... 1732
	PA14	65 – 70	47.0 $\pm$ 0.2	6060 $\pm$ 40	4950 $\pm$ 80 a cal BC
	PA22	105 – 110	41.9 $\pm$ 0.2	7000 $\pm$ 40	5850 $\pm$ 80 a cal BC
	PA33	160 – 165	41.1 $\pm$ 0.3	7150 $\pm$ 50	5980 $\pm$ 30 a cal BC
Kl. Kranichsee	9	11.5 – 13	117.2 $\pm$ 0.3	–	1985 ... 1990, 1960 $\pm$ 1

<sup>1)</sup> Die mit PA bezeichneten Proben entstammen der Parallelbohrung für die palynologischen Untersuchungen.

<sup>2)</sup> Kalibrierte <sup>14</sup>C-Alter in a cal AD, sofern nicht als a cal BC angegeben. Aufgeführt sind die Schnittpunkte und der Altersbereich, welcher mit der 1 $\sigma$ -Standardabweichung des unkalibrierten <sup>14</sup>C-Werts maximal erfaßt wird (bei starker Asymmetrie Bereich in Klammern). Bei mehr als zwei Schnittpunkten sind entweder nur die entsprechenden Altersbereiche oder ein „mittleres <sup>14</sup>C-Alter mit Bereichsangabe“ aufgeführt.

Die Ergebnisse der oberflächennahen Proben des Georgenfelder Hochmoors (Schicht 0 bzw. Vegetation; Schicht 2) und der Schwarzen Heide (3) sowie die Probe aus dem Kleinen Kranichsee (9) enthalten mehr <sup>14</sup>C als die Standardatmosphäre (d. h. > 100 pMC). Dies kann bedeuten, daß das Probenmaterial nach 1954 gebildet worden ist. Es kann jedoch auch eine Mischung von <sup>14</sup>C aus den Kernwaffentests und wesentlich älterem <sup>14</sup>C vorliegen. Für die Datierung mittels LSC sind etwa 40 g Probenmaterial nötig, so daß hier „Tiefenmischproben“ vorausgesetzt werden können (entsprechend Kap. 3.2.4 entstammt das mittels LSC datierte Material aus repräsentativen Anteilen der Beprobungsschichten, welche jeweils einen gewissen Altersbereich umschließen). Das <sup>14</sup>C-Alter der Probe aus Schicht 2 kann somit als Mittelwert der vergangenen 40 a gedeutet werden. Die Vegetationsprobe (Schicht 0) des Georgenfelder Hochmoors wurde zur Überprüfung der Methodik gemessen. Es handelt sich dabei hauptsächlich um die oberirdischen Anteile mehrjähriger Gefäßpflanzen, so daß die Datierung um 1990 plausibel ist. Zur Datierung mittels AMS sind nur sehr geringe Probenmengen nötig,



und es muß auf zeitlich repräsentatives Material geachtet werden. Laut Laborbericht (P.M. Grootes) wurden „Rinde und Stengelstücke mit geringer Durchwurzelung“ zur Datierung ausgesucht. Der Probe des Kleinen Kranichsees – laut Probenbeschreibung „Blätter“, d. h. vermutlich Torfmoosblättchen – werden die Perioden von 1954 ... 1962 und die 80er Jahre zugewiesen. Eigene Auswertungen anhand der Kalibrierkurven, wie sie auch für das Georgenfelder Hochmoor verwendet wurden ( $^{14}\text{C}$  in Holz bzw.  $\text{CO}_2$  des Freiburger Raums, Hebert 1997 und O. Nitzsche, TU BAF, pers. Mitt. 1996, 1998), grenzen diese Angaben weiter ein.

### Datierung der Moorschichten mit freiem $^{210}\text{Pb}$

Die Altersbestimmung von Eiskernen, Seesedimenten und Torfprofilen anhand des atmosphärisch eingetragenen  $^{210}\text{Pb}$  ist eine übliche und etablierte Methode (Croaz et al. 1964; Croaz u. Langway 1966; Krishnaswami u. Lal 1978; El-Daoushy et al. 1982; El-Daoushy 1986b; Appleby et al. 1988; Shotyk et al. 1996; Vile et al. 2000). Wesentliche Voraussetzung der Anwendung des freien  $^{210}\text{Pb}$  zur Datierung ist eine schnelle und dauerhafte Fixierung des Nuklids im zu datierenden Substrat. In ombrogenen Hochmooren (v. a. in *Sphagnum*-dominierten Torfen rezent wachsender Hochmoore) wird Pb i. allg. als immobil angesehen (Shotyk et al. 1996, 1998; MacKenzie et al. 1997; Vile et al. 1999). Für im Idealfall vollständig oder in der Realität teilweise abgeschlossene Systeme basieren die  $^{210}\text{Pb}$ -Altersbestimmungen des CRS-Modells (CRS = Constant Rate of Supply) auf der Annahme eines konstanten Eintrags von freiem  $^{210}\text{Pb}$  während des betrachteten Zeitraums (Appleby u. Oldfield 1978; Schell u. Tobin 1994). Unter der zusätzlichen Annahme konstanter Akkumulationsraten geht bei Verwendung des CIC-Modells (CIC = Constant Initial Concentration) auch die initiale  $^{210}\text{Pb}$ -Konzentration (in Bq/kg Trockenmasse) konstant in die Berechnungen ein (Robbins 1978). Wird  $^{210}\text{Pb}$  durch zusätzliche Quellen eingetragen, z. B. über  $^{226}\text{Ra}$  aus Grubenwässern des Bergbaus oder durch Abwässerleitungen der Phosphatindustrie, so sind erweiterte Modelle nötig (Kershaw et al. 1990; McCartney et al. 1990; Klös u. Schoch 1993).

Vergleichenden Gegenüberstellungen von  $^{210}\text{Pb}$ -Altern aus der Verwendung der oben genannten Modelle,  $^{14}\text{C}$ -Altern, Datierungen mittels der „moss increment“ Methode (d. h. über den jährlichen Zuwachs von Torfmoospflanzen) und palynologischen Befunden zufolge führen Berechnungen mit dem CIC-Modell eher zu einer Unterschätzung des Alters von Hochmoorproben (Oldfield et al. 1979; El-Daoushy et al. 1982; Turner u. Delorme 1996). Für die  $^{210}\text{Pb}$ -Datierungen der Profile aus dem Georgenfelder Hochmoor, der Schwarzen Heide und dem Kleinen Kranichsee wurde deshalb das CRS-Modell verwendet (Kap. 3.1.4); diese Entscheidung basiert zudem auf den in Oldfield et al. (1979), El-Daoushy (1986a) und Appleby et al. (1988) durchgeführten Bewertungen der Eignung beider Modelle zur Datierung von Hochmoortorf. In die Berechnung einbezogen sind nur die Schichten der Profilblöcke, nicht die Bohrproben, da deren ursprüngliche Lagerungsdichten nicht bekannt sind. Das Profil des Radauer Borns eignet sich nicht zur Datierung, da die  $^{210}\text{Pb}$ -Verteilung und somit auch das  $^{210}\text{Pb}$ -Inventar nur sehr unvollständig erfaßt sind.

Der Anteil von geogenem bzw. mit  $^{226}\text{Ra}$  assoziiertem  $^{210}\text{Pb}$  ist in den untersuchten Moorproben vergleichsweise gering oder nicht nachweisbar. Die Anteile des freien  $^{210}\text{Pb}$  wurden unter Verwendung der spezifischen Aktivitäten der  $^{226}\text{Ra}$ -Folger  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  bestimmt, da die aus der 186 keV-Linie berechneten  $^{226}\text{Ra}$ -Aktivitäten größere Unsicherheiten aufweisen und auch nicht für alle datierten Schichten bestimmt werden konnten (vgl. Kap. 3.1.4).

Die errechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter sind in Abb. 71, Abb. 72 und Abb. 70 über der Tiefe aufgetragen. Im Profil des Georgenfelder Hochmoors nimmt die relative Unsicherheit mit zunehmendem  $^{210}\text{Pb}$ -Alter stärker zu als in der Schwarzen Heide und dem Kleinen Kranichsee, worin sich die höheren Unsicherheiten der zugrundeliegenden Meßdaten widerspiegeln (Meßplatz P36). Die Unsicherheiten, welche sich bei der Probennahme (z. B. bei der Bestimmung der Profilfläche) ergeben, sind – vergleichbar den Berechnungen der Unsicherheiten von  $A_{\text{konz}}$  und  $A_{\text{F}}$  – in die Unsicherheitsbestimmung entsprechend den Gesetzmäßigkeiten der Unsicherheitsfortpflanzung eingegangen.

Um zu demonstrieren, inwieweit beispielsweise unterschiedliche Nachweisgrenzen bzw. Detektor-

effektivitäten für  $^{210}\text{Pb}$  bei der Messung das Datierungsergebnis beeinflussen, wurden die auf beiden Detektoren (P36 und N38) bestimmten  $^{210}\text{Pb}$ -Aktivitäten des Profils Schwarze Heide zur Datierung verwendet (Abb. 72). Im Bereich 0 ... 9 cm stimmen die berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter gut überein, darunter weichen die Werte deutlich voneinander ab.

### „Altersmarkierung“ mit $^{125}\text{Sb}$ , $^{241}\text{Am}$ und Pu-Isotopen

Um die Eignung der künstlichen RN zur zeitlichen Markierung zu prüfen, sind die vertikalen Verteilungen von  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$  (entsprechend Kap. 7.1) zum Vergleich in die  $^{210}\text{Pb}$ -Diagramme mit eingetragen. Die Verteilung von  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  wurden nur im Profil des Kleinen Kranichsees bestimmt und stimmen dort relativ gut mit der des  $^{241}\text{Am}$  (vgl. Abb. 61) überein. Die Zuordnung der spezifischen Aktivitäten einer Schicht zu dem entsprechenden  $^{210}\text{Pb}$ -Alter ist in Abb. 70 an zwei Beispielen anhand enggestrichelter Linien verdeutlicht.

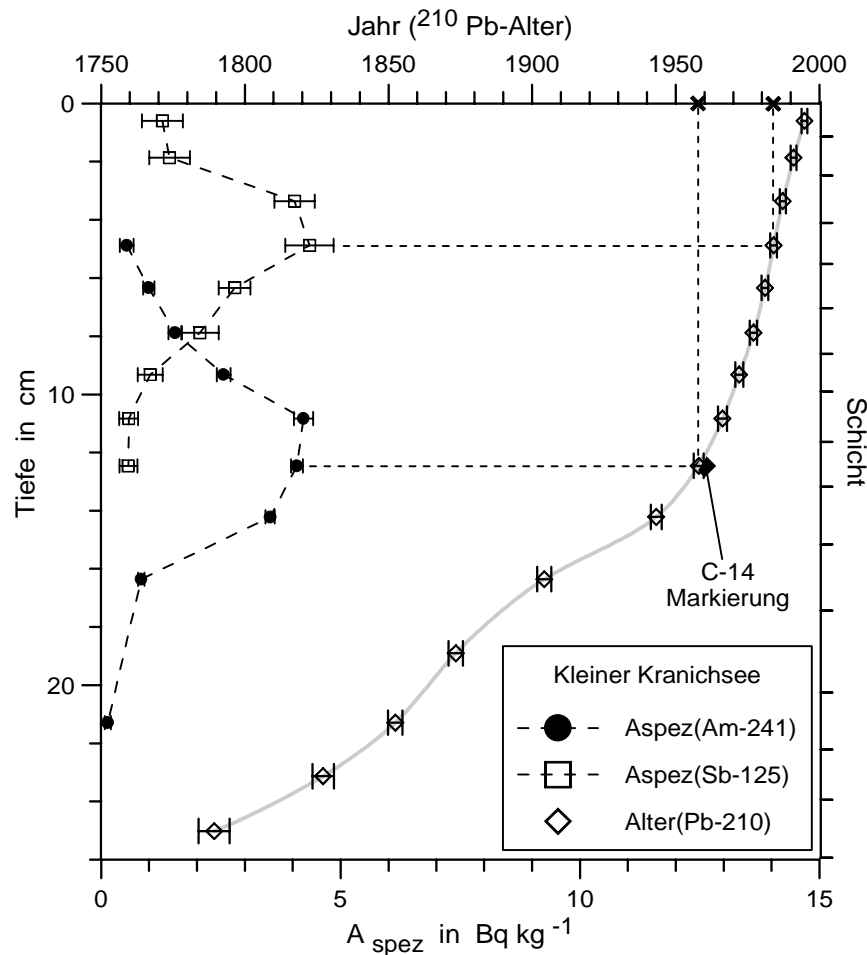


Abb. 70: Kleiner Kranichsee. Vergleich der berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter der Profilschichten (CRS-Modell) mit den Tiefenverteilungen von  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$

Die  $^{14}\text{C}$ -Markierung von Schicht 9 ist durch eine schwarze Raute markiert (kalibriertes  $^{14}\text{C}$ -Alter). In diesem Bodenkompartment ist auch  $^{239,240}\text{Pu}$  maximal, in dem darüberliegenden  $^{238}\text{Pu}$  (vgl. Abb. 61). Die Zuordnung von  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Werten zu den  $^{210}\text{Pb}$ -Alten der jeweiligen Schicht ist beispielhaft anhand der enggestrichelten Linien demonstriert. Die eingezeichneten Kurven dienen nur zur Verdeutlichung.

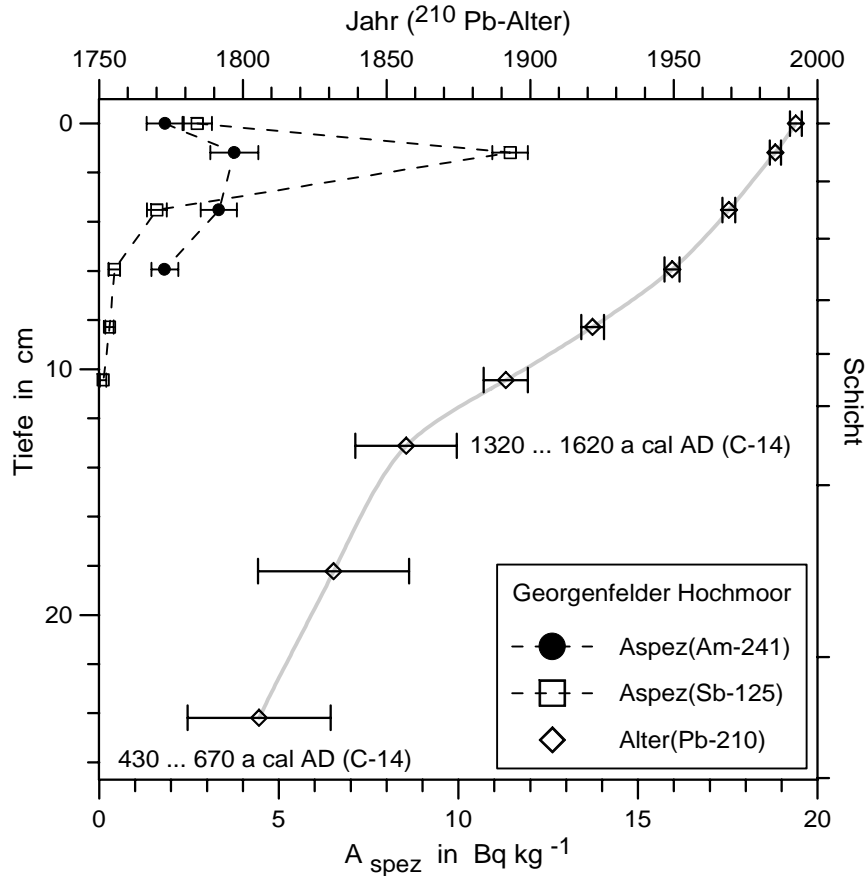


Abb. 71: Georgenfelder Hochmoor. Vergleich der berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter der Profilschichten (CRS-Modell) mit den Tiefenverteilungen von  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$

Die kalibrierten  $^{14}\text{C}$ -Alter von Schicht 6 und 8 entsprechend Tabelle 27 sind mit eingetragen. Die eingezeichneten Kurven dienen nur zur Verdeutlichung.

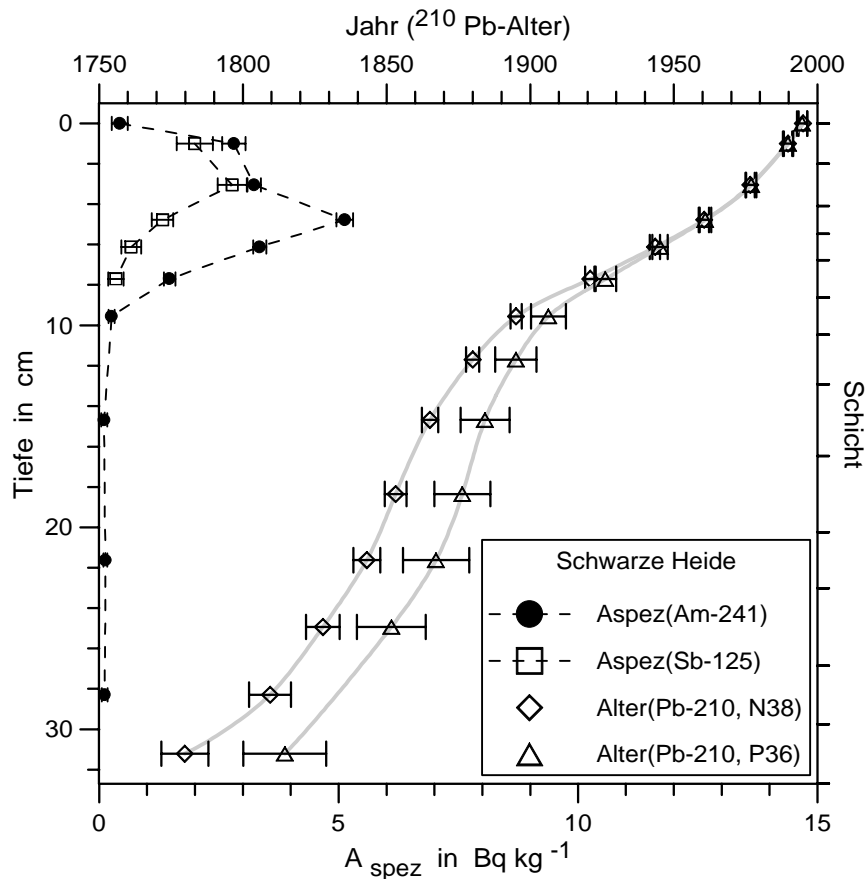


Abb. 72: Schwarze Heide. Vergleich der berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter der Profilschichten (CRS-Modell) mit den Tiefenverteilungen von  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{241}\text{Am}$

Zum Vergleich sind die Datierungsergebnisse gegenübergestellt, welche aus den Messungen der Proben auf beiden Meßplätzen, P36 und N38, resultieren. Die eingezeichneten Kurven dienen nur zur Verdeutlichung.

### Vergleich der Datierungs- und Markierungsergebnisse

Im Profil des Kleinen Kranichsees stimmen die berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter der Bodenschichten, in denen die  $^{125}\text{Sb}$ -,  $^{241}\text{Am}$ - und Pu-Maxima liegen, sehr gut mit dem jeweiligen Zeitraum der (maximalen) Deposition dieser RN überein (Abb. 70, vgl. Tiefenverteilungen Pu, Abb. 61). Die  $^{210}\text{Pb}$ -Alter der beiden Torflagen erhöhter  $^{125}\text{Sb}$ -Werte betragen  $1987 \pm 1$  und  $1984 \pm 1$  und erfassen damit den Zeitpunkt des Tschernobyl-Unfalls 1986. Die beiden Schichten maximaler  $^{241}\text{Am}$ -,  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Werte sind datiert auf  $1966 \pm 2$  und  $1958 \pm 2$  und lassen sich damit dem Zeitraum des maximalen Inputs durch die Kernwaffentests um das Jahr 1963 zuordnen. Die  $^{14}\text{C}$ -Markierung der tieferen dieser beiden Lagen ergibt ein mehrdeutiges Ergebnis (vgl. Tabelle 27). Da der Kleine Kranichsee eine rezent wachsende, von Torfmoosen geprägte Mooroberfläche aufweist, kann der Zeitraum der 80er Jahre als Alter dieser Torfschicht in etwa 12 cm Tiefe ausgeschlossen werden. Das zweite Ergebnis von  $1960 \pm 1$  dagegen entspricht dem errechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter. In einer Tiefe von etwa 10 cm geht der unzersetzte Torf (Torfmoose) in einen schwach bis mittel humifizierten Torf über, was auch an einer geringfügig erhöhten Lagerungsdichte zu erkennen ist (vgl. Abb. 68). Die stärker zunehmenden  $^{210}\text{Pb}$ -Alter in diesem Bereich höherer Kompaktierung sind somit plausibel.

In den Profilen der anthropogen überprägten Moore stimmen die Peaklagen nur ansatzweise mit dem  $^{210}\text{Pb}$ -Alter der jeweiligen Beprobungsschicht überein. Während das  $^{125}\text{Sb}$ -Maximum im Georgenfelder Hochmoor mit  $1985 \pm 2$  gut erfaßt ist, ergeben sich für das verbreiterte  $^{241}\text{Am}$ -Maximum die 70er und 80er Jahre. Die  $^{14}\text{C}$ -Markierung im unteren Bereich des  $^{241}\text{Am}$ -Peaks (Schicht 2) ist mehrdeutig und ergibt mögliche Alter um 1960 und 1980. Wie zuvor erläutert, kann dies auch auf eine Mischung von Material sehr unterschiedlichen Alters hinweisen. In der Schwarzen Heide ist der  $^{241}\text{Am}$ -Peak auf  $1961 \pm 2$  datiert ( $^{210}\text{Pb}$ ), der  $^{125}\text{Sb}$ -Peak allerdings mit  $1977 \pm 2$  unterschätzt. Das  $^{14}\text{C}$ -Alter der dritten Schicht (Max.  $^{241}\text{Am}$ ) ist mehrdeutig, das jüngste mögliche Alter liegt bei etwa 1955 und damit noch unter dem Zeitpunkt des maximalen Kernwaffenfallouts.

Zieht man die Ergebnisse der  $^{14}\text{C}$ -Datierungen tieferer Beprobungsschichten des Georgenfelder Hochmoors hinzu, so wird deutlich, daß die Torfalter in 13 cm und 24 cm weit über dem datierbaren Zeitrahmen der  $^{210}\text{Pb}$ -Methoden liegen. Die deutlichen Unterschiede zwischen den  $^{14}\text{C}$ - und den  $^{210}\text{Pb}$ -Altern lassen sich nicht mit den unvollständigen  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamtinventaren erklären. Geht man z. B. davon aus, daß in den Profilen des Georgenfelder Hochmoors und des Kleinen Kranichsees jeweils etwa 5 % des Gesamtinventars nicht erfaßt sind (z. B. aufgrund von Bohrproben undefinierter Dichte), was eine plausible Annahme ist, so weichen die damit neu berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter (CRS-Modell) von den hier dargestellten ab wie folgt: Im Altersbereich bis 50 a sind die Werte um bis zu 10 % kleiner, im Bereich bis 100 a um bis zu 20 ... 30 %. Die Korrektur führt damit zu einer noch größeren Differenz zwischen  $^{210}\text{Pb}$ - und  $^{14}\text{C}$ -Datierung. Der Verlauf der  $^{210}\text{Pb}$ -Alter mit der Tiefe gibt somit kaum das Wachstum und die Entwicklung des Georgenfelder Hochmoors wider, wie sie schon aus der bodenkundlichen Ansprache – auch im Vergleich zu anderen Mooren – geschlossen werden können.

Radiokohlenstoffdatierungen und Pollenanalysen an vergleichbaren Profilen im Georgenfelder Hochmoor bestätigen die hier gemessenen  $^{14}\text{C}$ -Alter (Bozau 1995; Stebich 1995). Da  $^{14}\text{C}$ -Daten in der genannten Literatur nur in Form konventioneller  $^{14}\text{C}$ -Alter vorlagen, wurden die Vergleiche auf dieser Basis durchgeführt, d. h. die hier dargestellten  $^{14}\text{C}$ -Werte in konventionelle  $^{14}\text{C}$ -Alter umgerechnet. Aus den genannten Publikationen sowie jüngeren Untersuchungen in der Hühnerheide und der Siebensäure (M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, unveröff. Untersuchungsergebnisse 2005) läßt sich ein verlangsames Moorwachstum innerhalb des vergangenen Jahrtausends und damit relativ niedrige Wachstumsraten in der Größenordnung von  $\leq 0.5$  mm/a herleiten. Anhand der palynologischen Untersuchungen in der Schwarzen Heide ist diesem Zeitraum, in dem die Siedlungszeit liegt, ebenfalls nur ein geringmächtig entwickelter Tiefenbereich mit einer dementsprechend geringen zeitlichen Auflösung zuzuweisen (Jüngeres Subatlantikum, Zone X, Tabelle 26 u. Anhang E.3, Abb. E.3). Allerdings ist hierbei zu berücksichtigen, daß sämtliche in diesem Abschnitt diskutierten Moore anthropogenen Einflüssen unterlagen (s. o.).

Die  $^{14}\text{C}$ -Datierungen der Torfschichten in etwa 70 cm und 110 cm Tiefe der Schwarzen Heide un-

terstützen die Befunde der Pollenanalyse. Das  $^{14}\text{C}$ -Alter der Probe aus 160 cm Tiefe unterschätzt das wahre Alter dieser Torfschicht vermutlich um etwa 1000 a. Dies zeigt auch ein Vergleich der aus den  $^{14}\text{C}$ -Altern errechneten Torfwachstumsraten (Abb. 73) mit dem Pollendiagramm und der Entwicklung dieses Moores (vgl. bodenkundliche Ansprache Anhang E.1.2) bzw. einiger anderer Moore im Erzgebirgsraum (z. B. Pfahlbergmoor, M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 2005). Die Unstimmigkeiten könnten folgendermaßen erklärt werden. Es handelt sich hierbei um Material, das dem unterhalb des Holzhorizonts gelegenen *Sphagnum*-Torf entnommen wurde. Die untersuchte Probe, laut Labor eine „Stengelhülle“, könnte einem wesentlich jüngeren Zeitraum entstammen und erst später in den tieferen Moorbereich gelangt sein. Setzt man plausible Wachstumsraten voraus, wie in Abb. 73 gestrichelt eingezeichnet, so hätte die Probe beispielsweise „zu Lebzeiten“ etwa 50 cm tief in den damals noch geringmächtigen Moorboden eindringen oder verlagert werden müssen, was durchaus denkbar ist.

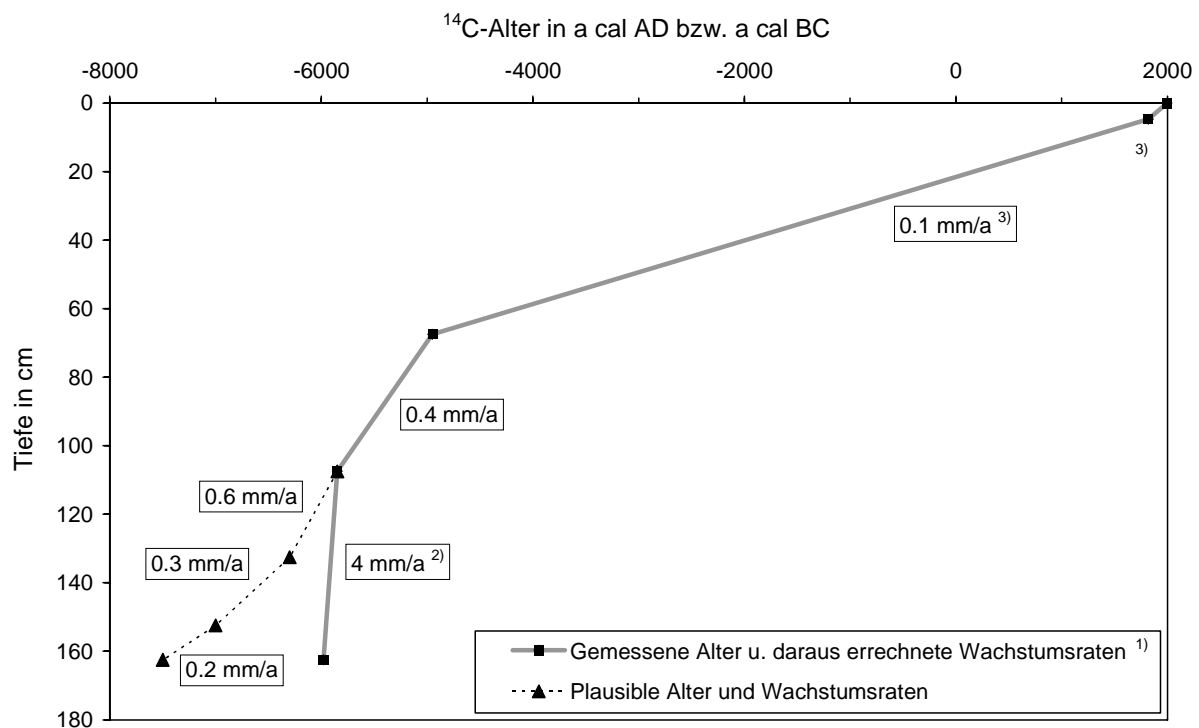


Abb. 73: Kalibrierte  $^{14}\text{C}$ -Alter (AMS) ausgewählter Schichten des Moorprofils Schwarze Heide und errechnete Wachstumsraten sowie Demonstration plausibler Alter und Wachstumsraten unterhalb 120 cm Tiefe

<sup>1)</sup> Die Bestimmung der Unsicherheiten der Wachstumsraten entsprechend den Gesetzen der Unsicherheitsfortpflanzung zeigt, daß sich die Unsicherheiten aufgrund der Tiefenangaben in Form von Bereichen im Vergleich zu den „Unsicherheiten“ aufgrund der Altersspannen der kalibrierten  $^{14}\text{C}$ -Alter nur in untergeordnetem Maße auswirken. Die relativen Unsicherheiten der Wachstumsraten liegen bei < 5 % (bis 68 cm Tiefe; mittlere Tiefe), 10 ... 15 % (68 ... 108 cm) und bis zu 65 % (108 ... 163 cm). Trotz der relativ hohen Unsicherheit der tiefsten berechneten Wachstumsrate beinhaltet der entsprechende Unsicherheitsbereich wesentlich höhere Werte als für diesen Abschnitt des Torfprofils als plausibel angenommen werden kann (vgl. Diskussion im Text).

<sup>2)</sup> Da die errechnete Wachstumsrate im Bereich 108 ... 163 cm unrealistisch erscheint, sind – auf der in Kap. 7.3 diskutierten Annahme eines um etwa 1000 a älteren  $^{14}\text{C}$ -Alters der tiefsten datierten Schicht basierend – plausible Wachstumsraten gestrichelt eingezeichnet.

<sup>3)</sup> Wie in Kap. 7.3 dargestellt, enthält die oberflächennahe Probe (Schicht 3) mehr  $^{14}\text{C}$  als die Standardatmosphäre (d. h. > 100 pMC), was bedeuten kann, daß das Probenmaterial entweder nach 1954 gebildet worden ist oder aber eine Mischung von  $^{14}\text{C}$  aus den Kernwaffentests und wesentlich älterem  $^{14}\text{C}$  vorliegt; für das entsprechende kalibrierte  $^{14}\text{C}$ -Alter resultieren Werte im Bereich 1686 ... 1955 a cal AD. Die errechnete Wachstumsrate bis knapp 70 cm Tiefe ist relativ unabhängig von diesem Datierungsergebnis und liegt bei Verwendung des maximalen bzw. minimalen  $^{14}\text{C}$ -Alters im Bereich 0.091 ... 0.095 mm/a; bei Nichtbeachtung des Datierungsergebnisses errechnet sich eine Wachstumsrate von 0.097 mm/a für den gesamten Moorbereich 0 ... 70 cm.

Die Untersuchungen machen deutlich, daß die  $^{210}\text{Pb}$ -Verteilung dem Boden aufgeprägt sein kann, ohne das wahre Alter des Substrats zu erfassen. Das  $^{14}\text{C}$ -Alter einer Probe dagegen ist auf die Bodensubstanz, aus der sie entnommen wurde, übertragbar, sofern sichergestellt ist, daß es sich um repräsentatives Material handelt und nicht um z. B. eingewachsenes oder eingedrücktes Fremdmaterial. Die Gefahr einer Fehldatierung besteht auch in Bodenabschnitten, in denen zusätzliche C-Quellen vorliegen, z. B. im Durchwurzelungsbereich, wo aufgrund durchwachsender und dann absterbender Wurzeln („Wurzel-Turnover“) ein kontinuierlicher C-Eintrag gegeben ist.

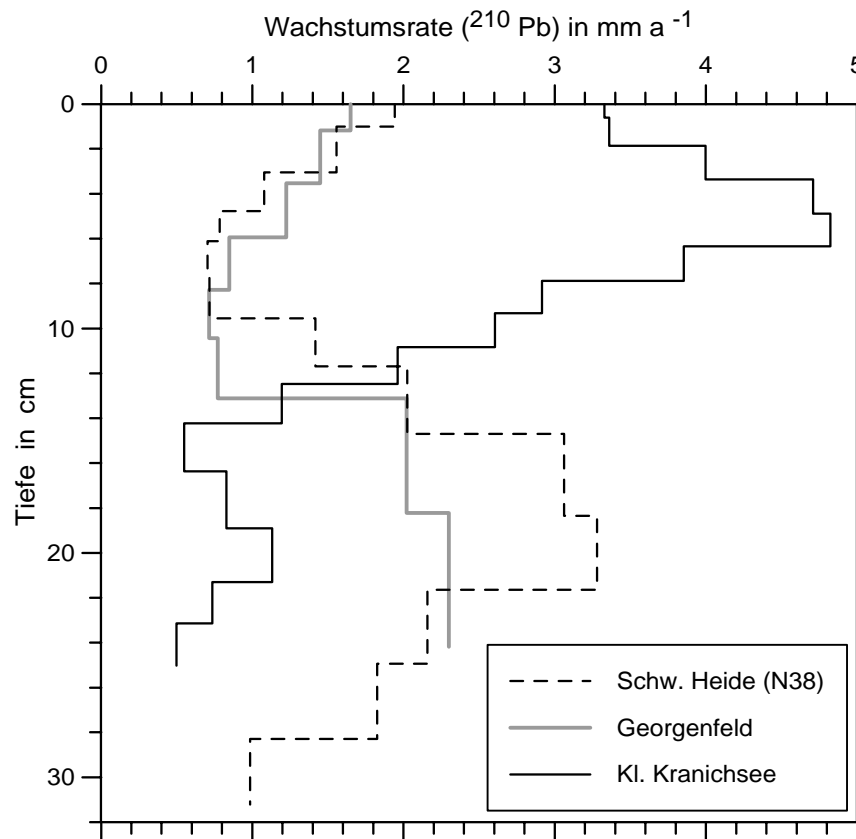


Abb. 74: Vergleich der Wachstumsraten, die sich aus der  $^{210}\text{Pb}$ -Datierung der Moorprofile errechnen

Für die Schwarze Heide sind nur die Wachstumsraten eingetragen, die sich aus den Messungen auf Detektor N38 errechnen. Diese Werte stimmen bis 8 cm Tiefe relativ gut mit denen der Meßreihe auf P36 überein, im Bereich bis 18 cm liegen die Raten für P36 um 30 ... 50 % höher

Einen weiteren Hinweis darauf, inwieweit  $^{210}\text{Pb}$ -Alter die „wahren“ Alter der datierten Bodenschichten repräsentieren, geben die aus den  $^{210}\text{Pb}$ -Schichtaltern berechneten Wachstumsraten (Abb. 74; zur Berechnung verwendet wurden die den Schichtmittlen zugehörigen  $^{210}\text{Pb}$ -Alter). Im Vergleich fallen die Raten des Kleinen Kranichsees, vom oberflächennahen Bereich abgesehen, mit der Tiefe ab, für die beiden anderen Moore dagegen ist eine gegenläufige Tendenz festzustellen. Auch anhand der Lage der  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Maxima und des bekannten Zeitpunkts des maximalen Inputs der Nuklide lassen sich Wachstumsraten errechnen. Für das Profil des Kleinen Kranichsees ergibt sich daraus ein Wert von knapp 4 mm/a für die oberen 12 cm Tiefe. Aufgrund der oben schon nachgewiesenen guten Übereinstimmung der berechneten  $^{210}\text{Pb}$ -Alter in den Bodenschichten maximaler  $A_{\text{spez}}$ -Werte mit dem Eintragsmaximum stellt diese Wachstumsrate erwartungsgemäß einen durchschnittlichen Wert der aus den  $^{210}\text{Pb}$ -Altern errechneten Rate dar. Obwohl die  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Verteilungen in dem Profil des Radauer Borns nicht vollständig erfaßt sind, berechnet sich – unter der plausiblen Annahme einer vergleichbaren starken, zeitaufgelösten Fixierung der Nuklide in beiden ombrogenen Hochmooren – aus der Lage des  $^{125}\text{Sb}$ -Peaks eine Wachstumsrate von mindestens 19 mm/a für den Bereich bis 22 cm Tiefe. Dieser Wert liegt deutlich über dem des Kleinen Kranichsees und spiegelt damit die wesentlich günstigeren Wachstumsbedingungen an dem Beprobungspunkt im Harzmoor wider.

In Hochmooren ist prinzipiell zu unterscheiden zwischen den tatsächlichen jährlichen Wachstumsraten der Torfmoospflanzen, dem Wachstum der oberflächennahen, rezenten bzw. nur leicht vertorften Schichten, zu dem auch die Gefäßpflanzen beitragen, und der effektiven Torfwachstumsrate des eigentlichen Moorkörpers. Die berechneten durchschnittlichen Wachstumsraten von 4 mm/a und 19 mm/a für Tiefenbereiche bis 12 cm bzw. 22 cm des Radauer Borns und des Kleinen Kranichsees repräsentieren somit das Wachstum der oberen Bodenschichten. Die tatsächlichen jährlichen Wachstumsraten von Moospflanzen sind je nach Standort sogar höher anzusetzen. In einem norddeutschen Hochmoor bestimmten Overbeck u. Happach (1957) und Overbeck (1975) mittlere Jahreszuwachsrate für die Bulttorfmoose *Sphagnum rubellum* und *Sphagnum magellanicum* – die auch in den hier beprobten Hochmooren teilweise vorkommen – von etwa 35 mm/a und für die Schlenkentorfmoose *Sphagnum fallax* und *Sphagnum cuspidatum* Raten von 116 mm/a bzw. 300 mm/a. *Sphagnum magellanicum* wuchs dagegen in zwei norditalienischen Hochmooren nur 12 mm/a (Gerdol et al. 1994). In skandinavischen Hochmooren lagen z. B. die Raten für das Bulttorfmoos *Sphagnum fuscum* bei 11 mm/a und die verschiedener Schlenkenspezies bei 32 mm/a (Damman 1978; Pakarinen 1978b; Lindholm 1990). Zwar vollzieht sich das Längenwachstum der meisten Torfmoosarten in der Senkrechten, früher oder später werden jedoch durch das Gewicht der überlagernden Vegetationsdecke die älteren Teile mehr oder weniger aus ihrer ursprünglichen Lage gedrängt, in Schlenken bereits innerhalb der Vegetationsperiode, auf Bulten oft erst im Zuge der Vertorfung (Overbeck 1975). Somit können an Bultstandorten, wie sie im Kleinen Kranichsee beprobt wurden, die Wachstumsraten der oberflächennahen Moorschichten nur geringfügig unter denen der Torfmoose liegen oder sogar übereinstimmen. Im Vergleich zu finnischen Hochmooren sind die Bulte des Kleinen Kranichsees relativ flach – laut Hempel (1974) weisen die Erzgebirgshochmoore generell keine Bulte im Sinne der skandinavischen Hochmoore auf, sondern „höchstens Einart-Bulte oder kleinere Aufwölbungen“ – und bei verschiedenen Beprobungen des Erzgebirgsmoors waren die dichtgedrängt aufrechtstehenden Torfmoospflänzchen gut sichtbar.

In Mooren, deren Vegetation überwiegend aus Gefäßpflanzen zusammengesetzt ist, ergibt sich ein spezieller Wachstumsmodus. Die Zuwachsschichten des Torfes lagern sich nicht ausschließlich auf der Oberfläche ab, sondern die neu hinzukommende organische Substanz, d. h. hauptsächlich Wurzeln, verteilt sich auf den gesamten, der Durchwurzelungstiefe entsprechenden Bereich (Göttlich 1990). Dadurch mischt sich jüngeres Material mit älterem, schon vorhandenem, so daß das Wachstum nicht auf eine bestimmte Ebene zu lokalisieren ist. Dieser Effekt kann eine weitere Erklärung für die mehrdeutigen Ergebnisse der  $^{14}\text{C}$ -Datierungen der oberflächennahen Proben des Georgenfelder Hochmoors (Schicht 2) und v. a. der Schwarzen Heide (Schicht 3) sein – an beiden Beprobungspunkten machen Gefäßpflanzen einen großen Anteil der Vegetation aus. Für das stagnierte Quellmuldenmoor Schwarze Heide ist vorstellbar, daß sich dieser „innere Zuwachs“ durch den Abbau der organischen Substanz aufgrund des vergleichsweise trockenen, phasenweise aeroben Milieus der oberflächennahen Schichten ausgleicht, so daß kein effektiver Mächtigkeitzuwachs stattfindet (Stagnation).

In den beiden anthropogen überprägten Mooren geben die  $^{210}\text{Pb}$ -Datierungen und die daraus berechneten Wachstumsraten (Abb. 74) somit die tatsächliche zeitliche und räumliche Entwicklung des Bodens nicht wider. Die Gründe dafür sind u. a. in der veränderten Beweglichkeit des Pb unter wechselnd aerob-anaeroben Bedingungen – selbst bei sehr niedrigen pH-Werten – zu suchen (vgl. Kap. 7.2). Auch in ungestörten Hochmooren kann Pb durch Wasserspiegelschwankungen mobilisiert werden (Damman 1978; Dalitz u. Jensen 1994), in den Ergebnissen der  $^{210}\text{Pb}$ -Datierung des Kleinen Kranichsees ist dieser Effekt jedoch nicht sichtbar. Oldfield et al. (1979) interpretierten stark voneinander abweichende  $^{210}\text{Pb}$ -Tiefenprofile an Bult- und Schlenkenstandorten in einem englischen Hochmoor als das Ergebnis sublateraler Mobilität des  $^{210}\text{Pb}$  zwischen Bult und Schlenke – entweder aufgrund von oberflächlichem Abfluß und/oder Diffusion unter der Oberfläche – welche v. a. im Bultprofil eine abwärtsgerichtete Bewegung des  $^{210}\text{Pb}$  bewirkt. Tiefergreifende Veränderungen des Hydroregimes durch Entwässerung und nachfolgende Veränderungen der Vegetation und des Moorbodens dagegen können eine starke Mobilisierung eingetragener Metallionen bewirken. Darauf verweisen sowohl die Verteilung von freiem  $^{210}\text{Pb}$  bis in große Tiefen, z. B. in der Schwarzen Heide, als auch die

Ausläufer und teilweise verbreiterten Maxima der  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{241}\text{Am}$ -Profile mit der Tiefe. Bodenbildungsprozesse, die eine Verdichtung und damit Aufkonzentration mobiler Substanzen bewirken, üben möglicherweise einen gegenläufigen Einfluß auf die Verteilung dieser Nuklide aus. Auch direkte Einflüsse der Vegetation, z. B. des tief- und starkwurzelnden Wollgrases, können einen Stofftransport im Boden bewirken, beispielsweise durch Wurzeltätigkeit. Dieser Faktor steigt mit zunehmendem Anteil der Gefäßpflanzen an der Moorvegetation.

Demnach wären die Peaks der künstlichen RN in anthropogen stark beeinflussten Mooren weniger als Folge eines kontinuierlichen Moorwachstums zu betrachten, welches eingetragene immobile Substanzen zeitlich fixiert, sondern eher als Ergebnis der seit dem Eintrag verstrichenen Zeitspanne, in der z. B. Wasserspiegelfluktuationen und der durch Gefäßpflanzen verursachte spezielle Wachstumsmodus eine mehr oder weniger starke Mobilisierung und/oder ein „Überwachsen“ der immobilen Nuklide im Moorboden bewirkten. Übereinstimmungen zwischen den Sb- und Am/Pu-Peaklagen und den  $^{210}\text{Pb}$ -Altern könnten demnach in anthropogen stark überprägten Moorböden auch aufgrund mehrerer Faktoren teilweise zufällig entstanden sein.

Im Vergleich der Datierungs- und Markierungsmethoden zeigt sich somit eine sehr gute Übereinstimmung der Ergebnisse v. a. für ungestörte, rezent wachsende ombrogene Hochmoore. Die definierten  $^{125}\text{Sb}$ -,  $^{241}\text{Am}$ -,  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Verteilungsmaxima in unterschiedlichen Tiefen weisen auf eine starke Fixierung der Nuklide im Torf hin. Die zeitliche Auflösung ist v. a. von der rezenten Wachstumsrate abhängig, wie ein Vergleich der Profile des Radauer Borns (obwohl unvollständig) und des Kleinen Kranichsees zeigt. Diese anthropogen verursachten RN-Einträge eignen sich somit zur Überprüfung der  $^{210}\text{Pb}$ -Daten bzw. stellen eine eigene Markierungsmethode im Hochmoortorf dar. Es kann davon ausgegangen werden, daß im Idealfall völlig ungestörten Moorwachstums, wie z. B. in einigen skandinavischen Hochmooren, ein relativ guter Übergang vom maximalen Datierungsbereich des  $^{210}\text{Pb}$  zu den kleinsten datierbaren  $^{14}\text{C}$ -Altern gegeben ist. In anthropogen beeinflussten Mooren dagegen ist nicht gewährleistet, daß die  $^{210}\text{Pb}$ -Alter und die zeitlichen Markierungen, welche Tschernobyl- und kernwaffenbürtige RN setzen, das wahre Alter des Bodenmaterials wiedergeben. Dennoch können diese in den oberen Bodenschichten bestimmten „Alter“ untereinander gut übereinstimmen. Die Untersuchungen machen auch deutlich, daß RN-basierte Datierungsmethoden präzise Beprobungstechniken an sorgfältig ausgewählten Beprobungspunkten im Hochmoorkomplex erfordern. Für die Interpretation der Ergebnisse ist es wichtig zu wissen, ob und wie die Standorte gestört wurden. Vor allem der Auswahl des Probenmaterials für  $^{14}\text{C}$ -Analysen kommt besondere Bedeutung zu. Wurzel- und Rindenmaterial beispielsweise birgt die Gefahr, in die beprobte Schicht eingewachsen zu sein.



## 8 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden in der Umwelt vorkommende natürliche, kosmogene und künstliche RN als Tracer für das Migrationsverhalten der RN selbst bzw. der entsprechenden Elemente verwendet. Die Untersuchung der RN-Tiefenverteilungen in Fichtenwald- und Hochmoorböden und deren weiterführende Analyse erlaubten Aussagen zum Stofftransport und zu bodenbildenden Prozessen in den entsprechenden Böden. Im besonderen wurde die Eignung der verschiedenen RN zur Datierung bzw. zeitlichen Markierung von Moorbodenschichten und damit zur Verwendung in der Moorstratigraphie geprüft.

Um Bodenprofile mit möglichst ungestörtem Stofftransport zu gewährleisten, wurden weitgehend direkt (anthropogen) unbeeinflusste Standorte ausgewählt. Zur besseren Erfassung des atmosphärischen Eintrags wurde der Schwerpunkt bei der Auswahl der Beprobungslokalitäten auf Wald- und Mooregebiete exponierter Lagen des sächsischen Erzgebirges gelegt.

Beprobte wurden drei Fichtenwaldstandorte bei Holzhau und Nassau im Osterzgebirge sowie jeweils ein Hochmoor im Osterzgebirge (Georgenfelder Hochmoor), Mittleren Erzgebirge (Schwarze Heide) und Westerbirge (Kleiner Kranichsee). Zur Erweiterung der lokalen Betrachtungsweise wurden zwei weitere Untersuchungsgebiete, ein Hochmoor des Harzes (Radauer Born) und ein Waldstandort in Süddeutschland (nahe Ravensburg, Oberschwaben), herangezogen.

Gleichmaßen beeinflusste das Kriterium extremer atmosphärischer Deposition auch die Auswahl des süddeutschen Fichtenwaldstandorts, da in Süddeutschland nach dem Tschernobyl-Reaktorunfall 1986 vergleichsweise hohe RN-Konzentrationen deponiert wurden. Das Radauer Born, ein – in noch stärkerem Maße als der Kleine Kranichsee – „typisches“ Hochmoor mit nahezu ungestört gewachsenem Torfkörper, stellte dagegen einen idealen Vergleichsstandort dar v. a. zu den untersuchten erzgebirgischen Hochmooren Georgenfelder Hochmoor und Schwarze Heide, die teilweise durch montan- oder forstwirtschaftliche Aktivitäten beeinflusst wurden.

Die an den osterzgebirgischen Fichtenwaldstandorten untersuchten Böden wurden alle als (ursprüngliche) Braunerden mit jedoch variierenden Podsolierungsstadien angesprochen; an dem süddeutschen Standort lag eine podsolige Parabraunerde vor. Zudem unterscheiden sich die beprobten Böden in ihrem Ausgangsgestein und der Humusausprägung.

Die angewandte zerstörungsfreie Meßmethode der Low-level- $\gamma$ -Spektrometrie ermöglichte den effizienten Nachweis sehr geringer Konzentrationen  $\gamma$ -Strahlung emittierender Nuklide. Zum Einsatz kamen v. a. zwei Meßplätze mit koaxialen p-Typ 36 % bzw. n-Typ 38 % HPGe-Detektoren. Die Auswirkungen der verwendeten passiven und aktiven Abschirmungen auf den Nulleffekt der  $\gamma$ -Spektrometer wurden aufgezeigt. Näher untersucht wurden dabei u. a. die Effekte einer Stickstoffspülung des Probenraums, durch die eine erhebliche Reduzierung der Nettopeakzählraten der  $^{222}\text{Rn}$ -Folgenuklide im Nulleffektspektrum erreicht werden konnte.

Detektiert wurden künstliche RN wie  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ , vereinzelt auch  $^{106}\text{Ru}$  und  $^{154}\text{Eu}$ , kosmogene RN wie  $^7\text{Be}$  und natürliche RN der  $^{232}\text{Th}$ -,  $^{235}\text{U}$ - und  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihen, inkl.  $^{210}\text{Pb}$ , sowie  $^{40}\text{K}$ . Die verwendeten Probenentnahme- und Aufbereitungsverfahren führten hierbei zu gut reproduzierbaren Ergebnissen.

Das Spektrum detektierter RN wurde erweitert durch Plutoniumanalysen an ausgewählten Proben des Kleinen Kranichsees und eines der Waldbodenprofile ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ; radiochemische Aufbereitung und  $\alpha$ -Spektrometrie). Zur weiterführenden Charakterisierung des Torfes und der Elementverteilung mit der Tiefe wurden am Bodenmaterial des Georgenfelder Hochmoors ergänzende geo- und pedochemische Analysen erhoben. Im Rahmen der moorstratigraphischen Untersuchungen wurden in Kooperation mit entsprechenden Laboratorien zudem die  $^{14}\text{C}$ -Alter ausgewählter Torfschichten der untersuchten Erzgebirgshochmoore mittels LSC bzw. AMS bestimmt und Pollenanalysen an einem Bohrkern der Schwarzen Heide durchgeführt.

Basis für die Interpretation der Meßergebnisse stellte eine fundierte Charakterisierung der untersuchten RN sowie ihrer Quellen und Eintragspfade in der Umwelt dar; eingegangen wurde hierbei auf Bildung und Herkunft, qualitative und quantitative Eintragspfade, eingetragene Mengen und Aktivitäten sowie chemische und physikalische Eigenschaften.

Eine Vorstellung des atmosphärischen Eintrags wurde durch  $\gamma$ -spektrometrische Messungen von an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld gesammelten Regenwasser- und Staubfilterproben gewonnen. Nachgewiesen wurden  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$  und einige wenige  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folgenuklide. Auf der Basis der im Niederschlag gemessenen Aktivitätskonzentrationen wurde der Jahreseintrag der langlebigen RN abgeschätzt. Im besonderen wurde ein relativ hoher  $^{210}\text{Pb}$ -Eintragswert von  $(230 \pm 20) \text{ Bq}/(\text{m}^2 \text{ a})$  bestimmt; aufgrund der sehr exponierten Lage der Wetterstation ist dieser Wert durchaus plausibel und liegt in der Größenordnung der Ergebnisse vergleichbarer Untersuchungen in der Literatur. Um einem Erklärungsansatz dafür zu finden, daß die Aktivitätskonzentrationen der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Folgenuklide sowie des  $^{40}\text{K}$  teilweise deutlich über den Literaturangaben lagen, wurden ergänzende Untersuchungen an Filteraschen Lausitzer Braunkohlekraftwerke durchgeführt.

In den Jahren 1985–88 in Freiberg beprobte Filterstäube ermöglichten eine nachträgliche Untersuchung der Eintragungssituation vor und nach dem Tschernobyl-Unfall. Anhand der spezifischen Aktivitäten der Cs-Isotope in den Proben wurde ein Tschernobyl-Faktor von  $1.83 \pm 0.13$  (Bezugszeitpunkt 1.5.1986) bestimmt; der Faktor – das Verhältnis der Aktivität des  $^{137}\text{Cs}$  zu der des  $^{134}\text{Cs}$  im Tschernobyl-Fallout – wird benötigt, um die gemessene  $^{137}\text{Cs}$ -Gesamtaktivität einer Probe in die durch Kernwaffentests und den Reaktorunfall eingetragenen Anteile aufzutrennen. Der in Freiberg bestimmte Wert liegt im Variationsbereich der Literaturwerte.

Ein Vergleich der Einträge künstlicher RN an den Wald- und Moorstandorten wurde auf der Basis der jeweiligen Inventare der Bodenprofile durchgeführt. An den Fichtenwaldstandorten im Osterzgebirge betrugen die Inventare vollständig erfaßter Tiefenverteilungen für  $^{125}\text{Sb}$   $330 \pm 30 \text{ Bq}/\text{m}^2$ ,  $^{134}\text{Cs}$   $2380 \pm 100 \text{ Bq}/\text{m}^2$ ,  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$   $8750 \pm 100 \text{ Bq}/\text{m}^2$  (alle zerfallskorrigiert auf den 1.5.1986) und für  $^{241}\text{Am}$   $30 \pm 5 \text{ Bq}/\text{m}^2$ . Die Tschernobyl-bürtigen  $^{125}\text{Sb}$ - und  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Inventare des süddeutschen Profils überstiegen diese Werte um einen Faktor 2–3; das Verhältnis der  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ -Inventare betrug 1.7.

An den Moorstandorten im Erzgebirge lagen alle Inventare des  $^{125}\text{Sb}$  und der Cs-Isotope, mit einer Ausnahme, unter denen der Waldbodenprofile. Für Cs wurde dies u. a. der hohen Mobilität des Elements im Torfkörper zugeschrieben, die eine vollständige Erfassung der vertikalen Verteilungen, nicht zuletzt aus meßtechnischen Gründen, erschwerte. Eine generelle Ursache für die Unterschiede zwischen den Wald- und Moorstandorten könnte die starke Interzeptionswirkung von Fichtenwäldern sein.

Die  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Verhältnisse sowohl der Gesamtinventare als auch der Aktivitäten in den Oh- und Ah-Horizonten eines der erzgebirgischen Waldbodenprofile stimmten gut mit Literaturangaben für den Zeitraum vor 1986 – d. h. für Kernwaffen- und SNAP-9A-Fallout – überein und deuteten auf einen vernachlässigbaren Tschernobyl-Anteil dieser Pu-Isotope in den untersuchten Horizonten hin.

In den Fichtenwaldbodenprofilen wurden die Tiefenverteilungen der natürlichen RN der  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen (mit Ausnahme des  $^{210}\text{Pb}$ ) sowie des  $^{40}\text{K}$  in erster Linie von den Gehalten des jeweiligen geologischen Untergrunds bestimmt. Vom Unterboden ausgehend, nahmen die spezifischen Aktivitäten tendenziell zur Bodenoberfläche hin ab. Dabei spiegelt der Verlauf die boden- bzw. horizontbildenden Prozesse in Waldböden wider, welche sowohl das Ausgangsgestein als auch den Humuskörper wechselwirkend einbeziehen.

Im Vergleich zu Literaturwerten für mittlere U-, Th- und K-Gehalte der Gesteinstypen der untersuchten Gebiete im Erzgebirge zeigte sich für die tiefsten hier beprobten Bereiche der Verwitterungshorizonte eine tendenzielle Übereinstimmung.

In den Tiefenverteilungen teilweise beobachtete Ungleichgewichte der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe könnten u. U. zurückzuführen sein einerseits auf die Fixierung und Akkumulation von Uranylhumaten und Uranylfulvaten in der organischen Substanz, andererseits auf die starke Adsorption des Ra an Tonmi-

nerale, und damit v. a. in Bodenbereichen höherer Gehalte mineralischer Substanz.

Als wesentliche Eintragspfade der natürlichen RN in die Humusaufgabe wurden die atmosphärische Deposition, der Eintrag über die Biomasse und den Boden selbst sowie eine durch aufwärtsgerichtete Durchmischung verursachte Komponente aus dem Unterboden erkannt.

Der Eintrag über den Nadelfall wurde exemplarisch anhand der Ergebnisse  $\gamma$ -spektrometrischer Untersuchungen an Fichtennadeln diskutiert. Der Vergleich der Gehalte der Nadeln mit denen des L-Horizonts weist darauf hin, daß der Nadelfall für Th eine wesentliche Rolle für den Eintrag in die Humusaufgabe spielen könnte, für Ra eventuell jedoch andere Eintragspfade von Bedeutung sind. Obwohl die spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Konzentrationen der Nadeln die der Streulage um bis zu einem Faktor 10 übersteigen, sind bei der Beurteilung des Ergebnisses u. a. Auswaschungsprozesse sowohl an alternden Nadeln am Baum als auch in der Streulage zu berücksichtigen.

Im Gegensatz zu den Fichtenwaldböden zeigte der prinzipielle Verlauf der Tiefenverteilungen natürlicher RN (mit Ausnahme des  $^{210}\text{Pb}$ ) in den Moorprofilen erhöhte Aktivitäten in den oberflächennahen Moorschichten, sehr geringe Werte im Torfkörper und ansteigende Gehalte zum Untergrund hin. Es wurde deutlich, daß die natürlichen RN – vergleichbar dem Großteil der mineralischen Bestandteile und Nährstoffe – im wesentlichen der nassen und trockenen Deposition sowie dem eingetragenen Boden- oder Pflanzenmaterial entstammen.

Im Falle des Nährstoffs K sind zudem die über die Vegetation kontinuierlich ablaufenden Aufnahme- und Rücklösungsprozesse zu berücksichtigen. Die höchsten spezifischen  $^{40}\text{K}$ -Aktivitäten fanden sich – von geogen beeinflussten Torfschichten abgesehen – im torfmoosdominierten Bewuchs rezent wachsender Hochmoorbereiche; ergänzende Untersuchungen an Pflanzenmaterial unterstützten dieses Ergebnis.

Variationen in der jeweiligen Ausprägung der vertikalen Verteilungen an den Standorten, v. a. in den oberen Bodenbereichen bis ca. 30 cm Tiefe, wurden u. a. anthropogen verursachten Einträgen, unterschiedlichen Wachstumsraten des Moores, Wasserspiegelschwankungen oder einer Aufkonzentration der Elemente in verschiedenen Pflanzenteilen zugeschrieben. An den trockeneren bzw. anthropogen stärker beeinflussten Beprobungsorten deuteten die Verteilungen auf eine stärkere Akkumulation der RN in den durch sekundäre Bodenbildung umgewandelten Bereichen hin. Zum Liegenden des Moores hin ansteigende Aktivitäten beruhen auf geogenem Einfluß.

Teilweise auftretende Ungleichgewichte in den  $^{238}\text{U}$ - und  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihen fanden sich sowohl in den oberflächennahen Schichten und dem Torfkörper als auch am Moorgrund. Sie wurden dem unterschiedlichen geochemischen Verhalten und der daraus resultierenden unterschiedlichen Beweglichkeit der einzelnen Elemente in den verschiedenen Bereichen des Moorkörpers zugeschrieben. In den anaeroben, sehr stark bis extrem sauren Milieus der Hochmoortorfe können die Komplexbildung von U und Th mit Humin- und Fulvosäuren, gefolgt von einer starken Sorption der Huminstoff-Aktiniden-Komplexe an den Hochmoortorfen, und eine unter reduzierenden Verhältnissen höhere Ra-Mobilität ursächlich für  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ - oder  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ -Ungleichgewichte sein.

Vor allem die für Fichtenwald- und Hochmoorböden gleichermaßen charakteristische  $^{210}\text{Pb}$ -Tiefenverteilung zeichnete sich durch starke Ungleichgewichte zu den Mutternukliden – verursacht durch den zusätzlichen atmosphärischen Eintrag von sog. freien („unsupported“)  $^{210}\text{Pb}$  aus dem Zerfall des gasförmigen  $^{222}\text{Rn}$  – aus. Maximale spezifische  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamtaktivitäten wurden in den Of- und Oh-Horizonten der Waldbodenprofile bzw. der jeweiligen obersten Moorschicht der erzgebirgischen Hochmoorprofile bestimmt.

Als wichtige Einflußgrößen der  $^{210}\text{Pb}$ -Verteilung wurden neben dem atmosphärischen Eintrag von freiem  $^{210}\text{Pb}$  die Deposition organischen und anorganischen Materials auf der Bodenoberfläche, das Migrationsverhalten und der Zerfall des  $^{210}\text{Pb}$  im Boden sowie die stoffliche Zusammensetzung des Bodens und der Umsatz des organischen Materials identifiziert. Im Unterschied zu den Waldprofilen wirkt sich in den Moorböden der Gehalt des geogenen („supported“)  $^{210}\text{Pb}$ , von den tiefsten Torfbereichen abgesehen, wenn überhaupt, nur geringfügig aus.

Es wurde deutlich, daß die stark bis extrem sauren Milieus der untersuchten Wald- und Moorböden, gekoppelt mit hohen Gehalten organischer Substanz, sowohl unter oxidierenden als auch reduzierenden Bedingungen wesentliche Faktoren für die Festlegung und Akkumulation des Schwermetalls – v. a. in Form metallorganischer Komplexe hoher Stabilität – darstellen. Die Befunde wurden unterstützt durch den Vergleich der jeweiligen  $^{210}\text{Pb}$ -Gesamt- und Horizontinventare der Waldbodenprofile sowie die Tiefenverteilung stabilen Bleis im Bodenprofil des Georgenfelder Hochmoors. Der Nachweis von freiem  $^{210}\text{Pb}$  in größerer Tiefe des von anthropogenen Einflüssen gezeichneten Hochmoors Schwarze Heide legte eine gewisse Beweglichkeit des Nuklids unter entsprechenden Standortbedingungen nahe.

Die Verteilungen des kosmogen erzeugten  $^7\text{Be}$  zeigten in allen Profilen maximale spezifische Aktivitäten in den oberflächennahen Proben, d. h. in den L-Horizonten der Fichtenwaldböden bzw. der rezenten Vegetation (inkl. Torfmoose) an den Moorstandorten. In den Waldböden war  $^7\text{Be}$  bis in maximal 2 ... 5 cm Tiefe und somit hauptsächlich in der Humusauflage, in einem Profil jedoch auch noch im humosen Oberboden nachweisbar. In den Moorböden wurde  $^7\text{Be}$  bis in Tiefen von 5 ... 12 cm nachgewiesen, wobei das Nuklid an den Beprobungspunkten rezent wachsender Torfmoose tiefer migriert war als an den vergleichsweise trockeneren Standorten stagnierten Moorwachstums. Die charakteristische, steil abfallende  $^7\text{Be}$ -Tiefenverteilung in den Bodenprofilen wurde sowohl der (anfänglichen) Migration als auch einer starken Festlegung im Boden – u. a. in Abhängigkeit von Lagerungsdichte und Wassergehalt bzw. Vernässung – und, aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit des  $^7\text{Be}$  von nur 53 d, dem Zerfall des Nuklids zugeschrieben.

Die  $^7\text{Be}$ -Gesamtinventare lagen mit 280 ... 720 Bq/m<sup>2</sup> (Waldprofile) bzw. 200 ... 630 Bq/m<sup>2</sup> (Moorprofile) im Variationsbereich der relativ spärlichen Literaturwerte vergleichbarer Untersuchungen. An den Waldstandorten wurden Zusammenhänge zwischen den beobachteten Inventarunterschieden und den meteorologischen Gegebenheiten im Zeitraum vor der Probennahme sowie den aus der Lage der Beprobungsorte resultierenden unterschiedlichen meteorologischen Exposition ersichtlich.

Ähnlich den kosmogenen RN wurden auch die künstlichen RN aus der Atmosphäre deponiert. Während erstere jedoch konstant gebildet und nachgeliefert werden, wurden zweitere mehr oder weniger  $\delta$ -förmig eingetragen. In den vorliegenden Untersuchungen wurde bestätigt, daß die zeitlichen Rahmenbedingungen der Deposition durch die Kernwaffentests (1945–80 mit Maximum 1963) und den Tschernobyl-Unfall (1986) die RN-Verteilung im Boden grundlegend beeinflussen. Es zeigte sich jedoch auch, daß sich darüber hinaus vielfältige Einflußgrößen wie der jeweilige Bodentyp und die stoffliche Zusammensetzung des Bodens in den resultierenden Tiefenverteilungen niederschlagen. Im besonderen die Horizontierung des Fichtenwaldbodens und die sehr unterschiedlichen Eigenschaften der Horizonte wirken sich wesentlich auf die Mobilität und die Fixierung der Nuklide aus.

Die Tiefenverteilungen der künstlichen RN  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  wiesen in den Fichtenwaldböden zumeist relativ ausgeprägte Maxima auf; diese ließen sich jeweils bestimmten Horizonten – und damit je nach Standort gegebenenfalls unterschiedlichen Bodentiefen – zuordnen.

Dabei stimmten die Lagen der maximalen spezifischen Aktivitäten der mit Tschernobyl-Fallout deponierten Nuklide  $^{125}\text{Sb}$  und  $^{134}\text{Cs}$  (und damit auch die des aus dem  $^{134}\text{Cs}$  errechneten  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) gut überein. Die Maxima befanden sich im Untersuchungszeitraum im Bereich des Oh-Horizonts mit einer Tendenz zum unteren Bereich des Of, wobei diese Tendenz für  $^{125}\text{Sb}$  noch etwas ausgeprägter erschien. Aufgrund der vergleichsweise schmalen  $^{125}\text{Sb}$ -Maxima wurde eine stärkere Immobilisierung des Sb angenommen. Ein weiterer Hinweis auf eine geringere Mobilität des Sb im Vergleich zu der des Cs war in den unterschiedlichen Maximaltiefen, in denen die RN zum Zeitpunkt der Untersuchungen nachweisbar waren, erkennbar: Während  $^{134}\text{Cs}$  (bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ ) in allen Profilen von der Streulage bis in den Bereich der Verwitterungshorizonte detektiert und in dem am tiefsten beprobten Profil bis zu einer Tiefe von 26 cm nachgewiesen wurde, beschränkte sich der Nachweis des  $^{125}\text{Sb}$  auf Bodentiefen von bis zu 10,5 cm, teilweise unter Auslassung des L-Horizonts. Generell bestätigten die Ergebnisse – auch im Vergleich zu den  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$ -Verteilungen – die zu erwartende stärkere Wechselwir-

kung mit der organischen Substanz von in gelöster Form anionisch vorliegenden RN wie  $^{125}\text{Sb}$  im Vergleich zu kationischen wie  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{137}\text{Cs}$ .

Die Tiefenverteilungen der aus dem Kernwaffenfallout stammenden Nuklide  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  zeigten deutliche Maxima im Bereich der Oh- und Ah-Horizonte. Dabei befanden sich die Peaks stets in größerer Tiefe als die der Tschernobyl-bürtigen RN. In sämtlichen Profilen erstreckten sich die  $^{241}\text{Am}$ -Tiefenverteilungen von den Of- oder Oh- bis in die Ah- bzw. AeAh-Horizonte mit variierenden Maximaltiefen von knapp 5 cm bis über 10 cm. Der Erklärungsansatz einer starken Komplexbildung der Aktiniden mit Huminstoffen wurde zudem unterstützt durch den Befund, daß  $^{241}\text{Am}$  im oberen Bereich der Verwitterungshorizonte nur nachweisbar war, sofern Anteile des humushaltigen Ah-Horizonts eingemischt waren oder dominierten. Es wurde deutlich, daß die mit zunehmender Tiefe abnehmenden Gehalte des  $^{241}\text{Am}$  und der Pu-Isotope einhergehen mit geringer werdenden Gehalten organischer Substanz in den mineralischen Horizonten und damit auch einer dementsprechend abnehmenden Anzahl an organischen Bindungsplätzen. Zudem besitzen Tonminerale nicht die Fähigkeit, Aktiniden ähnlich den Cs-Ionen zu adsorbieren.

Im Gegensatz dazu wiesen die Tiefenprofile des ebenfalls kernwaffenbürtigen  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  ein wesentlich geringer ausgeprägtes, verbreitetes bis plateauartiges Maximum im Bereich der Oh-, Ah- und oberen B-Horizonte auf. In der Streulage L und z. T. auch den Of- und Oh-Horizonten war  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  nicht mit Sicherheit nachweisbar.  $^{137}\text{Cs}_{\text{ges}}$ , das unterhalb der Tiefen, in denen  $^{134}\text{Cs}$  detektierbar ist,  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  entspricht, konnte in den B-Horizonten bis maximal 48 cm Tiefe detektiert werden.

Die vielfältigen Einflußgrößen auf die Verteilung der Cs-Isotope in den Fichtenwaldböden wurden detailliert diskutiert; das komplexe System basiert einerseits auf einer sehr spezifischen und dauerhaften Fixierung von Cs durch bestimmte Tonminerale wie Illit, andererseits auf einer reversiblen Bindung des Elements an unspezifischen Austauschplätzen der organischen Substanz wie Huminstoffen. Eine gegenseitige Beeinflussung des Bindungsverhaltens von mineralischem und organischem Material kann in Bodenhorizonten, in denen beide Fraktionen vorliegen, beobachtet werden und eventuell ursächlich sein für die Akkumulation des  $^{137}\text{Cs}_{\text{Waffen}}$  im Bereich der humushaltigen Oberbodenhorizonte.

Die auch in der vorliegenden Arbeit v. a. anhand der  $^{134}\text{Cs}$ - bzw.  $^{137}\text{Cs}_{\text{Tsch}}$ -Tiefenverteilungen sichtbare Cs-Anreicherung in den Humifizierungshorizonten saurer Fichtenwaldböden unterstreicht die Annahme, daß Cs in den tiefgreifend von Abbauprozessen beeinflussten organischen Horizonten inzwischen in einen biogeochemischen Kreislauf eingetreten ist. Die Mechanismen von Cs-Rückhalt und Cs-Mobilisierung sind dabei zumeist nur ansatzweise geklärt. Wie auch eigene Untersuchungsergebnisse an Fichtennadeln und Pilzen bestätigten, findet ein starker Rücktransfer des Cs über die Vegetation bzw. deren Streu statt. Dieser Kreislauf im Ökosystem resultiert u. a. aus einer hohen Bioverfügbarkeit des Cs in den Horizonten, in denen die Feinwurzeln der Vegetation konzentriert sind. Eine Beeinflussung des Rückhaltevermögens durch die Mykorrhizen und durch von Bodenorganismen produzierte Substanzen mit Cs-fixierenden Eigenschaften ist denkbar.

Im Rahmen der Zersetzungsprozesse kann Cs sowohl in ionischer Form als auch an gelöste organische Substanz gebunden freigesetzt werden; durch anschließenden Transport bzw. Auswaschung mit dem Boden- bzw. Sickerwasser wäre eine Verlagerung bis in die B-Horizonte möglich. Angesichts der unterschiedlichen Sorptionskinetik der Cs-Bindung an organischer Substanz und Tonmineralen könnte die vergleichsweise tiefe Reichweite des Cs zudem auch durch den langsameren Verlauf mineralischer im Vergleich zu organischer Bindungen erklärt werden.

Auch in den Moorbodenprofilen verwiesen definierte  $^{125}\text{Sb}$ -,  $^{241}\text{Am}$ -,  $^{238}\text{Pu}$ - und  $^{239,240}\text{Pu}$ -Verteilungsmaxima in unterschiedlichen Tiefen und die meist scharf ausgeprägte Peakform auf eine starke Fixierung der Nuklide in der organischen Bodensubstanz. Die Unterschiede zwischen den Ergebnissen an den verschiedenen Standorten – z. B. bezüglich der jeweiligen Form und Profiltiefe der Maxima – ließen sich u. a. mit dem jeweiligen Hochmoortypus und den variierenden Bedingungen an den Beprobungsorten begründen. Im besonderen wurde der positive Einfluß höherer rezenter Wachstumsraten auf die Auflösung der Verteilungen sichtbar; anthropogene Beeinflussungen wie Entwässerung und nachfolgende Bodenbildung und Moorsackung dagegen bewirken einen gegensätzlichen Effekt.

Der als Folge eines veränderten Wasserregimes höhere Anteil an Gefäßpflanzen an der torfbildenden Vegetation wurde als weitere mögliche Einflußgröße auf die Ausprägung der RN-Tiefenverteilungen identifiziert, wobei Auswirkungen auf die vertikale Stoffverteilung sowohl durch die teilweise tiefreichenden Wurzeltätigkeiten als auch den veränderten Wachstumsmodus des Torfes durch höhere Pflanzen zu erwarten sind.

Die vertikalen  $^{134}\text{Cs}$ - und  $^{137}\text{Cs}$ -Verteilungen dagegen wichen in den Mooren von diesem Schema ab. Hier fand sich das Maximum – unabhängig von der anteiligen Zusammensetzung des Bewuchses aus Gefäßpflanzen und Torfmoosen – stets in der obersten Beprobungsschicht und die spezifischen Aktivitäten sanken kontinuierlich mit der Tiefe. Geringe  $^{137}\text{Cs}$ -Konzentrationen wurden noch in Torfschichten in mehreren Metern Tiefe detektiert: im Georgenfelder Hochmoor bis 2.2 m, in der Schwarzen Heide bis 1.8 m, im Kleinen Kranichsee bis etwa 4.5 m und im Radauer Born bis 6.0 m.

Die Cs-Tiefenverteilungen verweisen einerseits auf ein starkes pflanzenbedingtes Rückhaltevermögen für Cs in den oberflächennahen Schichten und andererseits auf eine hohe Mobilität des Cs im Torfkörper. Erklärungsansätze wurden u. a. in der Physiologie der torfbildenden Pflanzen, v. a. der Torfmoose, und den Torfbildungsprozessen gefunden.

Die Hypothese, daß die lebenden Teile der Torfmoose eine dominante Rolle darin spielen, Cs – wie auch K – in der Vegetationsschicht ombrogener Hochmoore zu konzentrieren, konnte aufgrund ergänzender  $\gamma$ -spektrometrischer Untersuchungen an den Köpfchen und grünen Stammabschnitten von Torfmoosen bestätigt werden. Entsprechende Untersuchungen an einzelnen Pflanzenabschnitten von Scheidigem Wollgras demonstrierten beispielhaft die unterschiedliche Akkumulation von Cs und K in den einzelnen Pflanzenteilen und damit auch die wesentliche Funktion, welche die aktive Pflanzenaufnahme in der Anreicherung beider Elemente in den obersten Moorbereichen und der rezenten Vegetation spielt.

Die Befunde an anthropogen überprägten Bereichen der Moorprofile verwiesen auf einen effektiveren, wenngleich nicht vollständigen Cs-Rückhalt in Moorschichten vergleichsweise höherer Gehalte mineralischer Substanz und bestätigten, daß die mineralischen Bodenkomponenten – obwohl sie hier nur einen geringen Anteil der Bodensubstanz ausmachen – einen wichtigen Einfluß auf die Cs-Festlegung ausüben.

Basierend auf der naheliegenden Annahme eines Zusammenhangs zwischen den Peakpositionen und den Jahren maximalen Inputs von  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und den Pu-Isotopen wurden die jeweiligen Tiefenverteilungen in den Moorböden im Kontext von  $^{210}\text{Pb}$ -Datierungen (CRS-Modell),  $^{14}\text{C}$ -Altern und den Ergebnissen palynologischer Untersuchungen diskutiert. Es wurde deutlich, daß die Kombination der verschiedenen relativen und numerischen Datierungs- und Markierungsmethoden die Rekonstruktion des zeitlichen Torfwachstums verbessert und eine Kontrolle der Resultate der einzelnen Verfahren ermöglicht.

Eine sehr gute Übereinstimmung der Ergebnisse zeigte sich v. a. für die Profile der ungestörten, rezent wachsenden ombrogenen Hochmoore; die anthropogen verursachten Einträge von  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und den Pu-Isotopen stellen hier eine eigene, verlässliche Markierungsmethode dar. Das im Torfkörper sehr mobile Cs dagegen ist ungeeignet für Datierungszwecke.

Obwohl auch in den Profilen der anthropogen beeinflussten Moore die  $^{210}\text{Pb}$ -Alter und die zeitlichen Markierungen der Tschernobyl- und kernwaffenbürtigen RN teilweise übereinstimmten, ist nicht gewährleistet, daß diese das wahre Alter des Bodenmaterials wiedergeben. Unter den Standortbedingungen könnten die Peaks und ihre Positionen sowie deren Übereinstimmung mit den  $^{210}\text{Pb}$ -Altern weniger die Folge eines kontinuierlichen Moorwachstums sein, als eher das Ergebnis verschiedener Prozesse, die in der seit dem Eintrag verstrichenen Zeitspanne abliefen. Beispielsweise könnte der durch einen höheren Anteil an Gefäßpflanzen verursachte spezielle Wachstumsmodus des Moorbodens ein „Überwachsen“ der immobilisierten Nuklide im Moorboden bewirkt haben; zeitweilig niedrigere Wasserspiegel könnten einerseits ursächlich gewesen sein für eine mehr oder weniger starke Mobilisierung immobiler Substanzen, andererseits für eine Aufkonzentration dieser Substanzen aufgrund von sekundären Bodenbildungsprozessen und Bodenverdichtung.

## Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Bezeichnung	Abkürzung	Bezeichnung
AAS	Atomic Absorption Spectroscopy; Atomabsorptionsspektroskopie	KKW	Kernkraftwerk
AES	Atomic Emission Spectroscopy; Atomemissionsspektroskopie	LfUG	Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie
AC	After Christ	LSC	Liquid Scintillation Counting; Flüssigkeitsszintillationsspektro- metrie
AD	Anno Domini	Ma	Million years
AMS	Accelerator Mass Spectrometry; Beschleunigermassenspektro- metrie	MB	Marinellibecher
BC	Before Christ	MWPC	Multiwire Proportional Counter; Vieldrahtproportionalzählkammer
BP	Before Present	N	Norden, nord-, nördlich
CIC	Constant Initial Concentration	NE	Nulleffekt
CRS	Constant Rate of Supply	n. n.	nicht nachweisbar
E	Osten, ost-, östlich	NSG	Naturschutzgebiet
ET	Endtiefe	NWG	Nachweisgrenze
FES	Frayed Edge Sites	RES	Regular Exchange Sites
FM	Feuchtmasse	RN	Radionuklid
FWHM	Full Width at Half Maximum; (Peak)Halbwertbreite	S	Süden, süd-, südlich
GOF	Geländeoberfläche	SAAS	Staatliches Amt für Atomsicher- heit und Strahlenschutz
GSF	Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung	TC	Total Carbon; Gesamtkohlen- stoffgehalt
HPGe	High Purity Germanium; hoch- reines Ge	TM	Trockenmasse
IAEA	International Atomic Energy Agency	TOC	Total Organic Carbon; Gesamt- gehalt an organischem Kohlen- stoff
ICP	Inductively Coupled Plasma; In- duktiv gekoppeltes Plasma	TU BAF	TU Bergakademie Freiberg
k. A.	keine Angabe	W	Westen, west-, westlich
k. D.	keine Daten	WD	„Wurstdose“ (Probenbehälter Aluminiumdose)





## Literaturverzeichnis

- Aarkrog, A. u. Lippert, J. (1967): Europium-155 in debris from nuclear weapons. *Science* **157**, 425–427.
- Aarkrog, A. (1988a): Studies of Chernobyl debris in Denmark. *Environ. Int.* **14**, 149–155.
- Aarkrog, A. (1988b): The radiological impact of the Chernobyl debris compared with that from nuclear weapons fallout. *J. Environ. Radioactivity* **6**, 151–162.
- Aarkrog, A., Bøtter-Jensen, L., Chen, Q.J., Clausen, J., Dahlgaard, H., Hansen, H., Holm, E., Lauridsen, B., Nielsen, S.P., Strandberg, M. u. Sjøgaard-Hansen, J. (1995): Environmental Radioactivity in 1992 and 1993. Risø-R-756(EN). Risø National Laboratory, Roskilde, Dänemark, 130 S.
- Aarkrog, A., Chen, Q.J., Clausen, J., Christensen, G.C., Dahlgaard, H., Ellis, K., Hansen, H., Holm, E., Joensen, H.P., Nielsen, S.P. u. Strandberg, M. (1997): Environmental Radioactivity in the North Atlantic Region Including the Faroe Islands and Greenland. 1992 and 1993. Risø-R-757(EN). Risø National Laboratory, Roskilde, Dänemark, 132 S.
- Abraham, J., Ciechanowicz-Kusztal, R., Drüeke, M., Jodłowska-Opyd, G., Kallweit, D., Keder, J., Kulaszka, W. u. Novák, J. (2000): Common Report on Air Quality in the Black Triangle Region 1999. Materialien zur Luftreinhaltung L IV-2/32. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden, 117 S.
- Agapkina, G.I., Tikhomirov, F.A., Shcheglov, A.I., Kracke, W. u. Bunzl, K. (1995): Association of Chernobyl-derived  $^{139+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  with organic matter in the soil solution. *J. Environ. Radioactivity* **29**, 257–269.
- AG Boden (1994): Bodenkundliche Kartieranleitung. Schweizerbart, Stuttgart, 4. Aufl., 392 S.
- Ainsworth, N., Cooke, J.A. u. Johnson, M.S. (1990): Distribution of antimony in contaminated grassland: 1 – vegetation and soils. *Environ. Pollut.* **65**, 65–77.
- Ainsworth, N. u. Cooke, J.A. (1991): Biological significance of antimony in contaminated grassland. *Water Air Soil Poll.* **57–58**, 193–199.
- Albrecht, A., Reiser, R., Lück, A., Stoll, J.-M. u. Giger, W. (1998): Radiocesium dating of sediments from lakes and reservoirs of different hydrological regimes. *Environ. Sci. Technol.* **32**, 1882–1887.
- Anderson, W., Bentley, R.E., Parker, R.P., Crookall, J.O. u. Burton, L.K. (1960): Comparison of fission product and beryllium-7 concentrations in the atmosphere. *Nature* **187**, 550–553.
- Andolina, J. u. Guillitte, O. (1990): Radiocesium availability and retention sites in forest humus. In: Desmet, G., Nassimbeni, P. u. Belli, M. [Hrsg.], Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments. Elsevier Applied Science, London, 135–142.
- Andreae, M.O., Asmodé, J.F., Foster, P. u. Van't Dack, L. (1981): Determination of antimony(III), antimony(V), and methylantimony species in natural waters by atomic absorption spectrometry with hydride generation. *Anal. Chem.* **53**, 1766–1771.
- Anschütz, I. u. Geßner, F. (1954): Der Ionenaustausch bei Torfmoosen (*Sphagnum*). *Flora* **141**, 178–236.
- Aoyama, M., Hirose, K., Suzuki, Y., Inoue, H. u. Sugimura, Y. (1986): High level radioactivity nuclides in Japan in may. *Nature* **321**, 819–820.
- Appleby, P.G. u. Oldfield, F. (1978): The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported  $^{210}\text{Pb}$  to the sediment. *Catena* **5**, 1–8.
- Appleby, P.G., Nolan, P.J., Oldfield, F., Richardson, N. u. Higgitt, S.R. (1988):  $^{210}\text{Pb}$  dating of lake sediments and ombrotrophic peats by gamma assay. *Sci. Total Environ.* **69**, 157–177.
- Appleby, L.J. u. Luttrell, S.P. (1993): Case-studies of significant radioactive releases. In: Warner, F. u. Harrison, R.M. [Hrsg.], SCOPE 50 – Radioecology after Chernobyl: Biogeochemical Pathways of Artificial Radionuclides. John Wiley & Sons, Chichester.
- Arnold, J.R. u. Al-Salih, H.A. (1955): Beryllium-7 produced by cosmic rays. *Science* **121**, 451–453.
- Aumann, D.C., Clooth, G., Steffan, B. u. Steglich, W. (1989): Komplexierung von Cesium-137 durch die Hutfarbstoffe des Maronenröhrlings (*Xerocomus badius*). *Angew. Chem.* **101**, 495–496.
- Bachhuber, H., Bunzl, K. u. Schimmack, W. (1982): The migration of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in multilayered soils: results from batch, column, and fallout investigations. *Nucl. Technol.* **59**, 291–301.
- Bachhuber, H. u. Bunzl, K. (1992): Background levels of atmospheric deposition to ground and temporal variation of  $^{129}\text{I}$ ,  $^{127}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^7\text{Be}$  in a rural area of Germany. *J. Environ. Radioactivity* **16**, 77–89.
- Baes, C.F., Jr. u. Mesmer, R.E. (1976): The Hydrolysis of Cations. John Wiley & Sons, New York,

- 489 S.
- Baeza, A., Guillén, J. u. Bernedo, J.M. (2005): Soil–fungi transfer coefficients: importance of the location of mycelium in soil and of the differential availability of radionuclides in soil fractions. *J. Environ. Radioactivity* **81**, 89–106.
- Barth, E. u. Zühlke, D. [Hrsg.] (1985): Werte unserer Heimat: Heimatkundliche Bestandsaufnahme in der Deutschen Demokratischen Republik. Bd 41: Zwischen Wolkenstein, Marienberg und Jöhstadt. Bd 43: Um Olbernhau und Seiffen. Akademie-Verlag, Berlin, 228 S. / 212 S.
- Barthel, F., Borsdorf, K.H., Malinowski, D. u. Thoste, V. (1995): Die Verteilung von Radionukliden in den oberflächennahen Böden in Sachsen und Thüringen. *Z. geol. Wiss.* **23**, 527–545.
- Bauer, L. u. Bearbeiter-Kollektiv (1974): Handbuch der Naturschutzgebiete der DDR. Bd. 5: Die Naturschutzgebiete der Bezirke Leipzig, Karl-Marx-Stadt und Dresden. Urania, Leipzig, 1. Aufl., 309 S.
- Battiston, G.A., Degetto, S., Gerbasi, R., Sbrignadello, G. u. Tositti, L. (1987): The deposition of Chernobyl fallout in north-east Italy. *Inorg. Chim. Acta* **140**, 327–329.
- Beasley, T.M., Kelley, J.M., Orlandini, K.A., Bond, L.A., Aarkrog, A., Trapeznikov, A.P. u. Pozolotina, V.N. (1998): Isotopic Pu, U, and Np signatures in soils from Semipalatinsk-21, Kazakh Republic and the Southern Urals, Russia. *J. Environ. Radioactivity* **39**, 215–230.
- Beer, V., Zimmermann, F. u. Goldberg, V. (1997): Zusammenhang von besonderer Witterungssituation und Stoffeinträgen durch Nebel im oberen Erzgebirge im Winter 1996/97. SSI-Heft 14. Sächsisch-Schweiz-Initiative, Dresden, 10–16.
- Bennett, B.G. (1978): Environmental Aspects of Americium. Environmental Measurements Laboratory, USDOE Report EML-348. Department of Energy, New York, 202 S.
- Beresford, N.A., Howard, B.J., Barnett, C.L. u. Crout, N.M.J. (1992): The uptake by vegetation of Chernobyl and aged radiocaesium in upland west Cumbria. *J. Environ. Radioactivity* **16**, 181–195.
- Bertha, E.L. u. Choppin, G.R. (1978): Interaction of humic and fulvic acids with Eu(III) and Am(III). *J. Inorg. Nucl. Chem.* **40**, 655–658.
- Beug, H.J., Henrion, I. u. Schmüser, A. (1999): Landschaftsgeschichte im Hochharz: Die Entwicklung der Wälder und Moore seit dem Ende der letzten Eiszeit. Papierflieger, Clausthal-Zellerfeld, 454 S.
- BfS, Fachbereich Strahlenschutz (1992a): Die Auswirkungen des Unfalls im sowjetischen Kernkraftwerk Tschernobyl auf das Territorium der ehemaligen DDR im Jahre 1989. ST-Berichte ST-1/92. Bundesamt für Strahlenschutz, Berlin, 69 S.
- BfS, Fachbereich Strahlenschutz (1992b): Umweltradioaktivität in den ostdeutschen Ländern – Jahresbericht 1990. ST-Berichte ST-2/92. Bundesamt für Strahlenschutz, Berlin, 65 S.
- BGA, Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene (1991): Bodenkontamination mit Cs 137 im Jahr 1986 (Bq/m<sup>2</sup>). Bundesgesundheitsamt, Berlin, Kartenmaterial.
- Bhandari, N., Lal, D. u. Rama (1970): Vertical structure of the troposphere as revealed by radioactive tracer studies. *J. Geophys. Res.* **75**, 2974–2980.
- Bibus, E. u. Kösel, M. (1997): Paläoböden und periglaziale Deckschichten im Rheingletschergebiet von Oberschwaben und ihre Bedeutung für Stratigraphie, Reliefentwicklung und Standort. *Tüb. Geow. Arb.* **D3**, 91 S.
- Blaschke, K. (1990): Geschichte Sachsens im Mittelalter. Union Verlag, Berlin, 398 S.
- Blažek, J., Černá, E. u. Velímský, T. (1995): Zur Siedlungsgeschichte der böhmischen Seite des Erzgebirges. *Germania* **73**, 463–479.
- Bleichrodt, J.F. (1978): Mean tropospheric residence time of cosmic-ray-produced beryllium 7 at north temperate latitudes. *J. Geophys. Res.* **83**, 3058–3062.
- Blume, H.P. (1981): Schwermetallverteilung und -bilanzen typischer Waldböden aus nordischem Geschiebemergel. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **144**, 156–163.
- Blume, H.P. u. Hellriegel, T. (1981): Blei- und Cadmium-Status Berliner Böden. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **144**, 181–196.
- Böhnert, W., Scholz, A., Geib, A. u. Elpel, A. (1996): Inventarisierung in Westerzgebirgsmooren – Naturschutzgebiet Kleiner Kranichsee. Teil IV: Vegetation. Landschaftsplanung Dr. Böhnert & Dr. Reichhoff GmbH, Freital, 26 S.
- Bonani, G., Hofmann, H.J. u. Synal, H.A. (1992): Zehn Jahre Beschleunigermassenspektrometrie in der Schweiz. In: Synal, H.A. [Hrsg.], 10 Jahre Beschleunigermassenspektrometrie in der Schweiz. PSI-Proceedings 92-04. Paul Scherrer Institut, Villigen, Schweiz, 3–8.
- Bondietti, E.A. u. Brantley, J.N. (1986): Characteristics of Chernobyl radioactivity in Tennessee. *Na-*

- ture **322**, 313–314.
- Bonniwell, E.C., Matisoff, G. u. Whiting, P.J. (1999): Determining the times and distances of particle transit in a mountain stream using fallout radionuclides. *Geomorph.* **27**, 75–92.
- Bozau, E. (1995): Zum atmosphärischen Stoffeintrag in das Osterzgebirge. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 102 S.
- Brandt, J. (1998): Modelling Transport, Dispersion and Deposition of Passive Tracers from Accidental Releases. PhD thesis, National Environmental Research Institute, Roskilde, Dänemark, 307 S.
- Brehm, K. (1968): Die Bedeutung des Kationenaustausches für den Kationengehalt lebender Sphagnumen. *Planta* **79**, 324–345.
- Brehm, K. (1971): Ein *Sphagnum*-Bult als Beispiel einer natürlichen Ionenaustauschersäule. *Beitr. Biol. Pflanzen* **47**, 287–312.
- Bridgham, S.D., Updegraff, K. u. Pastor, J. (1998): Carbon, nitrogen, and phosphorus mineralization in northern wetlands. *Ecology* **79**, 1545–1561.
- Brodzinski, R.L., Brown, D.P., Evans, J.C., Jr., Hensley, W.K., Reeves, J.H., Wogman, N.A., Avignone, F.T., III u. Miley, H.S. (1985): An ultralow background germanium gamma-ray spectrometer. *Nucl. Instrum. Meth.* **A239**, 207–213.
- Brodzinski, R.L., Miley, H.S., Reeves, J.H. u. Avignone, F.T., III (1990): Further reduction of radioactive backgrounds in ultrasensitive germanium spectrometers. *Nucl. Instrum. Meth.* **A292**, 337–342.
- Broecker, W.S. u. Walton, A. (1959): Radiocarbon from nuclear tests. *Science* **130**, 309–314.
- Broecker, W.S., Li, Y.H. u. Cromwell, J. (1967): Radium-226 and radon-222: concentration in Atlantic and Pacific Oceans. *Science* **158**, 1307–1310.
- Brouwer, E., Baeyens, B., Maes, A. u. Cremers, A. (1983): Cesium and rubidium ion equilibria in illite clay. *J. Phys. Chem.* **87**, 1213–1219.
- Brown, L., Stensland, G.J., Klein, J. u. Middleton, R. (1989): Atmospheric deposition of  $^7\text{Be}$  and  $^{10}\text{Be}$ . *Geochim. Cosmochim. Acta* **53**, 135–142.
- Brückmann, A. u. Wolters, V. (1994): Microbial immobilization and recycling of  $^{137}\text{Cs}$  in the organic layers of forest ecosystems: relationship to environmental conditions, humification and invertebrate activity. *Sci. Total Environ.* **157**, 249–256.
- Buckau, G. (1991): Komplexierung von Americium(III) mit Huminstoffen in natürlichen Gewässern. Dissertation, Freie Universität Berlin, 167 S.
- Bunzl, K. u. Kracke, W. (1987): Soil to plant transfer of  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from global fallout in flour and bran from wheat, rye, barley and oats, as obtained by field measurements. *Sci. Total Environ.* **63**, 111–124.
- Bunzl, K. u. Kracke, W. (1988): Cumulative deposition of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG). *J. Environ. Radioactivity* **8**, 1–14.
- Bunzl, K., Schimmack, W., Kreutzer, K. u. Schierl, R. (1989a): Interception and retention of Chernobyl-derived  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{106}\text{Ru}$  in a spruce stand. *Sci. Total Environ.* **78**, 77–87.
- Bunzl, K., Schimmack, W., Kreutzer, K. u. Schierl, R. (1989b): The migration of fallout  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{106}\text{Ru}$  from Chernobyl and of  $^{137}\text{Cs}$  from weapons testing in a forest soil. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **152**, 39–44.
- Bunzl, K., Kracke, W. u. Schimmack, W. (1992): Vertical migration of plutonium-239 + -240, americium-241 and caesium-137 fallout in a forest soil under spruce. *Analyst* **117**, 469–474.
- Bunzl, K., Hötzl, H. u. Winkler, R. (1993): Spruce pollen as a source of increased radiocesium concentrations in air. *Naturwiss.* **80**, 173–174.
- Bunzl, K., Förster, H., Kracke, W. u. Schimmack, W. (1994a): Residence times of fallout  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the upper horizons of an undisturbed grassland soil. *J. Environ. Radioactivity* **22**, 11–27.
- Bunzl, K., Kretner, R., Szeles, M. u. Winkler, R. (1994b): Transect survey of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{40}\text{K}$  in an agricultural soil near an exhaust ventilating shaft of a uranium mine. *Sci. Total Environ.* **149**, 225–232.
- Bunzl, K., Hötzl, H., Rosner, G. u. Winkler, R. (1995a): Unexpectedly slow decrease of Chernobyl-derived radiocesium in air and deposition in Bavaria/Germany. *Naturwiss.* **82**, 417–420.
- Bunzl, K., Kracke, W. u. Schimmack, W. (1995b): Migration of fallout  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the various horizons of a forest soil under pine. *J. Environ. Radioactivity* **28**, 17–34.
- Bunzl, K., Kracke, W., Agapkina, G.I., Tikhomirov, A. u. Shcheglov, A.I. (1998a): Association of

- Chernobyl-derived  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  with different molecular size fractions of organic matter in the soil solution of two grassland soils. *Radiat. Environ. Biophys.* **37**, 195–200.
- Bunzl, K., Kracke, W., Schimmack, W. u. Zelles, L. (1998b): Forms of fallout  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  in successive horizons of a forest soil. *J. Environ. Radioactivity* **39**, 55–68.
- Bunzl, K., Albers, B.P., Schimmack, W., Belli, M., Ciuffo, L. u. Menegon, S. (2000): Examination of a relationship between  $^{137}\text{Cs}$  concentrations in soils and plants from alpine pastures. *J. Environ. Radioactivity* **48**, 145–158.
- Bürmann, W. (1993): Horizontspezifische Tiefenverteilung von Cäsium-Radionukliden in Waldböden Oberschwabens. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 103 S.
- Bürmann, W., Drissner, J., Miller, R., Heider, R., Lindner, G., Zibold, G. u. Sykova, T. (1994): Migration of  $^{134,137}\text{Cs}$  radionuclides in the soil and uptake by plants in German spruce forests. *Radiochim. Acta* **66/67**, 373–380.
- Cambray, R.S., Cawse, P.A., Garland, J.A., Gibson, J.A.B., Johnson, P., Lewis, G.N.J., Newton, D., Salmon, L. u. Wade, B.O. (1987): Observations on radioactivity from the Chernobyl accident. *Nucl. Energy* **26**, 77–101.
- Cambray, R.S., Playford, K., Lewis, G.N.J. u. Carpenter, R.C. (1989): Radioactive Fallout in Air and Rain: Results to the end of 1987. AERE-R 13226. United Kingdom Atomic Energy Authority, Harwell Laboratory, Oxfordshire, UK, 24 S.
- Camplin, W.C., Mitchell, N.T., Leonard, D.R.P. u. Jefferies, D.F. (1986): Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles. Monitoring of Fallout from the Chernobyl Reactor Accident. Aquatic Environment Monitoring Report Number 15. Ministry of Agriculture, Fisheries and Food, Directorate of Fisheries Research, Lowestoft, UK, 49 S.
- Carter, M.W. u. Moghissi, A.A. (1977): Three decades of nuclear testing. *Health Phys.* **33**, 55–71.
- Cerny, J. (1995): Recovery of acidified catchments in the extremely polluted Krusne Hory Mountains, Czech Republic. *Water Air Soil Poll.* **85**, 589–594.
- Chang, K.P., Hsu, C.N. u. Tamaki, H. (1993): Basic study of  $^{137}\text{Cs}$  sorption on soil. *J. Nucl. Sci. Technol.* **30**, 1243–1247.
- Chen, H.Y. u. Huh, C.A. (1999):  $^{232}\text{Th}$ – $^{228}\text{Ra}$ – $^{228}\text{Th}$  disequilibrium in East China Sea sediments. *J. Environ. Radioactivity* **42**, 93–100.
- Choppin, G.R. (1988): Humics and radionuclide migration. *Radiochim. Acta* **44/45**, 23–28.
- Choppin, G.R. (1999): Role of humics in actinide behavior in ecosystems. In: Choppin, G.R. u. Khankhasayev, M.Kh. [Hrsg.], Chemical Separation Technologies and Related Methods of Nuclear Waste Management: Applications, Problems, and Research Needs. NATO Science Series, 2. Environmental Security, Vol. 53. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 247–260.
- Christl, A. u. Simon, K. (1995): Nutzung und Besiedlung des sächsischen Erzgebirges und des Vogtlandes bis zur deutschen Ostkolonisation. *Germania* **73**, 441–462.
- Cleveland, J.M. u. Rees, T.F. (1976): Investigation of solubilization of plutonium and americium in soil by natural humic compounds. *Environ. Sci. Technol.* **10**, 802–806.
- Clymo, R.S. (1963): Ion exchange in *Sphagnum* and its relation to bog ecology. *Ann. Bot.* **27**, 309–324.
- Comans, R.N.J., Haller, M. u. De Preter, P. (1991): Sorption of cesium on illite: non-equilibrium behaviour and reversibility. *Geochim. Cosmochim. Acta* **55**, 433–440.
- Comans, R.N.J. u. Hockley, D.E. (1992): Kinetics of cesium sorption on illite. *Geochim. Cosmochim. Acta* **56**, 1157–1164.
- Conradt, S. u. Horstmann, M. (1996): Modul 2 (LfUG, Radebeul; IfT Leipzig) – Depositions- und Immissionscharakteristiken des Winterhalbjahres 1995/96. *OMKAS Newsletter* **1**, 6–8.
- Corrin, M.L. u. Natusch, D.F.S. (1979): Physical and chemical characteristics of environmental lead. In: Boggess, W.R. u. Wixson, B.G. [Hrsg.], Lead in the Environment. Castle House Publications, Tunbridge Wells, 7–31.
- Coughtrey, P.J., Kirton, J.A. u. Mitchell, N.G. (1989a): Caesium transfer and cycling in upland pastures. *Sci. Total Environ.* **85**, 149–158.
- Coughtrey, P.J., Kirton, J.A. u. Mitchell, N.G. (1989b): Transfer of radioactive caesium from soil to vegetation and comparison with potassium in upland grasslands. *Environ. Pollut.* **62**, 281–315.
- Coughtrey, P.J., Kirton, J.A. u. Mitchell, N.G. (1991): Environmental distribution and transport of radionuclides in west Cumbria following the Windscale and Chernobyl accidents. In: CEC [Hrsg.], Proceedings of Seminar on Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionucli-

- des Released during Three Major Nuclear Accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl. EUR 13574, Vol. 1. Commission of the European Communities, Luxembourg, 473–489.
- Craigie, J.S. u. Maass, W.S.G. (1966): The cation-exchanger in *Sphagnum* spp. *Ann. Bot.* **30**, 153–154.
- Crecelius, E.A. (1981): Prediction of marine atmospheric deposition rates using total  $^7\text{Be}$  deposition velocities. *Atmos. Environ.* **15**, 579–782.
- Cremers, A., Elsen, A., De Preter, P. u. Maes, A. (1988): Quantitative analysis of radiocaesium retention in soils. *Nature* **335**, 247–249.
- Crozaz, G., Picciotto, E. u. De Breuck, W. (1964): Antarctic snow chronology with  $\text{Pb}^{210}$ . *J. Geophys. Res.* **69**, 2597–2604.
- Crozaz, G. u. Langway, C.C. (1966): Dating Greenland firn-ice cores with Pb-210. *Earth Planet. Sci. Lett.* **1**, 194–196.
- Currie, L.A. (1968): Limits for qualitative detection and quantitative determination: application to radiochemistry. *Anal. Chem.* **40**, 586–593.
- Dalitz, H. u. Jensen, U. (1994): Schwermetalle in Mooren des Oberharzes. In: Matschullat, J., Heinrichs, H., Schneider, J. u. Ulrich, B. [Hrsg.], Gefahr für Ökosysteme und Wasserqualität: Ergebnisse interdisziplinärer Forschung im Harz. Springer, Berlin, 478 S.
- Damman, A.W.H. (1978): Distribution and movement of elements in ombrotrophic peat bogs. *Oikos* **30**, 480–495.
- Daniels, R.E. u. Eddy, A. (1985): Handbook of European Sphagna. Institute of Terrestrial Ecology, Huntingdon, UK, 262 S.
- Da Silva, A., Pritychenko, B., Dougherty, B.L., Gray, M., Lu, A., Smith, A., Akerib, D.S., Bauer, D., Cabrera, B., Caldwell, D.O., Lanou, R.E., Sadoulet, B. u. Yellin, S. (1995): Neutron background for a dark matter experiment at a shallow depth site. *Nucl. Instrum. Meth.* **A354**, 553–559.
- Debertin, K. u. Helmer, R.G. (1988): Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors. North-Holland, Amsterdam, 399 S.
- De Brouwer, S., Thiry, Y. u. Myttenaere, C. (1994): Availability and fixation of radiocaesium in a forest brown acid soil. *Sci. Total Environ.* **143**, 183–191.
- De Cort, M., Dubois, G., Friedman, Sh.D., Germenchuk, M.G., Izrael, Yu.A., Janssens, A., Jones, A.R., Kelly, G.N., Kvasnikova, E.V., Matveenko, I.I., Nazarov, I.M., Pokumeiko, Yu.M., Sitak, V.A., Stukin, E.D., Tabachny, L.Ya., Tsaturov, Yu.S. u. Abdyushin, S.I. (1998): Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident. EUR Report 16733. Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, 176 S.
- Degering, D. (1997): Experiences gained with an anti-Compton spectrometer when utilized for measurements of natural activities. In: Fietz, J. [Hrsg.], LOWRAD 96 – Methods and Applications of Low-Level Radioactivity Measurements. FZR-170. Forschungszentrum Rossendorf, 49–53.
- Denschlag, H.O., Diel, A., Gläsel, K.H., Heimann, R., Kaffrell, N., Knitz, U. u. Menke, H. (1987): Fallout in the Mainz area from the Chernobyl reactor accident. *Radiochim. Acta* **41**, 163–172.
- Devell, L., Tovedal, H., Bergström, U., Appelgren, A., Chyssler, J. u. Andersson, L. (1986): Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl. *Nature* **321**, 192–193.
- De Vries, H. (1958): Atomic bomb effect: variation of radiocarbon in plants, shells, and snails in the past 4 years. *Science* **128**, 250–251.
- Diamond, H., Fields, P.R., Stevens, C.S., Studier, M.H., Fried, S.M., Inghram, M.G., Hess, D.C., Pyle, G.L., Mech, J.F., Manning, W.M., Ghiorso, A., Thompson, S.G., Higgins, G.H., Seaborg, G.T., Browne, C.I., Smith, H.L. u. Spence, R.W. (1960): Heavy isotope abundances in Mike thermonuclear device. *Phys. Rev.* **119**, 2000–2004.
- Dibb, J.E. (1989): Atmospheric deposition of beryllium 7 in the Chesapeake Bay region. *J. Geophys. Res.* **94**, 2261–2265.
- Dietrich, H. (1963): Untersuchungen zum Nährstoffkreislauf von Fichtenbeständen im Osterzgebirge. *Arch. Forstwes.* **12**, 1116–1136.
- Dietrich, H. (1968): Streufall und Nährstoffgehalt der Streu in einem Fichtenbestand auf einer Kalkdüngungsversuchsfläche. *Tag. Ber. Akad. d. Landwirtschaftswiss. DDR* **84**, 131–146.
- DIN 19684:1977 Bodenuntersuchungsverfahren im Landwirtschaftlichen Wasserbau; Chemische Laboruntersuchungen. Teil 1: Bestimmung des pH-Wertes des Bodens und Ermittlung des Kalkbedarfs. Teil 3: Bestimmung des Glühverlusts und des Glührückstands.
- DIN 25482:1993 Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen. Teil 5: Zählende hochauflösende gammaspektrometrische Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbe-

- handlungseinflusses.
- DIN 38404:1984 Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Physikalische und physikalisch-chemische Kenngrößen (Gruppe C). Teil 5: Bestimmung des pH-Wertes (C 5).
- DIN 38414:1985 Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Schlamm und Sedimente (Gruppe S). Teil 3: Bestimmung des Glührückstandes und des Glühverlustes der Trockenmasse eines Schlammes (S 3).
- DOE (1997): Nonproliferation and Arms Control Assessment of Weapons-Usable Fissile Material Storage and Excess Plutonium Disposition Alternatives. DOE/NN-0007. US Department of Energy, Washington, DC, 37–39.
- Dörr, H. u. Münnich, K.O. (1987a): Annual variation in soil respiration in selected areas of the temperate zone. *Tellus* **39B**, 114–121.
- Dörr, H. u. Münnich, K.O. (1987b): Spatial distribution of soil-<sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs in West Germany after Chernobyl. *Naturwiss.* **74**, 249–251.
- Dörr, H. u. Münnich, K.O. (1989): Downward movement of soil organic matter and its influence on trace-element transport (<sup>210</sup>Pb, <sup>137</sup>Cs) in the soil. *Radiocarbon* **31**, 655–663.
- Dörr, H. u. Münnich, K.O. (1991): Lead and cesium transport in European forest soils. *Water Air Soil Poll.* **57–58**, 809–818.
- Drissner, J. (1991): Radiocäsium-Transfer im Ökosystem Wald in Oberschwaben. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 79 S.
- Drissner, J., Bürmann, W., Kaminski, S., Krinner, U., Lindner, G., Rudhard, J., Wunderer, W. u. Zibold, G. (1992): Speciation of radionuclides from the Chernobyl fallout in natural ecosystems. 3<sup>rd</sup> International Conference on Nuclear and Radiochemistry, 7.–11.9.1992, Wien. Preprint, 10 S.
- Drissner, J., Bürmann, W., Enslin, F., Heider, R., Klemm, E., Miller, R., Schick, G. u. Zibold, G. (1998): Availability of caesium radionuclides to plants – classification of soils and role of mycorrhiza. *J. Environ. Radioactivity* **41**, 19–32.
- Dumat, C. u. Staunton, S. (1999): Reduced adsorption of caesium on clay minerals caused by various humic substances. *J. Environ. Radioactivity* **46**, 187–200.
- Dutkiewicz, V.A. u. Husain, L. (1985): Stratospheric and tropospheric components of <sup>7</sup>Be in surface air. *J. Geophys. Res.* **90**, 5783–5788.
- DWD (1996): Monatlicher Witterungsbericht. Amtsblatt des Deutschen Wetterdienstes, D6171E, Jhrg. 44. Deutscher Wetterdienst, Offenbach am Main.
- DWD (1997): Deutsches Meteorologisches Jahrbuch 1994. Deutscher Wetterdienst, Offenbach am Main, 347 S.
- DWD (1998): Deutsches Meteorologisches Jahrbuch 1995. Deutscher Wetterdienst, Offenbach am Main, 381 S.
- DWD (1999): Deutsches Meteorologisches Jahrbuch 1996. Deutscher Wetterdienst, Offenbach am Main, 375 S.
- Edvarson, K., Löw, K. u. Sisevsky, J. (1959): Fractionation phenomena in nuclear weapons debris. *Nature* **184**, 1771–1774.
- Edvarson, K. u. Löw, K. (1960): Concentration of some fission product nuclides in ground-level air. *Nature* **188**, 125–128.
- Ehlken, S. u. Kirchner, G. (1996): Seasonal variations in soil-to-grass transfer of fallout strontium and cesium and of potassium in North German soils. *J. Environ. Radioactivity* **33**, 147–181.
- Eisenbud, M. u. Gesell, T. (1997): Environmental Radioactivity: From Natural, Industrial, and Military Sources. Academic Press, San Diego, 4. Aufl., 656 S.
- Eisenman, G., Ciani, S. u. Szabo, G. (1969): The effects of the macrotetralide actin antibiotics on the equilibrium extraction of alkali metal salts into organic solvents. *J. Membrane Biol.* **1**, 294–345.
- El-Daoushy, F., Tolonen, K. u. Rosenberg, R. (1982): Lead 210 and moss-increment dating of two Finnish *Sphagnum* hummocks. *Nature* **296**, 429–431.
- El-Daoushy, F. (1986a): Scandinavian limnology of sediments and heavy metals. *Hydrobiol.* **143**, 267–276.
- El-Daoushy, F. (1986b): The value of <sup>210</sup>Pb in dating Scandinavian aquatic and peat deposits. *Radiocarbon* **28**, 1031–1040.
- El-Daoushy, F. (1988): A summary on the lead-210 cycle in nature and related applications in Scandinavia. *Environ. Int.* **14**, 305–319.

- Ellenberg, H., Mayer, R. u. Schauer mann, J. [Hrsg.] (1986): Ökosystemforschung – Ergebnisse des Sollingprojekts 1966–1986. Ulmer, Stuttgart, 507 S.
- Enslin, F. (1994): Kartierung der Bioverfügbarkeit von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten im südlichen Baden-Württemberg. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 89 S.
- Evans, D.W., Alberts, J.J. u. Clark, R.A. (1983): Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* **47**, 1041–1049.
- Fairhall, A.W. (1960): The Radiochemistry of Beryllium. Subcommittee on Radiochemistry, National Academy of Sciences – National Research Council, Nuclear Science Series, NAS-NS 3013. Office of Technical Services, Department of Commerce, Washington, DC, 58 S.
- Feely, H.W., Larsen, R.J. u. Sanderson, C.G. (1989): Factors that cause seasonal variations in beryllium-7 concentrations in surface air. *J. Environ. Radioactivity* **9**, 223–249.
- Fiedler, H.J. (1991): Untersuchungen zu Azidität, Ionenbelegung und Mineralbestand der Waldböden im SO<sub>2</sub>-Immissionsgebiet des Osterzgebirges. In: Projektgruppe Bayern zur Erforschung der Wirkung von Umweltschadstoffen (PBWU) [Hrsg.], Expertentagung Waldschadensforschung im östlichen Mitteleuropa und in Bayern. GSF-Bericht 24/91. Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Neuherberg, 56–70.
- Firbas, F. (1949): Spät- und nacheiszeitliche Waldgeschichte Mitteleuropas nördlich der Alpen. Bd. 1: Allgemeine Waldgeschichte. Gustav Fischer Verlag, Jena, 480 S.
- Firbas, F. (1952): Spät- und nacheiszeitliche Waldgeschichte Mitteleuropas nördlich der Alpen. Bd. 2: Waldgeschichte der einzelnen Landschaften. Gustav Fischer Verlag, Jena, 256 S.
- Firestone, R.B. u. Shirley, V.S. [Hrsg.] (1996): Table of Isotopes, Bd. I u. II. John Wiley & Sons, New York, 8. Aufl., 3168 S.
- Förster, H., Schimmack, W. u. Kreutzer, K.E. (1991): Die horizontale Verteilung von Radiocäsium im Waldboden unter Fichte und Buche. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **154**, 87–92.
- Frahm, J.-P. u. Frey, W. (1992): Moosflora. Ulmer, Stuttgart, 3. Aufl., 528.
- Francis, C.W., Chesters, G. u. Haskin, L.A. (1970): Determination of <sup>210</sup>Pb mean residence time in the atmosphere. *Environ. Sci. Technol.* **4**, 586–589.
- Francis, C.W. u. Brinkley, F.S. (1976): Preferential adsorption of <sup>137</sup>Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. *Nature* **260**, 511–513.
- Frenzel, H. (1930): Entwicklungsgeschichte der sächsischen Moore und Wälder seit der letzten Eiszeit auf Grund pollenanalytischer Untersuchungen. Abhandlungen des Sächsischen Geologischen Landesamtes, Heft 9. Sächsisches Geologisches Landesamt, Leipzig, 119 S.
- Frissel, M.J. u. Pennders, R. (1983): Models for the accumulation and migration of <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>239,240</sup>Pu and <sup>241</sup>Am in the upper layer of soils. In: Coughtrey, P.J., Bell, J.N.B. u. Roberts, T.M. [Hrsg.], Ecological Aspects of Radionuclide Release. Blackwell, Oxford, 63–72.
- Führ, F., Ganser, S., Kloster, G., Prinz, B. u. Stüttgen, E. [Hrsg.] (1986): Wirkungen von Luftverunreinigungen auf Waldbäume und Waldböden. *Spez. Ber. Kernforschungsanlage Jülich* **369**, 463 S.
- Fukarek, F., Schultze-Motel, J. u. Siegel, M. (1992): Urania Pflanzenreich in vier Bänden. Bd. 2: Moose, Farne, Nacktsamer. Urania, Leipzig, 390 S.
- Fukuda, K. u. Tsunogai, S. (1975): Pb-210 in precipitation in Japan and its implication for the transport of continental aerosols across the ocean. *Tellus* **27**, 514–521.
- Gaffney, J.S., Orlandini, K.A. u. Marley, N.A. (1994): Measurements of <sup>7</sup>Be and <sup>210</sup>Pb in rain, snow, and hail. *J. Appl. Meteorol.* **33**, 869–873.
- Gallet, S., Jahn, B.M., Van Vliet Lanoe, B., Dia, A. u. Rossello, E. (1998): Loess geochemistry and its implications for particle origin and composition of the upper continental crust. *Earth Planet. Sci. Lett.* **156**, 157–172.
- Gascoyne, M. (1992): Geochemistry of the actinides and their daughters. In: Ivanovich, M. u. Harmon, R.S. [Hrsg.], Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, 2. Aufl., 34–61.
- Gavini, M.B., Beck, J.N. u. Kuroda, P.K. (1974): Mean residence times of the long-lived radon daughters in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* **79**, 4447–4452.
- Gellermann, R., Heinicke, J., Renno, A., Stolz, W. u. Volland, B. (1992): Pb-210 and Cs-137 in soils as indicators of radionuclide migration. IAEA Coordinated Research Programme Nuclear Techniques in Study of Pollutant Transport in the Environment (CRP F2.30.06). IAEA Research Agreement GDR-5772: Uranium Series Radionuclides as Natural Tracers for Studying Hydrospheric Mass Transport Processes. Projektbericht, 22 S.

- Geologisches Landesamt Sachsen (1872–): Geologische Karte von Sachsen 1:25000, Nr. 118 Nassau (1886; neue Nr. 5247), Nr. 119 Altenberg-Zinnwald (1906; neue Nr. 5248), Nr. 129 Zöblitz (1926; neue Nr. 5345), Nr. 146 Johanngeorgenstadt (1900; neue Nr. 5542). Kaufmann, Leipzig, 2. Aufl., je 1 Kt.
- Geologisches Landesamt Baden-Württemberg (1976): Geologische Karte von Baden-Württemberg 1:25000, Blatt 8223 Ravensburg; Erläuterungen (von Schmidt, M.). Landesvermessungsamt Baden-Württemberg, Stuttgart, Neudr. nach d. 2. Aufl. v. 1931, 91 S., 1 Kt.
- Gerdol, R., Degetto, S., Mazzotta, D. u. Vecchiati, G. (1994): The vertical distribution of the Cs-137 derived from Chernobyl fall-out in the uppermost *Sphagnum* layer of two peatlands in the Southern Alps (Italy). *Water Air Soil Poll.* **75**, 93–106.
- Geupel V. (1995): Seit eintausend Jahren Straße über das Erzgebirge. Der Ausbau der Bundesstraße 174 und die Archäologische Denkmalpflege. *Arch. aktuell Freistaat Sachsen* **3**, 261–264.
- Geyh, M.A. u. Schleicher, H. (1990): Absolute Age Determination: Physical and Chemical Dating Methods and Their Application. Springer, Berlin, 503 S.
- Gilmore, G. u. Hemingway, J.D. (1995): Practical Gamma-Ray Spectrometry. John Wiley & Sons, Chichester, 322 S.
- Godoy, J.M., Schuch, L.A., Nordemann, D.J.R., Reis, V.R.G., Ramalho, M., Recio, J.C., Brito, R.R.A. u. Olech, M.A. (1998):  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{226,228}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{40}\text{K}$  concentrations in Antarctic soil, sediment and selected moss and lichen samples. *J. Environ. Radioactivity* **41**, 33–45.
- Goryachenkova, T.A., Pavlotskaya, F.I. u. Myasoedov, B.F. (1991): Forms of occurrence of plutonium in soils. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **147**, 153–157.
- Göttlich, K. (1990): Moor- und Torfkunde. Schweizerbart, Stuttgart, 3. Aufl., 529 S.
- Götze, J.-U. (1985): Mineralogisch-geochemische Untersuchungen an Aerosolen. Diplomarbeit, Bergakademie Freiberg, 94 S.
- Graff, O. u. Makeschin, F. (1979): Der Einfluß der Fauna auf die Stoffverlagerung sowie die Homogenität und die Durchlässigkeit von Böden. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **142**, 476–491.
- Graustein, W.C. u. Turekian, K.K. (1986):  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in air and soils measure the rate and vertical profile of aerosol scavenging. *J. Geophys. Res.* **91**, 14355–14366.
- Gudiksen, P.H., Harvey, T.F. u. Lange, R. (1989): Chernobyl source term, atmospheric dispersion, and dose estimation. *Health Phys.* **57**, 697–706.
- Haas, G. u. Müller, A. (1995): Radioecological investigations on tree rings of spruce. *Sci. Total Environ.* **173/174**, 393–397.
- Hanson, W.C. (1975): Ecological considerations of the behavior of plutonium in the environment. *Health Phys.* **28**, 529–537.
- Hardy, E.P., Krey, P.W. u. Volchok, H.L. (1973): Global inventory and distribution of fallout plutonium. *Nature* **241**, 444–445.
- Harley, J.H. (1980): Plutonium in the environment – a review. *J. Radiat. Res.* **21**, 83–104.
- Harrison, R.M., ApSimon, H.M., Beck, H., Devell, L., Dickerson, M., Garland, J.A., Graziani, G., Gudiksen, P., McKay, W.A., Mishra, U.C., Nicholson, K.W., Smith, F.B. u. Shapiro, C.S. (1993): Atmospheric Pathways. In: Warner, F. u. Harrison, R.M. [Hrsg.], SCOPE 50 – Radioecology after Chernobyl: Biogeochemical Pathways of Artificial Radionuclides. John Wiley & Sons, Chichester.
- Hasebe, N., Doke, T., Kikuchi, J., Takeuchi, Y. u. Sugiyama, T. (1981): Observation of fallout rates of atmospheric  $^7\text{Be}$  and  $^{22}\text{Na}$  produced by cosmic rays – concerning estimation of the fallout rate of atmospheric  $^{26}\text{Al}$ . *J. Geophys. Res.* **86**, 520–524.
- Hayen, H. (1990): Moorarchäologie – Möglichkeiten und Folgerungen. *Niedersächs. Akad. Geowiss. Veröff.* **5**, 30–41.
- He, Q. u. Walling, D.E. (1996): Interpreting particle size effects in the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$  by mineral soils and sediments. *J. Environ. Radioactivity* **30**, 117–137.
- Hebert, D., Fröhlich, K. u. Andreeff, A. (1973): Eine Apparatur zur Messung natürlicher  $^{14}\text{C}$ -Aktivitäten. *Isotopenpraxis* **10**, 358–361.
- Hebert, D., Fröhlich, K., Franke, T., Gellermann, R., Unterricker, S. u. Kim, J.H. (1986): Underground laboratory in Freiberg, GDR. *Nucl. Instrum. Meth.* **B17**, 427–430.
- Hebert, D. (1997): Isotopenmethoden in der Hydrogeologie – Physikalische Grundlagen und Anwendungsmethodik. *Wiss. Mitt. Inst. Geol. TU BAF* **2**, 110 S.
- Heider, R. (1994): Horizontspezifische Sorption und Desorption von Cäsium-Radionukliden in Waldböden. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 118 S.



- Heilmann, H., Fischer, J. u. Symmangk, R. (1993): Die Böden des Osterzgebirges und seines nördlichen Vorlandes. Geologie in Sachsen, Exkursionsführer Nr. 1. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Freiberg, 22 S.
- Hempel, W. (1974): Die gegenwärtige Struktur und Vegetation der geschützten Hochmoore des Erzgebirges (Teil I). *Veröff. Mus. Naturk. Karl-Marx-Stadt* **8**, 9–36.
- Hempel, W. (1977): Die gegenwärtige Struktur und Vegetation der geschützten Hochmoore des Erzgebirges (Teil II). *Veröff. Mus. Naturk. Karl-Marx-Stadt* **9**, 3–29.
- Hempel, W. u. Schiemenz, H. (1986): Handbuch der Naturschutzgebiete der DDR. Bd. 5: Die Naturschutzgebiete der Bezirke Leipzig, Karl-Marx-Stadt und Dresden. Urania, Leipzig, 2. Aufl., 360 S.
- Henningsen, D. u. Katzung, G. (1998): Einführung in die Geologie Deutschlands. Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 5. Aufl., 244 S.
- Henrion, I. (1982): Untersuchungen zur Entwicklung von Sattelmoores im Oberharz. Dissertation, Universität Göttingen, 167 S.
- Hering, E., Martin, R. u. Stohrer, M. (1989): Physik für Ingenieure. VDI, Düsseldorf, 2. Aufl., 734 S.
- Herms, U. u. Brümmer, G. (1980): Einfluß der Bodenreaktion auf Löslichkeit und tolerierbare Gesamtgehalte an Nickel, Kupfer, Zink, Cadmium und Blei in Böden und kompostierbaren Siedlungsabfällen. *Landwirtsch. Forsch.* **33**, 408–423.
- Herms, U. u. Brümmer, G. (1984): Einflußfaktoren der Schwermetalllöslichkeit und -bindung in Böden. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **147**, 400–424.
- Herpin, U., Berlekamp, J., Markert, B., Wolterbeek, B., Grodzinska, K., Siewers, U., Lieth, H. u. Weckert, V. (1996): The distribution of heavy metals in a transect of the three states the Netherlands, Germany and Poland, determined with the aid of moss monitoring. *Sci. Total Environ.* **187**, 185–198.
- Heusser, G. (1986): The background components of germanium low-level spectrometers. *Nucl. Instrum. Meth.* **B17**, 418–422.
- Heusser, G. (1991): Studies of  $\gamma$ -ray background with a low level germanium spectrometer. *Nucl. Instrum. Meth.* **B58**, 79–84.
- Heusser, G. (1993): Cosmic ray-induced background in Ge-spectrometry. *Nucl. Instrum. Meth.* **B83**, 223–228.
- Heusser, G. (1996): Cosmic ray interaction study with low-level Ge-spectrometry. *Nucl. Instrum. Meth.* **A369**, 539–543.
- Hird, A.B., Rimmer, D.L. u. Livens, F.R. (1995): Total caesium-fixing potentials of acid organic soils. *J. Environ. Radioactivity* **26**, 103–118.
- Hirose, K. u. Sugimura, Y. (1990): Plutonium isotopes in the surface air in Japan: effect of Chernobyl accident. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **138**, 127–138.
- Hofmann, W. u. Nebe, W. (1996): Stoffflüsse durch Streufall in einem immissionsbelasteten Fichten-ökosystem des Osterzgebirges. *Beitr. Forstwirtschaft. u. Landsch.ökol.* **30**, 25–27.
- Hohenemser, C., Deicher, M., Ernst, A., Hofsäss, H., Lindner, G. u. Recknagel, E. (1986a): Chernobyl: an early report. *Environment* **28**, 6–43.
- Hohenemser, C., Deicher, M., Hofsäss, H., Lindner, G., Recknagel, E. u. Budnick, J.I. (1986b): Agricultural impact of Chernobyl: a warning. *Nature* **321**, 817.
- Hölgye, Z. u. Filgas, R. (1987): Determination of  $^{239+240}\text{Pu}$  in surface air in several localities in Czechoslovakia in 1986 in connection with the Chernobyl radiation accident. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters* **119**, 21–28.
- Hölgye, Z. u. Filgas, R. (1995): Inventory of  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the soil of Czechoslovakia in 1990. *J. Environ. Radioactivity* **27**, 181–189.
- Hölgye, Z. u. Malý, M. (2000): Sources, vertical distribution, and migration rates of  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , and  $^{137}\text{Cs}$  in grassland soil in three localities of central Bohemia. *J. Environ. Radioactivity* **47**, 135–147.
- Holloway, R.W. u. Hayes, D.W. (1982): Mean residence time of plutonium in the troposphere. *Environ. Sci. Technol.* **16**, 127–129.
- Holm, E., Aarkrog, A., Ballestra, S. u. Dahlgaard, H. (1986): Origin and isotopic ratios of plutonium in the Barents and Greenland Seas. *Earth Planet. Sci. Lett.* **79**, 27–32.
- Holm, E. (1988): Determination of  $^{241}\text{Pu}$  in environmental samples by a radiochemical procedure. *Environ. Int.* **14**, 363–365.
- Hötzl, H., Rosner, G. u. Winkler, R. (1983): Radionuclide Concentrations in Ground Level Air and

- Precipitation in South Germany from 1976 to 1982. GSF-Bericht S-956. Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Neuherberg, 99 S.
- Hötzl, H., Rosner, G. u. Winkler, R. (1987): Ground depositions and air concentrations of Chernobyl fallout radionuclides at Munich-Neuherberg. *Radiochim. Acta* **41**, 181–190.
- Hötzl, H. u. Winkler, R. (1987): Activity concentrations of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^7\text{Be}$  and their temporal variations in surface air. *J. Environ. Radioactivity* **5**, 445–458.
- Hötzl, H., Rosner, G. u. Winkler, R. (1989): Long-term behaviour of Chernobyl fallout in air and precipitation. *J. Environ. Radioactivity* **10**, 157–171.
- Hötzl, H., Rosner, G. u. Winkler, R. (1991): Correlation of  $^7\text{Be}$  concentrations in surface air and precipitation with the solar cycle. *Naturwiss.* **78**, 215–217.
- Hötzl, H., Rosner, G. u. Winkler, R. (1992): Sources of present Chernobyl-derived caesium concentrations in surface air and deposition samples. *Sci. Total Environ.* **119**, 231–242.
- Hubbell, J.H. (1982): Photon mass attenuation and energy-absorption coefficients from 1 keV to 20 MeV. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **33**, 1269–1290.
- Hunger, W. (1994): Die Waldböden des Erzgebirges. *Mitt. Ver. Forstl. Standortskunde u. Forstpflanzenzüchtung* **37**, 17–22.
- Ibrahim, S.A. u. Whicker, F.W. (1988): Comparative uptake of U and Th by native plants at a U production site. *Health Phys.* **54**, 413–419.
- IEEE (1987): IEEE Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Ray Detectors. ANSI/IEEE Std 325-1986. The Institute of Electrical and Electronics Engineers, New York, NY, USA, 32 S.
- Irlweck, K., Lenz, H. u. Fürst, A. (1999):  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  contamination of spruce needles in the northern region of Austria. *J. Environ. Radioactivity* **46**, 179–185.
- ISO (1995): Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. 1. Auflage 1993, korrigierter Neudruck 1995. International Organization for Standardization, Genf, Schweiz, 28 S.
- Ivanovich, M. u. Harmon, R.S. [Hrsg.] (1992): Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, 2. Aufl., 910 S.
- Ivanov, E.A., Ramzina, T.V., Kham'yanov, L.P., Vasil'chenko, V.N., Korotov, V.T., Nosovskii, A.V. u. Oskolkov, B.Y. (1994): Radioactive contamination of the environment with  $^{241}\text{Am}$  as a result of the Chernobyl accident. *Atom. Energy* **77**, 629–634.
- Jäkel, M. u. Rascher, J. (1994): Zur Geochemie von Aschen aus Braunkohlen-Kraftwerken unter dem Aspekt der Wiederverwertung. In: LfUG [Hrsg.], Workshop Sanierung von Mischaltlasten. Tagungsband. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden, 167–182.
- James, M.F., Mills, R.W. u. Weaver, D.R. (1991): A New Evaluation of Fission Product Yields and the Production of a New Library (UKFY2) of Independent and Cumulative Yields. Part I–III. Reports AEA-TRS-1015, -1018, -1019. AEA Technology, Winfrith, UK.
- Jaracz, P., Mirowski, S., Trzcińska, A., Isajenko, K., Jagielak, J., Kempisty, T. u. Józefowicz, E.T. (1995): Calculations and measurements of  $^{154}\text{Eu}$  and  $^{155}\text{Eu}$  in 'fuel-like' hot particles from Chernobyl fallout. *J. Environ. Radioactivity* **26**, 83–97.
- Jensen, U. (1987): Die Moore des Hochharzes – Allgemeiner Teil. *Naturschutz Landschaftspfl. Niedersachs.* **15**, 1–93.
- Jensen, U. (1990): Die Moore des Hochharzes – Spezieller Teil. *Naturschutz Landschaftspfl. Niedersachs.* **23**, 1–116.
- Jones, D.R., Eason, W.R. u. Dighton, J. (1998): Investigation of spatial and temporal patterns of  $^{137}\text{Cs}$  partitioning in *Eriophorum vaginatum* L. in relation to its nutrient retrieval and storage strategy. *J. Environ. Radioactivity* **40**, 271–288.
- Joshi, S.R. (1987): Early Canadian results on the long-range transport of Chernobyl radioactivity. *Sci. Total Environ.* **63**, 125–137.
- Jost, D.T., Gäggeler, H.W., Baltensperger, U., Zinder, B. u. Haller, P. (1986): Chernobyl fallout in size-fractionated aerosols. *Nature* **324**, 22–23.
- Kaminski, S., Richter, T., Walser, M. u. Lindner, G. (1994): Redissolution of cesium radionuclides from sediments of freshwater lakes due to biological degradation of organic matter. *Radiochim. Acta* **66/67**, 433–436.
- Kardel, K. (1996): Geochemischer Atlas des Freistaates Sachsen. Teil 1: Spurenelementgehalte in Gesteinen. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Radebeul, 37 S.
- Katcoff, S. (1960): Fission-product yields from neutron-induced fission. *Nucleonics* **18**, 201–208.
- Kathren, R.L. (1984): Radioactivity in the Environment: Sources, Distribution, and Surveillance. Har-

- wood Academic Publishers, Chur, 397 S.
- Kauppinen, E.I., Hillamo, R.E., Aaltonen, S.H. u. Sinkko, K.T.S. (1986): Radioactivity size distributions of ambient aerosols in Helsinki, Finland, during May 1986 after the Chernobyl accident: preliminary report. *Environ. Sci. Technol.* **20**, 1257–1259.
- Kauranen, P. (1964): Radioactive antimony isotopes in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* **69**, 5075–5080.
- Kelley, J.M., Bond, L.A. u. Beasley, T.M. (1999): Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$ . *Sci. Total Environ.* **237/238**, 483–500.
- Kershaw, P.J., Woodhead, D.S., Malcolm, S.J., Allington, D.J. u. Lovett, M.B. (1990): A sediment history of Sellafield discharges. *J. Environ. Radioactivity* **12**, 201–241.
- Kim, J.H. (1987): Ein Beitrag zur low-level-Gamma-Spektrometrie und Bestimmung geringer Aktivitäten. Dissertation, Bergakademie Freiberg, 91 S.
- Kim, J.I., Buckau, G., Bryant, E. u. Klenze, R. (1989): Complexation of americium(III) with humic acid. *Radiochim. Acta* **48**, 135–143.
- Kirchman, R., Bell, J.N.B., Coughtrey, P.J., Frissel, M., Hakonson, T.E., Hanson, W.C., Horrill, D., Howard, B.J., Lane, L.J., Myttenaere, C., Robison, W.L., Ronneau, C., Shaw, G., Schell, W.R., Van Den Hoek, J., Konoplev, A. u. Zezina, N. (1993): Terrestrial Pathways. In: Warner, F. u. Harrison, R.M. [Hrsg.], SCOPE 50 – Radioecology after Chernobyl: Biogeochemical Pathways of Artificial Radionuclides. John Wiley & Sons, Chichester.
- Kirchner, G. u. Noack, C.C. (1988): Core history and nuclide inventory of the Chernobyl core at the time of accident. *Nucl. Safety* **29**, 1–5.
- Kirchner, G. u. Baumgartner, D. (1992): Migration rates of radionuclides deposited after the Chernobyl accident in various North German soils. *Analyst* **117**, 475–479.
- Kirchner, G. u. Daillant, O. (2002): The potential of lichens as long-term biomonitors of natural and artificial radionuclides. *Environ. Pollut.* **120**, 145–150.
- Klement, A.W., Jr. (1965): Radioactive fallout phenomena and mechanisms. *Health Phys.* **11**, 1265–1274.
- Klemt, E., Deuss, H., Drissner, J., Krapf, M., Miller, R. u. Zibold, G. (1999): Cs-137 transfer factors soil–plant and density of hyphae in soil of spruce forests. In: Gerzabek, M.H. [Hrsg.], Proceedings of the XXIX Annual Meeting of ESNA / jointly organised with UIR working group soil-to-plant transfer, 207–213.
- Kliashtorin, A.L., Shcheglov, F.A. u. Tikhomirov, F.A. (1995): Chemical forms of  $\gamma$ -emitting radionuclides in soils adjacent to the Chernobyl NPP. *Sci. Total Environ.* **164**, 177–184.
- Klös, H. u. Schoch, C. (1993): Einfache Methoden zur Radiodatierung limnischer Elemente. *UWSF - Z. Umweltchem. Ökotox.* **5**, 2–6.
- Knoll, G.F. (1989): Radiation Detection and Measurement. John Wiley & Sons, New York, 2. Aufl., 754 S.
- Koch, D.M. u. Mann, M.E. (1996): Spatial and temporal variability of  $^7\text{Be}$  surface concentrations. *Tellus* **48B**, 387–396.
- Koide, M., Bruland, K.W. u. Goldberg, E.D. (1973): Th-228/Th-232 and Pb-210 geochronologies in marine and lake sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* **37**, 1171–1187.
- Koide, M. u. Goldberg, E.D. (1981):  $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  ratios in polar glaciers. *Earth Planet. Sci. Lett.* **54**, 239–247.
- König, L.A., Schüttelkopf, H., Erat, S., Fessler, H., Hempelmann, S., Maurer, K., Pimpl, M. u. Radziwill, A. (1986): Der Reaktorunfall von Tschernobyl – Meßergebnisse des Kernforschungszentrums Karlsruhe. KfK 4114. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, 86 S.
- Konoplev, A.V., Viktorova, N.V., Virchenko, E.P., Popov, V.E., Bulgakov, A.A. u. Desmet, G.M. (1993): Influence of agricultural countermeasures on the ratio of different chemical forms of radionuclides in soil and soil solution. *Sci. Total Environ.* **137**, 147–162.
- Koranda, J.J. u. Martin, J.R. (1973): Gamma-emitting radionuclides in Alaskan environments 1967–1970. In: Nelson, D.J. [Hrsg.], Radionuclides in Ecosystems. Proceedings of the Third National Symposium on Radioecology (Vol. 1). CONF-710501-P1. National Technical Information Service, Springfield, VA, 81–107.
- Krey, P.W. (1967): Atmospheric burnup of a plutonium-238 generator. *Science* **158**, 769–771.
- Krey, P.W. u. Krajewski, B. (1970): Comparison of atmospheric transport model calculations with observations of radioactive debris. *J. Geophys. Res.* **75**, 2901–2908.

- Krey, P.W., Hardy, E.P., Pachucki, C., Rourke, F., Coluzza, J. u. Benson, W.K. (1976): Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil. In: IAEA [Hrsg.], *Transuranium Nuclides in the Environment*. IAEA-SM-199/39. International Atomic Energy Agency, Wien, 671–678.
- Krieger, H.L. u. Groche, D. (1960): Occurrence of scandium-46 and cesium-134 in radioactive fallout. *Science* **131**, 40–42.
- Krieter, M. (1991): Wasserkreislauf und Saure Niederschläge. *Geogr. Rundsch.* **43**, 326–333.
- Krishnaswami, S. u. Lal, D. (1978): Radionuclide limnology. In: Lerman, A. [Hrsg.], *Lakes: Chemistry, Geology, Physics*. Springer, New York, 153–177.
- Krüger, F.W., Albrecht, L., Spoden, E. u. Weiss, W. (1996): Der Ablauf des Reaktorunfalls Tschernobyl 4 und die weiträumige Verfrachtung des freigesetzten Materials: Neuere Erkenntnisse und ihre Bewertung. In: Bayer, A., Kaul, A. u. Reiners, C. [Hrsg.], *Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz*. Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, 7–22.
- Kruyts, N., Titeux, H. u. Delvaux, B. (2004): Mobility of radiocesium in three distinct forest floors. *Sci. Total Environ.* **319**, 241–252.
- Kubach, I. u. Weigel, F. (1977): Radium Erg.-Bd. 1, Geschichtliches, Kosmochemie, Geochemie. *Gmelin Handbuch der Anorganischen Chemie, Syst.-Nr. 31*. Springer, Berlin, 8. Aufl., 131 S.
- Kurata, T. u. Tsunogai, S. (1986): Exhalation rates of  $^{222}\text{Rn}$  and deposition rates of  $^{210}\text{Pb}$  at the earth's surface estimated from  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{210}\text{Pb}$  profiles in soils. *Geochem. J.* **20**, 81–90.
- Kuroda, P.K., Hodges, H.L. u. Fry, L.M. (1960): Spring peak of strontium-90 fallout. *Science* **132**, 742–743.
- Kuroda, P.K., Palmer, B.D., Attrep, M., Jr., Beck, J.N., Ganapathy, R., Sabu, D.D. u. Rao, M.N. (1965): Fallout from the nuclear explosion of 16 October 1954. *Science* **147**, 1284–1286.
- Lal, D. u. Peters, B. (1967): Cosmic ray produced radioactivity on the earth. In: Sitte, K. [Hrsg.], *Handbuch der Physik. Band 46/2*. Springer, Berlin, 551–612.
- Landsberger, S. u. Peshev, S. (1996): Compton suppression neutron activation analysis: past, present and future. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **202**, 201–224.
- Lang, G. (1994): *Quartäre Vegetationsgeschichte Europas: Methoden und Ergebnisse*. Gustav Fischer Verlag, Jena, 462 S.
- Lange, E., Christl, A. u. Joosten, H. (2005): Ein Pollendiagramm aus der Mothäuser Heide im oberen Erzgebirge unweit des Grenzüberganges Reitzenhain. In: Sachenbacher, P., Einicke, R. u. Beier, H.-J. [Hrsg.], *Kirche und geistiges Leben im Prozess des mittelalterlichen Landesausbaus in Ostthüringen / Westsachsen*. Beier & Beran, Langenweißbach, 153–169.
- Langer, R., Rieth, K.-H. u. Lindner, G. (1997): Indizien für die Beteiligung von organischen Trägerstoffen beim Pflanzentransfer von Cäsium-Radionukliden in Nadelwald-Böden. Radiocäsium in Wald und Wild, 2. Workshop, 10.–11.6.1997, Bundesanstalt für Fleischforschung, Kulmbach. Kurzfassungen der Vorträge, 8–9.
- Laubenstein, M., Hult, M., Gasparro, J., Arnold, D., Neumaier, S., Heusser, G., Köhler, M., Povinec, P., Reyss, J.-L., Schwaiger, M. u. Theodorsson, P. (2004): Underground measurements of radioactivity. *Appl. Radiat. Isot.* **61**, 167–172.
- LfUG (1995): Jahresbericht zur Immissionssituation 1994. Materialien zur Luftreinhaltung 1995. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Radebeul, 51 S.
- LfUG (1996): Jahresbericht zur Immissionssituation 1995. Materialien zur Luftreinhaltung 1996. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Radebeul, 86 S.
- LfUG (1997): Jahresbericht zur Immissionssituation 1996. Materialien zur Luftreinhaltung 1997. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Radebeul, 66 S.
- LfUG (1998): Jahresbericht zur Immissionssituation 1997. Materialien zur Luftreinhaltung 1998. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden, 63 S.
- Libby, W.F. (1961): Radiocarbon dating. *Science* **133**, 621–629.
- Lieser, K.H., Hill, R., Mühlenweg, U., Singh, R.N., Tu Shu-De u. Steinkopff, T. (1991): Actinides in the environment. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **147**, 117–131.
- Liguori, C., Sarracino, A., Sverzellati, P.P. u. Zanotti, L. (1983): A low activity gamma ray spectrometer. *Nucl. Instrum. Meth.* **204**, 585–596.
- Lindberg, S.E. u. Harriss, R.C. (1983): Water and acid soluble trace metals in atmospheric particles. *J. Geophys. Res.* **88**, 5091–5100.
- Lindholm, T. (1990): Growth dynamics of the peat moss *Sphagnum fuscum* on hummocks on a raised bog in southern Finland. *Ann. Bot. Fennici* **27**, 67–78.

- Lindner, G. u. Recknagel, E. (1988): Tschernobyl, Auswirkungen auf die Bodenseeregion. Thorbecke Verlag, Sigmaringen.
- Lindner, G., Kaminski, S., Greiner, I., Wunderer, M., Behrschmidt, J., Schröder, G. u. Kress, S. (1993): Interaction of dissolved radionuclides with organic matter in prealpine freshwater lakes. *Verh. Internat. Verein. Limnol.* **25**, 238–241.
- Lindner, G., Drissner, J., Herrmann, T., Hund, M., Zech, W., Zibold, G. u. Zimmerer, R. (1994): Seasonal and regional variations in the transfer of cesium radionuclides from soil to roe deer and plants in a prealpine forests. *Sci. Total Environ.* **157**, 189–196.
- Linsalata, P., Morse, R.S., Ford, H., Eisenbud, M., Franca, E.P., De Castro, M.B., Lobao, N., Sachett, I. u. Carlos, M. (1989): An assessment of soil-to-plant concentration ratios for some natural analogues of the transuranic elements. *Health Phys.* **56**, 33–46.
- List, R.J., Salter, L.P. u. Telegadas, K. (1966): Radioactive debris as a tracer for investigating stratospheric motions. *Tellus* **18**, 345–353.
- Livens, F.R., Baxter, M.S. u. Allen, S.E. (1987): Association of plutonium with soil organic matter. *Soil Sci.* **144**, 24–28.
- Livens, F.R. u. Baxter, M.S. (1988): Chemical associations of artificial radionuclides in Cumbrian soils. *J. Environ. Radioactivity* **7**, 75–86.
- Livens, F.R. u. Loveland, P.J. (1988): The influence of soil properties on the environmental mobility of caesium in Cumbria. *Soil Use Manage.* **4**, 69–75.
- Livingston, H.D., Schneider, D.L. u. Bowen, V.T. (1975):  $^{241}\text{Pu}$  in the marine environment by a radiochemical procedure. *Earth Planet. Sci. Lett.* **25**, 361–367.
- Livingston, H.D. u. Bowen, V.T. (1976): Americium in the marine environment – relationships to plutonium. In: Miller, M.W. u. Stannard, J.N. [Hrsg.], *Environmental Toxicity of Aquatic Radionuclides: Models and Mechanisms*. Ann Arbor Science Publishers, Ann Arbor, MI, 107–130.
- Lockhart, L.B., Jr., Patterson, R.L., Jr., Saunders, A.W., Jr. u. Black, R.W. (1965): The size distribution of radioactive atmospheric aerosols. *J. Geophys. Res.* **70**, 6033–6041.
- Lofts, S., Tipping, E.W., Sanchez, A.L. u. Dodd, B.A. (2002): Modelling the role of humic acid in radiocaesium distribution in a British upland peat soil. *J. Environ. Radioactivity* **61**, 133–147.
- Lomenick, T.F. u. Tamura, T. (1965): Naturally occurring fixation of cesium-137 on sediments of lacustrine origin. *Soil Sci. Soc. Amer. Proc.* **29**, 383–387.
- Lütt, S. (1992): Produktionsbiologische Untersuchungen zur Sukzession der Torfstichvegetation in Schleswig-Holstein. *Mitt. Arbeitsgem. Geobot. Schleswig-Holstein Hamb.* **43**, 250 S.
- Lux, D., Kammerer, L., Rühm, W. u. Wirth, E. (1995): Cycling of Pu, Sr, Cs, and other longliving radionuclides in forest ecosystems of the 30-km zone around Chernobyl. *Sci. Total Environ.* **173/174**, 375–384.
- Machta, L., List, R.J. u. Hubert, L.F. (1956): World-wide travel of atomic debris. *Science* **124**, 474–477.
- MacKenzie, A.B., Farmer, J.G. u. Sugden, C.L. (1997): Isotopic evidence of the relative retention and mobility of lead and radiocaesium in Scottish ombrotrophic peats. *Sci. Total Environ.* **203**, 115–127.
- Maerker, L. u. Paulig, H. (1993): *Kleine Sächsische Landeskunde*. Hellerau, Dresden, 186 S.
- Makeschin, F. (1997): Earthworms (Lumbricidae: Oligochaeta): important promoters of soil development and soil fertility. In: Benckiser, G. [Hrsg.], *Fauna in Soil Ecosystems*. Marcel Dekker, New York, 173–223.
- Malm, H.L., Watt, M.M., Bostock, I., Campbell, J.L., Jagam, P. u. Simpson, J.J. (1984): Background reduction in germanium spectrometers: material selection, geometry, and shielding. *Nucl. Instrum. Meth.* **223**, 420–425.
- Malmer, N. u. Holm, E. (1984): Variation in the C/N-quotient of peat in relation to decomposition rate and age determination with  $^{210}\text{Pb}$ . *Oikos* **43**, 171–182.
- Malmer, N. (1988): Patterns in the growth and the accumulation of inorganic constituents in the *Sphagnum* cover on ombrotrophic bogs in Scandinavia. *Oikos* **53**, 105–120.
- Malmer, N. (1993): Mineral nutrients in vegetation and surface layers of *Sphagnum*-dominated peat-forming systems. *Adv. Bryol.* **5**, 223–248.
- Manning, G.S. (1979): Counterion binding in polyelectrolyte theory. *Acc. Chem. Res.* **12**, 443–449.
- Manolopoulou, M. u. Papastefanou, C. (1992): Behavior of natural radionuclides in lignites and fly ashes. *J. Environ. Radioactivity* **16**, 261–271.

- Markert, B., Herpin, U., Berlekamp, J., Oehlmann, J., Grodzinska, K., Mankovska, B., Suchara, I., Siewers, U., Weckert, V. u. Lieth, H. (1996a): A comparison of heavy metal deposition in selected Eastern European countries using the moss monitoring method, with special emphasis on the 'Black Triangle'. *Sci. Total Environ.* **193**, 85–100.
- Markert, B., Herpin, U., Siewers, U., Berlekamp, J. u. Lieth, H. (1996b): The German heavy metal survey by means of mosses. *Sci. Total Environ.* **182**, 159–168.
- Martell, E.A. u. Moore, H.E. (1974): Tropospheric aerosol residence times: a critical review. *J. Rech. Atmos.* **8**, 903–910.
- Matsunaga, T., Amano, H., Ueno, T., Yanase, N. u. Kobayashi Y. (1995): The role of suspended particles in the discharge of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  within the Kuji River watershed, Japan. *J. Environ. Radioactivity* **26**, 3–17.
- Matschullat, J. u. Bozau, E. (1996): Atmospheric element input in the Eastern Ore Mountains. *Appl. Geochem.* **11**, 149–154.
- Matschullat, J. u. Kritzer, P. (1997): Atmosphärische Deposition von Spurenelementen in „Reinluftgebieten“. In: Matschullat, J., Tobschall, H.J. u. Voigt, H.J. [Hrsg.], Geochemie und Umwelt: Relevante Prozesse in Atmo-, Peto- und Hydrosphäre. Springer, Berlin, 3–23.
- Matschullat, J., Maenhaut, W., Zimmermann, F. u. Fiebig, J. (2000): Aerosol and bulk deposition trends in the 1990's Eastern Erzgebirge, Central Europe. *Atmos. Environ.* **34**, 3213–3221.
- Mayer, R. (1978): Adsorptionsisothermen als Regelgrößen beim Transport von Schwermetallen in Böden. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **141**, 11–28.
- Mayer, R. u. Heinrichs, H. (1980): Flüssebilanzen und aktuelle Änderungsraten der Schwermetall-Vorräte in Wald-Ökosystemen des Solling. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **143**, 232–246.
- McCartney, M., Kershaw, P.J. u. Allington, D.J. (1990): The behaviour of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in the eastern Irish Sea. *J. Environ. Radioactivity* **12**, 243–265.
- Megumi, K. (1979): Radioactive disequilibrium of uranium and actinium series nuclides in soils. *J. Geophys. Res.* **84**, 3677–3682.
- Middelburg, J.J., Hoede, D., Van der Sloot, H.A., Van der Weijden, C.H. u. Wijkstra, J. (1988): Arsenic, antimony and vanadium in the North Atlantic ocean. *Geochim. Cosmochim. Acta* **52**, 2871–2878.
- Miller, N.G. [Hrsg.] (1993): Biology of Sphagnum. Advances in Bryology, Vol. 5. J. Cramer in der Gebrüder Borntraeger Verlagsbuchhandlung, Berlin, 335 S.
- Mishra, U.C., Negi, B.S. u. Sethi, S.K. (1980): Stratospheric residence times from plateau measurements. *Health Phys.* **39**, 815–819.
- Miyake, Y., Katsuragi, Y. u. Sugimura, Y. (1970): A study on plutonium fallout. *J. Geophys. Res.* **75**, 2329–2330.
- Möhring, C. (1992): 10 Jahre Waldschadensforschung: Bilanz und Ausblick. Bundesminister für Forschung und Technologie, Bonn, 72 S.
- Moldan, B. u. Schnoor, J.L. (1992): Czechoslovakia: examining a critically ill environment. *Environ. Sci. Technol.* **26**, 14–21.
- Moore, H.E., Poet, S.E. u. Martell, E.A. (1973):  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ , and  $^{210}\text{Po}$  profiles and aerosol residence times versus altitude. *J. Geophys. Res.* **78**, 7065–7075.
- Moore, H.E. u. Poet, S.E. (1976):  $^{210}\text{Pb}$  fluxes determined from  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{226}\text{Ra}$  soil profiles. *J. Geophys. Res.* **81**, 1056–1058.
- Mouchel, D. u. Wordel, R. (1996): A low-energy HPGE detector dedicated to radioactivity measurements far below environmental levels. *Appl. Radiat. Isot.* **47**, 1033–1041.
- Müller-Lemans, H. u. Van Dorp, F. (1996): Bioturbation as a mechanism for radionuclide transport in soil: relevance of earthworms. *J. Environ. Radioactivity* **31**, 7–20.
- Müller, F. u. Uhlig, D. (1997): Geschützte Biotope im Osterzgebirge: Hochmoore. Förderverein für die Natur des Osterzgebirges, Schellerhau, 12 S.
- Münch, U. u. Götze, J. (1994): Phasencharakterisierung von Braunkohlenflugaschen. *Abfallwirtsch. J.* **6**, 772–781.
- Münch, U. (1996): Zur Konstitution, Elutionsverhalten und Kathodolumineszenz von Braunkohlenaschen. Dissertation, TU Bergakademie Freiberg, 129 S.
- Murayama, N. (1964): Meteorological feature of cosmic ray produced beryllium-7. *Journ. Met. Soc. Japan* **42**, 43–52.
- Nash, K., Fried, S., Friedman, A.M. u. Sullivan, J.C. (1981): Redox behavior, complexing, and ad-

- sorption of hexavalent actinides by humic acid and selected clays. *Environ. Sci. Technol.* **15**, 834–837.
- Naumann, A. (1927): Zur Geschichte unserer Moore. *Mitt. Landesverein Sächs. Heimatschutz* **1–2**, 37–61.
- NEA Committee on Radiation Protection and Public Health (1996): Chernobyl – Ten Years On: Radiological and Health Impact. OECD Nuclear Energy Agency, Paris, 70 S.
- Nebe, W. (1964): Die chemische Zusammensetzung der wichtigsten Grundgesteine Sachsens als Grundlage für eine Beurteilung der Nährstoffverhältnisse in Waldböden. *Jb. Staatl. Mus. Mineral. Geol.* **1964**, 351–386.
- Nebe, W. (1970): Die chemische Zusammensetzung der wichtigsten Grundgesteine Sachsens als Grundlage für eine Beurteilung der Nährstoffverhältnisse in Waldböden (Ergänzung 1967). *Abh. Staatl. Mus. Mineral. Geol.* **16**, 287–304.
- Nijampurkar, V.N. u. Rao, D.K. (1993): Polar fallout of radionuclides  $^{32}\text{Si}$ ,  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  and past accumulation rate of ice at Indian Station, Dakshin Gangotri, East Antarctica. *J. Environ. Radioactivity* **21**, 107–117.
- Nisbet, A.F. (1993): Effect of soil-based countermeasures on solid-liquid equilibria in agricultural soils contaminated with radiocaesium and radiostrontium. *Sci. Total Environ.* **137**, 99–118.
- Nisbet, A.F., Salbu, B. u. Shaw, S. (1993): Association of radionuclides with different molecular size fractions in soil solution: implications for plant uptake. *J. Environ. Radioactivity* **18**, 71–84.
- Nishita, H. u. Haug, R.M. (1979): The effect of fulvic and humic acids and inorganic phase of soil on the sorption and extractability of  $^{239}\text{Pu}(\text{IV})$ . *Soil Sci.* **128**, 291–296.
- Norton, S.A., Wagai, R., Navratil, T., Kaste, J.M. u. Rissberger, F.A. (2000): Response of a first-order stream in Maine to short-term in-stream acidification. *Hydrol. Earth Syst. Sci.* **4**, 383–391.
- Noshkin, V.E., Wong, K.M., Eagle, R.J. u. Gatrousis, C. (1975): Transuranics and other radionuclides in Bikini Lagoon: concentration data retrieved from aged coral sections. *Limnol. Oceanogr.* **20**, 729–742.
- Novák, M., Bottrell, S.H., Fottová, D., Buzek, F., Groscheová, H. u. Žák, K. (1996): Sulfur isotope signals in forest soils of Central Europe along an air pollution gradient. *Environ. Sci. Technol.* **30**, 3473–3476.
- Nydal, R. (1966): Variation in  $\text{C}^{14}$  concentration in the atmosphere during the last several years. *Tellus* **18**, 271–279.
- Nydal, R., Lövseth, K. u. Syrstad, O. (1971): Bomb  $^{14}\text{C}$  in the human population. *Nature* **232**, 418–421.
- Oldfield, F., Appleby, P.G., Cambray, R.S., Eakins, J.D., Barber, K.E., Battarbee, R.W., Pearson, G.R. u. Williams, J.M. (1979):  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239}\text{Pu}$  profiles in ombrotrophic peat. *Oikos* **33**, 40–45.
- Ollui Mboulou, M., Hurtgen, C., Hofkens, K. u. Vandecasteele, C. (1998): Vertical distribution in the Kapachi soil of the plutonium isotopes ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ), of  $^{241}\text{Am}$ , and of  $^{243,244}\text{Cm}$ , eight years after the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioactivity* **39**, 231–237.
- Olsen, C.R., Larsen, I.L., Lowry, P.D., Cutshall, N.H., Todd, J.F., Wong, G.T.F. u. Casey, W.H. (1985): Atmospheric fluxes and marsh-soil inventories of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$ . *J. Geophys. Res.* **90**, 10487–10495.
- Osmond, J.K. u. Ivanovich, M. (1992): Uranium-series mobilization and surface hydrology. In: Ivanovich, M. u. Harmon, R.S. [Hrsg.], Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, 2. Aufl., 259–289.
- Otto, H.J. (1994): Waldökologie. Ulmer, Stuttgart, 391 S.
- Overbeck, F. u. Happach, H. (1957): Über das Wachstum und den Wasserhaushalt einiger Hochmoorsphagnen. *Flora* **144**, 335–402.
- Overbeck, F. (1975): Botanisch-geologische Moorkunde unter besonderer Berücksichtigung der Moore Nordwestdeutschlands als Quellen zur Vegetations-, Klima- und Siedlungsgeschichte. Karl Wachholtz Verlag, Neumünster, 719 S.
- Paces, T. (1985): Sources of acidification in Central Europe estimated from elemental budgets in small basins. *Nature* **315**, 31–36.
- Pakarinen, P. u. Tolonen, K. (1977): Distribution of lead in *Sphagnum fuscum* profiles in Finland. *Oikos* **28**, 69–73.
- Pakarinen, P. (1978a): Distribution of heavy metals in the *Sphagnum* layer of bog hummocks and hollows. *Ann. Bot. Fennici* **15**, 287–292.

- Pakarinen, P. (1978b): Production and nutrient ecology of three *Sphagnum* species in southern Finnish raised bogs. *Ann. Bot. Fennici* **15**, 15–26.
- Pälchen, W., Rank, G., Lange, H. u. Tischendorf, G. (1987): Regionale Clarkewerte – Möglichkeiten und Grenzen ihrer Anwendung am Beispiel des Erzgebirges (DDR). *Chem. Erde* **47**, 1–17.
- Palmer, H.E. u. Perkins, R.W. (1963): Cesium-134 in Alaskan Eskimos and in fallout. *Science* **142**, 66–67.
- Papastefanou, C., Manolopoulou, M. u. Charalambous, S. (1988): Silver-110m and  $^{125}\text{Sb}$  in Chernobyl fallout. *Sci. Total Environ.* **72**, 81–85.
- Papastefanou, C., Ioannidou, A., Stoulos, S. u. Manolopoulou, M. (1995): Atmospheric deposition of cosmogenic  $^7\text{Be}$  and  $^{137}\text{Cs}$  from fallout of the Chernobyl accident. *Sci. Total Environ.* **170**, 151–156.
- Papastefanou, C., Manolopoulou, M., Stoulos, S., Ioannidou, A. u. Gerasopoulos, E. (1999): Background radiation measurements in the lower atmosphere before and after Chernobyl. *J. Environ. Radioactivity* **42**, 87–92.
- Passeck, U., Lindner, G. u. Zech, W. (1995): Distribution of  $^{137}\text{Cs}$  in water leachates of forest humus. *J. Environ. Radioactivity* **28**, 223–238.
- Pausch, G. (1995): Gammaspektrometrische Untersuchungen der Kontamination durch künstliche Radionuklide im Ökosystem Hochmoor (Koppler-Moor). Diplomarbeit, Universität Salzburg, 69 S.
- Pavlotskaya, F.I., Goryachenkova, T.A. u. Myasoedov, B.F. (1991a): Behaviour of transuranium elements in the environment. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **147**, 133–140.
- Pavlotskaya, F.I., Kazinskaya, I.Y., Korobova, E.M., Myasoedov, B.F.u., Emelyanov, V.V. (1991b): Migration of Chernobyl plutonium in soils. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **147**, 159–164.
- Pearson, G.W. u. Stuiver, M. (1986): High-precision calibration of the radiocarbon time scale, 500–2500 BC. *Radiocarbon* **28**, 839–862.
- Pedersen, C.J. u. Frensdorff, H.K. (1972): Makrocyclische Polyäther und ihre Komplexe. *Angew. Chem.* **84**, 16–26.
- Peirson, D.H. (1963): Beryllium 7 in air and rain. *J. Geophys. Res.* **68**, 3831–3832.
- Peirson, D.H., Cambray, R.S. u. Spicer, G.S. (1966): Lead-210 and polonium-210 in the atmosphere. *Tellus* **18**, 427–433.
- Perkins, R.W., Nielsen, J.M. u. Thomas, C.W. (1964): Air concentrations of twelve radionuclides from 1962 through mid-1964. *Science* **146**, 762–764.
- Perkins, R.W. u. Nielsen, J.M. (1965): Cosmic-ray produced radionuclides in the environment. *Health Phys.* **11**, 1297–1304.
- Perkins, R.W. u. Thomas, C.W. (1980): Worldwide fallout. In: Hanson, W.C. [Hrsg.], *Transuranic Elements in the Environment*. DOE/TIC-22800. Technical Information Center/US Department of Energy, Washington, DC, 53–82.
- Perkins, R.W., Robertson, D.E, Thomas, C.W. u. Young, J.A. (1989): Measurement of accident versus nuclear test debris. IAEA-SM-306/125. International Symposium on Environmental Contamination following a Major Nuclear Accident, 16–20.10.1989, Wien. Preprint, 38 S.
- Persson, B.R. (1970):  $^{210}\text{Pb}$ -atmospheric deposition in lichen-carpets in northern Sweden during 1961–1969. *Tellus* **22**, 564–571.
- Peterson, K.R. (1970): An empirical model for estimating world-wide deposition from atmospheric nuclear detonations. *Health Phys.* **18**, 357–378.
- Petersen, W., Knauth, H.-D., Pepelnik, R. u. Bendler, I. (1990): Vertical distribution of Chernobyl isotopes and their correlation with heavy metals and organic carbon in sediment cores of the Elbe estuary. *Sci. Total Environ.* **97/98**, 531–547.
- Pfennig, G., Klewe-Nebenius, H. u. Seelmann-Eggebert, W. (1998): Karlsruher Nuklidkarte, 6. Aufl. 1995, korr. Nachdruck 1998. Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, 24 S.
- Pietsch, W. (1980): Unterschiedliche Akkumulation von Schwermetallen durch *Sphagnum*-Arten an straßenseitigen Mooren in der DDR. In: Schubert, R. u. Schuh, J. [Hrsg.], *Bioindikation auf der Ebene der Individuen (Bioindikation, Teil 3)*. Kongreß- und Tagungsberichte der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, Wiss. Beiträge 1980/26 (P 10), 36–42.
- Pleßow, A., Bielert, U., Heinrichs, H. u. Steiner, I. (1997): Problematik der Grundwasserversauerung und das Lösungsverhalten von Spurenstoffen. In: Matschullat, J., Tobschall, H.J. u. Voigt, H.J. [Hrsg.], *Geochemie und Umwelt: Relevante Prozesse in Atmo-, Peto- und Hydrosphäre*. Springer, Berlin, 395–408.



- Poet, S.E., Moore, H.E. u. Martell, E.A. (1972): Lead 210, bismuth 210, and polonium 210 in the atmosphere: accurate ratio measurements and application to aerosol residence time determination. *J. Geophys. Res.* **77**, 6515–6527.
- Preuße, W. (1993): Höhenstrahlungsinduziertes Nulleffektspektrum von Gammastrahlungsdetektoren. Dissertation, TU Bergakademie Freiberg, 107 S.
- Preusse, W. u. Unterricker, S. (1994): The contribution of cosmic ray muons to the background spectrum of gamma ray spectrometers. *Nucl. Instrum. Meth.* **B94**, 569–574.
- Preußische Geologische Landesanstalt (1927): Geologische Karte von Preußen und benachbarten deutschen Ländern 1:25000, Nr. 2304 Bad Harzburg, Gradabt. 56 Blatt 8 (neue Nr. 4129). Kraatz, Berlin, 3. Aufl., 1 Kt.
- Rafferty, B., Brennan, M., Dawson, D. u. Dowding, D. (2000): Mechanisms of  $^{137}\text{Cs}$  migration in coniferous forest soils. *J. Environ. Radioactivity* **48**, 131–143.
- Ramsay, J.D.F. (1988): The role of colloids in the release of radionuclides from nuclear waste. *Radiochim. Acta* **44/45**, 165–170.
- Řanda, Z., Benada, J., Horyna, J. u. Klán, J. (1990): Mushrooms – significant source of internal contamination by radiocaesium. In: Desmet, G., Nassimbeni, P. u. Belli, M. [Hrsg.], *Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments*. Elsevier Applied Science, London, 169–178.
- Rangarajan, C., Madhavan, R. u. Gopalakrishnan, Smt.S. (1986): Spatial and temporal distribution of lead-210 in the surface layers of the atmosphere. *J. Environ. Radioactivity* **3**, 23–33.
- Rauh, W. u. Senghas, K. (1973): Schmeil-Fitschen: Flora von Deutschland und seinen angrenzenden Gebieten. Quelle und Meyer, Heidelberg, 85. Aufl., 516 S.
- Rehfuess, K.E. (1990): Waldböden: Entwicklung, Eigenschaften und Nutzung. Parey, Hamburg, 2. Aufl., 294 S.
- Reimann, C. u. Caritat, P. de (1998): Chemical Elements in the Environment: Factsheets for the Geochemist and Environmental Scientist. Springer, Berlin, 397 S.
- Reiter, E.R., Henmi, T. u. Katen, P.C. (1979): Modeling atmospheric transport. In: Boggess, W.R. u. Wixson, B.G. [Hrsg.], *Lead in the Environment*. Castle House Publications, Tunbridge Wells, 73–92.
- Ribeiro, F.B., Roque, A., Boggiani, P.C. u. Flexor, J.M. (2001): Uranium and thorium series disequilibrium in quaternary carbonate deposits from the Serra da Bodoquena and Pantanal do Miranda, Mato Grosso do Sul State, central Brazil. *Appl. Radiat. Isot.* **54**, 153–173.
- Rich, C.I. (1964): Effect of cation size and pH on potassium exchange in Nason soil. *Soil Sci.* **98**, 100–106.
- Richter, T. (1993): Feinaufgelöste Tiefenverteilung von Cäsium-Radionukliden in Bodensee-Sedimenten. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 100 S.
- Ritchie, J.C. u. McHenry, J.R. (1990): Application of radioactive fallout cesium-137 for measuring soil erosion and sediment accumulation rates and patterns: a review. *J. Env. Qual.* **19**, 215–233.
- Robbins, J.A. (1978): Geochemical and geophysical applications of radioactive lead. In: Nriagu, J.O. [Hrsg.], *The Biogeochemistry of Lead in the Environment, Part A*. Elsevier, Amsterdam, 285–393.
- Robbins, J.A., Lindner, G., Pfeiffer, W., Kleiner, J., Stabel, H.H. u. Frenzel, P. (1992): Epilimnetic scavenging of Chernobyl radionuclides in Lake Constance. *Geochim. Cosmochim. Acta* **56**, 2339–2361.
- Robison, W.L. u. Noshkin, V.E. (1999): Radionuclide characterization and associated dose from long-lived radionuclides in close-in fallout delivered to the marine environment at Bikini and Enewetak Atolls. *Sci. Total Environ.* **237/238**, 311–327.
- Roeschmann, G., Grosse-Brauckmann, G., Kuntze, H., Blankenburg, J. u. Tüxen, J. (1993): Vorschläge zur Erweiterung der Bodensystematik der Moore. *Geol. Jb.* **F 29**, 3–49.
- Rogers, J.J.W. u. Adams, J.A.S. (1969): Thorium. Uranium. In: Wedepohl, K.H. [Hrsg.], *Handbook of Geochemistry*. Springer, Berlin, Kap. 90 u. Kap. 92.
- Römmelt, R., Hiersche, L., Schaller, G. u. Wirth, E. (1990): Influence of soil fungi (basidiomycetes) on the migration of Cs 134+137 and Sr 90 in coniferous forest soils. In: Desmet, G., Nassimbeni, P. u. Belli, M. [Hrsg.], *Transfer of Radionuclides in Natural and Semi-natural Environments*. Elsevier Applied Science, London, 152–160.
- Roos, P., Holm, E., Persson, R.B.R., Aarkrog, A. u. Nielsen, S.P. (1994): Deposition of  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in the Antarctic Peninsula area. *J. Environ. Radioactivity* **24**, 235–251.

- Rösler, H.J. u. Lange, H. (1975): Geochemische Tabellen. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 2. Aufl., 674 S.
- Rösler, H.J. (1991): Lehrbuch der Mineralogie. Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 5. Aufl., 844 S.
- Rosner, G., Hötzl, H. u. Winkler, R. (1997): Long-term behaviour of plutonium in air and deposition and the role of resuspension in a semi-rural environment in Germany. *Sci. Total Environ.* **196**, 255–261.
- Routson, R.C., Jansen, G. u. Robinson, A.V. (1977):  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{237}\text{Np}$  and  $^{99}\text{Tc}$  sorption on two United States subsoils from differing weathering intensity areas. *Health Phys.* **33**, 311–317.
- Rudolph, K. u. Firbas, F. (1924): Die Hochmoore des Erzgebirges. *Beih. Bot. Cbl.* **41/2**, 1–162.
- Rudolph, H. u. Brehm, K. (1965): Kationenaufnahme durch Ionenaustausch? Neue Gesichtspunkte zur Frage der Ernährungsphysiologie der Sphagnen. *Ber. Dtsch. Bot. Ges.* **78**, 484–491.
- Rühm, W., Kammerer, L., Hiersche, L. u. Wirth, E. (1996): Migration of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{134}\text{Cs}$  in different forest soil layers. *J. Environ. Radioactivity* **33**, 63–75.
- Rump, H.H., Van Werden, K. u. Herrmann, R. (1977): Über die vertikale Änderung von Metallkonzentrationen in einem Hochmoor. *Catena* **4**, 149–164.
- Ruttkowski, M. (2002): Altstraßen im Erzgebirge. Archäologische Denkmalinventarisierung Böhmischer Steige. *Arbeits- u. Forschber. sächs. Bodendenkmalpfl.* **44**, 264–297.
- SAAS (1987a): Die Auswirkungen des Unfalls im sowjetischen KKW Tschernobyl auf dem Territorium der DDR: Teil I – Mai 1986. SAAS-353 B. Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz der DDR, Berlin, 91 S.
- SAAS (1987b): Die Auswirkungen des Unfalls im sowjetischen KKW Tschernobyl auf dem Territorium der DDR: Teil II – Juni bis Dezember 1986. SAAS-353 C. Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz der DDR, Berlin, 90 S.
- SAAS (1988a): Die Auswirkungen des Unfalls im sowjetischen KKW Tschernobyl auf dem Territorium der DDR: Teil III – Januar bis Dezember 1987. SAAS-353 D. Staatliches Amt für Atomsicherheit und Strahlenschutz der DDR, Berlin, 74 S.
- SAAS (1988b): Results of radiation monitoring in the German Democratic Republic after Chernobyl. *Isotopenpraxis* **24**, 33–38.
- Sadasivan, S. u. Mishra, U.C. (1986): Radioactive fallout swipe samples from Chernobyl. *Nature* **324**, 23–24.
- Sam, A.K. u. Eriksson, A. (1995): Radium-226 uptake by vegetation grown in Western Sudan. *J. Environ. Radioactivity* **29**, 27–38.
- Sandalls, J. u. Bennett, L. (1992): Radiocaesium in upland herbage in Cumbria, UK: a three year field study. *J. Environ. Radioactivity* **16**, 147–165.
- Santschi, P.H., Bollhalder, S., Farrenkoth, K., Lueck, A., Zingg, S. u. Sturm, M. (1988): Chernobyl radionuclides in the environment: tracers for the tight coupling of atmospheric, terrestrial, and aquatic geochemical processes. *Environ. Sci. Technol.* **22**, 510–516.
- Sawhney, B.L. (1972): Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review. *Clay Clay Miner.* **20**, 93–100.
- Schachtschabel, P., Blume, H.-P., Brümmer, G., Hartge, K.-H. u. Schwertmann, U. (1992): Lehrbuch der Bodenkunde (Scheffer/Schachtschabel). Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 13. Aufl., 491 S.
- Schaller, K. (1988): Praktikum zur Bodenkunde und Pflanzenernährung. Geisenheimer Berichte, Bd. 2. Gesellschaft zur Förderung der Forschungsanstalt Geisenheim, Geisenheim, 7. Aufl., 458 S.
- Schauer, T. u. Caspari, C. (1996): Der große BLV Pflanzenführer. BLV Verlagsgesellschaft, München, 7. Aufl., 463 S.
- Schell, W.R. u. Tobin, M.J. (1994):  $^{210}\text{Pb}$  dating using the CRS-MV model with historical data to test and evaluate accuracy. In: García-León, M. u. García-Tenorio, R. [Hrsg.], Low-level Measurements of Radioactivity in the Environment: Techniques and Application. World Scientific, Singapore, 355–368.
- Schick, G. (1995): Untersuchung der Bioverfügbarkeit von Cs-137 in Streuwiesen und Mooren Oberschwabens. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 81 S.
- Schimmack, W. u. Bunzl, K. (1979): Kinetics of disaggregation of humic acid in water. *Chemosphere* **10**, 777–785.
- Schimmack, W. u. Bunzl, K. (1986): Migration of solutes in a cultivated soil: effect of ploughing. *Geoderma* **38**, 155–163.

- Schimmack, W., Bunzl, K. u. Zelles, L. (1989): Initial rates of migration of radionuclides from the Chernobyl fallout in undisturbed soils. *Geoderma* **44**, 211–218.
- Schimmack, W., Bunzl, K., Kreutzer, K. u. Schierl, R. (1991): Effects of acid irrigation and liming on the migration of radiocesium in a forest soil as observed by field measurements. *Sci. Total Environ.* **101**, 181–189.
- Schimmack, W., Bunzl, K., Dietl, F. u. Klotz, D. (1994): Infiltration of radionuclides with low mobility ( $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$ ) into a forest soil. Effect of the irrigation intensity. *J. Environ. Radioactivity* **24**, 53–63.
- Schimmack, W., Bunzl, K. u. Kreutzer, K. (1997a): A long-term field study on the effect of acid irrigation and compensatory liming on the transport of Chernobyl-derived radiocesium in a forest soil. *Sci. Total Environ.* **198**, 271–285.
- Schimmack, W., Flessa, H. u. Bunzl, K. (1997b): Vertical migration of Chernobyl-derived radiocesium in Bavarian grassland soils. *Naturwiss.* **84**, 204–207.
- Schleich, N., Unterricker, S. u. Preusse, W. (1995): Monitoring and analytics of uranium series radionuclides in the upper horizons of different soils. In: Merkel, B., Hurst, S., Löhnert, E.P. u. Struckmeier, W. [Hrsg.], *Uranium-Mining and Hydrogeology*. Verlag Sven von Loga, Köln, 511–518.
- Schleich, N., Preusse, W., Degering, D. u. Unterricker, S. (1997): Low-level gamma spectrometry of forest and moor soils from exposed mountain regions in Saxony (Erzgebirge). In: Fietz, J. [Hrsg.], *LOWRAD 96 – Methods and Applications of Low-Level Radioactivity Measurements*. FZR-170. Forschungszentrum Rossendorf, 123–126.
- Schleich, N. (1998): Gammaspektrometrische Untersuchungen zur Tiefenverteilung von Radionukliden in Wald- und Moorböden des Erzgebirges. *Wiss. Mitt. Inst. Geol. TU BAF* **11**, 39–46.
- Schleich, N., Degering, D. u. Unterricker, S. (2000): Natural and artificial radionuclides in forest and bog soils: tracers for migration processes and soil development. *Radiochim. Acta* **88**, 803–808.
- Schumann, G. u. Stoeppler, M. (1963): Beryllium 7 in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* **68**, 3827–3830.
- Schüttelkopf, H. (1981): Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im Femto-gramm/Gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Umweltproben. KfK 3035. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, 148 S.
- Schulte, A. u. Blum, W.E.H. (1997): Schwermetalle in Waldökosystemen. In: Matschullat, J., Tobeschall, H.J. u. Voigt, H.J. [Hrsg.], *Geochemie und Umwelt: Relevante Prozesse in Atmo-, Pedo- und Hydrosphäre*. Springer, Berlin, 53–74.
- Schwertmann, U., Fischer, W.R. u. Fechter, H. (1982): Spurenelemente in Bodensequenzen. I. Zwei Braunerde-Podsol-Sequenzen aus Tonschieferschutt. *Z. Pflanzenernähr. Bodenk.* **145**, 161–180.
- Scott, E.M., Begg, F.H. u. McCartney, M. (1994):  $^{14}\text{C}$  in the environment. In: García-León, M. u. García-Tenorio, R. [Hrsg.], *Low-level Measurements of Radioactivity in the Environment: Techniques and Application*. World Scientific, Singapore, 369–388.
- Seewald, O. (1991): Radionuklide im Sediment des Bodensees. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 55 S.
- Seifert, M. (1997): Vorläufige Mitteilung über das Ergebnis der pollenanalytischen Untersuchung der Bohrung SH1 aus dem Moorkörper Schwarze Heide im Kriegswald, Forstrevier Olbernhau. Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie Freiberg, Ref. 74, 7 S.
- Seim, R. u. Tischendorf, G. (1990): Grundlagen der Geochemie. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 632 S.
- Shand, C.A., Cheshire, M.V., Smith, S., Vidal, M. u. Rauret, G. (1994): Distribution of radiocaesium in organic soils. *J. Environ. Radioactivity* **23**, 285–302.
- Shapiro, C.S., Appleby, L.J., Devell, L., Mishra, U.C. u. Voice, E.H. (1993): Sources. In: Warner, F. u. Harrison, R.M. [Hrsg.], *SCOPE 50 – Radioecology after Chernobyl: Biogeochemical Pathways of Artificial Radionuclides*. John Wiley & Sons, Chichester, 1–31.
- Sheppard, S.C. u. Evenden, W.G. (1988): Critical compilation and review of plant/soil concentration ratios for uranium, thorium and lead. *J. Environ. Radioactivity* **8**, 255–285.
- Shotyk, W., Cheburkin, A.K., Appleby, P.G., Fankhauser, A. u. Kramers, J.D. (1996): Two thousand years of atmospheric arsenic, antimony, and lead deposition recorded in an ombrotrophic peat bog profile, Jura Mountains, Switzerland. *Earth Planet. Sci. Lett.* **145**, E1–E7.
- Shotyk, W., Weiss, D., Appleby, P.G., Cheburkin, A.K., Frei, R., Gloor, M., Kramers, J.D., Reese, S. u. Van Der Knaap, W.O. (1998): History of atmospheric lead deposition since 12,370  $^{14}\text{C}$  yr BP

- from a peat bog, Jura Mountains, Switzerland. *Science* **281**, 1635–164.
- Sigg, L. u. Stumm, W. (1994): Aquatische Chemie: Eine Einführung in die Chemie wässriger Lösungen und natürlicher Gewässer. Verlag der Fachvereine, Zürich, 3. Aufl., 498 S.
- Simopoulos, S.E. u. Angelopoulos, M.G. (1987): Natural radioactivity releases from lignite power plants in Greece. *J. Environ. Radioactivity* **5**, 379–389.
- Simopoulos, S.E. (1989): Soil sampling and  $^{137}\text{Cs}$  analysis of the Chernobyl fallout in Greece. *Appl. Radiat. Isot.* **40**, 607–613.
- Sloof, J.E. u. Wolterbeek, B.T. (1992): Lichens as biomonitors for radiocaesium following the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioactivity* **16**, 229–242.
- Smith, F.B. u. Clark, M.J. (1986): Radionuclide deposition from the Chernobyl cloud. *Nature* **322**, 690–691.
- Solem, J.O. u. Gaare, E. (1992): Radiocesium in aquatic invertebrates from Dovrefjell, Norway, 1986 to 1989, after the Chernobyl fall-out. *J. Environ. Radioactivity* **17**, 1–11.
- SSK (1993): Die Strahlenexposition durch den Bergbau in Sachsen und Thüringen und deren Bewertung. Zusammenfassung der Beratungsergebnisse der Klausurtagung 1990 der Strahlenschutzkommission. In: BMU [Hrsg.], Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Bd. 21. Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, 1–14.
- Staunton, S. u. Roubaud, M. (1997): Adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  on montmorillonite and illite: effect of charge compensating cation, ionic strength, concentration of Cs, K and fulvic acid. *Clay Clay Miner.* **45**, 251–260.
- Stebich, M. (1995): Beiträge zur Vegetationsgeschichte des Georgenfelder Hochmoores. Diplomarbeit, Universität Leipzig, 59 S.
- Steiner, M. u. Wirth, E. (1997): Die Migration von Radiocäsium in Waldböden: Konsequenzen für die zukünftige radioaktive Belastung von Pilzen und Beerenpflanzen. Radiocäsium in Wald und Wild, 2. Workshop, 10.–11.6.1997, Bundesanstalt für Fleischforschung, Kulmbach. Kurzfassungen der Vorträge, 3–6.
- Stemmer, M., Hromatka, A., Lettner, H. u. Strebl, F. (2005): Radiocesium storage in soil microbial biomass of undisturbed alpine meadow soils and its relation to  $^{137}\text{Cs}$  soil–plant transfer. *J. Environ. Radioactivity* **79**, 107–118.
- Stolz, W. (1996): Radioaktivität: Grundlagen, Messung, Anwendungen. B.G. Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart, Leipzig, 3. Aufl., 212 S.
- Straka, H. (1970): Pollenanalyse und Vegetationsgeschichte. A. Ziemser Verlag, Wittenberg Lutherstadt, 109 S.
- Strandberg, M. (1994): Radiocesium in a Danish pine forest ecosystem. *Sci. Total Environ.* **157**, 125–132.
- Streit, B. u. Stumm, W. (1993): Chemical properties of metals and the process of bio accumulation in terrestrial plants. In: Markert, B. [Hrsg.], Plants as Biomonitors: Indicators for Heavy Metals in the Terrestrial Environment. VCH, Weinheim, 31–62.
- Stuiver, M. u. Pearson, G.W. (1986): High-precision calibration of the radiocarbon time scale, AD 1950–500 BC. *Radiocarbon* **28**, 805–838.
- Stuiver, M. u. Becker, B. (1993): High-precision decadal calibration of the radiocarbon time scale, AD 1950–6000 BC. *Radiocarbon* **35**, 35–65.
- Stumm, W. u. Morgan, J.J. (1996): Aquatic Chemistry: Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters. John Wiley & Sons, New York, 3. Aufl., 1022 S.
- Succow, M. u. Jeschke, L. (1986): Moore in der Landschaft: Entstehung, Haushalt, Lebewelt, Verbreitung, Nutzung und Erhaltung der Moore. Urania, Leipzig, 268 S.
- Succow, M. (1988): Landschaftsökologische Moorkunde. Gustav Fischer Verlag, Jena, 340 S.
- Sucharov, J. u. Suchara, I. (1998): Atmospheric deposition levels of chosen elements in the Czech Republic determined in the framework of the International Bryomonitoring Program 1995. *Sci. Total Environ.* **223**, 37–52.
- Sula, M.J., Carbaugh, E.H. u. Bihl, D.E. (1991): Technical Basis for Internal Dosimetry at Hanford. PNL-6866, Rev. 1. Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA.
- Suworow, T. (1994): Radionuklide in der Umwelt. Unveröff. Untersuchungsergebnisse. Institut für Angewandte Physik, TU Bergakademie Freiberg, 4 Teilberichte.
- Szöghy, I.M. u. Kish, L. (1978): Determination of radioactive disequilibrium in uranium-bearing rocks. *Can. J. Earth Sci.* **15**, 33–44.

- Talpos, S. u. Cuculeanu, V. (1997): A study of the vertical diffusion of  $^7\text{Be}$  in the atmosphere. *J. Environ. Radioactivity* **36**, 93–106.
- Tamura, T. u. Jacobs, D.G. (1960): Structural implications in cesium sorption. *Health Phys.* **2**, 391–398.
- Taylor, S.R. u. McLennan, S.M. (1985): The Continental Crust: Its Composition and Evolution. Blackwell, Oxford, 312 S.
- Tegen, I., Dörr, H. u. Münnich, K.O. (1991): Laboratory experiments to investigate the influence of microbial activity on the migration of cesium in a forest soil. *Water Air Soil Poll.* **57–58**, 441–447.
- Tertytze, K. (1993): Anreicherung und Verteilung von Schwermetallen und anderen Elementen in Oberflächensedimenten der Berliner Gewässer und ihres Umlandes. *Acta Hydrochim. Hydrobiol.* **21**, 8–20.
- Testa, C., Jia, G., Degetto, S., Desideri, D., Guerra, F., Meli, M.A. u. Roselli, C. (1999): Vertical profiles of  $^{239,240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in two *Sphagnum* mosses of Italian peat. *Sci. Total Environ.* **232**, 27–31.
- Thomas, A.J. u. Martin, J.M. (1986): First assessment of Chernobyl radioactive plume over Paris. *Nature* **321**, 817–819.
- Thomasius, H. (1994): Der Einfluß des Bergbaus auf Wald und Forstwirtschaft im sächsischen Erzgebirge bis zum Beginn des 19. Jahrhunderts. *Mitt. Chemnitzer Geschichtsver.* **64**, 39–70.
- Thor, R. u. Zutshi, P.K. (1958): Annual deposition of cosmic ray produced  $\text{Be}^7$  at equatorial latitudes. *Tellus* **10**, 99–103.
- Todd, J.F., Wong, G.T.F., Olsen, C.R. u. Larsen, I.L. (1989): Atmospheric depositional characteristics of beryllium 7 and lead 210 along the southeastern Virginia coast. *J. Geophys. Res.* **94**, 11106–11116.
- Tokuyama, H. u. Igarashi, S. (1998): Seasonal variation in the environmental background level of cosmic-ray-produced  $^{22}\text{Na}$  at Fukui City, Japan. *J. Environ. Radioactivity* **38**, 147–161.
- Torres, R.A. u. Choppin, G.R. (1984): Europium(III) und americium(III) stability constants with humic acid. *Radiochim. Acta* **35**, 143–148.
- Trettin, R., Hiller, A. u. Mundel, G. (1982): Zur Datierung von Niedermooren mittels Radiokohlenstoff. *Isotopenpraxis* **18**, 273–276.
- Tukey, H.B., Jr. (1970): The leaching of substances from plants. *Ann. Rev. Plant Physiol.* **21**, 305–324.
- Turekian, K.K., Nozaki, Y. u. Benninger, L.K. (1977): Geochemistry of atmospheric radon and radon products. *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.* **5**, 227–255.
- Turner, L.J. u. Delorme, L.D. (1996): Assessment of  $^{210}\text{Pb}$  data from Canadian lakes using the CIC and CRS models. *Environ. Geol.* **28**, 78–87.
- Twomey, T.R. u. Keyser, R.M. (1994): Advances in large-diameter, low-energy HPGe detectors. *Nucl. Instrum. Meth.* **A339**, 78–86.
- Ulrich, B., Mayer, R. u. Matzner, E. (1986): Vorräte und Flüsse der chemischen Elemente. In: Ellenberg, H., Mayer, R. u. Schauer mann, J. [Hrsg.], Ökosystemforschung – Ergebnisse des Sollingprojekts 1966–1986. Ulmer, Stuttgart, 375–417.
- Ulrich, B. (1997): Chemische Prozesse im Ökosystem-Kompartiment Boden. In: Matschullat, J., Tob-schall, H.J. u. Voigt, H.J. [Hrsg.], Geochemie und Umwelt: Relevante Prozesse in Atmo-, Peto- und Hydrosphäre. Springer, Berlin, 39–51.
- UNSCEAR (2000): Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes. Publication E00:IX.3. United Nations, New York.
- Unterricker, S., Kim, J.H., Degering, D. u. Stolz, W. (1989): Possibilities of  $\gamma$ -spectrometric determination of the amount of natural activities in shielding and construction materials. *Isotopenpraxis* **25**, 247–252.
- Valcke, E. u. Cremers, A. (1994): Sorption-desorption dynamics of radiocaesium in organic matter soils. *Sci. Total Environ.* **157**, 275–283.
- Verplancke, J. (1992): Low level gamma spectroscopy: low, lower, lowest. *Nucl. Instrum. Meth.* **A312**, 174–182.
- Vile, M.A., Wieder, R.K. u. Novák, M. (1999): Mobility of Pb in *Sphagnum*-derived peat. *Biogeochem.* **45**, 35–52.
- Vile, M.A., Wieder, R.K. u. Novák, M. (2000): 200 years of Pb deposition throughout the Czech Republic: patterns and sources. *Environ. Sci. Technol.* **34**, 12–21.

- Voland, B. (1984): Charakter und Genese anthropogener Veränderungen der Geochemie der Landschaft. Habilitation, Bergakademie Freiberg, 156 S.
- Wagenbreth, O. u. Steiner, W. (1990): Geologische Streifzüge: Landschaft und Erdgeschichte zwischen Kap Arkona und Fichtelberg. Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 4. Aufl., 204 S.
- Wagenbreth, O., Wächtler, E., Becke, A., Douffet, H. u. Jobst, W. (1990): Bergbau im Erzgebirge: Technische Denkmale und Geschichte. Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 504 S.
- Wagenitz, G. (1996): Wörterbuch der Botanik. Gustav Fischer Verlag, Jena, 532 S.
- Wagner, G.A. (1995): Altersbestimmung von jungen Gesteinen und Artefakten: Physikalische und chemische Uhren in Quartärgeologie und Archäologie. Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 277 S.
- Wahl, W., Degering, D., Lierse, C. u. Lin, X. (1996): Enhancement of Compton suppression ratios in anti-Compton techniques: the Garching and Karlsruhe photon spectrometers. *Nucl. Instrum. Meth.* **A369**, 627–633.
- Wallbrink, P.J. u. Murray, A.S. (1994): Fallout of  $^7\text{Be}$  in south eastern Australia. *J. Environ. Radioactivity* **25**, 213–228.
- Wallbrink, P.J. u. Murray, A.S. (1996): Distribution and variability of  $^7\text{Be}$  in soils under different surface cover conditions and its potential for describing soil redistribution processes. *Water Resour. Res.* **32**, 467–476.
- Walther, K. (1983): Bryophytina, Laubmoose. In: Gerloff, J. u. Poelt, J. [Hrsg.], A. Engler's Syllabus der Pflanzenfamilien. Gebrüder Borntraeger, Berlin, 13. Aufl., Kap. V,2, 1–108.
- Wandtner, R. u. Lötschert, W. (1980): Schwermetallakkumulation in Hochmooren im Gebiet des Nationalparks Bayerischer Wald. *Verh. Ges. Ökol.* **8**, 247–251.
- Warner, F. u. Harrison, R.M. [Hrsg.] (1993): SCOPE 50 – Radioecology after Chernobyl: Biogeochemical Pathways of Artificial Radionuclides. John Wiley & Sons, Chichester, 400 S.
- Wauters, J., Sweeck, L., Valcke, E., Elsen, A. u. Cremers, A. (1994): Availability of radiocaesium in soils: a new methodology. *Sci. Total Environ.* **157**, 239–248.
- Wedepohl, K.H. (1971): Geochemistry. Holt, Rinehart and Winston, New York, 231 S.
- Wedepohl, K.H. (1995): The composition of the continental crust. *Geochim. Cosmochim. Acta* **59**, 1217–1232.
- Wilkening, M.H. u. Clements, W.E. (1975): Radon 222 from the ocean surface. *J. Geophys. Res.* **80**, 3828–3830.
- Wilson, C.G., Matisoff, G. u. Whiting, P. (2003): Short-term erosion rates from a  $^7\text{Be}$  inventory balance. *Earth Surf. Process. Landforms* **28**, 967–977.
- Winkler, R. (1997): Seasonal variation of natural and artificial radionuclide concentrations in ground-level air. *Naturwiss.* **84**, 535–539.
- Wirth, E., Hiersche, L., Kammerer, L., Krajewska, G., Krestel, R., Mahler, S. u. Römmelt, R. (1994): Transfer equations for cesium-137 for coniferous forest understorey plant species. *Sci. Total Environ.* **157**, 163–170.
- Wismut GmbH, Unternehmensleitung [Hrsg.] (2003): Umweltbericht WISMUT 2002. Wismut GmbH, Chemnitz, 59 S.
- Witkamp, M. (1968): Accumulation of  $^{137}\text{Cs}$  by *Trichoderma viride* relative to  $^{137}\text{Cs}$  in soil organic matter and soil solution. *Soil Sci.* **106**, 309–311.
- Wölfli, W. (1987): Advances in accelerator mass spectrometry. *Nucl. Instrum. Meth.* **B29**, 1–13.
- Wölfli, W. (1992): Möglichkeiten und Grenzen der Beschleunigermassenspektrometrie in der Archäologie. In: Synal, H.A. [Hrsg.], 10 Jahre Beschleunigermassenspektrometrie in der Schweiz. PSI-Proceedings 92-04. Paul Scherrer Institut, Villigen, Schweiz, 30–44.
- Wordel, R., Mouchel, D., Steinbauer, E. u. Oyrer, R. (1996): An active background discrimination technique using a multiple detector event by event recording system. *Appl. Radiat. Isot.* **47**, 1061–1067.
- Wytenbach, A., Bajo, S., Bucher, J., Furrer, V., Schleppi, P. u. Tobler, L. (1995): The concentrations of K, Rb and Cs in spruce needles (*Picea abies* Karst.) and in the associated soils. *Z. Pflanzenernähr. Bodenkd.* **158**, 499–504.
- Yamamoto, M., Tani, T. u. Sakanoue, M. (1981): Characteristics of fall-out plutonium in soil. *J. Radiat. Res.* **22**, 134–142.
- Zeitz, J. (1997): Zur Geochemie von Mooren. In: Matschullat, J., Tobschall, H.J. u. Voigt, H.J. [Hrsg.], Geochemie und Umwelt: Relevante Prozesse in Atmo-, Pedo- und Hydrosphäre. Springer,

- Berlin, 75–94.
- Zheltonozhsky, V., Mück, K. u. Bondarkov, M. (2001): Classification of hot particles from the Chernobyl accident and nuclear weapons detonations by non-destructive methods. *J. Environ. Radioactivity* **57**, 151–166.
- Zibold, G., Bürmann, W., Drissner, J., Enslin, F., Heider, R., Klemt, E. u. Schick, G. (1995): Availability of cesium radionuclides for plants on different spruce stands in south-west Germany. In: Gerzabek, M.H. [Hrsg.], Proceedings of the ESNA XXV Annual Meeting and International Union of Radioecology /IUR/ Working Group Soil-to-Plant Transfer Annual Meeting, 15–19.9.1995, Castelnuovo Fogliani (Piacenza), Italien, 152–158.
- Zibold, G., Drissner, J., Klemt, E., Konopleva, I.V., Konoplev, A.V. u. Miller, R. (1997): Biologische Verfügbarkeit von Cäsium-Radionukliden in Waldgebieten des nördlichen und südlichen Voralpenlandes. Radiocäsium in Wald und Wild, 2. Workshop, 10.–11.6.1997, Bundesanstalt für Fleischforschung, Kulmbach. Kurzfassungen der Vorträge, 12–13.
- Zibold, G., Drissner, J., Kaminski, S., Klemt, E. u. Miller, R. (2001): Time-dependence of the radio-caesium contamination of roe deer: measurement and modelling. *J. Environ. Radioactivity* **55**, 5–27.
- Zimdahl, R.L. u. Hassett, J.J. (1979): Lead in soil. In: Boggess, W.R. u. Wixson, B.G. [Hrsg.], Lead in the Environment. Castle House Publications, Tunbridge Wells, 93–98.
- Zimmerer, R. (1992): Gammaspektrometrische Untersuchungen der horizontspezifischen Tiefenverteilung von Cäsium-Radionukliden in Waldböden. Diplomarbeit, Fachhochschule Ravensburg-Weingarten, 147 S.
- Zimmermann, L. u. Zimmermann, F. (2002): Fog deposition to Norway Spruce stands at high-elevation sites in the Eastern Erzgebirge (Germany). *J. Hydrol.* **256**, 166–175.
- Zolitschka, B., Brauer, A., Negendank, J.F.W., Stockhausen, H. u. Lang, A. (2000): Annually dated late Weichselian continental paleoclimate record from the Eifel, Germany. *Geology* **28**, 783–786.





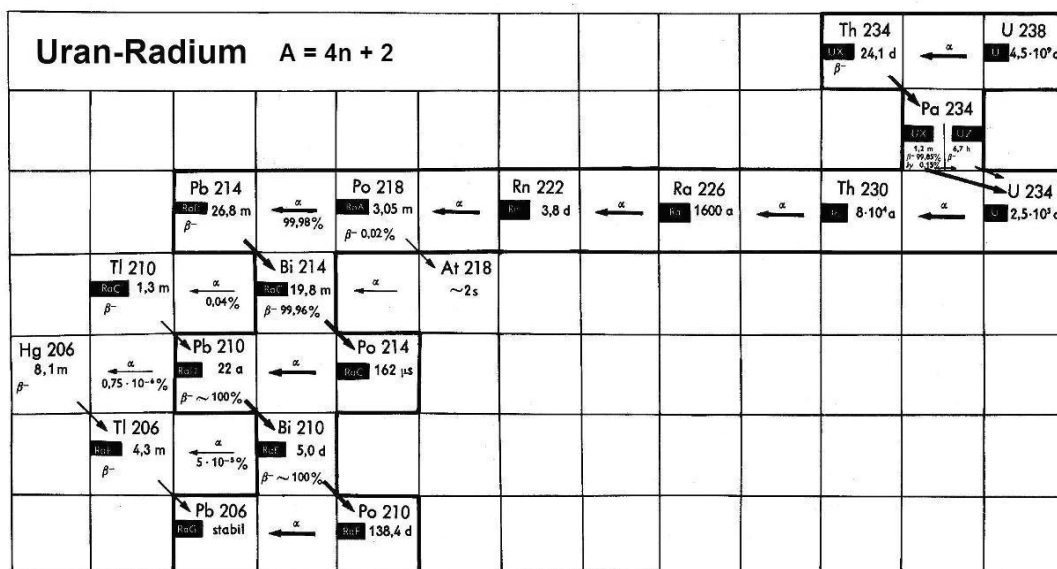
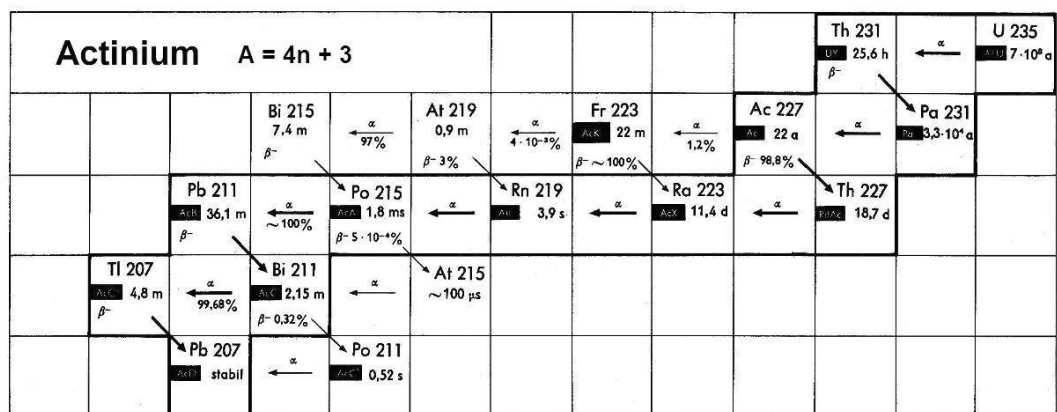
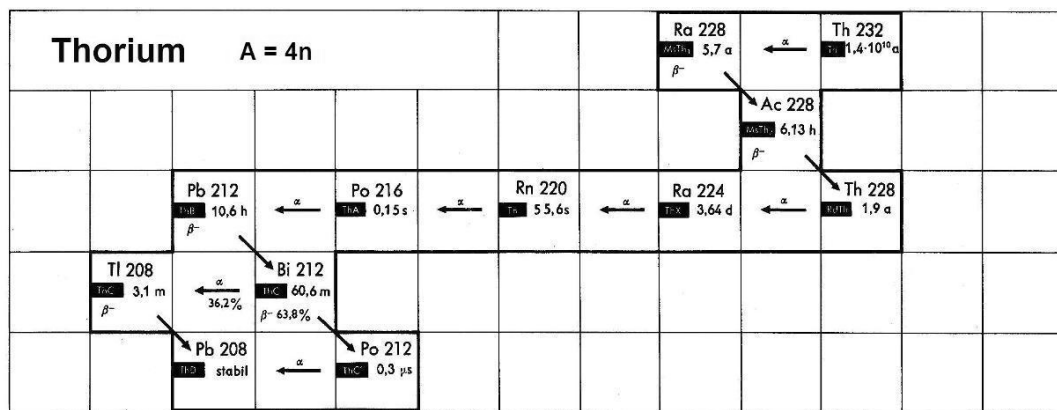
# Anhang

## Inhaltsverzeichnis

<b>A Anhang zu Kap. 2 – Radionuklide in der Umwelt</b>	<b>i</b>
<b>B Anhang zu Kap. 3 – Methodik</b>	<b>ii</b>
B.1 Ergebnisse der Plutoniumanalysen ( $^{238}\text{Pu}$ , $^{239,240}\text{Pu}$ )	ii
B.2 An den beprobten Standorten bestimmte Pflanzen	ii
<b>C Anhang zu Kap. 4 – Die Untersuchungsgebiete</b>	<b>iii</b>
C.1 Witterungsdaten zum Zeitraum des Tschernobyl-Unfalls (April/Mai 1986)	iii
C.2 Klimadaten zu den Beprobungsgebieten im Erzgebirge	iv
<b>D Anhang zu Kap. 6 – Untersuchung der Fichtenwaldböden</b>	<b>vi</b>
D.1 Bodenkundliche Ansprache der Waldbodenprofile	vi
D.1.1 Waldbodenprofil Holzhau	vi
D.1.2 Waldbodenprofil Nassau 1	vii
D.1.3 Waldbodenprofil Nassau 2	viii
D.1.4 Waldbodenprofil Eggwald	ix
D.2 Literaturangaben zu den Inventaren künstlicher Radionuklide	x
<b>E Anhang zu Kap. 7 – Untersuchung der Hochmoorböden</b>	<b>xi</b>
E.1 Bodenkundliche Ansprache der Moorbodenprofile	xi
E.1.1 Georgenfelder Hochmoor	xi
E.1.2 Hochmoor Schwarze Heide	xii
E.1.3 Hochmoor Kleiner Kranichsee	xiii
E.1.4 Hochmoor Radauer Born	xiv
E.2 Ergänzende Untersuchungen am Torfprofil des Georgenfelder Hochmoors	xv
E.3 Palynologische Untersuchungen in der Schwarzen Heide	xvi



## A Anhang zu Kap. 2 – Radionuklide in der Umwelt

Abb. A.1: Natürliche radioaktive Zerfallsreihen der primordialen RN  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  (aus Pfennig et al. 1998)

Die Nukleonenzahl nimmt bei  $\alpha$ -Prozessen um 4 ab (waagerechter Pfeil), bei  $\beta^-$ -Umwandlungen bleibt sie unverändert (diagonaler Pfeil). Die Kerne einiger Nuklide können sich entweder durch Emission von  $\alpha$ - oder  $\beta^-$ -Teilchen umwandeln. Infolge solcher dualer Umwandlungen treten in den Reihen mehrmals Verzweigungen auf.

## B Anhang zu Kap. 3 – Methodik

### B.1 Ergebnisse der Plutoniumanalysen ( $^{238}\text{Pu}$ , $^{239,240}\text{Pu}$ )

Tabelle B.1: Ergebnisse der Pu-Analysen (radiochemische Aufbereitung u.  $\alpha$ -Spektrometrie) am Probenmaterial ausgewählter Beprobungsschichten bzw. -horizonte der Profile Nassau 2 und Kleiner Kranichsee.

Profil	Schicht / Horizont	Tiefe cm	Ausbeute <sup>1)</sup> %	A <sub>spez</sub> <sup>2)</sup> Bq/kg	
				$^{238}\text{Pu}$	$^{239,240}\text{Pu}$
Fichtenwald Nassau 2	5 / Oh(Of)	2.5 – 4	55.8	0.16 ± 0.04	3.97 ± 0.05
	6 / Oh	4 – 5	50.9	0.34 ± 0.03	11.00 ± 0.06
	7 / Ah(Oh)	5 – 6	34.8	0.27 ± 0.03	9.57 ± 0.07
	8 / Ah1	6 – 7	1.6	< 1.03	5.36 ± 0.24
	9 / Ah2	7 – 7.5	41.8	0.07 ± 0.02	3.39 ± 0.03
Hochmoor Kleiner Kranichsee	4	4 – 5.5	16.5	0.14 ± 0.11	4.90 ± 0.11
	5	5.5 – 7	2.0	< 1.89	1.43 ± 0.46
	6	7 – 8.5	48.9	0.07 ± 0.03	3.10 ± 0.04
	7	8.5 – 10	40.9	0.19 ± 0.06	6.00 ± 0.06
	8	10 – 11.5	47.8	0.29 ± 0.04	8.81 ± 0.09
	9	11.5 – 13	51.4	0.08 ± 0.03	9.92 ± 0.06
	10	13 – 15	0.5	< 2.38	7.92 ± 0.99
	11	15 – 17.5	7.6	< 0.29	2.33 ± 0.08

<sup>1)</sup> Die chemischen Ausbeuten wurden anhand des zugegebenen Tracers  $^{236}\text{Pu}$  bestimmt.

<sup>2)</sup> Für statistisch nicht signifikante Werte ist die jeweilige spezifische Nachweisgrenze angegeben (< NWG).

### B.2 An den beprobten Standorten bestimmte Pflanzen

Tabelle B.2: An den beprobten Moor- und Waldstandorten bestimmte und in der vorliegenden Arbeit erwähnte Pflanzen (u. a. Rauh u. Senghas 1973; Walther 1983; Daniels u. Eddy 1985; Frahm u. Frey 1992; Fukarek et al. 1992; Schauer u. Caspari 1996)

deutsch	lateinisch	deutsch	lateinisch
Becherflechte <sup>1)</sup>	<i>Cladonia</i> sp.	Preiselbeere	<i>Vaccinium vitis-idaea</i>
Drahtschmiele	<i>Deschampsia flexuosa</i>	Rasige Haarsimse	<i>Trichophorum cespitosum</i>
Eberesche	<i>Sorbus aucuparia</i>	Rauschbeere	<i>Vaccinium uliginosum</i>
Gemeine Birke	<i>Betula pendula</i>	Rosmarinheide	<i>Andromeda polifolia</i>
Gemeine Fichte	<i>Picea abies</i>	Rotbuche	<i>Fagus sylvatica</i>
Gemeine Moosbeere	<i>Vaccinium oxycoccus</i>	Rundblättriger Sonnentau	<i>Drosera rotundifolia</i>
Gewöhnlicher Dornfarn	<i>Dryopteris carthusiana</i>	Scheidiges Wollgras	<i>Eriophorum vaginatum</i>
Heidekraut	<i>Calluna vulgaris</i>	Schlafmoos <sup>2)</sup>	<i>Hypnum cupressiforme</i> s.l.
Heidelbeere	<i>Vaccinium myrtillus</i>	Schwarze Krähenbeere	<i>Empetrum nigrum</i>
Strohgelbes Schönmoos	<i>Calliergon stramineum</i>	Sumpf-Streifensternmoos	<i>Aulacomnium palustre</i>
Labkraut <sup>1)</sup>	<i>Galium</i> sp.	Torfmoose <sup>3)</sup>	<i>Sphagnum</i> sp.
Latschenkiefer, Bergkiefer	<i>Pinus mugo</i>	Waldsauerklee	<i>Oxalis acetosella</i>
Moorbirke	<i>Betula pubescens</i>	Weidenröschen <sup>1)</sup>	<i>Epilobium</i> sp.
Murray-Kiefer	<i>Pinus contorta</i>	Weißtanne	<i>Abies alba</i>

<sup>1)</sup> Eine genauere Bestimmung war nicht möglich.

<sup>2)</sup> Die Moosart ist sehr formenreich und zur Bestimmung der Unterart wäre mehr Pflanzenmaterial (v. a. mit Kapselfrüchten) erforderlich gewesen (S. Biedermann, AG Sächsischer Botaniker, pers. Mitt. 1994).

<sup>3)</sup> Die angesprochenen Arten der Gattung *Sphagnum* (Torfmoose) sind jeweils im Text genauer spezifiziert.

## C Anhang zu Kap. 4 – Die Untersuchungsgebiete

### C.1 Witterungsdaten zum Zeitraum des Tschernobyl-Unfalls (April/Mai 1986)

Datum	Örtliche Witterungsdaten im Revier Holzhau
26.4.86	10 ... 20 °C, heiter, niederschlagsfrei
27.4.	10 ... 20 °C, heiter, niederschlagsfrei
28.4.	10 ... 20 °C, heiter, niederschlagsfrei
29.4.	nach Fröhnebelauflösung sonnig-warm, trocken
30.4.	um 10 °C, starker Landnebel
1.5.	10 ... 20 °C, heiter, sonnig-warm, trocken
2.5.	10 ... 25 °C, wolkenlos, klar
3.5.	10 ... 25 °C, wolkenlos, klar
4.5.	10 ... 25 °C, wolkenlos, klar
5.5.	klar, sommerlich heiß
6.5.	klar, sommerlich heiß, starker S-Wind
7.5.	vormittags bis 24 °C, danach Eintrübung, gewittrig abgekühlt nach erstem Regen seit 25.4.1986
8.5.	10 °C, Sprühregen
9.5.	10 °C, Sprühregen
10.5.	10 °C, Sprühregen

Tabelle C.1: Witterungsdaten im Forstrevier Holzhau zum Zeitraum um den Tschernobyl-Unfall entsprechend privater Aufzeichnungen von V. Geyer, Förster der Revierdienststelle Holzhau

Die Angaben beziehen sich auf den Raum Holzhau, schließen somit die Beprobungsorte Holzhau, Nassau 1 und Nassau 2 mit ein. Die Temperaturangaben beziehen sich jeweils auf den Minimal- und Maximalwert am Minimal-Maximal-Thermometer, wobei der Minimalwert i. d. R. morgens zwischen 6:00 und 7:00 gemessen wurde. Der Niederschlag und die Bewölkung wurden jeweils okular eingeschätzt (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1994).

Datum	Örtliche Witterungsdaten in Klingenberg
26.4.86	5 ... 17 °C, Morgennebel, Spritzer, ab Mittag bewölkt (1.0 mm)
27.4.	7 ... 18 °C, Morgennebel, ab Mittag bewölkt
28.4.	7 ... 18 °C, bewölkt
29.4.	6 ... 18 °C, neblig, bewölkt
30.4.	5 ... 17 °C, neblig
1.5.	5 ... 18 °C, Fröhndunst, bewölkt, heiter
2.5.	4 ... 22 °C, heiter
3.5.	8 ... 25 °C, heiter
4.5.	9 ... 26 °C, heiter
5.5.	11 ... 25 °C, leicht bewölkt, Wind
6.5.	11 ... 25 °C, leicht bewölkt, Wind, Gewitter, Wetterleuchten 20 h
7.5.	12 ... 24 °C, bewölkt (0.5 mm)
8.5.	11 ... 12 °C, bewölkt, 16–18 h Gewitter, Spritzer (3.7 mm)
9.5.	4 ... 15 °C, bedeckt, z. T. Regen (4.0 mm)
10.5.	4 ... 14 °C, leicht bewölkt, Schauer (2.1 mm)
11.5.	11 ... 19 °C, vormittags Schauer, bedeckt, kurze Aufheiterung gegen Abend, Gewitter (2.1 mm)
12.5.	3 ... 21 °C, heiter, Windböen
13.5.	7 ... 26 °C, 17:30 h Gewitter, heiter, bewölkt (9.4 mm)
14.5.	12 ... 21 °C, bedeckt, 13:15 h Gewitter, Schauer, Graupel (21.7 mm)
15.5.	9 ... 21 °C, leicht bewölkt, 14:30 h Gewitter, Schauer (5.3 mm)
16.5.	4 ... 19 °C, leicht bewölkt
17.5.	8 ... 22 °C, bewölkt, heiter
18.5.	11 ... 26 °C, bewölkt, 20 h und nachts Gewitter, Schauer (17.5 mm)
19.5.	13 ... 19 °C, neblig, Niesel, ab Mittag bewölkt
20.5.	11 ... 24 °C, leicht bewölkt
21.5.	11 ... 25 °C, bewölkt, Wind, Spritzer (1.5 mm)
22.5.	11 ... 20 °C, stark bewölkt
23.5.	8 ... 24 °C, heiter
24.5.	14 ... 21 °C, bewölkt, heiter, 11:30 h Gewitter, Schauer (2.5 mm)
25.5.	7 ... 21 °C, bewölkt, Wind, ab Mittag heiter
26.5.	7 ... 25 °C, leicht bewölkt

Tabelle C.2: Witterungsdaten des Ortes Klingenberg im Zeitraum um den Tschernobyl-Unfall nach privaten Aufzeichnungen von H. Fischer (Klingenberg, pers. Mitt. 2005)

Die Tagessummen der Niederschläge (in mm) stehen in Klammern. Der hier nicht aufgeführte Zeitraum 27.–31.5. war von stark regnerischer Witterung gekennzeichnet. Ein Vergleich mit den Angaben der Monatlichen Niederschlagsberichte des Meteorologischen Dienstes der DDR für die Bezirke Dresden und Karl-Marx-Stadt (inkl. z. B. Freiberg, Zinnwald und Carlsfeld; entsprechend Kopien von H. Fischer, Klingenberg, pers. Mitt. 2005) zeigt eine vergleichbare zeitliche Abfolge der Niederschläge im gesamten Meßnetz beider Bezirke.

## C.2 Klimadaten zu den Beprobungsgebieten im Erzgebirge

Tabelle C.3: Klimadaten zu den Beprobungsgebieten im Osterzgebirge – Monats- und Jahresmittelwerte der Lufttemperatur, monatliche Niederschlagshöhe und Jahressummen der Niederschläge sowie Anzahl der Tage mit Nebel und Schneedecke an der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld (877 m ü. NN) (DWD 1996, 1997, 1998, 1999; L. Wagner, Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, pers. Mitt. 1995)

Monat	Zinnwald-Georgenfeld <sup>1)</sup>							
	Lufttemperatur (°C)				Niederschlag (mm)			
	1961–90	1994	1995	1996	1961–90	1994	1995	1996
Januar	-4.6	-1.1	-4.7	-6.9	76	92	101	1
Februar	-3.9	-4.6	0.0	-7.1	64	24	47	29
März	-1.0	1.8	-1.2	-3.8	66	145	69	41
April	3.2	4.1	4.2	4.9	73	64	124	32
Mai	8.5	8.7	8.6	7.6	89	83	133	129
Juni	11.6	12.2	10.3	11.7	95	63	172	112
Juli	13.2	18.4	16.8	11.7	97	59	63	156
August	13.1	14.2	14.9	13.5	103	166	176	136
September	9.7	10.1	9.1	6.3	74	77	106	92
Oktober	5.5	3.9	8.0	5.9	67	48	16	69
November	0.0	2.6	-2.4	0.7	82	75	150	46
Dezember	-3.2	-0.8	-5.9	-6.9	93	78	49	33
<b>Jahr</b>	<b>4.3</b>	<b>5.8</b>	<b>4.8</b>	<b>3.1</b>	<b>979</b>	<b>974</b>	<b>1206</b>	<b>876</b>
Jahr	Anzahl der Tage mit Nebel				Anzahl der Tage mit Schneedecke			
	–	188	228	262	–	111	146	153

<sup>1)</sup> ca. 500 m östlich des Georgenfelder Hochmoors bzw. ca. 11 km östlich von Holzhau (Entfernung Luftlinie)

Tabelle C.4: Klimadaten zu den Beprobungsgebieten im Osterzgebirge – Monats- und Jahresmittelwerte der Lufttemperatur, monatliche Niederschlagshöhe und Jahressummen der Niederschläge sowie Anzahl der Tage mit Nebel und Schneedecke an der Klimastation Cämmerswalde (Rauschenbach) (615 m ü. NN); Monats- und Jahreswerte der Niederschlagshöhen und Anzahl der Tage mit Schneedecke an der Niederschlagsstation Holzhau (761 m ü. NN) (DWD 1997, 1998, 1999)

Monat	Cämmerswalde (Rauschenbach) <sup>1)</sup>						Holzhau		
	Lufttemperatur (°C)			Niederschlag (mm)			Niederschlag (mm)		
	1994	1995	1996	1994	1995	1996	1994	1995	1996
Januar	0.9	-3.0	-5.1	101	115	3	81	84	5
Februar	-2.8	2.0	-5.2	31	56	44	36	53	65
März	3.9	0.8	-2.2	135	62	47	107	56	66
April	5.3	6.1	5.1	53	123	24	68	118	46
Mai	10.1	9.9	9.3	62	86	129	65	109	112
Juni	13.7	11.8	13.2	48	163	72	52	151	92
Juli	18.5	18.1	13.1	45	46	156	46	45	207
August	15.4	15.8	14.9	211	104	115	166	143	127
September	11.6	10.5	8.3	87	123	86	67	134	103
Oktober	5.3	9.5	7.8	40	15	67	50	20	86
November	4.4	-0.8	2.8	72	137	46	69	123	55
Dezember	0.9	-4.1	-5.6	74	52	46	72	74	55
<b>Jahr</b>	<b>7.3</b>	<b>6.4</b>	<b>4.7</b>	<b>959</b>	<b>1082</b>	<b>835</b>	<b>879</b>	<b>1110</b>	<b>1019</b>
Jahr	Anzahl der Tage mit Nebel			Anzahl der Tage mit Schneedecke					
	35	31	58	71	115	139	81	116	143

<sup>1)</sup> ca. 8 km südwestlich von Nassau bzw. 8 km west-südwestlich von Holzhau (Entfernung Luftlinie)

Tabelle C.5: Klimadaten zu den Beprobungsgebieten im Mittleren Erzgebirge und Westerzgebirge – Monats- und Jahreswerte der Niederschlagshöhen an den Niederschlagsstationen Reitzenhain (755 m ü. NN bzw. 777 m ü. NN ab 07/95, nach Verlegung im Ort) und Kühnhaide (715 m ü. NN) sowie Carlsfeld Talsperre (Weiterswiese; 914 m ü. NN) (DWD 1997, 1998, 1999)

Monat	Niederschlag (mm)								
	Reitzenhain <sup>1)</sup>			Kühnhaide <sup>2)</sup>			Carlsfeld Talsperre <sup>3)</sup>		
	1994	1995	1996	1994	1995	1996	1994	1995	1996
Januar	58	106	7	84	80	4	103	185	2
Februar	34	47	49	38	47	39	50	80	60
März	80	82	61	124	57	50	163	133	63
April	57	162	39	64	134	30	101	188	38
Mai	72	137	111	73	99	100	95	116	105
Juni	70	171	94	82	150	89	75	168	122
Juli	90	87	129	50	77	126	114	134	203
August	161	134	98	157	104	98	198	188	82
September	48	149	130	46	135	122	87	177	146
Oktober	35	23	67	46	22	68	89	31	128
November	83	184	46	86	121	54	104	185	84
Dezember	87	60	48	80	53	57	144	84	48
<b>Jahr</b>	<b>875</b>	<b>1342</b>	<b>879</b>	<b>930</b>	<b>1079</b>	<b>837</b>	<b>1323</b>	<b>1669</b>	<b>1081</b>
Jahr	Anzahl der Tage mit Schneedecke								
	90	131	141	88	123	144	121	172	152

<sup>1)</sup> ca. 8 km südwestlich des Hochmoors Schwarze Heide (Mittleres Erzgebirge)

<sup>2)</sup> ca. 4 km südwestlich des Hochmoors Schwarze Heide (Mittleres Erzgebirge)

<sup>3)</sup> ca. 5 km westlich des Hochmoors Kleiner Kranichsee (Westerzgebirge)

Alle Angaben „Entfernung Luftlinie“

Tabelle C.6: Klimadaten zu den Beprobungsgebieten im Mittleren Erzgebirge – Mittlere jährliche Niederschlagssummen, Jahresmittelwerte der Lufttemperatur sowie Anzahl der Tage mit Nachtfrost und Nebel an den Stationen Reitzenhain (R) und Kriegswald (K) (J. Heisig, Forstamt Olbernhau, pers. Mitt. 1998, 2005)

Zeitspanne	Niederschlag (mm)		Lufttemperatur (°C)		Nachtfrosttage	Nebeltage	
	R <sup>1)</sup>	K <sup>2)</sup>	R	K	K	R	K
1864–1920	–	–	4.5	4.5	–	–	–
1886–1905	1064	1057	–	–	173	151	128
1901–50	961	–	4.7	–	–	–	–
1961–90	910	–	5.4	–	–	–	–

<sup>1)</sup> ca. 8 km südwestlich des Hochmoors Schwarze Heide; seit Beginn der 90er Jahre nur noch Erfassung des Niederschlags

<sup>2)</sup> ca. 2 km südlich des Hochmoors Schwarze Heide; ab 1951 keine regelmäßige Erfassung aller Klimadaten mehr  
Alle Angaben „Entfernung Luftlinie“

## D Anhang zu Kap. 6 – Untersuchung der Fichtenwaldböden

### D.1 Bodenkundliche Ansprache der Waldbodenprofile

#### D.1.1 Waldbodenprofil Holzhau

**Grundgestein:** Fláje Granit

**Bodentyp:** Podsol-Braunerde im weichselzeitigen Solifluktionsschutt  
(Geländeansprache und pers. Mitteilung von L. Zöller, Universität Bonn, 1998)

**Humusform:** Feinhumusreicher typischer Moder

**Vegetation:** Bei der Bestockung des Waldgebiets handelt es sich um einen gleichaltrigen Fichtenreinbestand (*Picea abies*) mit vereinzelt Ebereschen (*Sorbus aucuparia*) (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998). Der Beprobungspunkt war von acht Fichten in einem Radius von etwa 2 m umgeben. Die von dichter Nadelstreu bedeckte Profiloberfläche war nicht sichtbar bewachsen.

Tabelle D.1: Bodenkundliche Ansprache des Bodenprofils Holzhau mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche sowie gemessene pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte

Horizont	Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung	pH <sup>1)</sup>
L	0 – 0.5 (0.5)	Nadeln, vereinzelt kleine Aststücke und Rindenreste, unzersetzt, sehr vereinzelt grün, locker gelagert	3.3
Of	0.5 – 1 (0.5)	wenig zersetzte Nadeln, mittel- bis dunkelbraun, schwach durchwurzelt	2.9
Oh	1 – 3 (2)	strukturlose organische Substanz, vereinzelt Nadeln, zersetzt, dunkelbraun bis schwarz, mittel durchwurzelt	2.7
Ah	3 – 4.5 max (1)	Humushorizont, Schluff, dunkelbraun, humos, mittel durchwurzelt	2.7
AeAh <sup>2)</sup>		Schluff, dunkelbraun-grau bis schwarz mit vereinzelt gebleichten Quarzkörnern	–
Bv <sup>3)</sup>	– 12 ET	Schluff, feinsandig, lagenweise stark mittel- bis grobgrusig, braun	2.8
Cv <sup>3)</sup>	33 <sup>4)</sup>	Schluff, feinsandig, hellbraun bis gelb-braun	–

<sup>1)</sup> Die pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte wurden nach Kap. 3.3.6 an den einzelnen Beprobungsschichten des Profilblocks bestimmt (Meßtemperatur 20 °C) und den hier gelisteten Horizonten entsprechend zugeordnet.

<sup>2)</sup> Der AeAh-Horizont konnte bei der Beprobung nicht angesprochen werden und wurde bei einer späteren Begehung des Waldstandorts identifiziert (L. Zöller, Universität Bonn, pers. Mitt. 1998).

<sup>3)</sup> Die Gesamtmächtigkeit des Bv-Horizonts – d. h. seine Ausdehnung über die Endtiefe der Profilbeprobung von 12 cm hinaus – und die genaue Tiefe des Übergangs Bv-Cv sind nicht bekannt.

<sup>4)</sup> Die mittlere Entnahmetiefe des Bodenmaterials, welches mit dem Spaten unterhalb des Profils beprobt wurde, betrug ca. 33 cm (Ansprache und Entnahme innerhalb des Tiefenbereichs 30 ... 36 cm).



### D.1.2 Waldbodenprofil Nassau 1

- Grundgestein:** Granitporphyr von Frauenstein
- Bodentyp:** Podsolierte Braunerde im weichselzeitigen Solifluktionsschutt  
(Geländeansprache und pers. Mitteilung von L. Feldmann, TU Clausthal, 1996)
- Humusform:** Feinhumusarmer typischer Moder
- Vegetation:** Bei der Bestockung des Waldgebiets handelt es sich um einen gleichaltrigen Fichtenreinbestand (*Picea abies*) (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998). Die von dichter Nadelstreu bedeckte Profiloberfläche war nicht sichtbar bewachsen.

Tabelle D.2: Bodenkundliche Ansprache des Bodenprofils Nassau 1 mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche sowie gemessene pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte

Horizont	Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung	pH <sup>1)</sup>
<b>L</b>	0 – 1 (1)	Nadeln, kleine Äste, unzersetzt, vereinzelt grün, locker gelagert; Harzgeruch	4.0
<b>Of</b>	1 – 2.5 (1.5)	wenig zersetzte Nadeln, dunkelbraun; Modergeruch	–
<b>Oh</b>	2.5 – 3.5 max. (1)	strukturlose organische Substanz, vereinzelt Nadeln, zersetzt, braunschwarz	3.3
<b>Ah</b>	3.5 – 6.5 (3)	Humushorizont, Schluff, schwach feinsandig, dunkelgrau-schwarz, humos, mittel durchwurzelt	3.1
<b>AeAh</b>	6.5 – 9 (2.5)	Schluff, feinsandig, dunkelgrau mit vereinzelt gebleichten Quarzkörnern (Kornpodsolierung), schwach durchwurzelt	3.1
<b>BvBs</b>	9 – 16/17 (7...8)	Schluff, feinsandig, mittelgrusig, dunkelbraun, leichter rötlicher Stich, schwach durchwurzelt	3.2
<b>Bv</b>	16/17 – 54/57 (38...40)	Schluff, feinsandig, lagenweise stark mittel- bis grobgrusig, braun	3.4 ... 4.2
<b>Cv</b>	54/57 – 59/62 (5) ET	Schluff, feinsandig, sehr stark block- bis steinführend, braun-gelb	–

<sup>1)</sup> Die pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte wurden nach Kap. 3.3.6 an den einzelnen Beprobungsschichten des Profilblocks bestimmt (Meßtemperatur 22 °C) und den hier gelisteten Horizonten entsprechend zugeordnet.

### D.1.3 Waldbodenprofil Nassau 2

**Grundgestein:** Freiburger Grauer Gneis

**Bodentyp:** Braunerde-Podsol im weichselzeitigen Solifluktionsschutt  
(Geländeansprache sowie pers. Mitteilungen von L. Feldmann, TU Clausthal, 1996 und L. Zöller, Universität Bayreuth, 2005)

**Humusform:** Feinhumusarmer rothumusartiger Moder

**Vegetation:** Bei der Bestockung des Waldgebiets handelt es sich um einen gleichaltrigen Fichtenreinbestand (*Picea abies*) (V. Geyer, Forstrevier Holzhau, pers. Mitt. 1998). Die von dichter Nadelstreu bedeckte Profiloberfläche war nicht sichtbar bewachsen.

Tabelle D.3: Bodenkundliche Ansprache des Bodenprofils Nassau 2 mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche sowie gemessene pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte

Horizont	Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung	pH <sup>1)</sup>
L	0 – 3 max. (3)	Nadeln, kleine Zweigstücke, Samenteile, unzersetzt, vereinzelt grün, locker gelagert	3.5
Of	3 – 5 (2)	wenig zersetzte Nadeln, kleine Zweigstücke, mittel- bis dunkelbraun, stellenweise schichtig bzw. verfilzt	3.0
Oh	5 – 7 (2)	strukturlose organische Substanz, vereinzelt Nadeln, zersetzt, braunschwarz, stark durchwurzelt	2.7
Ah	7 – 11 max. (4)	Humushorizont, Schluff, schwach feinsandig, schwarz mit gebleichten Quarzkörnern, humos, mittel bis stark durchwurzelt	2.7
AeAh	11 – 12 (1)	Schluff, feinsandig, dunkelgrau-braun mit gebleichten Quarzkörnern, mittel durchwurzelt	2.7
BvBs	12 – 16 max. (4)	Schluff, feinsandig, mittelgrusig, dunkelbraun mit rötlichem Stich bis rot-braun, schwach durchwurzelt	2.8
Bv	16 – 32 ET	Schluff, feinsandig, mittel- bis grobgrusig, braun bis gelb-braun	–

<sup>1)</sup> Die pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte wurden nach Kap. 3.3.6 an den einzelnen Beprobungsschichten des Profilblocks bestimmt (Meßtemperatur 22 °C) und den hier gelisteten Horizonten entsprechend zugeordnet.

### D.1.4 Waldbodenprofil Eggwald

**Grundgestein:** Jungmoräne

**Bodentyp:** Podsolige Parabraunerde  
(Geländeansprache; Forstbodenkundliche Standortkartierung des Distrikts Eggwald, entsprechend pers. Mitteilung von R. Schlude, Forstrevier Waldburg, 1994, 2005)

**Humusform:** Feinhumusreicher typischer Moder

**Vegetation:** Der Beprobungspunkt war von einer Rotbuche (*Fagus sylvatica*), sechs Fichten (*Picea abies*) und einer Weißtanne (*Abies alba*) in einem Radius von etwa 4 m umgeben. Die Profiloberfläche war geringflächig von Schlafmoos (*Hypnum cupressiforme* s.l.; S. Biedermann, AG Sächsischer Botaniker, pers. Mitt. 1994; vgl. Anhang B.2), Gewöhnlichem Dornfarn (*Dryopteris carthusiana*; ≤ 1 jährig), Wald-Sauerklee (*Oxalis acetosella*) sowie wenigen maximal einjährigen Fichten und Weißtannen bewachsen. Aufliegende Weißtannen- bzw. Fichtenzapfen und die genannten Pflanzen inklusive ihrer Wurzeln wurden vom Profil entfernt und getrennt gemessen.

Tabelle D.4: Bodenkundliche Ansprache des Bodenprofils Eggwald mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche sowie gemessene pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte

Hori- zont	Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung	pH <sup>1)</sup>
L	0 – 0.5 (0.5)	Nadeln, Zweigstücke, Zapfenteile, unzersetzt, vereinzelt grün, locker gelagert	3.8
Of	0.5 – 1.5 (1)	wenig zersetzte Nadeln, mittel- bis dunkelbraun	3.3
Oh	1.5 – 4.5 (3)	strukturlose organische Substanz, vereinzelt Nadeln, zersetzt, dunkelbraun	2.9
Ah	4.5 – 6 (1.5)	Humushorizont, Moränenlehm, schwach sandig, dunkelbraun bis schwarz mit vereinzelt gebleichten Quarzkörnern, humos, mittel durchwurzelt	2.9
BsBt	6 – 18 ET	Moränenlehm, schwach sandig, hellbraun bis gelb-braun	3.0 ... 4.4

<sup>1)</sup> Die pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte wurden nach Kap. 3.3.6 an den einzelnen Beprobungsschichten des Profilblocks bestimmt (Meßtemperatur 20 °C) und den hier gelisteten Horizonten entsprechend zugeordnet.

## D.2 Literaturangaben zu den Inventaren künstlicher Radionuklide

Tabelle D.5: Vergleich von Literaturangaben zu Bodeninventaren  $A_F$  (in  $Bq/m^2$ ) der künstlichen RN  $^{241}Am$ ,  $^{239,240}Pu$  (bzw.  $^{238}Pu$ ) sowie  $^{137}Cs_{Waffen}$  und  $^{137}Cs_{Tsch}$

Zitat	Standort- und Profilingaben; Zeitpunkt	$^{137}Cs_{Tsch}$ $Bq/m^2$	$^{137}Cs_{Waffen}$ $Bq/m^2$	$^{241}Am$ $Bq/m^2$	$^{239,240}Pu$ $Bq/m^2$
[1]	Südbayern, 25 Standorte, 1984 <sup>3)</sup> Grasland (0 ... 20 cm) Ackerland (gepflügte Tiefe bis max. 30 cm) Fichtenwald (> 40 a; 0 ... 20 cm)		2820 ± 840 2680 ± 910 3580 ± 790	15 <sup>1)</sup> ‡ 20 <sup>1)</sup> ‡	49 <sup>1)</sup> † 64 <sup>1)</sup> †
[2]	40 km nordwestlich von München; Fichtenwald (85 a); je 30 Profile in 0.5 m bzw. 3 m Entfernung zu Baumstämmen; 1986/87; zerf.korr. 30.4.1986		3290 ± 390 (Stammnähe) 2930 ± 240 (3 m Entf.)		
[3]	40 km nordwestlich von München; Fichtenwald (85 a); 5 Profile (0 ... 20 cm); 1990 <sup>3)</sup>	28200 ± 4000	3800 ± 700	23 ± 3 <sup>1)</sup> – <sup>2)</sup>	76 ± 11 <sup>1)</sup> 0.9 ± 0.7 <sup>2)</sup>
[4]	40 km nordwestlich von München; Grasland; 5 Profile (0 ... 40 cm); 1990 <sup>3)</sup>	28000 ± 4000	1850 ± 520	18 ± 2 <sup>1)</sup> – <sup>2)</sup> $^{238}Pu$ :	55 ± 6 <sup>1)</sup> < 0.1 <sup>2)</sup> 2.2 ± 0.4 <sup>1)</sup> < 0.05 <sup>2)</sup>
[5]	200 km nordöstlich von München; Kiefernwald; 5 Profile (0 ... 30 cm); 1991 <sup>3)</sup>	6450 ± 1880	1830 ± 700	21 ± 4 <sup>1)</sup> – <sup>2)</sup>	55 ± 9 <sup>1)</sup> < 0.4 <sup>2)</sup>
[6]	Südbayern (nahe Hochstadt); Fichtenwald (100 a); bis zu 16 Profile jährlich (Ø max. 12 cm); 1987–94; zerf.korr. 1.5.1986	13900 ± 1900	1660 ± 840		
[7]	Bodensee; Sedimentkerne; 7 Kerne; 1990; zerf.korr. 1.5.1986		2280 ± 420		
[8]	Oberschwaben (Altdorfer Wald); Fichtenmonokultur; 4 Profile (0 ... 12 cm; inkl. Grobboden); 1992; zerf.korr. 1.5.1986	14360 ± 3590	3210 ± 1190		
[9]	Oberschwaben (Eggwald); Wald (80 % Fichte); 1 Profil (0 ... 20 cm; inkl. Grobboden); 7.6.1994	$^{137}Cs_{ges}$ : 12890 ± 320			
[10]	Oberschwaben (Mochenwanger Wald); Laubwald; 1 Profil (0 ... 20 cm, nur Feinboden); 1993; zerf.korr. 1.5.1986	31390 ± 290	2900 ± 150		
[10]	Oberschwaben (Ochsenhausen); Wald (95 % Fichte, 90 a); 1 Profil (0 ... 20 cm, nur Feinboden); 1993; zerf.korr. 1.5.1986	52100 ± 480	2400 ± 90		
[11]	Westeuropa; 49 Waldstandorte; je 1 Profil (0 ... 12 cm bzw. 20 cm); nach 1986 <sup>3)</sup> 44 Standorte (5 Standorte ohne Angabe) Heidelberg (20 km Umkreis); 15 Standorte		1830 ± 920 2180 ± 820		
[12]	damal. Tschechoslowakei; Grasland; 50 Profile (0 ... 20 cm); 1990			$^{238}Pu$ :	49 ± 24 1.7 ± 0.3 ‡
[13]	Zentralböhmen (Raum Prag); Grasland; 3 Profile (0 ... 35 cm); 1994/95 <sup>3)</sup>	1620 ... 26280	1990 ± 110	$^{238}Pu$ :	52 ± 3 <sup>1)</sup> 1.5 ± 0.7 <sup>2)</sup> 1.96 ± 0.46 <sup>1)</sup> 1.43 ± 0.06 <sup>1)</sup> 0.75 ± 0.35 <sup>2)</sup>

[1] Bunzl u. Kracke 1988

[2] Bunzl et al. 1989b

[3] Bunzl et al. 1992

[4] Bunzl et al. 1994a

[5] Bunzl et al. 1995b

[6] Rühm et al. 1996

[7] Seewald 1991

[8] Bürmann 1993

[9] Enslin 1994

[10] Heider 1994

[11] Dörr u. Münnich 1991

[12] Hölgye u. Filgas 1995

[13] Hölgye u. Malý 2000

## E Anhang zu Kap. 7 – Untersuchung der Hochmoorböden

### E.1 Bodenkundliche Ansprache der Moorbodenprofile

#### E.1.1 Georgenfelder Hochmoor

Tabelle E.1: Bodenkundliche Ansprache<sup>1)</sup> des Hochmoorprofils Georgenfelder Hochmoor mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche sowie gemessene pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte

Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung	pH <sup>2)</sup>
0 – 20 (20)	<u>Sphagnum-/Reisertorf</u> ; oberer Teil nicht bis sehr schwach zersetzt, braun; unterer Teil stark zersetzt, braun-schwarz	2.2 ... 2.3
20 – 130 (110)	<u>Sphagnum-/Eriophorumtorf</u> , schwach zersetzt, hellbraun, faserig	2.3 ... 2.4
130 – 155 (25)	<u>Eriophorumtorf mit Sphagnumtorf</u> , mittel zersetzt, hellbraun	–
155 – 200 (45)	<u>Sphagnum-/Eriophorumtorf</u> , stark zersetzt, dunkelbraun	–
200 – 215 (15)	<u>Riedtorf</u> , stark zersetzt	–
215 – 220 (5) ET <sup>3)</sup>	<u>Ton</u> , Verwitterungsprodukt des geologischen Untergrunds	–

<sup>1)</sup> Eine vereinfachte Ansprache an dem Profilblock und den Bohrkernen erfolgte sowohl im Gelände als auch nach der Probennahme im Labor; die vorliegende Tabelle basiert deshalb sowohl auf entsprechenden Notizen als auch auf Angaben von Heilmann et al. (1993) und Stebich (1995) sowie pers. Mitteilung von M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, 2005. Eine vergleichbare Darstellung des Profils ist in Schleich et al. (1995) publiziert.

<sup>2)</sup> Die pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte wurden nach Kap. 3.3.6 an den einzelnen Beprobungsschichten des Profilblocks, d. h. bis ca. 50 cm Tiefe, bestimmt (Meßtemperatur 20 °C) und den hier gelisteten Tiefenbereichen zugeordnet.

<sup>3)</sup> Die Bohrung wurde bis zum Liegenden des Moores, d. h. dem Verwitterungsmaterial des geologischen Untergrunds, durchgeführt; die Endtiefe der Beprobung entspricht somit in etwa der Moormächtigkeit am Standort.

#### Anmerkungen zu Tabelle D.5 (vorhergehende Seite)

Die Literaturangaben zu <sup>241</sup>Am und den Pu-Isotopen beziehen sich auf <sup>1)</sup> nur globalen Fallout und <sup>2)</sup> Tschernobyl-Fallout, sofern eine entsprechende Trennung in den Publikationen überhaupt vorliegt.

<sup>3)</sup> Die Inventare des <sup>137</sup>Cs sind – soweit keine Angabe zum Datum der Zerfallskorrektur explizit hinzugefügt – als unkorrigiert anzunehmen; zumeist liegen in diesen Fällen keine eindeutigen Angaben in der Literatur vor, das Bezugsdatum (d. h. Meßdatum) ist somit zwischen Probennahme und Publikationsveröffentlichung anzusetzen.

† Die Werte basieren auf den gemessenen <sup>137</sup>Cs<sub>Waffen</sub>-Inventaren (Medianwerte) und wurden von den Autoren anhand ebenfalls bestimmter <sup>241</sup>Am/<sup>137</sup>Cs<sub>Waffen</sub>- bzw. <sup>239,240</sup>Pu/<sup>137</sup>Cs<sub>Waffen</sub>-Verhältnissen errechnet; bei den hier tabellierten <sup>137</sup>Cs<sub>Waffen</sub>-Inventaren handelt es sich um die arithmetischen Mittelwerte aus der Publikation.

‡ Von den Autoren errechneter arithmetischer Mittelwert ± Standardabweichung des Mittelwerts; anhand der vorliegenden Daten war es nicht möglich, die Standardabweichung der Einzelmessung zu errechnen.

### E.1.2 Hochmoor Schwarze Heide

Tabelle E.2: Bodenkundliche Ansprache<sup>1)</sup> des Hochmoorprofils Schwarze Heide mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche

Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung
0 – 5 (5)	Rasennarbe, erdig, torfig, trocken
5 – 15 (10)	<u>Torf</u> , erdig, mulmig, braun, trocken, durchwurzelt
15 – 20 (5)	<u>Torf</u> , erdig, stark zersetzt, schwarz, erdfeucht, durchwurzelt
20 – 30 (10)	<u>Sphagnumtorf</u> mit Reiser, mittel zersetzt, schwarzbraun, feucht, Pflanzenstruktur erkennbar
30 – 45 (15)	<u>Scheuchzeriatorf</u> , schwach zersetzt, schwarzbraun, feucht, Pflanzenstruktur erkennbar
45 – 70 (25)	<u>Scheuchzeriatorf</u> mit Sphagnumtorf und Reiser, schwach zersetzt, braun, feucht, Pflanzenstruktur erkennbar, Wollgras
70 – 120 (50)	<u>Sphagnumtorf</u> mit Reiser, sehr schwach zersetzt, hellbraun, feucht, Pflanzenstruktur erkennbar; in 70 ... 75 cm Scheuchzeria
120 – 155 (35)	<u>Sphagnumtorf</u> , schwach zersetzt, hellbraun, feucht, Pflanzenstruktur gut erkennbar
155 – 158 (3)	<u>Holzhorizont</u> mit Sphagnumtorf, schwach zersetzt, braun, feucht, Holzreste rötlich
158 – 162 (4)	<u>Sphagnumtorf</u> , schwach zersetzt, hellbraun, feucht, Pflanzenstruktur gut erkennbar
162 – 165 (3)	<u>Schluff</u> , schwach tonig, sehr vereinzelt feinsandig, braungrau, Pflanzenreste, Haarwurzeln (Seggen)
165 – 170 (5) ET <sup>2)</sup>	<u>Schluff</u> , stark sandig, fein- bis grobsandig, vereinzelt Feinkies bestehend aus Bruchstücken des Anstehenden, blaugrau

<sup>1)</sup> verändert nach Geländeansprache und Seifert 1997 sowie pers. Mitteilung von M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, pers. Mitt. 2005; die Ansprache wurde vorwiegend an dem für die palynologischen Untersuchungen bestimmten Bohrkern vorgenommen.

<sup>2)</sup> Die Bohrungen wurden bis zum Liegenden des Moores, d. h. dem Verwitterungsmaterial des geologischen Untergrunds, durchgeführt; die Endtiefe der jeweiligen Beprobung entspricht somit in etwa der Moormächtigkeit am Standort. Aufgrund der Reliefform unter dem Moorkörper weichen die Profilmächtigkeiten der einzelnen Bohrungen geringfügig voneinander ab: ca. 180 cm für die  $\gamma$ -spektrometrisch analysierten Bohrungen und ca. 170 cm für den palynologisch untersuchten Bohrkern.

### E.1.3 Hochmoor Kleiner Kranichsee

Tabelle E.3: Bodenkundliche Ansprache<sup>1)</sup> des Hochmoorprofils Kleiner Kranichsee mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche sowie gemessene pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte

Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung	pH <sup>2)</sup>
0 – 1 (1)	Rasennarbe	3.0
1 – 4 (3)	<u>Sphagnum</u> , unzersetzt, oxidiert, hellbraun, sehr feucht, Pflanzenstruktur erkennbar, rezent durchwurzelt	2.9
4 – 8 (4)	<u>Sphagnumtorf</u> , unzersetzt, gelbbraun, sehr feucht, Pflanzenstruktur erkennbar, rezent durchwurzelt	2.9
8 – 10 (2)	<u>Sphagnumtorf</u> , unzersetzt, dunkelbraun, sehr feucht, Pflanzenstruktur erkennbar, rezent durchwurzelt	2.9
10 – 15 (5)	<u>zersetzter Torf</u> , dunkelbraun, Pflanzenstruktur nicht erkennbar, durchwurzelt (Haarwurzeln), Holzstückchen (Astreste), muddeartig?	2.9
15 – 25 (10)	<u>Torf</u> , stark zersetzt, dunkelbraun, Wollgrasblattscheiden	2.8 ... 2.9 <sup>3)</sup>
25 – 45 (20)	<u>Sphagnumtorf</u> , sehr schwach zersetzt, hellbraun bis gelbbraun, sehr feucht, Pflanzenstruktur (Sphagnumreste) gut erkennbar, Holzreste, evtl. von Oberfläche durchwurzelt	–
45 – 70 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> , hellbraun bis gelbbraun, wäßrig, Feinwurzeln	–
70 – 120 (50)	<u>Sphagnumtorf</u> , sehr schwach zersetzt, hellbraun bis gelbbraun, sehr feucht, Stängelreste von Sphagnum, Wollgrasblattscheiden, Holzstückchen, Feinwurzeln	–
120 – 145 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> wie vorher, an Basis mehr Feinwurzelreste	–
145 – 170 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> , sehr schwach bis unzersetzt, hellbraun, sehr feucht, bei 165 cm stärkere Wurzelanreicherung, häufig Wollgrasblattscheiden	–
170 – 195 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> , hellbraun bis gelbbraun, sehr feucht, Wollgrasblattscheiden, im oberen Bereich Feinwurzeln	–
195 – 220 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> , sehr schwach bis unzersetzt, hellbraun, sehr feucht, im unteren Bereich häufiger Feinwurzeln, Wollgrasblattscheiden	–
220 – 245 (25)	<u>Reisertorf</u> , schwach zersetzt, hellbraun, sehr feucht, Wollgrasblattscheiden, vereinzelt Holzreste und (größere) Wurzelreste	–
245 – 270 (25)	<u>Reisertorf</u> mit Sphagnum, schwach zersetzt, hellbraun, sehr feucht, Wollgrasblattscheiden, vereinzelt Holzreste und (größere) Wurzelreste; 255 – 260 cm verstärkte Wollgrasanreicherung, Torf hell-gelbbraun	–
270 – 295 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> mit Reiser, schwach zersetzt, hellbraun, sehr feucht, an Basis Wollgrasanreicherung	–
295 – 320 (25)	<u>Sphagnumtorf</u> mit Reisertorf, schwach zersetzt, hellbraun, sehr feucht, Anreicherung von Wollgrasblattscheiden, größere Wurzelreste	–
320 – 347 (27)	<u>Sphagnumtorf</u> mit Reiser, 320 – 332 cm mittel zersetzt, braun, weniger feucht, Pflanzenstruktur kaum erkennbar; 332 – 340 cm Torf wie zuvor, Anreicherung von Wollgras; 340 – 347 cm Torf wie zuvor, Holzstückchen, kleine Wurzelreste	–
347 – 370 (23)	<u>Reisertorf</u> mit Sphagnum, schwach zersetzt, hellbraun, feucht, Anreicherung von Wollgras und (Ericaceen-)Haarwurzeln	–
370 – 420 (50)	<u>Reisertorf</u> mit wenig Sphagnum, schwach zersetzt, braun, feucht, stark mit Wollgras durchsetzt, Pflanzenstruktur erkennbar, (Ericaceen-)Haarwurzeln	–
420 – 465 (45)	<u>Reisertorf</u> , wenig zersetzt, braun, feucht, Holzreste, Wollgrasblattscheiden	–
465 – 470 (5) ET <sup>4)</sup>	<u>Torf</u> , stark muddehaltig, stark zersetzt, dunkelbraun, feucht, Pflanzenstruktur nicht erkennbar	–

<sup>1)</sup> Die Ansprache erfolgte unter Anleitung von M. Seifert (LfUG Freiberg) hauptsächlich im Gelände bei der Entnahme des Profilblocks und den Bohrungen; vorliegende Tabelle basiert auf den Gelände- und Labornotizen sowie pers. Mitteilung von M. Seifert-Eulen, LfUG Freiberg, 2005.

<sup>2)</sup> Die pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte wurden nach Kap. 3.3.6 an den einzelnen Schichten des Profilblocks bestimmt (Meßtemperatur 22 °C) und entsprechend den Schichttiefen den hier gelisteten Tiefenbereichen zugeordnet.

<sup>3)</sup> Profilschicht 11 (ca. 15 ... 17.5 cm) weist einen pH von 2.8 auf, im darunterliegenden Tiefenbereich (Schichten 12–15, ca. 17.5 ... 26 cm) beträgt der Wert wieder pH 2.9.

<sup>4)</sup> Eine Weiterführung der Bohrungen bis zum Liegenden war u. a. aufgrund techn. Schwierigkeiten nicht möglich.

### E.1.4 Hochmoor Radauer Born

Tabelle E.4: Bodenkundliche Ansprache<sup>1)</sup> des Hochmoorprofils Radauer Born mit Tiefenangaben unter Geländeoberfläche

Horizont	Tiefe (Mächtigkeit) cm	Beschreibung
<b>hH</b>	0 – 2.5 (2.5)	<b>Profilblock</b> <u>Sphagnum</u> , grün; rezente Pflanzen (z. B. Gemeine Moosbeere, Rosmarinheide und Scheidiges Wollgras), vereinzelt Fichtennadeln
	2.5 – 10.5 (8)	<u>Sphagnum</u> , ZS ca. 1, braun, durchwurzelt
	10.5 – 16 (5.5)	<u>Sphagnum</u> , stärker zersetzt als zuvor, dunkler braun, durchwurzelt
	16 – 22 (6)	„Moorkörper“ (detaillierte Ansprache s. u.)
<b>hH</b>	0 – 4 (4)	<b>Bohrungen</b> <u>Spagnum-WT</u> , grau, durchwurzelt
	4 – 6 (2)	<u>Spagnum-WT</u> , braungrau, durchwurzelt
	6 – 12 (6)	<u>Spagnum-WT</u> , dunkelgrau, Wurzelreste, nicht rezent
	12 – 16 (4)	<u>Spagnum-WT</u> , bräunlichgrau
	16 – 21 (5)	<u>Spagnum-WT</u> , Torfmoos, Erikawurzel, dunkelgrau
	21 – 65 (44)	<u>Spagnum-WT</u> , hellbraun, Sphagnum
	65 – 83 (18)	<u>Spagnum-WT</u> , braun, stärker zersetzt
	83 – 90 (7)	<u>Spagnum-WT</u> , mit Wollgras, braun
	90 – 137 (47)	<u>Sphagnum-WT</u> , ZS 3–4, braun
	137 – 216 (79)	<u>Wollgras-WT</u> , hellbraun
	216 – 230 (14)	<u>Sphagnum-WT</u> , ZS 3–4, braun
	230 – 243 (13)	<u>Wollgras-WT</u> , hellbraun
	243 – 340 (97)	<u>Sphagnum-WT</u> , ZS 3, braun
	340 – 400 (60)	<sup>2)</sup>
	400 – 475 (75)	<u>Sphagnum-WT</u> , ZS 4, braun, vereinzelt Wollgras
	475 – 500 (25)	<u>Sphagnum-WT</u> , hellbraun, Wollgras
	500 – 515 (15)	<u>Sphagnum-WT</u> , braun
	515 – 556 (41)	<u>Sphagnum-WT</u> , beige, vereinzelt Wollgras-WT
	556 – 567 (11)	<u>Sphagnum-WT</u> , braun, Wollgras
	567 – 583 (16)	<u>Sphagnum-WT</u> , hellbraun, Wollgras
<b>fAh</b>	– 591 <sup>2)</sup>	Schluff, grau, stark torfig
<b>Gr</b>	591 – 600 (9)	Schluff, graugrün
	600 – 614 (14)	Schluff, mittelmäßig, gelb
	614 – 616 (2) ET <sup>3)</sup>	Grobkies

WT Weißtorf; ZS Zersetzungsstufe

<sup>1)</sup> Unter Anleitung von L. Feldmann (TU Clausthal) wurden die Bohrproben *in-situ*, der entnommene Profilblock im Labor angesprochen; vorliegende Tabelle basiert auf den Gelände- und Labornotizen sowie pers. Mitteilung von L. Feldmann, TU Clausthal, 1995, 2005. Aufgrund der geringen Probenmengen war eine Bestimmung der pH(CaCl<sub>2</sub>)-Werte entsprechend Kap. 3.3.6 nicht möglich.

<sup>2)</sup> Kernverlust

<sup>3)</sup> Die Bohrungen wurden bis zum Liegenden des Moores, d. h. dem Verwitterungsmaterial des geologischen Untergrunds, durchgeführt; die Endtiefe der Beprobung entspricht somit in etwa der Moormächtigkeit am Standort.

Tabelle oben: Ansprache des Profilblocks; unten: Ansprache der Bohrkörper. Gestrichelte Linie: Bereich unterhalb wurde unter dem Einfluß von Zersetzung gebildet, darüberliegender Bereich bildete sich zersetzungsfrei.



## E.2 Ergänzende Untersuchungen am Torfprofil des Georgenfelder Hochmoors

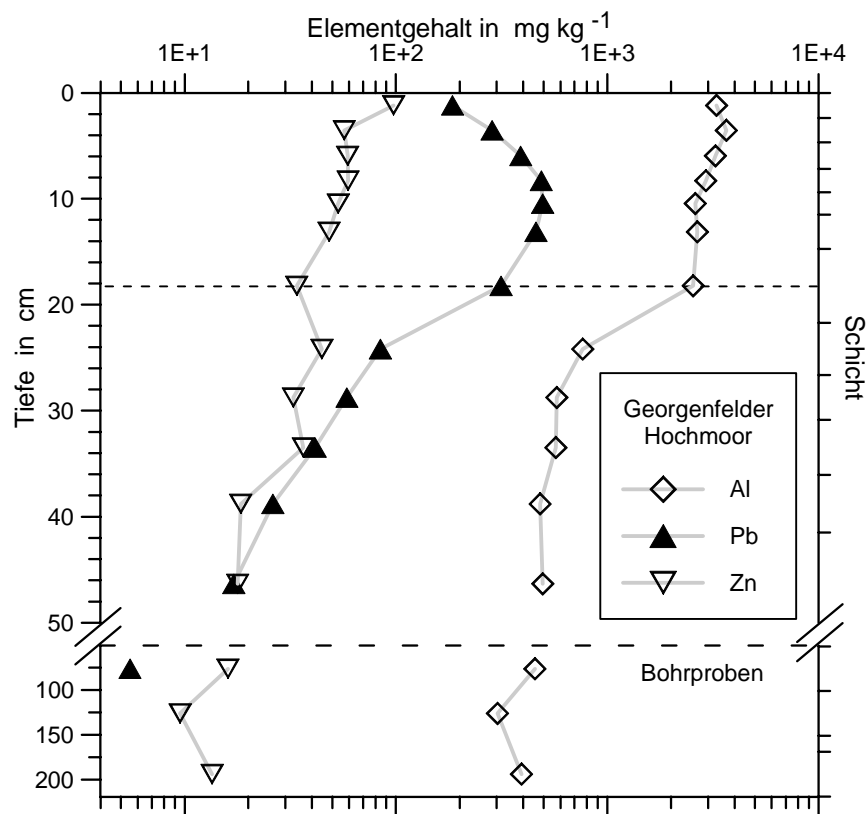


Abb. E.1: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenverteilungen der Gehalte von Al, Pb und Zn

Der Übergangsbereich Vererdungshorizont – Torfhorizont in etwa 18 cm Tiefe ist durch eine gestrichelte Linie angedeutet.

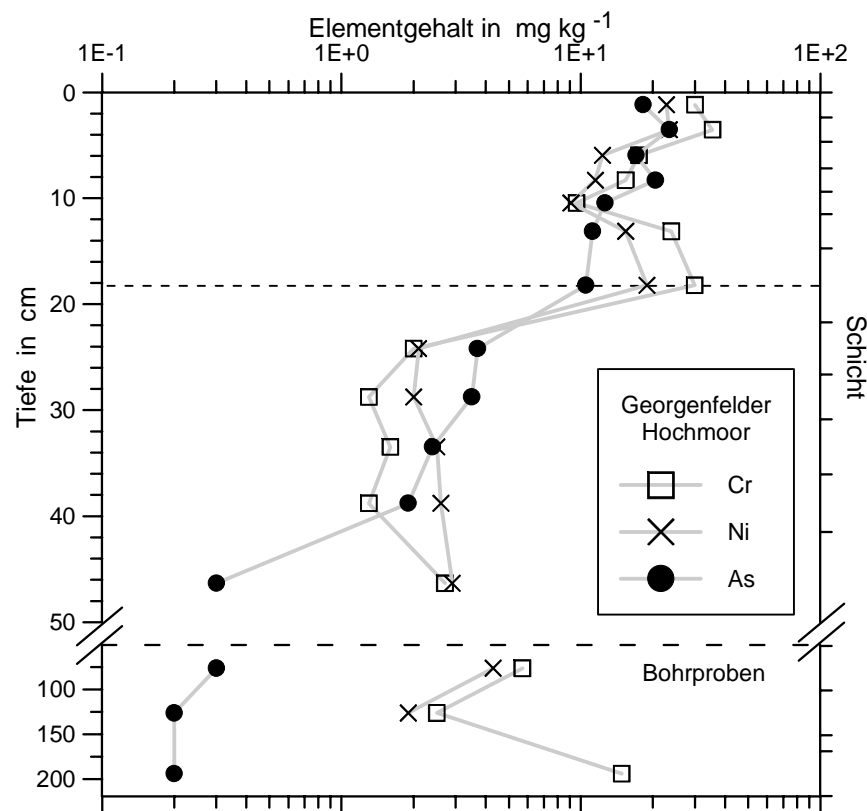


Abb. E.2: Georgenfelder Hochmoor. Tiefenverteilungen der Gehalte von Cr, Ni und As

Der Übergangsbereich Vererdungshorizont – Torfhorizont in etwa 18 cm Tiefe ist durch eine gestrichelte Linie angedeutet.

Tabelle E.5: Glühverluste (bei 600 °C und 1000 °C), Gehalte organischen Kohlenstoffs (TOC) (M. Hahnwald, TU BAF, pers. Mitt. 1999) und Elementgehalte (nach B. Kunz, TU BAF, pers. Mitt. 1995; Analyseprotokoll Nr. 169a des Geochemisch-Analytischen Labors, Institut für Mineralogie, 1995) in den Bodenproben des Georgenfelder Hochmoors (Werte bezogen auf die absoluttrockene Masse (105 °C) der Proben)

Schicht <sup>1)</sup>	Tiefe cm	Glühverlust %		TOC <sup>2)</sup> %	Elementgehalt <sup>3)</sup> mg/kg					
		600 °C	1000 °C		Al	As	Cr	Ni	Pb	Zn
1	0 – 2.5	89.3	–	48.5	3290	18.2	30.0	22.8	185	97.4
2	2.5 – 4.5	–	–	47.8	3660	23.4	35.5	23.4	285	56.9
3	4.5 – 7	–	–	49.2	3250	17.0	17.5	12.3	390	59.0
4	7 – 9.5	–	–	50.1	2930	20.5	15.4	11.5	488	59.3
5	9.5 – 11.5	92.8	–	50.0	2610	12.6	9.6	9.1	495	53.3
6	11.5 – 14.5	89.4	–	48.4	2670	11.2	23.9	15.4	460	48.2
7	14.5 – 21.5	–	–	–	2550	10.5	29.9	18.9	314	33.9
8	21.5 – 26.5	98.7	98.8	51.3	766	3.7	2.0	2.1	84.2	44.6
9	26.5 – 31	99.0	99.2	53.1	578	3.5	1.3	2.0	58.6	32.7
10	31 – 36	98.9	99.3	52.4	572	2.4	1.6	2.5	41.4	36.4
11	36 – 41.5	99.1	99.2	51.8	481	1.9	1.3	2.6	26.1	18.4
12	41.5 – 51	98.8	99.1	53.2	496	0.3	2.7	2.9	17.1	17.8
13	(51) – 100	–	–	–	455	0.3	5.7	4.3	5.5	16.0
14	100 – 150	–	–	–	302	0.2	2.5	1.9	< 5.0 <sup>4)</sup>	9.5
15	170 – 220	–	–	–	393	0.2	14.8	n. n.	< 5.0 <sup>4)</sup>	13.5

– nicht untersucht; n. n. nicht nachweisbar

<sup>1)</sup> Schichten 1–12: Proben des Profilblocks; Schichten 13–15: Proben der Bohrkerne

<sup>2)</sup> Da die Proben carbonatfrei sind, entspricht der TOC-Wert dem Gesamtkohlenstoffgehalt (TC).

<sup>3)</sup> Probenaufschluß: Königswasserauszug; Analyse: ICP-AES/-AAS (Hydridtechnik)

<sup>4)</sup> Die Pb-Werte liegen aufgrund des Blindwerts unterhalb der Nachweisgrenze von 5 mg/kg.

### E.3 Palynologische Untersuchungen in der Schwarzen Heide

Baumpollen		Nichtbaumpollen	
lateinisch	deutsch	lateinisch	deutsch
<i>Abies</i>	Tanne	<i>Artemisia</i>	Beifuß
<i>Acer</i>	Ahorn	<i>Calluna</i>	Heidekraut
<i>Alnus</i>	Erle	<i>Cerealialia</i>	Getreide
<i>Betula</i>	Birke	<i>Cyperaceae</i>	Sauergräser
<i>Corylus</i>	Hasel	<i>Ericaceae</i> p.p.	Heidekrautgewächse
<i>Fagus</i>	Buche	<i>Plantago</i> cf.	Wegerich
<i>Picea</i>	Fichte	<i>Plantago lanceolata</i>	Spitzwegerich
<i>Pinus</i>	Kiefer	<i>Rumex acetosella</i> -Typ	Kleiner Sauerampfer
<i>Quercus</i>	Eiche	<i>Scheuchzeria</i>	Blasenbinse
<i>Tilia</i>	Linde	<i>Secale</i>	Roggen
<i>Ulmus</i>	Ulme	<i>Sphagnum</i>	Torfmoos

Tabelle E.6: Im Pollendia-gramm der Schwarzen Heide (Anhang E.3, Abb. E.3) aufgeführte Taxa (u. a. Rauh u. Senghas 1973; Schauer u. Caspari 1996)

Abb. E.3: s. folgende Seite.

Pollendiagramm des Bohrkerns, der im Hochmoor Schwarze Heide parallel zu dem  $\gamma$ -spektrometrisch untersuchten Moorprofil gezogen wurde (verändert nach Seifert 1997 und M. Seifert-Eulen LfUG Freiberg, pers. Mitt. 2005)

Die Pollengehalte des Torfprofils sind in % angegeben, Bezugsgrundlage ist die Anzahl der Baumpollen ohne Hasel. Sumpfpf- und Wasserpflanzen sind schraffiert dargestellt.



## Danksagung

Mein ausdrücklicher Dank gilt meinem Doktorvater, Prof. Dr. S. Unterricker, der es mir ermöglichte, mein Promotionsvorhaben am Institut für Angewandte Physik der TU Bergakademie Freiberg (TU BAF) durchzuführen. Ihm verdanke ich die tatkräftige und kritisch-konstruktive Betreuung dieses interdisziplinären Forschungsprojekts. Prof. Dr. J. Matschullat (Institut für Mineralogie sowie Interdisziplinäres Ökologisches Zentrum, TU BAF) sei gedankt für Motivation und Betreuung, insbesondere in der Endphase meiner Promotion. Prof. Dr. G. Zibold danke ich für Unterstützung mit Rat und Tat seitens der FH Ravensburg-Weingarten. Ausgesprochen freundlich und motivierend stand auch Prof. Dr. P. Beuge (Institut für Mineralogie, TU BAF) der Realisierung meines Forschungsvorhabens bei. Mit Bestürzung erhielt ich Ende Juni 2001 in den USA die Nachricht seines Todes. Ihm gebührt Dank für die Betreuung des geowissenschaftlichen Schwerpunkts meiner Arbeit, die Ermöglichung ergänzender geochemischer Untersuchungen sowie die aktive Teilnahme an meiner ersten Probennahme im Georgenfelder Hochmoor.

Ebenso danke ich meinen ehemaligen Kollegen der Arbeitsgruppe „Anwendung kernphysikalischer Methoden“ des Instituts für Angewandte Physik, im besonderen Dr. D. Degering (Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik Rossendorf e. V.) für seine Bereitschaft zu fachlicher als auch menschlicher Diskussion sowie Frau B. Gürke für die geduldige und präzise Durchführung selbst unangenehmster Laborarbeiten. Dr. W. Preuße (Staatliche Umweltbetriebsgesellschaft Radebeul) sei für die fundierte Einführung in die Welt der  $\gamma$ -Spektrometrie und die fruchtbaren Diskussionen zu diesem Thema gedankt. Zu Dank verpflichtet bin ich zudem Dr. M. Dietrich (Deutsche Solar) für hilfreiche Unterstützung in technischen Fragen, und meiner Vorgängerin, Dipl.-Phys. T. Suworow (Institut für Anorganische Chemie, TU BAF), für die Bereitstellung unveröffentlichter Ergebnisse und anspornende Motivation während meiner Zeit als Doktorand. Ebenfalls gedankt sei den Werkstattmitarbeitern Dipl.-Ing. H. Zimmermann, H. Püschel und Meister D. Emmrich für wertvolle technische Beratung und die Anfertigung von Probennahme- und Aufbereitungsgeräten.

Dem ehemaligen Direktor des Instituts für Angewandte Physik, Prof. Dr. W. Stolz, danke ich für sein stetes Interesse an der Fertigstellung meiner Arbeit und die auch über den rein fachlichen Horizont hinausgehenden interessanten Diskussionen. Den Kollegen seiner Arbeitsgruppe „Lumineszenzdosimetrie/-datierung“, sei ebenfalls gedankt; mein besonderer Dank gilt hierbei Dr. U. Rieser (School of Earth Sciences, Victoria University of Wellington, Neuseeland) für jahrelange fachliche und persönliche Unterstützung und motivierende Freundschaft.

Prof. Dr. D. Hebert, Leiter der Arbeitsgruppe „Natürliche Radionuklide“ des Instituts für Angewandte Physik, danke ich für sein Interesse an den datierungstechnischen Aspekten meiner Arbeit, wertvollen Anregungen hierzu und der Durchführung einer Reihe von  $^{14}\text{C}$ -Datierungen an meinen Proben. Seinen Mitarbeitern sei ebenfalls ein Dankeschön ausgesprochen, im speziellen Dr. O. Nitzsche (Brenk Systemplanung), Dipl.-Phys. U. Zeiske (AMD Dresden) und Frau I. Börner.

Prof. Dr. J. Schmidt (Institut für Bohrtechnik und Fluidbergbau, TU BAF) gilt mein Dank für hilfreiche Informationen zur Bodenphysik und Bodenkunde. Für Hilfe bei der Durchführung ergänzender Untersuchungen in seinem Labor sei Frau M. Hahnewald gedankt.

Für mannigfaltige Hilfestellungen sowie wertvolle Hinweise und Anregungen danke ich Prof. Dr. N. Volkmann (Institut für Geologie, TU BAF), PD Dr. G. Meinrath (RER Consultants & TU BAF), Dr. J. Heinicke (Institut für Angewandte Physik, TU BAF), Dr. W. Cordts (Institut für Theoretische Physik, TU BAF).

Prof. Dr. G. Lindner (FB Physikalische Technik und Allgemeinwissenschaften, FH Coburg) gebührt Dank für die Initialzündung dieses Promotionsvorhabens – auf seiner Initiative beruhte die Kooperation des Instituts für Angewandte Physik (TU BAF) mit dem Institut für Angewandte Forschung, Schwerpunkt Strahlungsmeßtechnik, der FH Ravensburg-Weingarten. In diesem Zusammenhang sei auch die Hilfe der Mitarbeiter des Weingartner Labors in der Vorbereitungsphase des Projekts und bei meinen Probenahmen in Süddeutschland dankend erwähnt.

Zu Dank verpflichtet bin ich PD Dr. G. Kirchner (BfS Berlin), sowohl für engagierte wissenschaft-

liche als auch persönliche Unterstützung. Ihm verdanke ich einen produktiven Arbeitsaufenthalt in der Landesmeßstelle für Radioaktivität (FB Physik, Universität Bremen) zur Durchführung ergänzender Plutoniumanalysen. In diesem Kontext sei auch Frau R. Braatz für ihre Hilfe bei der Laborarbeit gedankt.

Dank gebührt auch PD Dr. L. Feldmann (Benningen am Neckar, Privatdozent an der TU Clausthal), der die Beprobung eines Hochmoors im Harz ermöglichte und eine Probennahme am Erzgebirgskamm persönlich unterstützte. Dr. C. Wolkersdorfer (Institut für Geologie, TU BAF) verdanke ich den Kontakt nach Clausthal. Aus seiner Aufgeschlossenheit ist eine jahrelange fruchtbare Zusammenarbeit und motivierende Freundschaft entstanden.

Für die gemeinsame Durchführung zweier Moorprobennahmen, ergänzende palynologische Untersuchungen und eine fruchtbare interdisziplinäre Zusammenarbeit danke ich Dipl.-Ing. (FH) M. Seifert-Eulen (LfUG Freiberg). Für technische Hilfe bei der Durchführung der aufwendigen Moorbeprobungen im Erzgebirge danke ich K.-H. Thuß (LfUG Freiberg).

Prof. Dr. L. Zöller (Lehrstuhl für Geomorphologie, Universität Bayreuth) danke ich für wertvolle Anregungen, insbesondere zur Diskussion meiner Ergebnisse aus bodengeographischer Sicht.

Dipl.-Biol. C. Brackhage (TU Dresden) gilt mein Dank für konstruktive Zusammenarbeit, die Durchführung gemeinsamer Probennahmen sowie hilfreiche Diskussionen.

PD J. Götze (Institut für Mineralogie, TU BAF), F. Berger (LfUG Radebeul), G. Hennersdorf (Deutscher Wetterdienst) und den Mitarbeitern der Wetterstation Zinnwald-Georgenfeld, v. a. E. Kamenz, sei ebenfalls gedankt, insbesondere für die Bereitstellung von Regenwasser- und Aerosol- bzw. Staubfilterproben.

Für die Genehmigung und Unterstützung meiner Probennahmen sowie Bereitstellung zusätzlichen Informationsmaterials zu den Beprobungsgebieten danke ich V. Geyer (Forstrevier Holzhau), G. John (Forstrevier Nassau), H. Schramm (Forstrevier Kriegswald), J. Heisig (Forstamt Olbernhau), Dipl.-Ing. S. Leistner (Untere Naturschutzbehörde, Landratsamt Aue-Schwarzenberg), H. Hartmann (Fremdenverkehrsbüro Zinnwald), Dipl.-Ing. R. Schifft (Nationalparkverwaltung Harz) und U. Schultze (Forsthaus Torfhaus).

Seit dem Beginn meiner Forschungstätigkeit im Ausland im Jahr 2000 erhielt ich wertvolle Anregungen und persönliche Unterstützung v. a. von Prof. Dr. G.R. Choppin (Department of Chemistry and Biochemistry, Florida State University, USA) und D. Boyce, MS (IsoRay Medical, Inc., USA). Mein Dank für jahrelange anspornende Motivation und stetige Bereitschaft zu weiterführenden Diskussionen gilt meinem deutsch-amerikanischen Mentor Prof. Dr. H.S. Plendl (Department of Physics, Florida State University, USA).

Schließlich bedanke ich mich auch bei all den Kollegen, die hier nicht namentlich erwähnt wurden, aber trotzdem zum Gelingen der vorliegenden Arbeit beigetragen haben.

Über den Tellerrand der eigenen Arbeit hinauszublicken, wurde in besonderem Maße von der Hanns-Seidel-Stiftung, München, unterstützt, welche mein Promotionsvorhaben nicht nur finanziell durch ein Graduiertenstipendium (1994–97) ermöglichte, sondern auch in zahlreichen Veranstaltungen wie Stipendiatenseminaren und Fachforen eine Erweiterung des geistigen und fachlichen Horizonts auf anderen Gebieten förderte. Ebenfalls dem interdisziplinären Gedanken folgend, unterstützte das DFG-Graduiertenkolleg „Geowissenschaftliche und Geotechnische Umweltforschung“ an der TU BAF meine Arbeit in den Jahren 1997–99 finanziell und ideell. Beiden Organisationen und ihren Vertretern gilt mein Dank, im speziellen Prof. Dr. B. Merkel (Institut für Geologie, TU BAF) und Dr. M. Antonow (Museum für Naturkunde, Chemnitz). Herzlich gedankt sei auch Prof. Dr. H.-J. Möller vom Institut für Experimentelle Physik, an dem ich 1999/2000 tätig war.

Meinen Freunden im In- und Ausland bin ich für ihre jahrelange freundschaftliche Unterstützung, Geduld und Verständnis sehr dankbar, im besonderen T. Cotterill, H. Dengler, M. Ketzel und F. Trinks. Besonderer Dank gilt meinen Eltern und meiner Schwester, die mir stets mit Rat und Tat zur Seite standen, und damit diese Arbeit erst ermöglichten. Die vorliegende Dissertationsschrift ist meiner „Teddy-Oma“ Hedwig Lippert, die leider noch vor der Fertigstellung der Arbeit verstarb, in liebevollem Gedenken gewidmet.