



DISSERTATION

Umweltradioaktivität nach dem Unfall von Fukushima

Ausgeführt zum Zwecke der Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der
technischen Wissenschaften
unter der Leitung von

Prof. Mag.rer.nat. Dr.techn. Georg Steinhauser

eingereicht an der Technischen Universität Wien – Atominstitut

von

Dipl.-Ing. Stefan Merz

Matrikelnummer e0326605

Brückengasse 3/1/6, 1060 Wien

Hauptbetreuung:

Prof. Mag.rer.nat. Dr.techn. Georg Steinhauser

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover

Mitbetreuung:

Ao.Univ.Prof.i.R. Dr.phil. Max Bichler

E141 – Atominstitut, Technischen Universität Wien

Wien, am

Unterschrift

Danksagung

Zu Beginn möchte ich mich bei meinem Dissertationsbetreuer Priv.-Doz. Mag. Dr. Georg Steinhauser bedanken. Im Zuge der langjährigen Zusammenarbeit konnte ich einen großen Teil der wichtigsten und spannenden Aspekte wissenschaftlicher Tätigkeit kennenlernen und mir zu Eigen machen. Dr. Steinhauser stellte zu jeder Zeit all seine wissenschaftliche und technische Erfahrung zur Verfügung und ermöglichte mir auch aufgrund seiner persönlichen Einstellung und Motivation Erlebnisse und Erkenntnisse, die über das rein wissenschaftliche Arbeitsfeld hinausgingen. Großen Dank möchte ich auch dafür aussprechen, dass sich Dr. Steinhauser auch nach seiner Berufung an die Colorado State University weiterhin für eine wissenschaftliche Zusammenarbeit zur Verfügung stellte und auch die anfallenden Betreuungsaufgaben bestmöglich ausfüllte.

Mein größter Dank gilt meiner Freundin Mag.^a (FH) Mag.^a Christina Eder, die privat mein stärkster Rückhalt war. Durch ihr Interesse und ihre Geduld sorgte sie dafür, dass ich mich mit dem wissenschaftlichen Thema und den zu bewältigenden Aufgaben größtenteils mit einer positiven Einstellung auseinandersetzen konnte. Auf dieser Basis war die Fertigstellung der vorliegenden Arbeit immer ein erstrebenswertes Ziel.

Wie auch im Zuge meiner Diplomarbeit danke ich Florian Schenter für seine langjährige Freundschaft, die motivierenden Gespräche und auch die Ablenkungen, die mir unsere Zusammentreffen verschafften.

Zuletzt möchte ich mich selbstverständlich auch herzlich bei meinen Eltern Herbert und Ingrid Merz, meinem Bruder Reinhard Merz und meiner Großmutter Leopoldine Sommer bedanken. Diese standen als Familie immer hinter mir und erhofften stets nur Gutes für mich und meine Zukunft.

Kurzfassung

Am 11. März 2011 löste ein Beben vor der japanischen Ostküste einen Tsunami aus, dessen Wellen an der Küste Japans zu Überflutungen bis zu 10 km weit in das Landesinnere führten. Im Fall des Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi zerstörten die Überschwemmungen die Stromversorgung und die Notfallgeneratoren des Kernkraftwerks, weshalb die Kühlung der Reaktoren nicht aufrecht erhalten werden konnte. Aufgrund der nichtabgeführten Nachzerfallswärme kam es in Folge temperaturbedingt zum Auftreten einer Redox-Reaktion zwischen dem Zirkonium der Hüllrohre des Brennstoffs und Wasserdampf. Die so entstandenen großen Mengen an Wasserstoff vermischten sich mit dem Luftsauerstoff in den Reaktorgebäuden und gelangten durch minimale Energiezufuhr zur Explosion. Auf diese Weise wurden radioaktive Gase und flüchtige Radionuklide in die Umwelt freigesetzt.

Die Identifikation der Freisetzungquellen und die Feststellung des Ausmaßes der Freisetzung sind international sowohl aus politischer als auch aus strahlenschutztechnischer Sicht von großer Bedeutung. Wichtige Ziele der radioanalytischen Betrachtung von Umweltproben sind im Allgemeinen die Feststellung der Herkunft, des Alters und die Bestätigung der Authentizität des radioaktiven Materials.

Um die Signatur der Radionuklidfreisetzung zu plausibilisieren und die Differenzierbarkeit der einzelnen Freisetzungseignisse zu untersuchen, wurde die zeitliche Entwicklung und die räumliche Verteilung der $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentration in japanischen Lebensmittelproben analysiert. Die Lebensmittelproben, die im Zuge der in Japan durchgeführten Lebensmittelüberwachung gewonnen wurden, konnten so als geographisch gut lokalisierte und einfach zugängliche Umweltproben eingesetzt werden. Um die Aussagekraft der gewonnenen Erkenntnisse zu beurteilen, wurden diese mit den Ergebnissen unabhängiger Studien verglichen.

Die Betrachtung der kumulierten ^{134}Cs - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration der japanischen Lebensmittelproben, zugeordnet zu ihrem Herstellungsort, gab Aufschluss darüber, auf welche Präfekturen der Unfall von Fukushima Dai-ichi die größten Auswirkungen hatte. Eine Auftrennung in die einzelnen Lebensmittelarten und die Analyse der zeitlichen Entwicklung der Radiocäsiumkonzentrationen ermöglichte die Identifikation jener Nahrungsmittel, die aus radioökologischer Sicht einen besonders sensiblen Organismus aufweisen. Die Ergebnisse ließen auch Rückschlüsse über die Relevanz von Akkumulationseigenschaften der Lebensmittel, Aufnahmepfaden und Einflussmöglichkeiten des Menschen auf die Erzeugung zu.

Um eine Aussage über die Langzeitentwicklung von ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen in Lebensmitteln und dessen gesundheitsgefährdendes Potential ableiten zu können, wurde auf Lebensmittelproben, die aus der Zeit vor dem Reaktorunfall stammen, zurückgegriffen. Die Analyse von Stichproben der japanischen Lebensmittelüberwachung und von kontinuierlich gewachsenen Messreihen lieferte Einblicke in die relevanten Aufnahmemechanismen. Die Ergebnisse offenbarten im Zusammenhang der Lebensmittelsicherheit Abweichungen zwischen den tatsächlich auftretenden $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnissen und dem im Zuge der gültigen Verordnungen angenommenen impliziten Verhältnis zwischen ^{90}Sr und ^{137}Cs .

Um das Ausbreitungsverhalten der kontaminierten Luftmassen, die Deposition von Radionukliden und die mögliche Gesundheitsgefährdung aufzuarbeiten, wurden Luft-, Regen-, Boden- und Grasproben aus Österreich genommen und auf Daten von kooperierenden Einrichtungen zurückgegriffen. Die Analyse der zeitlichen Entwicklung unter Berücksichtigung der geographischen Verteilung ermöglichte den Vergleich mit internationalen Ausbreitungsstudien und brachte neue Erkenntnisse über die Lokalisierung des radioaktiven Materials im Transportmedium. Um die durchgeführten Studien zu testen, wurde das Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) Model der National Oceanic and Atmospheric Administration-Air Resources Laboratory (NOAA-ARL) benutzt.

Im Zuge der vorliegenden Arbeit konnten in Österreich genommene Schilddrüsenproben als alternative Biomonitore genutzt und deren Leistungsfähigkeit mit z.B. von der Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) als Standard verwendeten Radioiodmessungen mittels Luftfilter verglichen werden. Die Messergebnisse lieferten Erkenntnisse über die Relevanz der Aufnahmemechanismen wie Ingestion und Inhalation, den Einfluss der Nahrung der Tierarten und auch über das Ausmaß der gesundheitlichen Gefährdung. Eine Gegenüberstellung der Entwicklung der ^{131}I -Aktivitätskonzentration in verschiedenen Umweltproben verdeutlichte die Vor- und Nachteile betreffend räumlicher und zeitlicher Auflösung, Dauer der Nachweisbarkeit, Verfügbarkeit und der Messaufwände der unterschiedlichen Radionuklidmonitore. Eine Verifikation der gewonnenen Erkenntnisse konnte anhand eines zweiten unabhängigen Freisetzungseignisses im Herbst 2011 in Ungarn durchgeführt werden.

Für ausgewählte Lebensmittel- und Umweltproben wurde anhand der gesetzlichen Vorgaben das Gefahrenpotential eingestuft. Für ein intuitiv besseres Verständnis wurde die Größe der jährlichen Tageskonsumation eingeführt und die Aktivitätskonzentrationen verschiedener Lebensmittelproben aus Japan und Österreich und die gültigen gesetzlichen Grenzwerte diskutiert. Im Zuge der Diskussion der Entwicklung der gesetzlichen Regularien wurden diverse Unstimmigkeiten entdeckt. Dies betraf die Wahl der

Grenzwerte, die Annahmen bezüglich des Lebensmittelwarenkorbes, das implizite Auftreten und die Entwicklung von ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen in Nahrungsmitteln und die zukünftige Anwendbarkeit der gültigen Verordnungen. Neben den radiologischen Folgen stellen auch die psychischen und sozialen Auswirkungen eines Reaktorunfalls, welche in einem Überblick thematisiert wurden, eine große Belastung der betroffenen Bevölkerung dar.

Abstract

On 11th March 2011 an earthquake in the Pacific Ocean located east of the Japanese coast led to a tsunami that caused flooding of the Japanese coast up to 10 km towards inland. In the case of the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant the flooding caused the destruction of the electric power supply and the emergency power units of the facility. For that reason the cooling of the reactors was no longer ensured. Due to the decay heat a redox reaction between the zirconium of the fuel cladding and water vapor occurred. This led to the build-up of large amounts of hydrogen that mixed with the oxygen inside of the reactor buildings and came to an explosion after minimal energy input. In this way radioactive gases and volatile radionuclides were released into the environment.

Source identification and determination of the release extent are highly important for both political as well as radiation security reasons worldwide. Important goals of the radioanalytical examination of environmental samples are the identification of the origin, age, and the confirmation of the authenticity of the radioactive material.

For verifying the signature of the radionuclide release and for investigating the differentiability of the individual release events, the temporal development and the areal distribution of the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio in Japanese foods were analyzed. The food samples that were collected in Japan in the course of the local food monitoring campaign, were utilized as geographically well-localized and easily accessible environmental samples. The significance of the gained findings could be evaluated by comparing them with the results of independent studies.

The examination of the cumulative ^{134}Cs and ^{137}Cs activity concentration of the Japanese food samples, distinguished with respect to the place of production, gave information about which prefecture suffered the strongest impact of the Fukushima nuclear accident. A distinction between the different types of foods and the analysis of the temporal development of the radiocesium activity concentration allowed for the identification of foods that exhibit a radioecologically sensitive organism. The results also allowed conclusions about the relevance of accumulation characteristics of the foodstuffs, absorption pathways and the influence of humans on the production.

For deducing a conclusion about the long-time development of the ^{90}Sr activity concentration in foodstuffs and its harmful potential, foods, that were sampled prior to the nuclear accident, were accessed. The analysis of control samples of the Japanese food monitoring program and continuously increased test series provided an insight into the relevance of the absorption mechanism. With respect to food safety the results revealed

deviations between the actually occurring $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ activity ratios and the assumptions about the implicit ratio between ^{90}Sr and ^{137}Cs that were taken in the course of the effective regulations.

Air, rain, soil and grass samples were taken in Austria and data from cooperating institutions was accessed to investigate the dispersion of contaminated air masses, the deposition of radionuclides and the potential health risks. The analysis of the temporal development in consideration of the geographic distribution allowed for the comparison with international dispersion studies and revealed new findings on the localization of the radioactive material within the transport medium. In order to test the hypothesis made in the course of this study, the Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) Model of the National Oceanic and Atmospheric Administration-Air Resources Laboratory (NOAA-ARL) was used.

In the course of the current studies, thyroid samples of Austrian wild animals could be used as alternative biomonitor and their performance could be compared amongst others with the radioiodine measurement via air sampling which is utilized by the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) as standard procedure. The results provided insight into the relevance of absorption mechanisms such as ingestion and inhalation, the impact of the nourishment of the different species and the extent of the health hazard. The comparison of the development of the ^{131}I activity concentration of the different environmental samples clarified the advantages and the disadvantages concerning areal resolution, duration of traceability, availability and measuring expenditure of the various radionuclide monitors. The gained knowledge could be verified on the basis of a second independent release event that occurred in fall 2011 in Hungary.

The health risks of selected food and environmental samples were assessed by means of the effective legal regulations. To provide for an intuitive and better understanding, the quantity of the annual daily consumption was introduced and the activity concentrations of different Japanese and Austrian food samples and the effective regulatory limits were discussed. In the course of the examination of the development of the legal regulations various disagreements were discovered. This applied to the choice of the regulatory limits, assumptions concerning the food basket, the implicit occurrence and the development of ^{90}Sr activity concentrations in foods and the future applicability of the effective regulations. In addition to the radiologic consequences, the mental and social aftermath of a nuclear accident that has been discussed at a glance, is a great burden to the affected population as well.

Inhaltsverzeichnis

Danksagung	iii
Kurzfassung	v
Abstract	ix
Inhaltsverzeichnis	xi
Präambel	xiii
1. Einleitung	1
1.1. Der Nuklearunfall im Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi	2
1.2. Freisetzung von Radionukliden aus den Brennstäben	4
1.2.1. Zerstörung eines Brennstabes	4
1.2.2. Physiko-chemische Verteilung der freigesetzten Radionuklide	6
1.2.3. Gefährdungsmechanismen.....	8
1.3. Radionuklidmonitoring – Messungen der Umweltradioaktivität	9
1.3.1. Radiocäsiummonitoring	14
1.3.1.1. Analyse des Aktivitätsverhältnisses von ^{134}Cs zu ^{137}Cs	14
1.3.1.1.1. Plausibilisierung des $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses	14
1.3.1.1.2. Unterscheidbarkeit der beschädigten Reaktoren als Freisetzungsquellen.....	18
1.3.1.1.3. Zeitliche Entwicklung des $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses	20
1.3.1.2. Radiocäsiumaktivitätskonzentration der japanischen Nahrungsmittelproben	23
1.3.1.2.1. Einfluss der Radionuklidfreisetzungen auf die japanischen Präfekturen.....	23
1.3.1.2.2. Radiocäsiumkonzentration in pflanzlichen Lebensmitteln	27
1.3.1.2.3. Radiocäsiumkonzentration in tierischen Lebensmitteln.....	30
1.3.1.2.4. Identifikation radioökologisch sensibler Lebensmittel.....	33
1.3.1.3. Analyse des Aktivitätsverhältnisses von ^{90}Sr zu ^{137}Cs	36
1.3.1.3.1. Gesetzliche Annahmen bezüglich des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses	36
1.3.1.3.2. Zeitliche Entwicklung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses in Lebensmitteln vor dem Reaktorunfall von Fukushima	37
1.3.2. Radioiodmonitoring.....	42
1.3.2.1. Radioiod in Luft	43
1.3.2.1.1. Ausbreitungsverhalten von Radioiod über Europa	43
1.3.2.1.2. Ausbreitungsverhalten von Radioiod über Österreich	45
1.3.2.1.3. Plausibilisierung des Ausbreitungsverhaltens mittels HYSPLIT Simulation	49

1.3.2.2.	Radioiod in Regenwasser	50
1.3.2.3.	Radioiod in tierischen Schilddrüsen	53
1.3.2.3.1.	<i>Akkumulation von Radioiod</i>	53
1.3.2.3.2.	<i>Vergleich der verschiedenen Umweltproben</i>	58
1.4.	Rechtliche und gesundheitliche Aspekte der Strahlenbelastung	62
1.4.1.	Gesetzliche Regulatorien.....	66
1.4.1.1.	Aktivitätsgrenzwerte für die Konzentration von Radionukliden in Lebensmitteln	66
1.4.1.1.1.	<i>Entwicklung der gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerte</i>	66
1.4.1.1.2.	<i>Inkonsistente Aspekte der gesetzlichen Verordnungen</i>	69
1.4.1.2.	Aktivitätsgrenzwerte für die Kontamination von Bodenaushub und Nutzmaterialien	74
1.4.1.3.	Dosisgrenzwerte für Einzelpersonen der Bevölkerung	76
1.4.2.	Dosisaspekte und gesundheitliche Auswirkungen	76
1.4.2.1.	Dosisberechnungen und Aufnahmeszenarien.....	77
1.4.2.1.1.	<i>Japanische Lebensmittelproben</i>	77
1.4.2.1.2.	<i>Gesetzliche Aktivitätsgrenzwerte in Nahrungsmitteln</i>	80
1.4.2.1.3.	<i>Pilze aus Österreich und Europa</i>	81
1.4.2.1.4.	<i>Radionuklidkonzentration in Luft</i>	82
1.4.2.2.	Radionuklidkonzentrationen in österreichischen Bodenproben.....	84
1.4.2.3.	Indirekte gesundheitliche Belastung aufgrund der radiologischen Bedrohung 86	
2.	Publikationen.....	91
2.1.	Eignung der behördlichen Lebensmittelüberwachung zur Identifikation von Freisetzungsquellen von Reaktornukliden und Diskussion rechtlicher und ökologischer Aspekte	91
2.2.	Analyse der zeitlichen Entwicklung verschiedener Radionuklidkonzentrationen in japanischen Lebensmitteln vor und nach dem Reaktorunfall von Fukushima	103
2.3.	Analyse der zeitlichen Entwicklung der ⁹⁰Sr- und ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentration in japanischen Lebensmitteln und der auftretenden Aufnahmemechanismen	117
2.4.	Verwendung von Schilddrüsen als Biomonitore für ¹³¹I in Österreich und Gegenüberstellung der Eigenschaften verschiedener Umweltmonitore.....	123
2.5.	Verfolgung und Plausibilisierung der Radioaktivitätsfreisetzungen aus Fukushima in Österreich im europäischen Kontext	131
3.	Zusammenfassung.....	141
	Literaturnachweis	145

Präambel

Im Zuge dieser Doktorarbeit wurden fünf Publikationen nach einem entsprechenden Peer-Review-Verfahren in SCI-indizierten Fachzeitschriften veröffentlicht. Die Zusammenhänge zwischen den Publikationen und der Kontext zur wissenschaftlichen Literatur werden in Kapitel 1. – „Einleitung“ ausführlich beschrieben.

Die veröffentlichten Arbeiten befassen sich mit der Identifikation der Freisetzungsquellen anhand von Lebensmittelproben, die als geographisch gut lokalisierte Umweltproben dienen. Die Radionuklidkonzentrationen in den Lebensmitteln ermöglichten die Analyse und Plausibilisierung der Ereignisse nach dem 11. März 2011 in Fukushima. Die gesammelten Informationen über die Radionuklidkontamination der Nahrungsmittel gaben Aufschluss über die Auswirkungen in den betroffenen japanischen Präfekturen, die Relevanz der verschiedenen Lebensmittelarten und das Auftreten und den Einfluss von unterschiedlichen Aufnahmemechanismen und -pfaden. Die Veröffentlichungen beinhalten eine Diskussion der aufgetretenen und der zu erwartenden Aktivitätskonzentrationen verschiedener Radionuklide in japanischen Lebensmitteln und der sich dadurch ergebenden Dosisaspekte aus rechtlicher und gesundheitlicher Sicht.

- D1.** Merz, S.; Steinhauser, G.; Hamada, N. Anthropogenic radionuclides in Japanese food: environmental and legal implications. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47 (3), 1248–56.
- D2.** Merz, S.; Shozugawa, K.; Steinhauser, G. Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.* **2015**, 49 (5), 2875–2885.
- D3.** Merz, S.; Shozugawa, K.; Steinhauser, G. Effective and ecological half-lives of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in wheat and rice in Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **in press**, DOI: 10.1007/s10967-015-4352-6.

Der Einfluss des Reaktorunfalls von Fukushima auf Österreich wurde anhand verschiedener Umweltproben untersucht. Die gewonnenen Erkenntnisse über die Radionuklidkonzentration in Österreich und deren Ausbreitungsverhalten wurden mit bereits veröffentlichten europäischen Daten verglichen und durch unabhängig durchgeführte Simulationen überprüft. Die Arbeiten zu den Publikationen offenbarten zusätzliche Details bezüglich des Ausbreitungsverhaltens der Radionuklide im Transportmedium. Neben Luft-, Regen- und Bodenproben wurden Schilddrüsen von österreichischen Wildtieren als Biomonitore genutzt und die Eigenschaften der

unterschiedlichen Umweltproben als Radionuklidmonitore verglichen. Die Vor- und Nachteile der Schilddrüsen wurden dabei auch im Vergleich zu den von der Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) standardmäßig verwendeten Radioiodmessungen mittels Luftfilter diskutiert. Anhand eines unabhängigen Freisetzungseignisses im Herbst 2011 konnte die Leistungsfähigkeit der Schilddrüsen als Biomonitor verifiziert werden.

- D4.** Steinhauser, G.; Merz, S.; Kübber-Heiss, A.; Katzlberger, C. Using animal thyroids as ultra-sensitive biomonitors for environmental radioiodine. *Environ. Sci. Technol.* **2012**, 46 (23), 12890–12894.
- D5.** Steinhauser, G.; Merz, S.; Hainz, D.; Sterba, J. H. Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Pollut. Res.* **2013d**, 20 (4), 2527–2534.

1. Einleitung

Am 11. März 2011 kam es aufgrund eines Tsunami, ausgelöst durch ein Erdbeben vor der Ostküste Japans, zu weitreichenden Überschwemmungen am Reaktorgelände des Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi. Die Wassermassen zerstörten die Notfallgeneratoren der Kernkraftwerksanlage, was zu einem Temperaturanstieg in den Reaktoren und der Beschädigung der Brennelemente führte. Am 12. März kam es zur ersten Explosion in einem der Reaktorgebäude und zur Freisetzung radioaktiver Gase und flüchtiger Radionuklide in die Umwelt.

Die Identifikation der Freisetzungquellen und die Feststellung des Ausmaßes der Freisetzung sind international sowohl aus politischer als auch aus strahlenschutztechnischer Sicht von großer Bedeutung. In diesem Sinne repräsentiert die nukleare Forensik die zur Aufarbeitung der Ereignisse notwendigen wissenschaftlichen Mittel. Wichtige Ziele der Bestimmung der Radionuklidkonzentration verschiedener Umweltproben und der entsprechenden Analyse der Ergebnisse sind im Allgemeinen die Feststellung der Herkunft, des Alters, die Unterscheidung zwischen natürlichem, kommerziellem und militärischem Ursprung beziehungsweise die Bestätigung der Authentizität des radioaktiven Materials. Die eindeutige Bestimmung des Ursprungs einer Radionuklidfreisetzung ist unter anderem im Zuge der Überwachung des Nuklearwaffentestverbots für die Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) von größter Bedeutung. Die Identifikation der freigesetzten Radionuklide und des Ausmaßes der Freisetzung ermöglicht im Fall einer kommerziellen Quelle eine Einschätzung über den Grad der Beschädigung des Reaktors und des Reaktorkerns. Ein anhaltendes Monitoring bietet dabei teilweise die Möglichkeit der Überwachung der weiteren Ereignisse am Unfallort wie das Auftreten nachfolgender Freisetzungen oder Kritikalität des Reaktorkerns. Die Ausbreitung radioaktiver Gase und Aerosole und deren Deposition ist stark von den physikalischen und chemischen Eigenschaften der Radionuklide bzw. der Form, in welcher diese auftreten, abhängig. Zum weltweiten Schutz der Bevölkerung ist es notwendig, die Ausbreitungspfade der radioaktiven Freisetzung mitzuverfolgen bzw. nachzuvollziehen und den entsprechenden Risiken der Aufnahmepfade wie Ingestion und Inhalation vorzubeugen. Eine konsequente anhaltende Beobachtung der identifizierten Kontaminationen ermöglicht auch das Reflektieren der geltenden Gesetzgebung und der Wirksamkeit der getroffenen Maßnahmen zum Schutz der Bevölkerung.

Im Zuge der vorliegenden Arbeit wurden umfassende Analysen im Zusammenhang mit den verschiedenen Aspekten der Aufarbeitung des Reaktorunfalls von Fukushima durchgeführt. Die Zusammenarbeit mit dem Forschungsinstitut für Wildtierkunde und Ökologie (FIWI), der Österreichischen Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit (AGES) und auch dem Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI) in Japan ermöglichte die Probennahme verschiedener Umweltproben, den Austausch wertvoller Datensätze und dadurch die hier präsentierten und im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Aufarbeitungen und Interpretationen der gesammelten Informationen.

1.1. Der Nuklearunfall im Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi

Am 11.März 2011 um 14:46 Uhr Ortszeit löste ein Beben der Stärke 9,0 auf der Momenten-Magnituden-Skala vor der japanischen Ostküste einen Tsunami aus, dessen Wellen auf dem Weg zur japanischen Insel Honshu bis zu 40,5 Meter Höhe erreichten (Hamada & Ogino 2012). Das Epizentrum des Bebens lag etwa 163 km nordöstlich von Fukushima (Thielen 2012). Etwa eine Stunde später erreichten die Wellen des Tsunami die Küste Japans, wo es in Folge zu Überflutungen bis zu 10 km weit ins Landesinnere kam (Hamada & Ogino 2012). Im Zuge der Überschwemmungen verloren 15883 Menschen ihr Leben bzw. gelten 2667 Personen seither als vermisst (Hachiya et al. 2014). Es wurden 561 km² Küstengebiet verwüstet (Yasuda et al. 2012). Weltweite Betroffenheit und Sorge über die vorherrschende Situation lösten jedoch vor allem die Beschädigungen der an der Küste errichteten kerntechnischen Anlagen aus. Am 11.März um 19:03 Uhr wurde durch Naoto Kan, dem Premierminister der japanischen Regierung, der nukleare Notstand ausgerufen (Hamada & Ogino 2012).

Die an der Ostküste eintreffenden Wassermassen gefährdeten vierzehn Reaktorgebäude von vier verschiedenen Kernkraftwerken. Betroffen waren die Kraftwerke Onagawa, Fukushima Dai-ichi, Fukushima Dai-ni und Tokai Dai-ni (Baba 2013). Im Fall der Kraftwerke Fukushima Dai-ni, Onagawa und Tokai waren die baulichen Schutzmaßnahmen, im Hinblick auf die dort registrierte Höhe des Tsunami, ausreichend bzw. führten die Überschwemmungen nicht zu dem Ausfall der sicherheitstechnischen Einrichtungen auf dem Kraftwerksgelände. In Fukushima Dai-ichi traf eine etwa 13 Meter hohe Welle ein, welche sowohl die Höhe des Schutzwalls als auch jene des

Kraftwerksgeländes, das ca. 10 Meter über Meeresniveau liegt, überstieg (Lipsy 2013). Die Überflutungen zerstörten die Stromversorgung und auch die Notfallgeneratoren des Kernkraftwerks, wodurch die Kühlung der Reaktoren nicht mehr gewährleistet werden konnte.

Das Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi bestand zum Unfallzeitpunkt aus sechs Reaktoren mit einer Gesamtleistung von insgesamt 4696 MWe (NISA 2011, Marzo 2014). Zum Zeitpunkt des Bebens um 14:46 Uhr waren die Reaktoren Fukushima Dai-ichi Unit 4 bis 6 aufgrund regelmäßiger Inspektionsarbeiten abgeschaltet. Die Reaktoren Fukushima Dai-ichi Unit 1 bis 3 wurden sofort nach der seismischen Registrierung des Bebens heruntergefahren. Eine Stunde nach dem Abschalten eines Reaktors wird aufgrund der Nachzerfallswärme noch etwa 1 % der nominalen thermischen Leistung produziert. Zum Zeitpunkt des Eintreffens des Tsunami wurden in Unit 1 etwa 22 MW Leistung bzw. in den Units 2 und 3 ca. 33 MW Leistung erzeugt (DOE 1993, WNA 2014). Aufgrund der nichtabgeführten Wärme kam es in der Folge zu einer Beschädigung der Brennelemente (partielle Kernschmelze). Durch die dabei temperaturbedingt auftretende Redox-Reaktion von Zirkonium (Bestandteil der aus Zirkalloy bestehenden Hüllrohre des Brennstoffs) und Wasserdampf (Gl. 1) entstanden große Mengen an Wasserstoff (Schwantes et al. 2012).



Die aufgetretenen Mengen an Wasserstoff wurden für die Vorgänge in Reaktorgebäude 1 auf 300 bis 600 kg H₂ und für Reaktorgebäude 2 und 3 auf jeweils 300 bis 1000 kg H₂ abgeschätzt (Braun 2011). Um den Druck in den Reaktordruckbehältern zu reduzieren wurde der Wasserstoff zusammen mit radioaktiven Gasen in das Innere der Reaktorgebäude geleitet (Schwantes et al. 2012). Diese Maßnahme führte dazu, dass sich der Wasserstoff mit dem Luftsauerstoff in den Reaktorgebäuden vermischte und durch minimale Energiezufuhr von außen in drei Gebäuden explodierte. Auf diese Weise wurden die Reaktorgebäude 1 und 3 sehr stark beschädigt. Auch große Teile des Reaktorgebäudes 4 wurden durch eine Wasserstoffexplosion zerstört, wobei der dafür verantwortliche Wasserstoff bei der Entlüftung des Reaktors 3 in das Gebäude des Reaktors 4 gelangte (Schwantes et al. 2012, TEPCO 2012, Marzo 2014). Die ebenfalls aus den Druckbehältern abgelassenen radioaktiven Gase und flüchtigen Radionuklide wurden auf diesem Weg in die Umwelt freigesetzt. Auch im Falle des Reaktorgebäudes 2 kam es zur Freisetzung großer Mengen von radioaktiven Stoffen aus dem Reaktor. Der Druckanstieg im Reaktordruckbehälter führte zu einem Bruch des Behälters und der Beschädigung des Confinements, weshalb die radioaktiven Gase nicht zunächst in die Halle des Reaktorgebäudes geleitet wurden (Mohrbach et al. 2011, NISA 2011, Steinhauser et al. 2014, Zheng et al. 2014). Die radioaktiven Gase und der hochexplosive

Wasserstoff aus Reaktor 2 wurden direkt in die Umwelt freigesetzt wodurch das Reaktorgebäude grundsätzlich in Takt blieb.

1.2. Freisetzung von Radionukliden aus den Brennstäben

1.2.1. Zerstörung eines Brennstabes

Um einen Reaktor abzuschalten, muss zunächst die Kettenreaktion in den Brennelementen gestoppt werden. Dies geschieht mittels der Regelstäbe, welche ausgehend von Normalbetrieb in den Reaktorkern eingefahren werden. Obwohl dadurch keine weiteren Spaltungen mehr durch Neutronenbeschuss ausgelöst werden, erzeugt der Reaktorkern weiterhin Wärme. Diese Nachzerfallswärme oder auch Nachwärme ist das Ergebnis des radioaktiven Zerfalls der Spalt- und Aktivierungsprodukte im Brennstoff und ist von den Regelstäben unbeeinflusst. Die auftretende Nachzerfallswärme ist dabei abhängig von der Betriebsdauer und der Leistung, bei welcher der Reaktor zuvor betrieben wurde. Sie beträgt direkt nach dem Abschalten 5 bis 8 % der thermischen Leistung vor dem Abschalten des Reaktors (Demtröder 2004). Auch durch eine Schnellabschaltung aufgrund einer Notsituation, so wie es bei den Reaktoren von Fukushima Dai-ichi der Fall war, lässt sich dieser Effekt nicht beeinflussen sondern nur durch Kühlung des Brennstoffs kontrollieren.

Ein Großteil der Spaltprodukte besitzt nur eine sehr kurze Halbwertszeit und gibt somit seine Zerfallsenergie bereits innerhalb der ersten Sekunden oder Minuten nach dem Abschalten ab. Die gesamte Nachzerfallswärme ergibt sich als Überlagerung der Abklingfunktionen der einzelnen bei der Spaltung entstandenen Radionuklide. Die entstehende Nachzerfallswärme lässt sich mit folgender Formel näherungsweise berechnen:

$$P(t) = P_0 \cdot 6,22 \cdot 10^{-2} \cdot (t^{-0,2} - (T_0 + t)^{-0,2}) \quad (\text{Gl. 2})$$

Dabei ist $P(t)$ die Nachzerfallsleistung P zum Zeitpunkt t nach dem Abschalten. P_0 ist die Leistung, mit der der Reaktor für die Zeit T_0 vor dem Abschalten betrieben wurde. Die Formel besitzt für den Zeitraum von ca. 10 Sekunden bis 100 Tage nach der Abschaltung Gültigkeit (Todreas & Kazimi 1990).

Um den Reaktor vollständig abzuschalten und den Brennstoff vor Schaden zu bewahren, muss der Reaktorkern nach dem Einfahren der Regelstäbe noch einige Zeit aktiv gekühlt werden. Wenn das Kühlsystem des Reaktors Atmosphärendruck aufweist und die Temperatur auf unter 93°C gesunken ist, kann der Reaktor als abgeschaltet betrachtet werden. Man nennt diesen Zustand auch Cold Shutdown (NRC 2014).

Im Falle des Kernkraftwerksunfalls von Fukushima konnte aufgrund der unterbrochenen Stromversorgung und der zerstörten Notfallgeneratoren die Kühlung nicht ausreichend lange aufrechterhalten werden. Ist die notwendige Kühlung eines Reaktors nicht gewährleistet, so steigt die Temperatur im Brennstab und folglich auch im Reaktordruckbehälter an. Als Folge des Temperaturanstiegs innerhalb der Brennelemente kann es zu einer Beschädigung der Hüllrohre und des Brennstoffs, der Freisetzung von Radionukliden bis hin zur vollständigen Kernschmelze des Reaktorkerns kommen. Die Emission von Spaltprodukten aus dem Brennstab ist dabei von der chemischen Form, in welcher diese vorliegen, der Spaltproduktverteilung und der Mobilität innerhalb des Brennelements abhängig. Diese Abhängigkeiten sind selbst wieder Funktionen von Temperatur, Druck und den vorangegangenen Betriebsdauern (NEA 1994).

Die bei unterschiedlichen Temperaturen freigesetzten Radionuklide lassen sich in vier Kategorien einteilen. Die flüchtigsten Radionuklide sind dabei die Edelgase Xe und Kr. Sie liegen als fein verteilte Blasen in den Brennstoffpellets vor und werden bei Temperaturen um 1000 K bereits freigesetzt. Die Ausdehnung dieser Blasen ist dabei abhängig von der Korngröße des Brennstoffes. Bei Temperaturen ab 1000 K beginnt die Ag-In-Cd-Legierung der Regelstäbe zu schmelzen (NEA 1994, Lewis et al. 2008, Burns et al. 2012). Zu den volatilen Radionukliden (2. Kategorie) zählen die Radionuklide der flüchtigen Elemente Te, I und Cs, sowie Tritium. Diese werden im Allgemeinen ähnlich wie Edelgase freigesetzt, allerdings bilden diese Nuklide auch Verbindungen, dessen Freisetzungsvermögen stark temperaturabhängig ist. Die Freisetzungsrate von Cs erreicht bei etwa 1250 K ein Maximum. Im Bereich von ca. 1000 K bis 1400 K treten plastische Verformungen und Brüche an der Hülle der Brennstäbe auf, welche die Freisetzung von Radionukliden aus den Brennelementen begünstigen (NEA 1994, Hiernaut et al. 2008, Lewis et al. 2008). Innerhalb dieses Temperaturbereichs ab etwa 1170 K beginnt die Redox-Reaktion zwischen dem Zr der Hüllrohre und Wasser. Dadurch kommt es bei diesen Temperaturen neben der Freisetzung von volatilen Radionukliden auch zur Bildung von Wasserstoff (Schwantes et al. 2012). Bei ungefähr 1700 K beginnt der rostfreie Stahl der Brennstäbe zu schmelzen (Lewis et al. 2008). Steigt die Temperatur im Brennelement weiter an, so werden auch Radionuklide der semi-volatilen Elemente (Sr, Ru, Ba) freigesetzt (NEA 1994). Bei etwa 3100 K beginnt zuletzt auch die UO₂-Verbindung zu schmelzen. Bei so hohen Temperaturen können auch jene Spaltprodukte freigesetzt werden, welche im Normalfall in fester Form im Urndioxid

gebunden vorliegen. Dazu zählen Lanthanoide (etwa La oder Ce) und Actinoide wie Np und Pu. Die vorherrschenden Temperaturen können in Extremfällen so stark ansteigen, dass auch schwerflüchtige Brennstoffbestandteile teilweise in die Gasphase übergeführt werden (NEA 1994, Lewis et al. 2008).

Im Zuge des Reaktorunfalls in Fukushima haben die in den Reaktorkernen aufgetretenen Temperaturen den Wert von 2670 K nach einer Analyse von Kirchner et al. (2012) nicht überschritten. Nach dem Nuklearunfall in Tschernobyl konnten, im Gegensatz zu Fukushima, in Umweltproben neben radioaktivem Te, I und Cs auch signifikante Aktivitäten von radioaktivem Sr, Ba, Ce sowie Aktiniden nachgewiesen werden (OECD & NEA 2003).

1.2.2. Physiko-chemische Verteilung der freigesetzten Radionuklide

Die freigesetzten Radionuklide können sich in ihrer chemischen und physikalischen Form unterscheiden. Dies ist für verschiedene Elemente leicht nachvollziehbar, aber auch ein einzelnes Nuklid kann unterschiedliche chemische Bindungen eingehen und sowohl gasförmig als auch als Aerosol aus einem beschädigten Brennelement freigesetzt werden (NEA 1994, Mietelski et al. 2014). Edelgase wie Xenon, welches zu den flüchtigsten Radionukliden zählt, verlassen den Brennstab gasförmig (Burns et al. 2012). Die zur Gruppe der volatilen Radionuklide zählenden Isotope ^{134}Cs und ^{137}Cs werden in partikulärer Form als Aerosole freigesetzt. Im Fall von radioaktivem Iod, welches aus einem zerstörten Brennstab entweicht, treten beide physikalischen Formen auf. Radioiod wird demnach sowohl gasförmig als auch partikulär freigesetzt (Marzo 2014, Mietelski et al. 2014). Selbst in partikulärer Form treten mit Iodid und Iodat zwei chemische Spezies von Iod auf. Abhängig von den auftretenden Temperaturen und der Art der Freisetzung wird auch das Brennmaterial gasförmig freigesetzt oder kann zum Beispiel aufgrund einer Explosion auch als makroskopisches Bruchstück auftreten (NEA 1994, OECD & NEA 2003).

Die Diffusion der aus dem Brennstab ausgetretenen Radionuklide hängt stark von ihrer physikalischen Mobilität sowie von ihrer Reaktivität ab (Carbol et al. 2003). Das Verhältnis von gasförmigem zu partikulärem Radioiod lässt Rückschlüsse auf die unterschiedliche Diffusionsgeschwindigkeit der beiden Zustände zu. Durch die höhere Diffusionsgeschwindigkeit von gasförmigem Iod lässt sich dieses als erstes in Luftproben feststellen. Gleichzeitig weist dadurch der „Hauptkörper“ der Freisetzung eine Abreicherung an gasförmigem Radioiod auf. Mit der Zeit steigt der relative Anteil an gasförmigem Radioiod wieder, da die Gaskomponente im Vergleich zum Aerosol eine

längere Aufenthaltsdauer in der Atmosphäre besitzt (Mietelski et al. 2014). Neben dem Einfluss der unterschiedlichen Verweildauer in Luft auf das Verhältnis von gasförmigem zu partikulärem ^{131}I findet auch eine grundsätzliche Umwandlung von gasförmigem zu partikulärem Radioiod statt. Der Prozess, bei dem das gasförmige Radioiod als eine Art Reservoir für die partikuläre Form agiert, weist eine Konversionszeit von 2 bis 3 Wochen auf (Uematsu et al. 1988, Masson et al. 2011).

Neben dem unterschiedlichen Ausbreitungsverhalten von gasförmigem und partikulärem Radioiod lassen sich auch innerhalb der Gruppe der Aerosole Unterschiede ausmachen. Messungen der Partikelgröße verschiedener Aerosolteilchen ergeben, dass sich die Größenverteilung für ein spezifisches Radionuklid über mehrere Größenordnungen erstrecken kann (Baklanov & Sørensen 2001). Aerosole haben im Allgemeinen eine Größe, sodass sie durch Brown'sche Bewegung, Temperaturgradienten, Konzentrationsgradienten und elektrostatische Kräfte beeinflusst werden. Gleichzeitig können sie aufgrund von Trägheit und Gravitationskräften aus einem aufrechten Strom ausscheiden (NEA 1994). Die Entfernung, welche die Aerosolteilchen zurücklegen können, ist nicht zuletzt abhängig von ihrer Größe. Dies lässt sich erkennen, wenn man die Depositionsgeschwindigkeit als Funktion der Partikelgröße betrachtet. Nho-Kim et al. (2004) konnten bei der Betrachtung von Partikeln mit einer Größe zwischen 10^{-3} und 10^2 μm für eine Partikelgröße von 0,5 bis 1,0 μm ein Minimum der Depositionsgeschwindigkeit von $0,01 \text{ cm s}^{-1}$ feststellen. Grönholm et al. (2007) führten im Bereich von 10 bis 150 nm detaillierte Messungen durch. Dabei wiesen sie ein Minimum von $0,4 \text{ cm s}^{-1}$ für eine Größe von 80 bis 100 nm nach. Für größere aber auch kleinere Partikelmaße zeigten die angegebenen Kurven höhere Depositionsgeschwindigkeiten. Das bedeutet, dass sowohl größere als auch kleiner Partikel eine kürzere Aufenthaltsdauer in der Atmosphäre aufweisen (Nho-Kim et al. 2004, Grönholm et al. 2007). Messungen einer Höhenverteilung zeigten, dass sich die durchschnittliche Partikelgröße mit zunehmender Höhe verringert. Dies steht folglich auch in Zusammenhang mit der weiteren Ausbreitung der Aerosole (Baklanov & Sørensen 2001).

Die freigesetzten Partikel werden auch in Abhängigkeit der vorherrschenden Umweltbedingungen in der Atmosphäre verbreitet und lagern sich in unterschiedlicher Konzentration ab. Um die gesamte Deposition der sich ausbreitenden Teilchen am besten abschätzen zu können, ist die Berücksichtigung von trockener und nasser Deposition notwendig (Baklanov & Sørensen 2001). Im Vergleich zu den größeren Teilchen des freigesetzten Brennstoffmaterials werden kleinere Partikel weiter getragen. Ihre Deposition findet hauptsächlich aufgrund von Niederschlag statt. Im Fall der Deposition nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl bildeten sich auf diese Weise neben dem zentralen Hot Spot noch zwei weitere Hot Spots. Diese liegen 200 km bzw. 500 km nordöstlich des Reaktors. (OECD & NEA 2003). Die Bodenkontaminationsrate durch Niederschlag ist

dabei proportional der über die z-Koordinate integrierten Konzentrationsverteilung in der Atmosphäre (BMU 2007). Baklanov und Sørensen (2001) zeigten außerdem, dass der washout-Koeffizient stark von der Partikelgröße der Aerosole abhängig ist. Die auftretende Deposition hängt also in hohem Maße mit den Ausbreitungsparametern für die radioaktiven Teilchen, deren Partikelgröße und Niederschlag zusammen (OECD & NEA 2003).

1.2.3. Gefährdungsmechanismen

Die bei einem Reaktorunfall freigesetzten Radionuklide stellen auf verschiedene Arten eine Gesundheitsgefährdung der Bevölkerung dar. Dabei sind drei Gefährdungsmechanismen vorrangig zu betrachten. Externe Strahlenbelastung durch radioaktive Aerosole und Gase tritt vor allem im Nahbereich um das Kraftwerksgelände auf. Analog zu dem Reaktorunfall von Tschernobyl betraf auch in Fukushima die direkte äußere Strahlenbelastung vor allem die Arbeiter am Reaktorgelände (OECD & NEA 2003, UNSCEAR 2013). Die interne Strahlenbelastung aufgrund der Inhalation radioaktiver Stoffe ist vor allem in der Anfangsphase nach dem Unfall relevant, wenn hohe Aktivitäten und hohe Konzentrationen radioaktiver Teilchen in der Luft vorliegen. Auswaschung, Verbreitung der Aerosole und das Abklingen kurzlebiger Radionuklide verringern die Aktivitätswerte in der Atmosphäre relativ rasch (Gulin et al. 2012, Steinhauser et al. 2013d D5, Simsek et al. 2014). In weiterer Folge können sich die langlebigen Radionuklide weltweit verbreiten, wo sie sich am Boden, auf Pflanzen und in Wasser ablagern und so in den Nahrungsmittelkreislauf gelangen. Außerdem können die kontaminierten Nahrungsmittel auch in jene Gebiete exportiert werden, in denen die geringe Deposition keine unmittelbare Gesundheitsgefährdung nach sich ziehen würde (Merz et al. 2013 D1). In diesem Sinne bleibt die Aufnahme von Radionukliden durch Ingestion die größte Bedrohung der Bevölkerung (Hamada et al. 2012). Unabhängig von der Art der Inkorporation stellt die Akkumulation von Radioiod in der Schilddrüse eine der größten Gesundheitsgefährdungen dar (OECD & NEA 2003). Im Fall von ^{131}I unterscheiden sich die Dosiskoeffizienten für Ingestion ($2,2 \cdot 10^{-8} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$) und Inhalation ($2,4 \cdot 10^{-9} \text{ Sv} \cdot \text{Bq}^{-1}$ bei mittlerer Aufnahmegeschwindigkeit) für Erwachsene um etwa eine Größenordnung. Wird die gleiche Menge an Radioaktivität über die Atemluft aufgenommen, so führt dies zu einer um den Faktor 10 geringeren Strahlenbelastung für den Menschen als dies aufgrund von Ingestion der Fall wäre (ICRP 1995).

1.3. Radionuklidmonitoring – Messungen der Umweltradioaktivität

Die Menge an radioaktivem Material und die entsprechende Radioaktivität, welche im Zuge des Reaktorunfalls von Fukushima in die Atmosphäre freigesetzt wurde, ist noch nicht eindeutig bestimmt. Ein Bericht des Nuclear Emergency Response Headquarters geht von einer Freisetzung von $1,6 \cdot 10^{17}$ Bq für ^{131}I und $1,5 \cdot 10^{16}$ Bq für ^{137}Cs aus (NERHQ 2011a). Es wird dabei davon ausgegangen, dass sich etwa 80 % der freigesetzten Radionuklide aufgrund günstiger Windrichtung zunächst über dem Pazifischen Ozean verbreiteten (Morino et al. 2011). Im Vergleich dazu wird für den Reaktorunfall von Tschernobyl ein Ausstoß von ca. $1,7 \cdot 10^{18}$ Bq an ^{131}I und $8,5 \cdot 10^{16}$ Bq ^{137}Cs angenommen (OECD & NEA 2003, Steinhauser et al. 2014). Die gesamte Freisetzung aus Fukushima wird auf 10 bis 40 % des Ausstoßes von Tschernobyl abgeschätzt (Hamada & Ogino 2012, Ten Hoeve & Jacobson 2012, Steinhauser et al. 2014). Der Ausstoß der Radionuklide in Fukushima lässt sich dabei in mehrere Freisetzungsereignisse unterteilen. Da trotz der Explosionen bzw. während des kontrollierten Entlüftens die Reaktordruckbehälter weitgehend intakt blieben, kam es nicht zu einem kontinuierlichen Austreten von Radionukliden in die Atmosphäre. Die zeitliche Abfolge der Freisetzungsperioden lässt sich in Abbildung 1 sehr gut verfolgen (GRS 2011).

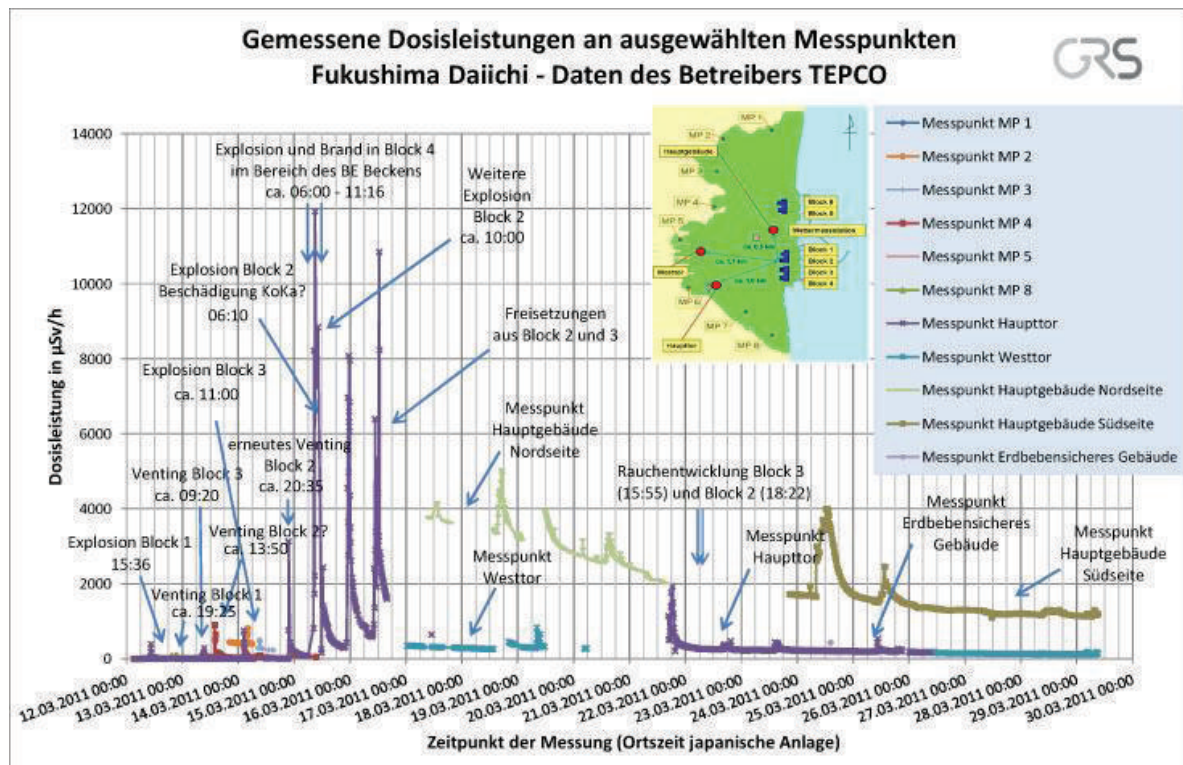


Abb. 1 Radiologische Situation am Standort Fukushima Dai-ichi – gemessene Dosisleistungen an ausgewählten Messpunkten, Fukushima Daiichi © 2011 Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH.

Im Gegensatz dazu wurden bei der Explosion in Tschernobyl das Reaktorgebäude und auch der Reaktor selbst schwer beschädigt. Das durch die Kernschmelze initiierte Graphitfeuer führte in der Folge dazu, dass große Mengen an radioaktivem Material inklusive Brennstoffpartikel direkt aus dem Reaktorkern kontinuierlich in die Atmosphäre freigesetzt wurden. Die Freisetzung fand über einen Zeitraum von etwa 10 Tagen statt und ließ durch die vorherrschenden hohen Temperaturen auch Spaltmaterial in die Umwelt entweichen (OECD & NEA 2003). Nach Kirchner et al. (2012) stieg die Temperatur in den Brennstäbe in Fukushima nicht über 2400 K. In diesem Sinne sollten sich in den Umweltproben keine Plutoniumisotope finden, welche sich dem Reaktorunfall von Fukushima zuordnen lassen. Mietelski et al. (2014) bestätigten dies mit einer Ausnahme für die in Europa vorgenommenen Messungen. Ein lettischer Bericht über ein unübliches Isotopenverhältnis von Plutonium geht von einer Plutoniumfreisetzung von Fukushima in die Atmosphäre aus (Lujaniené et al. 2012). Weitere Veröffentlichungen konnten das Auftreten von Plutonium in Umweltproben mittels Massenspektrometrie nachweisen und aufgrund des Plutoniumverhältnisses von ^{240}Pu zu ^{239}Pu dem Reaktorunfall von Fukushima zuordnen (Zheng et al. 2012, Schneider et al. 2013, Steinhauser 2014, Zheng et al. 2014). Die Freisetzung von Spuren von Plutonium aus dem Brennstoff im Zuge der Explosionen ist eine diskutierte Möglichkeit. Eine weitere Theorie geht von einer

Freisetzungswahrscheinlichkeit für Pu basierend auf den Freisetzungsverhältnissen von flüchtigen Spaltprodukten und Aktivierungsprodukten aus (Zheng et al. 2013).

Die freigesetzten Radionuklide, deren Zusammensetzung und Konzentration können mit Hinblick auf verschiedene Aspekte untersucht werden. Ziel der nuklearen Forensik ist im Allgemeinen die Feststellung der Herkunft, des Alters, die Unterscheidung zwischen natürlichem, kommerziellem und militärischem Ursprung beziehungsweise die Bestätigung der Authentizität von radioaktivem Material (Kristo 2013, Steinhauser et al. 2013a). Das Interesse der japanischen Regierung und Bevölkerung galt bei dem Einsatz der lokal verfügbaren Detektorkapazitäten verständlicher Weise vorrangig der Sicherstellung der Nahrungsmittelsicherheit. Dennoch wurde durch die Untersuchung der radioaktiven Belastung der großen Anzahl an Nahrungsmittelproben ein Datensatz erzeugt, der von großem wissenschaftlichen Interesse ist und nuklearforensisch untersucht werden konnte (Hamada & Ogino 2012, Hamada et al. 2012, Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

Die einzelnen auftretenden Radionuklide ermöglichen diverse Rückschlüsse über das vorliegende Ereignis und besitzen unterschiedliche Relevanz was Gesundheitsaspekte betrifft. Die auftretenden Xenonisotope können zum Beispiel als ein erster Indikator für den Ablauf einer Kernspaltung betrachtet werden. Als chemisch inerte Edelgase weisen sie eine hohe Flüchtigkeit aus Reaktorbrennstäben sowie durch geologische Massen auf und können meist auch selbst bei unterirdischen Atombombentests nachgewiesen werden (Saey 2010, Steinhauser et al. 2013b, Steinhauser 2014).

Das Iodisotop ^{131}I wird in diesem Zusammenhang ebenfalls für den Nachweis von Radionuklidfreisetzungen und von Atombombentests im Speziellen von der Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO) herangezogen (Masson et al. 2011, Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5, Thakur et al. 2013). Gleichzeitig ist ^{131}I von besonderer gesundheitlicher Bedeutung. Aufgrund seiner hohen Volatilität wurden im Zuge der Reaktorunfälle von Fukushima und Tschernobyl große Mengen in die Umwelt freigesetzt (NEA 1994, Steinhauser et al. 2014). Durch seine zusätzlich kurze Halbwertszeit von 8 Tagen hat es eine sehr hohe spezifische Aktivität. Die Aufnahme von Radioiod in die Schilddrüse, welche Iod stark akkumuliert, stellt dabei ein großes Krebsrisiko dar (United Nations 2000, OECD & NEA 2003, Nikiforov 2006).

Radiocäsium ist ebenfalls sowohl forensisch als auch gesundheitlich relevant. Es lagert sich an der Oberfläche von Pflanzen sowie im Boden ab und wird so von Vegetation und Nutzpflanzen aufgenommen. ^{137}Cs ist durch eine relativ hohe spezifische Aktivität charakterisiert und ist aufgrund seiner Halbwertszeit von über 30 Jahren eine lang

anhaltende Belastung der Nahrungskette (Handl et al. 2008). Das Verhältnis der Cäsiumisotope ^{134}Cs und ^{137}Cs lässt dabei Rückschlüsse auf die Art der Freisetzung und ihre Vorgeschichte zu. Die Signatur einer militärischen Freisetzung ist frei von ^{134}Cs , da es praktisch nicht als direktes Spaltprodukt auftritt. Je länger ein Reaktor vor der Freisetzung von Radiocäsium in Betrieb war, umso höher ist der relative Anteil an ^{134}Cs (Kirchner et al. 2012, Merz et al. 2013 D1).

Radiostrontium ist ein Beta-Strahler, der im Vergleich zu Radioiod und Radiocäsium eine geringere Volatilität besitzt. Man geht davon aus, dass im Zuge des Reaktorunfalls von Fukushima nur geringe Mengen an ^{90}Sr gasförmig in die Umwelt freigesetzt wurden (Schwantes et al. 2012, Steinhauser et al. 2013c). Durch die Zerstörung der Kühlsysteme am Reaktorgelände wurde es notwendig, Meerwasser zur Kühlung der Reaktoren einzuspeisen. Das Meerwasser kam dabei in direkten Kontakt mit beschädigten Brennstäben und Brennstoff (Povinec et al. 2012). Das zur Kühlung benutzte radioaktiv kontaminierte Meerwasser wurde teilweise als radioaktiver Abfluss ins Meer geleitet, wodurch aufgrund des Kontaktes mit den Brennstäben auch relevante Mengen an ^{90}Sr in die Umwelt gelangten. Es wird angenommen, dass auf diese Weise bis zu 900 TBq bzw. 1 PBq an ^{90}Sr im Meer freigesetzt wurden (Povinec et al. 2012, Casacuberta et al. 2013). Aufgrund seiner chemischen Ähnlichkeit zu Calcium könnte Radiostrontium folglich in Fisch akkumuliert werden (Steinhauser et al. 2013c). In diesem Zusammenhang sind auch die gesetzlichen Aktivitätsgrenzen für Radiostrontium interessant, welche von einem konstanten Aktivitätsverhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs ausgehen (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2). Eine Analyse im Zuge der vorliegenden Arbeit zeigt, dass für das Auftreten von ^{90}Sr und ^{137}Cs in Lebensmitteln mit einem über die Jahre steigenden $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis gerechnet werden muss (Merz et al. 2015 D2).

Lässt sich nach einer Freisetzung Plutonium nachweisen, so ist das ein Hinweis auf die Freisetzung von Brennstoffpartikeln. Es muss davon ausgegangen werden, dass eine Kernschmelze stattfand (NEA 1994, OECD & NEA 2003, Kirchner et al. 2012). ^{239}Np kann als eindeutiger Indikator für die akute Freisetzung von Brennstoffmaterial betrachtet werden. Aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von 2,4 Tagen zerfällt es rasch in ^{239}Pu und tritt in der Natur nicht in detektierbaren Größenordnungen auf. Shozugawa et al. (2012) berichteten, dass sie kurz nach dem Reaktorunfall in Hot Spots in Japan ^{239}Np nachweisen konnten. Aufgrund der Interferenz im Gammaskpektrum mit einer Gammalinie des Spaltproduktes $^{129\text{m}}\text{Te}$ ist der gammaspektrometrische Nachweis von ^{239}Np über dessen intensivste Linie (106 keV) im vorliegenden Fall jedoch nicht unproblematisch.

Um die Ausbreitung und Deposition des im Zuge des Reaktorunfalls von Fukushima freigesetzten radioaktiven Materials und die möglichen Auswirkungen auf die Gesundheit zu analysieren, wurden im Zuge der vorliegenden Arbeit Proben sowohl selbständig

gesammelt, als auch in Kooperation mit dem Forschungsinstitut für Wildtierkunde und Ökologie erschlossen und gammaspektrometrisch untersucht (Steinhauser et al. 2012 D4, Merz et al. 2013 D1, Steinhauser et al. 2013d D5). Mit dem Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI) in Japan und der Österreichischen Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit (AGES) wurden außerdem große Datensätze von radiometrisch analysierten Proben ausgetauscht, um diese im Sinne nuklearer Forensik weiter zu untersuchen (Merz et al. 2013 D1, Steinhauser et al. 2013d D5). Auch von japanischen Behörden und offiziellen Einrichtungen wie dem japanische Ministerium für Gesundheit, Arbeit und Soziales und der Nuclear Regulation Authority gesammelte Daten konnten für Analysen herangezogen werden (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2). Die auf diese Weise erstellte Sammlung an Daten erstreckt sich von japanischen Nahrungsmittelproben inklusive Trinkwasser (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2), über Regenwasser-, Boden- und Vegetations- sowie Luftproben aus Österreich (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5) bis hin zu der Untersuchung von Schilddrüsen österreichischer Wildtiere (Steinhauser et al. 2012 D4).

Die japanischen Nahrungsmittelproben, die im Auftrag der japanischen Regierung auf ihre radioaktive Belastung überprüft wurden, wurden vor der Messung gesäubert und verzehrbereit gemacht (Hamada & Ogino 2012). Die Bestimmung der Kontamination fand in Japan anschließend landesweit in allen dafür geeigneten und ausgerüsteten Institutionen statt und nahm praktisch alle verfügbaren Detektorkapazitäten in Anspruch (Merz et al. 2013 D1). Eine Vielzahl an Proben wurde am Atominstitut der Technischen Universität Wien mit einem Gamma-Spektrometer untersucht. Dabei kam ein 226 cm^3 HPGe-Detektor (CanberraTM, Detektor Modell GC5020; 2,0 keV Auflösung bei der 1332 keV ^{60}Co Linie; 52,8 % relative Efficiency), mit einem PC-basierten Multi-Channel-Analyzer mit Vorverstärker zum Einsatz (Steinhauser et al. 2013d D5). Luftproben wurden sowohl am Atominstitut selbst als auch durch die AGES genommen. Am Atominstitut wurde dafür der institutseigene Luftfilter, der für die Überwachung etwaiger Emissionen des TRIGA Mark II Forschungsreaktors vorgesehen ist, genutzt. Dabei wird Außenluft in 7 Zyklen von jeweils 40 Minuten zu bestimmten Zeitpunkten im Laufe des Tages beprobt und gegen einen internen natürlichen ^7Be -Standard verglichen. Die Luftproben der AGES stammten aus Wien und Niederösterreich. Der partikuläre Anteil von Radioiod wurde mittels konventionellem großvolumigem Glasfaser-Filter gemessen. Der gasförmige Anteil von Radioiod wird allerdings in konventionellen Glasfaserfiltern nicht retardiert. Aus diesem Grund muss im Vergleich zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von partikulärem Radioiod auf ein aufwändiger gestaltetes Messsystem mit Aktivkohlekartuschen zurückgegriffen werden. Dabei kommt erschwerend hinzu, dass diese Aktivkohlesamplere einen geringeren Luftdurchsatz aufweisen (Masson et al. 2011, Steinhauser et al. 2012 D4). Die analytische Unsicherheit

der verschiedenen hier beschriebenen und angewandten Messmethoden liegt primär in Abhängigkeit der Aktivität der Probe typischerweise unter 10 %.

1.3.1. Radiocäsiummonitoring

Die Freisetzungseignisse bei dem Reaktorunfall in Fukushima fanden nicht kontinuierlich sondern auf gepulste Art statt. Dabei lagen zwischen den einzelnen Entlüftungsvorgängen bzw. den Explosionen in den Reaktorgebäuden zumeist mehrere Stunden (GRS 2011). Bei den kontrollierten Freisetzungen zur Druckreduzierung in den Reaktordruckbehältern wurden meist günstige Wetterbedingungen mit Windrichtung Pazifik abgewartet (Morino et al. 2011). Die Wetterlage konnte bei den unkontrolliert aufgetretenen Explosionen im Allgemeinen jedoch nicht berücksichtigt werden. Die Ausstöße und deren Ablauf unterscheiden sich also grundsätzlich in ihrem Zeitpunkt der Freisetzung, dem Ursprung im Sinne des Reaktorgebäudes und dem vorherrschenden Wetter, welches starken Einfluss auf Verbreitung und Deposition hat (Baklanov & Sørensen 2001, OECD & NEA 2003). Für die in dieser Arbeit durchgeführte Analyse der Freisetzungseignisse wurden in erster Linie jene Daten herangezogen, welche im Zuge der Überprüfung der Nahrungsmittelsicherheit erzeugt wurden. Die von der japanischen Regierung angeordneten und auf ihre Aktivität untersuchten Lebensmittelproben können dabei als geographisch relativ gut lokalisierte und in großer Zahl erzeugte Umweltproben betrachtet werden (Merz et al. 2013 D1). Da die in Japan durchgeführten Lebensmitteluntersuchungen vorrangig die rasche und flächendeckende Identifikation von gesundheitsgefährdenden Radionuklidkonzentrationen zum Ziel hatten, blieben aufwendige Untersuchungen wie die Bestimmung der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration in den Nahrungsmittelproben aus (Hamada & Ogino 2012, Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2). Um eine Aussage über die ^{90}Sr -Konzentration in den Nahrungsmitteln ableiten zu können, wurden in der vorliegenden Arbeit ^{90}Sr -Messungen von Lebensmittelproben, die vor dem Unfall von Fukushima gewonnen wurden, analysiert (Merz et al. 2015 D2, Merz et al. 2015 D3).

1.3.1.1. Analyse des Aktivitätsverhältnisses von ^{134}Cs zu ^{137}Cs

1.3.1.1.1. Plausibilisierung des $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses

Das Verhältnis verschiedener aus einem Reaktor freigesetzter Isotope ist charakteristisch für das Alter beziehungsweise die Betriebsgeschichte des Brennstoffs. So lassen sich zum Beispiel durch das Verhältnis von ^{134}Cs , ^{135}Cs oder ^{136}Cs zu ^{137}Cs die gemessenen

Aktivitätswerte einem Freisetzungseignis zuordnen (Arvela et al. 1990, De Cort et al. 1998, Kirchner et al. 2012, Schwantes et al. 2012, Zheng et al. 2014). Die Simulationen von Suga & Ichikawa (2000) liefern für Brennstoff mittleren Alters, welcher eine analoge Reaktorgeschichte wie jener in Fukushima Dai-ichi aufweist, ein Verhältnis von 1,2 der Aktivitäten der Isotope ^{134}Cs und ^{137}Cs . Masson et al. (2011) geben konkret für den Reaktorunfall von Fukushima ein $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis nahe 1 an. Durch das Auftreten von ^{134}Cs können diese Messwerte eindeutig der Freisetzung in Fukushima zugeordnet werden. Davor ließ sich nur ^{137}Cs nachweisen, welches durch Resuspension früherer Depositionen aus dem Boden wieder in die Luft gelangte. Durch seine längere Halbwertszeit von 30,07 Jahren lässt sich ^{137}Cs naturgemäß deutlich länger nachweisen als ^{134}Cs , dessen Aktivität mit einer Halbwertszeit von 2,06 Jahren abklingt (Masson et al. 2011). In Abbildung 2 ist die Streuung um ein Verhältnis von 100 % gut zu erkennen.

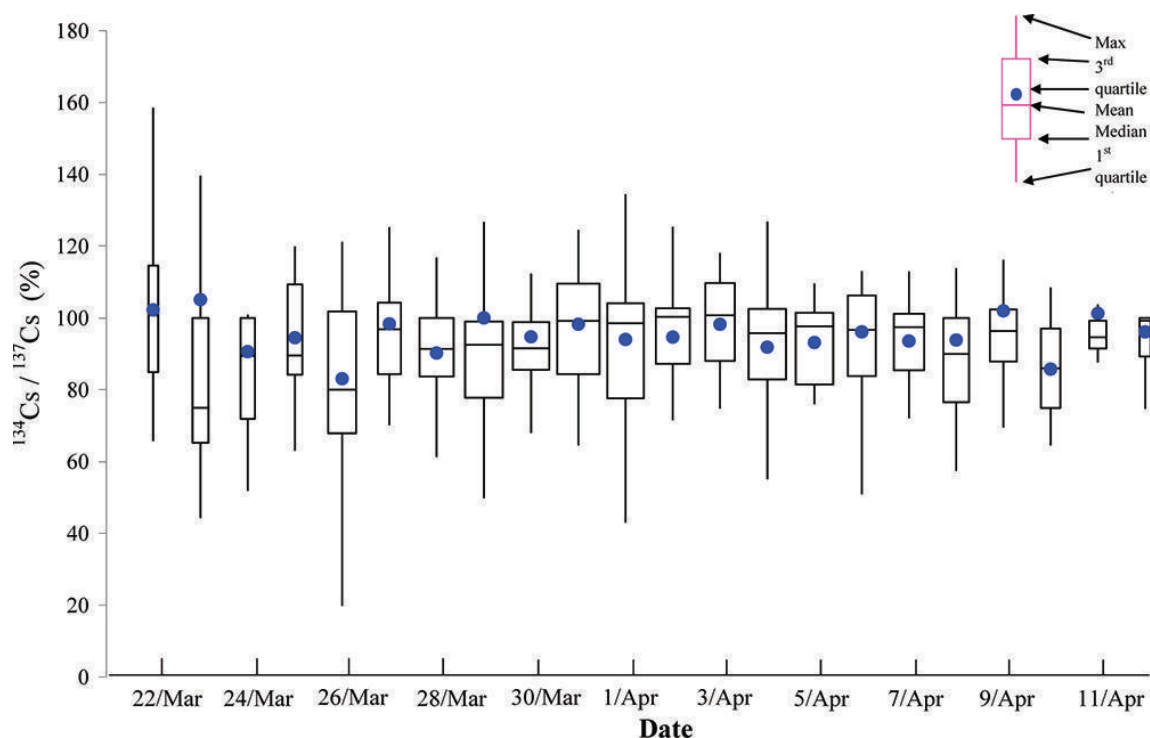


Abb. 2 Zeitliche Änderung von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Europa nach dem Reaktorunfall von Fukushima. Aus: Masson et al. (2011). Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2011) American Chemical Society.

Um die verschiedenen Angaben zu dem Cs-Aktivitätsverhältnis der radioaktiven Freisetzungen von Fukushima zu überprüfen, sollten in dieser Arbeit die japanischen Lebensmittelproben als nuklearforensisches Werkzeug dienen. Das Ergebnis der Analyse des Aktivitätsverhältnisses von ^{134}Cs zu ^{137}Cs in Abhängigkeit der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs der japanischen Nahrungsmittelproben ist in den Abbildungen 3 und 4 zu sehen.

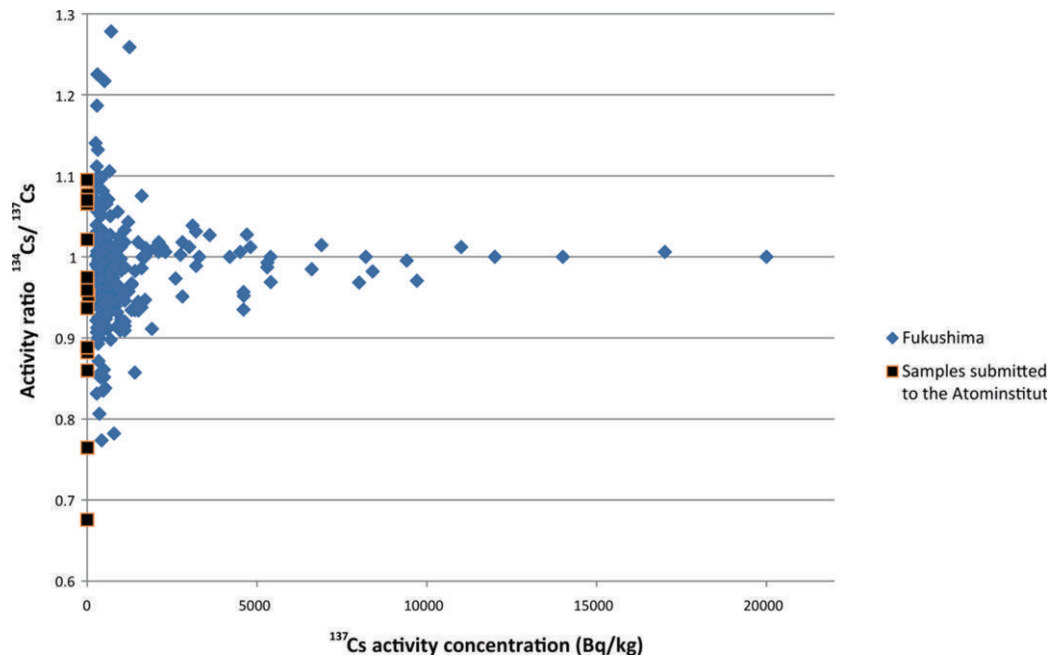


Abb. 3 Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Lebensmittelproben in Abhängigkeit der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs (als Indikator des ^{137}Cs -Hintergrundes). Die Proben wurden zur Untersuchung an das Atominstitut geschickt (Samples submitted to the Atominstitut) oder wurden im Zuge der in Japan durchgeführten Lebensmittelüberwachung in der Präfektur Fukushima gesammelt und analysiert (Fukushima). Die Angaben wurden auf den 11.März 2011 abklingkorrigiert. Aus: [Merz et al. \(2013\) D1](#). Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

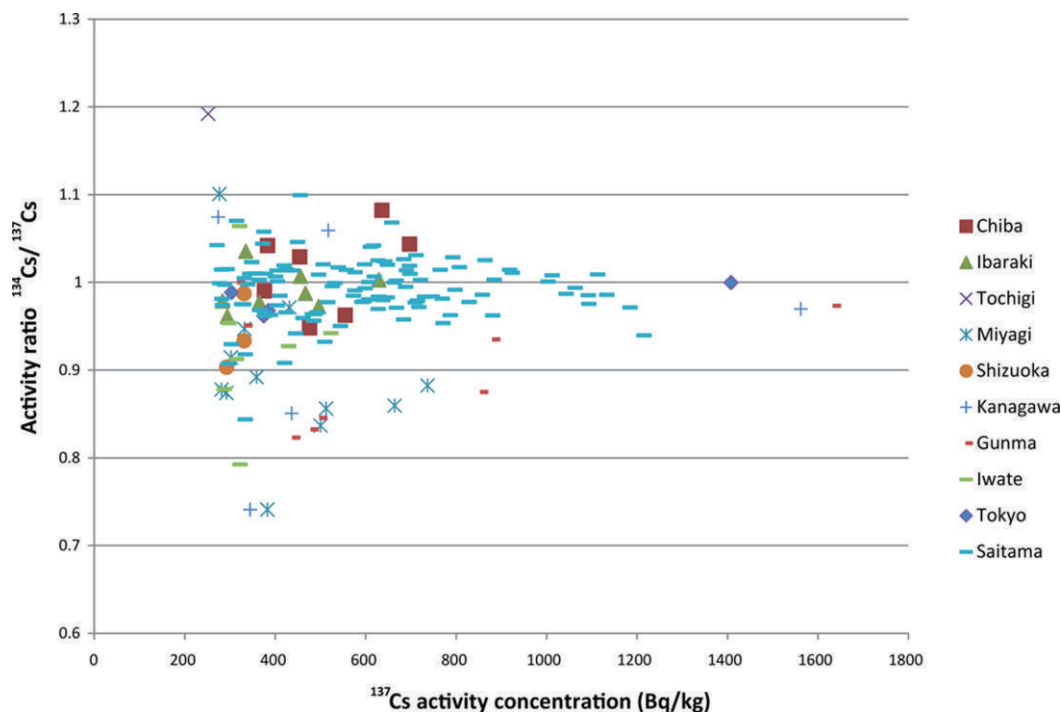


Abb. 4 Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Lebensmittelproben in Abhängigkeit der Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs (als Indikator des ^{137}Cs -Hintergrundes). Die Proben wurden im Zuge der Lebensmittelüberwachung analysiert und stammen aus den um Fukushima umliegenden japanischen Präfekturen. Die Angaben wurden auf den 11.März 2011 abklingkorrigiert. Aus: [Merz et al. \(2013\) D1](#). Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

Sowohl die Proben aus Fukushima als auch jene aus den umliegenden japanischen Präfekturen weisen eine Streuung des Radiocäsiumaktivitätsverhältnisses um den Wert 1 auf. Die Proben aus Fukushima sind dabei zusammen mit den Ergebnissen für jene 18 Proben dargestellt, welche von Privatpersonen in Japan erworben und an das Atominstitut der TU Wien geschickt wurden, um sie von einer unabhängigen Messstelle untersuchen zu lassen. Die Abweichungen des Cs-Aktivitätsverhältnisses der Nahrungsmittelproben von ihrem ungefähren Mittelwert 1 können auf verschiedene Ursachen zurückzuführen sein. Statistische Unsicherheiten kommen vor allem bei geringeren Aktivitätswerten zu tragen. Auch der Einfluss von einer bereits vorliegenden Radiocäsiumdeposition wirkt sich im Bereich niedrigerer Aktivitätswerte verstärkt aus. So verhält es sich auch mit dem Einfluss des Bodens und der Pflanzenart auf die Cäsiumaufnahme und die somit gemessenen Radiocäsiumwerte. In diesem Sinne spiegeln hochaktive Proben die Fukushima zuordenbare Signatur am besten wieder (Merz et al. 2013 D1), wobei nicht bekannt ist, wie genau bei den behördlichen Messungen Korrekturen für Totzeit und Summenpeakbildung im Fall von ^{134}Cs vorgenommen wurden. Die Cs-Aktivitätsverhältnisse der in dieser Arbeit betrachteten japanischen Lebensmittelproben stehen in jedem Fall in sehr guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen, die Masson et al. (2011) für Radiocäsium in europäischen Luftproben publizierten.

Abgesehen von Luftproben wurden nach dem Reaktorunfall von Fukushima praktisch weltweit Boden- und Vegetationsproben genommen und auf ihre Radionuklidkonzentration untersucht. In Österreich fand eine Probennahme von Boden- und Grasproben in Wien und Magersdorf (im nördlichen Niederösterreich) im April bzw. September, Oktober und November statt. Im Zuge der für diese Arbeit durchgeführten Analyse der Radiocäsiumkonzentration ließ sich ausschließlich ^{137}Cs nachweisen. Da kein ^{134}Cs gemessen werden konnte, kann davon ausgegangen werden, dass die gemessenen ^{137}Cs Werte ihren Ursprung nicht in Fukushima haben. Das in österreichischem Boden und Pflanzen nachweisbare Radiocäsium lässt sich praktisch vollständig auf den Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahr 1986 und die atmosphärischen Kernwaffentests zurückführen (Steinhauser et al. 2013d D5). Während in Griechenland und Italien ^{134}Cs im Probenmaterial nachgewiesen werden konnte und die Radiocäsiumkontamination somit dem Reaktorunfall von Fukushima zuordenbar war, konnten Messungen aus Deutschland ebenfalls keine ^{134}Cs -Aktivität im Boden feststellen (Ioannidou et al. 2011, Pittauerová et al. 2011, Kritidis et al. 2012).

1.3.1.1.2. Unterscheidbarkeit der beschädigten Reaktoren als Freisetzungsquellen

Im Fall des Reaktorunfalls von Fukushima waren vier verschiedene Reaktorgebäude beteiligt. In drei der Gebäude kam es zu einer Beschädigung der Reaktorkerne und der Freisetzung von Radionukliden aus den Reaktordruckbehältern. In dem Reaktorgebäude 4 war der Reaktor beim Eintreffen des Tsunamis seit etwa drei Monaten abgeschaltet und die Brennstäbe waren im Abklingbecken des Gebäudes gelagert. Diese Abklingzeit von 100 Tagen verringert das Cs-Aktivitätsverhältnis von ^{134}Cs zu ^{137}Cs um etwa 10 % und sollte eine Zuordnung der gemessenen Aktivitätskonzentrationen zu einem Reaktor bzw. dem Abklingbecken in Gebäude 4 ermöglichen (Schwantes et al. 2012, Merz et al. 2013 D1). Um den vermuteten Unterschied in dem Cs-Aktivitätsverhältnis für die Signaturen der Reaktoren und dem Abklingbecken erkennen zu können, wurden, als Teil der hier durchgeführten Analysen, in Abbildung 5 die $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisse der Nahrungsmittelproben in Abhängigkeit ihrer Entfernung zur Präfektur Fukushima dargestellt.

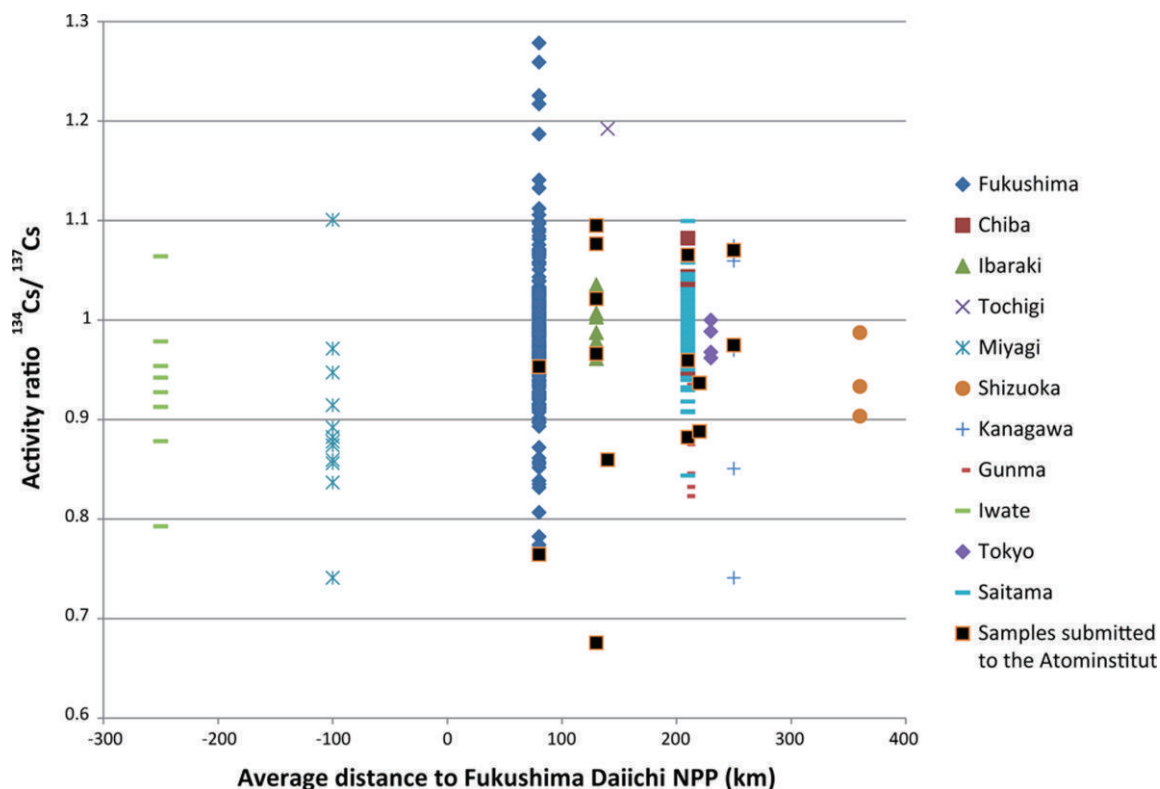


Abb. 5 Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Lebensmittelproben in Abhängigkeit der Entfernung zur Präfektur Fukushima. Entfernungen in südlicher Richtung sind als positive Werte angegeben. Entfernungen in nördlicher Richtung sind als negative Werte angegeben. Die Angaben wurden auf den 11. März 2011 abklingkorrigiert. Aus: Merz et al. (2013) D1. Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

Die Probenwerte zeigen allerdings keine eindeutige scharfe Gruppierung um bestimmte Verhältniswerte. Für die im Norden Fukushimas gelegene Präfektur Miyagi lässt sich ein

geringfügig niedrigerer Verhältniswert erkennen, allerdings ist die Datendichte zu gering, um eine eindeutige Schlussfolgerung zu ermöglichen (Merz et al. 2013 D1). Nach Angaben des National Institute of Environment herrschte am Kraftwerksgelände zum Zeitpunkt der Explosion von Reaktorgebäude 4 am 15. März 2011 um 6:00 Uhr Wind in südlicher Richtung vor. In den südlich des Kraftwerks gelegenen Präfekturen konnte mit der in der vorliegenden Arbeit erstellten Analyse die zu Reaktor 4 gehörige Signatur nicht wiedergefunden werden. Daraus schlossen wir als erste Gruppe, dass jener Reaktor nur unwesentlich zur Kontamination Japans beigetragen haben kann. Diese Ansicht wurde ebenfalls vom Reaktorbetreiber TEPCO vertreten. Als Erklärung für die geringen Freisetzungen aus Reaktor 4 führte man an, dass der für die Explosion ursächlich verantwortliche Wasserstoff nicht aus radiolytischer oder thermochemischer Quelle innerhalb des Abklingbeckens von Reaktorgebäude 4 stammen konnte. Dies wäre mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit mit einer starken Beschädigung der Hüllrohre und somit auch mit einer charakteristischen Freisetzung von Radionukliden einher gegangen. Der zur Explosion gelangte Wasserstoff wurde aufgrund fehlgeschalteter Ventile über Rohrverbindungen von Reaktor 3 in das Reaktorgebäude 4 geleitet, wo er dann mit großer Heftigkeit explodierte (NHK 2011).

Die in Abbildung 3 bis 5 dargestellten Ergebnisse der Analyse der Werte lassen darauf schließen, dass die in den Lebensmittelproben gemessenen Aktivitätskonzentrationen von ^{134}Cs und ^{137}Cs die integrale Radiocäsiumdeposition aller betroffenen Freisetzungsquellen widerspiegeln. Aufgrund der Entfernung zum Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi und der Tatsache, dass die stärksten Freisetzungsereignisse alle vor der ersten hier berücksichtigten Probenahme vom 21. März 2011 stattfanden, wurde von einer Vermischung der freigesetzten Aktivitäten in der Atmosphäre ausgegangen (GRS 2011, Hamada & Ogino 2012, Merz et al. 2013 D1).

Auch Zheng et al. (2014) versuchten die Quellterme der Reaktoren und des Abklingbeckens zu differenzieren. Sie verwendeten das Radiocäsiumisotopenverhältnis von ^{135}Cs zu ^{137}Cs , welches für den Reaktorbetrieb und die Abschaltvorgänge bzw. -bedingungen einen charakteristischen Wert darstellt. Daneben liefert das $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Verhältnis aufgrund der langen Halbwertszeit von $2 \cdot 10^6$ Jahren für ^{135}Cs einen zeitlich stabileren Wert als das Verhältnis zwischen ^{134}Cs und ^{137}Cs . In diesem Sinne könnte dieses Radioisotopenverhältnis auch für Langzeitbeobachtungen der Radionuklidverbreitung in der Umwelt herangezogen werden (Zheng et al. 2014). Proben wurden dabei von Zheng et al. (2014) im Zeitraum von April 2011 bis Mai 2013 in einer Entfernung von 20 bis 50 km von Fukushima Dai-ichi genommen. Die Cs-Verhältnisse der Umweltproben sind gemeinsam mit den $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Verhältnissen, welche von Nishihara et al. (2012) für die Reaktorkerne bzw. den Brennstoff in den Abklingbecken angegeben wurden, in Abbildung 6 dargestellt.

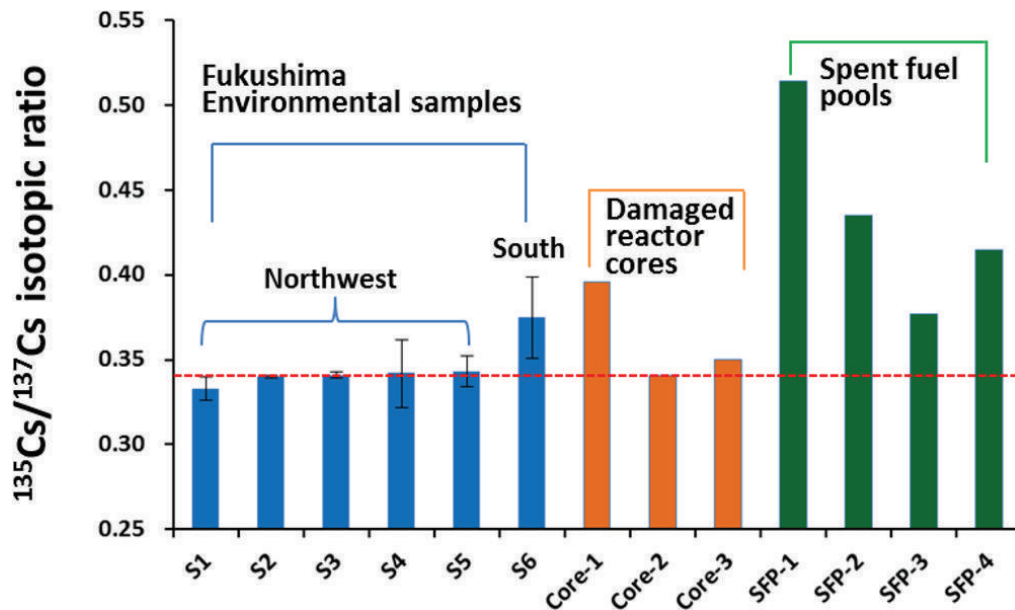


Abb. 6 Vergleich der $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Isotopenverhältnisse in Umweltproben wie Abfall und Flechten mit den Verhältniswerten der beschädigten Reaktoren (Cores 1 – 3) und der Abklingbecken (SFPs). Aus: Zheng et al. (2014). Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2014) American Chemical Society.

Der von Zheng et al. (2014) durchgeführte Vergleich der Umweltproben (S1 – S6) mit dem Cs-Verhältnis für den Brennstoff im Abklingbecken des Reaktorgebäudes 4 (SFP-1) führt zu dem Ergebnis, dass der Ausstoß aus dem Abklingbecken im Vergleich zu jenen der Reaktoren vernachlässigbar war, sofern überhaupt eine Freisetzung stattfand. In diesem Sinne wurden die in der vorliegenden Arbeit präsentierten Ergebnisse durch den Einsatz einer unabhängigen Methodik bestätigt. Die Quellen der Kontamination Japans sind laut Zheng et al. (2014) die beschädigten Reaktoren (Core 1 – Core 3). Wie bereits zuvor erwähnt, wurde die Explosion im Reaktorgebäude 4, welche auch einen Brand nach sich zog, durch die Verbindung von Reaktorgebäude 3 und 4 mittels fehlgeschalteter Rohrleitungen erklärt (INPO 2011, Schwantes et al. 2012). Im Zuge der Entlüftung des Reaktors in Gebäude 3, sammelte sich Wasserstoff in dem Bereich um das Abklingbecken im Reaktorgebäude 4, wo es anschließend zur Explosion kam (Hirose 2012, TEPCO 2012, Marzo 2014).

1.3.1.1.3. Zeitliche Entwicklung des $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses

Für eine weitere Einschätzung der Repräsentativität der gemessenen Werte bzw. ihrer Analyse wurden im Zuge dieser Arbeit die Cs-Aktivitätsverhältnisse der Nahrungsmittelproben in Abhängigkeit der Zeit betrachtet. Die Trendlinie (schwarz) für das Verhältnis von ^{134}Cs zu ^{137}Cs in Abbildung 7 ergibt sich unter Berücksichtigung aller angegeben und betrachteten Nahrungsmittelproben. Die rote Linie zeigt die Veränderung des Cs-Aktivitätsverhältnisses aufgrund des physikalischen Abklings

von ^{134}Cs (Merz et al. 2013 D1). Ausgangswert ist dabei das von Suga & Ichikawa (2000) vorgeschlagene Cs-Aktivitätsverhältnis von 1,2 für Brennstoff mittleren Alters.

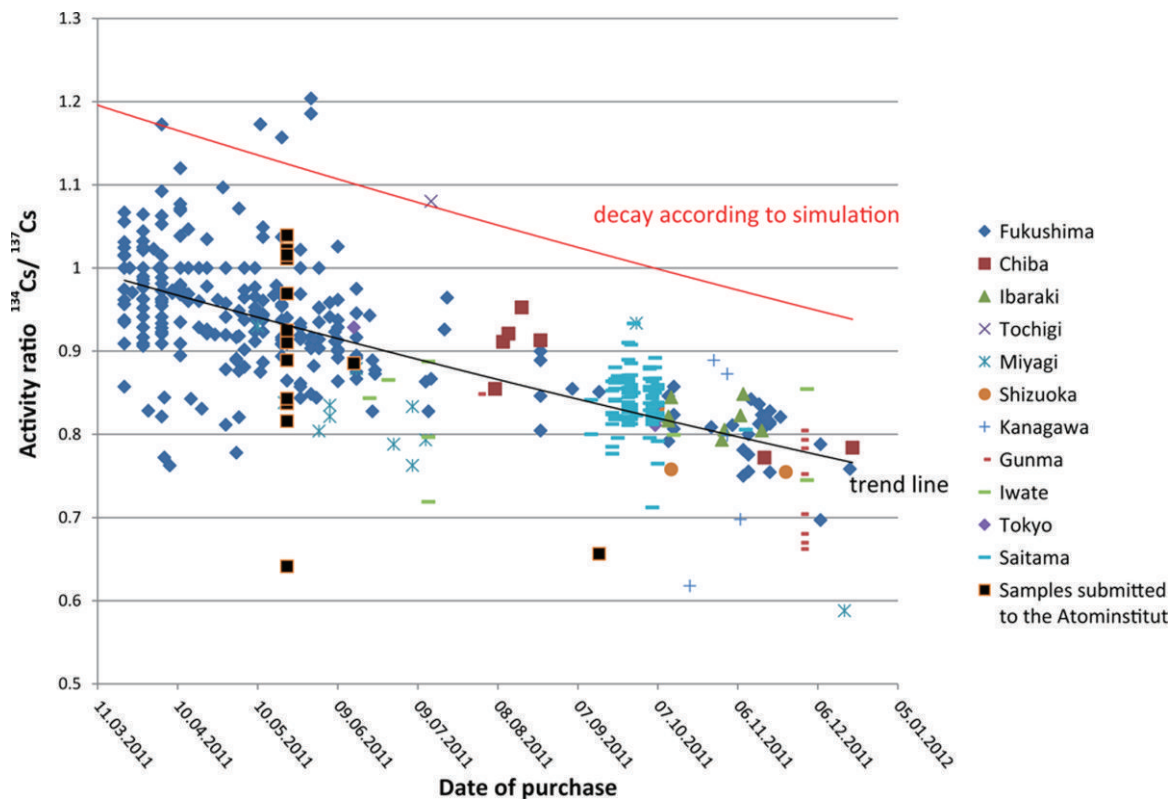


Abb. 7 Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Lebensmittelproben in Abhängigkeit des Einkaufsdatums. Die rote Linie stellt das physikalische Abklingen ausgehend von einem Verhältnis von 1,2 für Brennstoff mittleren Alters dar. Die schwarze Linie entspricht der Änderung des Verhältnisses unter Berücksichtigung der angeführten Proben. Die Angaben wurden auf das jeweilige Datum des Erwerbs abklingkorrigiert. Aus: Merz et al. (2013) D1. Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

Der hier durchgeführte Vergleich der beiden Linien ergibt, dass sich die Werte der Nahrungsmittelproben den physikalischen Erwartungen entsprechend verhalten. Die Zuverlässigkeit der Werte kann in diesem Sinne als bestätigt betrachtet werden. Gleichzeitig ermöglicht die Form der schwarzen Trendlinie eine Einschätzung über das Auftreten bzw. den Einfluss von Freisetzungseignissen innerhalb des durch die Proben abgedeckten Zeitraums (Merz et al. 2013 D1). Freisetzungseignisse, die eine entsprechend hohe Aktivität besitzen und durch ein abweichendes Cs-Aktivitätsverhältnis charakterisiert sind, würden einen erkennbaren Knick in der schwarzen Trendlinie hervorrufen. Im Oktober 2011 gab es mediale Berichte über eine mögliche anhaltende Kritikalität des beschädigten Brennstoffes und die Freisetzung kurzlebiger Radionuclide aus den beschädigten Reaktoren. Bei einer aufrechten Kettenreaktion würden sich zu dem Zeitpunkt eventuelle Freisetzungen in ihrem Cs-Aktivitätsverhältnis deutlich von dem Verhältnis der bisherigen Ablagerungen unterscheiden. Durch die fortdauernde Kettenreaktion würde die Bildung von ^{134}Cs fortgesetzt und somit das

Aktivitätsverhältnis bei der nachfolgenden Probennahme einen Sprung zu höheren Werten machen. Eine derartige Änderung in der Form der Trendlinie lässt sich allerdings nicht erkennen. In diesem Sinne waren die Freisetzungen, im Vergleich zu den Ereignissen im März, in jedem Fall nicht von ähnlicher Bedeutung (Merz et al. 2013 D1, Zheng et al. 2014). Das Auftreten bzw. der Nachweis von ^{133}Xe und ^{135}Xe , der zu Spekulationen über eine mögliche Kritikalität in den beschädigten Reaktorkernen führte, konnte in Folge der spontanen Spaltung schwerer Nuklide zugeordnet werden (IAEA 2012, Thome et al. 2012).

In Abbildung 7 ist das Verhalten des Cs-Aktivitätsverhältnisses von ^{134}Cs zu ^{137}Cs unter Berücksichtigung jener Proben dargestellt, welche im Zuge der in Japan durchgeführten Nahrungsmittelüberwachung die gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerte überschritten. Die in der vorliegenden Arbeit gewonnenen Erkenntnisse und auch das weitere Abklingverhalten des Cs-Aktivitätsverhältnisses lassen sich unter Miteinbeziehung auch all jener Proben, welche die gesetzlichen Grenzwerte nicht überschritten, bestätigen bzw. fortlaufend darstellen. Vor allem die Präfektur Fukushima hat zum Zweck der Nahrungsmittelüberwachung große Datenmengen gesammelt und diese für die Öffentlichkeit zugänglich gemacht (Fukushima Prefecture 2014). Für einen aussagekräftigen Vergleich wurden die im ersten Jahr nach dem Kraftwerksunfall gesammelte Daten der Präfektur Fukushima für die Nahrungsmittelgruppen „Gemüse“ bzw. „Fleisch“ für diese Arbeit analysiert und in Abbildung 8 graphisch aufbereitet.

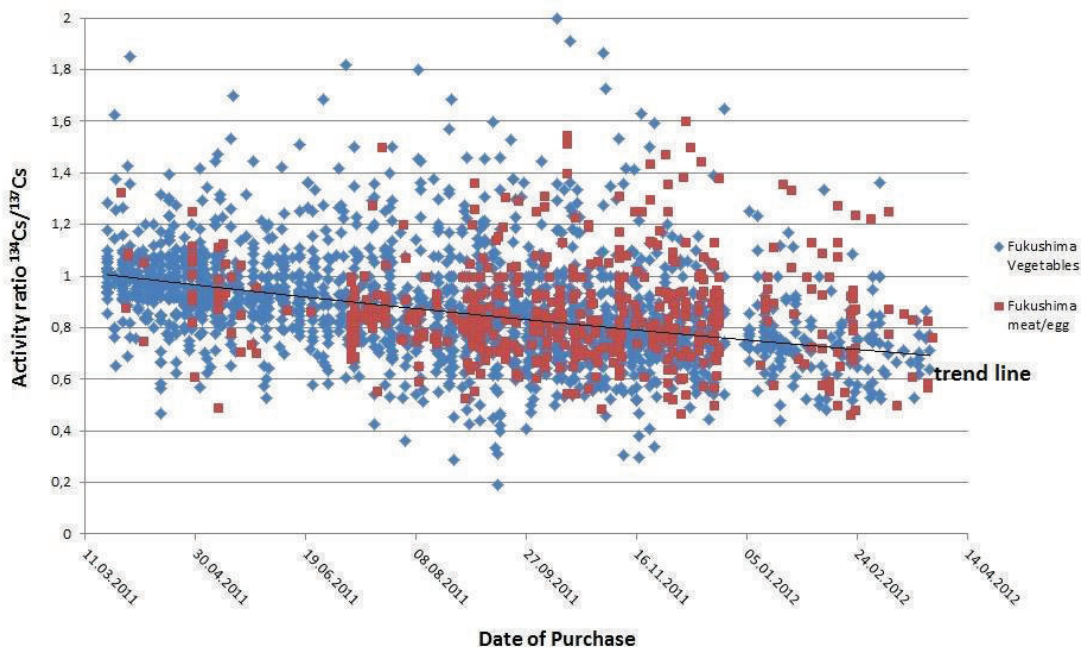


Abb. 8 Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ in Lebensmittelproben aus der Präfektur Fukushima in Abhängigkeit des Einkaufsdatums in einem Zeitraum von 21. März 2011 bis 29. März 2012. Die schwarze Linie entspricht der Änderung des Verhältnisses unter Berücksichtigung der angeführten Proben. Die Angaben wurden auf das jeweilige Datum des Erwerbs abklingkorrigiert. Aus: Merz et al. (2015) D2. This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

Analog zu Abbildung 7 ergibt sich die schwarze Trendlinie für das Aktivitätsverhältnis von ^{134}Cs zu ^{137}Cs unter Berücksichtigung aller hier angegebenen und betrachteten Nahrungsmittelproben. Der Startwert der Linie liegt dabei am 21. März 2011 bei etwa 1,04 und der Endwert für den 29. März 2012 bei ungefähr 0,69. Das physikalische Abklingverhalten ausgehend von einem Wert 1 führt über diesen Zeitraum auf ein Verhältnis von etwa 0,72. In diesem Sinne kann auch hier von einer guten Übereinstimmung mit den physikalischen Erwartungen gesprochen werden. Die größere Streuung der Verhältniswerte im Vergleich zu Abbildung 7 lässt sich durch die Mitberücksichtigung der Proben, welche die Aktivitätsgrenzwerte nicht überschritten haben und somit auch geringere Aktivitätswerte aufweisen, erklären. Auf diese Proben wirken sich Schwankungen der Hintergrundaktivität oder statistische Ungenauigkeiten stärker aus (Merz et al. 2013 D1). Man erkennt außerdem im Verlauf der Messpunkte eine Unterbrechung. Diese ist vermutlich durch die Weihnachtsfeiertage bzw. die Feierlichkeiten zum Jahreswechsel erklärbar.

1.3.1.2. Radiocäsiumaktivitätskonzentration der japanischen Nahrungsmittelproben

1.3.1.2.1. Einfluss der Radionuklidfreisetzungen auf die japanischen Präfekturen

Ein weiterer Schritt der Analyse der aus Japan stammenden Nahrungsmittelproben innerhalb der vorliegenden Arbeit ist eine Betrachtung der ^{137}Cs -Aktivität in Abhängigkeit des Datums des Erwerbs und der Präfektur, aus welcher die betrachtete Probe stammt. Dies könnte Aufschlüsse über mögliche Hot Spots bei der Verbreitung und Deposition oder auch über effektive Halbwertszeiten der freigesetzten Radioaktivität ermöglichen. Die Ordinate der nachstehenden Abbildung 9 ist bei einem Aktivitätswert von $5000 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ abgeschnitten, um eine aussagekräftige Darstellung des Großteils der Messpunkte zu ermöglichen, welcher geringere Aktivitätswerte aufweist.

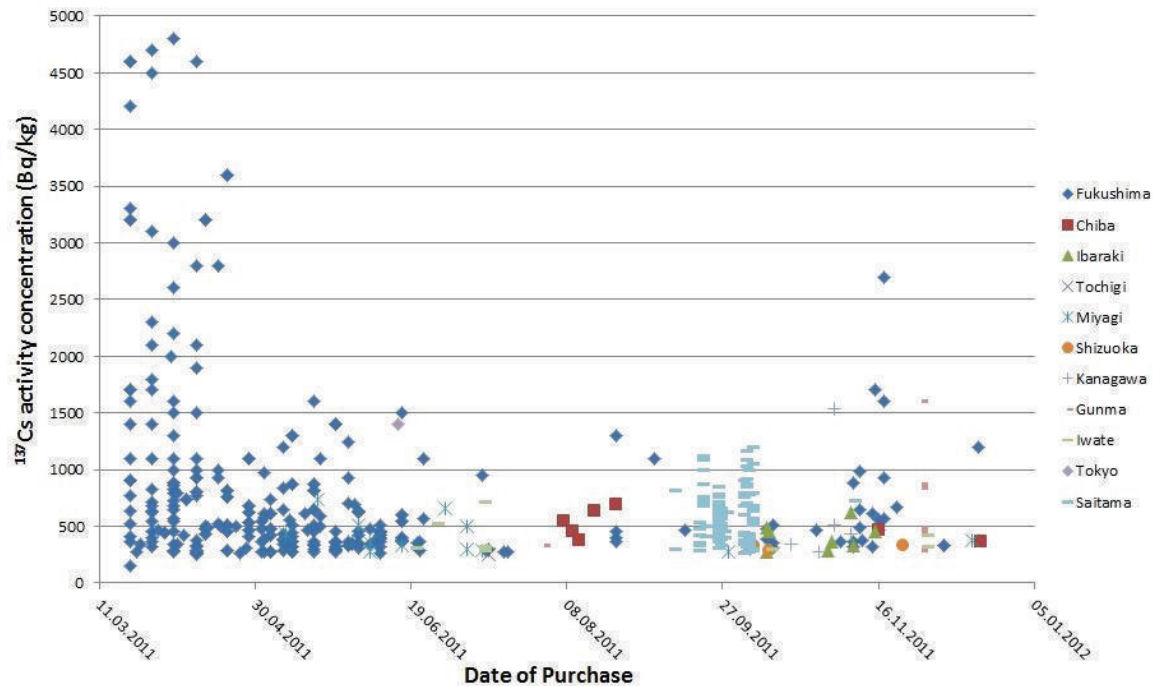


Abb. 9 Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs in Lebensmittelproben in Abhängigkeit des Einkaufsdatums und der entsprechenden Präfektur. Die Angaben wurden auf das jeweilige Datum des Erwerbs abklingkorrigiert.

Die hier erstellte Abbildung 9 berücksichtigt wieder jene Proben, welche aufgrund ihrer Aktivität nicht mehr zum Verzehr freigegeben wurden. Es lässt sich erkennen, dass für die einzelnen Präfektoren nicht über den gesamten betrachteten Zeitraum Messpunkte vorliegen. Dies lässt sich im Prinzip auch in Abbildung 7 erkennen. Außerdem handelt es sich bei den einzelnen Proben nicht zwangsläufig um die gleiche Nahrungsmittelgruppe wie „Gemüse“, „Fleisch“ oder eine andere Kategorie. Um die Daten in Abbildung 9 besser interpretieren zu können, ist es notwendig, die Zusammenhänge zwischen der Häufigkeit der Probennahme, der Überschreitung der Aktivitätsgrenzwerte, dem Einfluss der Präfektur und der Lebensmittelkategorie zu beleuchten.

Die Anstrengungen und Analyseergebnisse der in Japan durchgeführten Lebensmittelüberwachung wurden von den zuständigen Behörden in einer detaillierten Datenbank gesammelt. Für alle untersuchten Nahrungsmittelproben existieren Aufzeichnungen mit Dokumentation der entsprechenden Herkunft, dem Datum der Probennahme, den Aktivitätswerten und der Art des Nahrungsmittels (MHLW 2014a, U. S. Embassy 2014). In dem Zeitraum von 11. März 2011 bis 31. August 2014 wurden auf diese Weise 877.635 Lebensmittelproben genommen und deren Analyseergebnisse veröffentlicht. In der vorliegenden Arbeit werden vorrangig die Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen jener Lebensmittel betrachtet, die im ersten Jahr nach dem Reaktorunfall von Fukushima als Nahrungsmittelprobe herangezogen wurden. Für den Zeitraum vom 11. März 2011 bis zum 31. März 2012 liegen

133.778 Lebensmittelproben vor (MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2). Die japanischen Behörden unterschieden bei der Probennahme zwischen „Producer“ und „Processor“ und ordneten die Herkunft der Lebensmittelproben entsprechend dem Ort der landwirtschaftlichen Erzeugung zu. Bei 80,9 % der Lebensmittel fand die Beprobung „pre-market“, also beim Bauern bzw. Hersteller noch vor dem Inverkehrbringen, statt. 8,8 % der Nahrungsmittelproben wurden „post-market“ im Lebensmittelhandel erworben und für 10,3 % der Proben fehlte diesbezüglich eine Zuordnung (Merz et al. 2015 D2, MHLW 2015a). Bei der Betrachtung des gesamten Datensatzes erkennt man, dass die Probennahme nicht für alle Präfekturen mit dem 11. März 2011 begann. Die Regelmäßigkeit der Probennahme variiert ebenfalls mit der betrachteten Präfektur. Verständlicher Weise liegen auch nicht für alle Präfekturen die gleichen Arten an Lebensmittelproben vor. Proben von Fisch, Meeresfrüchten und ähnlichem sind zum Beispiel auf die Küstenregionen beschränkt. Gleichzeitig wurden auch vergleichbare Proben in den einzelnen Präfekturen nicht über die gesamte Dauer der Überwachungsaktivität gemessen. Die Präfekturen wurden nach dem Reaktorunfall von Fukushima von der japanischen Regierung im Sinne der behördlichen Vorgaben mit der eigenständigen Lebensmittelüberwachung betraut (Hamada & Ogino 2012, Merz et al. 2013 D1, MHLW 2015a). Diese grundsätzliche Unabhängigkeit spiegelt sich sowohl in unterschiedlicher Häufigkeit und Beginn der Probennahme als auch in der Auswahl der Lebensmittel wider. Das erklärt, weshalb sich auf einfache Weise keine tiefgehenden Aussagen über die vorliegende ^{137}Cs -Aktivität der Proben treffen lassen. In diesem Zusammenhang zeigt sich, wie sehr sich die Fragestellung bzw. das angestrebte Ziel auf die Erzeugung eines Datensatzes auswirkt. Wissenschaftliche Fragen bedürfen teilweise einer sehr spezifischen und genauestens dokumentierten Probennahme, wohingegen ein breit angelegtes Lebensmittelscreening naturgemäß nicht dieselben Ansprüchen bedienen kann.

Das japanische Ministerium für Gesundheit, Arbeit und Soziales hat eine Zusammenfassung der im ersten Jahr gesammelten Nahrungsmittelproben mit Aufschlüsselung in Präfekturen und Nahrungsmittelgruppen erstellt und diese elektronisch veröffentlicht (MHLW 2014b). Ein Auszug aus diesen Daten und die in dieser Arbeit hinzugefügte Erweiterung um den Anteil an Grenzwertüberschreitungen als Kennzahl sind in Tabelle 1 gegeben.

Tab. 1 Auflistung der Anzahl an genommenen Lebensmittelproben, die Anzahl an Proben welche eine Aktivitätskonzentration größer dem Grenzwert für Radiocäsium von 500 Bq kg^{-1} (gültig bis 31. März 2012) aufwiesen und der Ausweisung des entsprechenden Anteils an Grenzwertüberschreitungen für eine Auswahl an Präfekturen. Die Daten berücksichtigen den Zeitraum von 11. März 2011 bis 31. März 2012.

Präfektur	Proben total	Proben mit Grenzwert-überschreitung	Anteil mit Grenzwert-überschreitung
Akita	1942	2	0,1%
Chiba	3529	32	0,9%
Fukushima	21549	718	3,3%
Gunma	12114	26	0,2%
Ibaraki	13450	86	0,6%
Iwate	9272	32	0,3%
Kanagawa	1058	21	2,0%
Miyagi	14963	64	0,4%
Nagano	7230	1	0,0%
Saitama	3489	127	3,6%
Shizuoka	1662	10	0,6%
Tochigi	12197	75	0,6%
Tokyo	494	7	1,4%
Yamagata	12605	3	0,0%

Die Tabelle ermöglicht eine erste Aussage darüber, wie stark die lokale Lebensmittelindustrie der einzelnen Präfekturen von der Freisetzung der Radionuklide betroffen war. Betrachtet man die Auswirkung der Deposition auf die vor Ort erzeugten Lebensmittel, lässt sich prinzipiell auch ohne detailliertere Betrachtung der Aufnahmemechanismen von Radioaktivität in die Nahrung, eine Erkenntnis über die Ausprägung von Hot Spots im weiteren Sinne ableiten. Die größte Anzahl sowohl an untersuchten Proben als auch an Proben, die eine Grenzwertüberschreitung aufweisen, steht erwartungsgemäß mit der Präfektur Fukushima in Zusammenhang. Der Anteil an Nahrungsmitteln, dessen Radionuklidkonzentration die japanischen Aktivitätsgrenzwerte überschritt, betrug im ersten Jahr 3,3 %. Nachdem sich die Lebensmittelüberwachung in Fukushima auf die Überprüfung jener Lebensmittel konzentrierte, bei denen mit einer verstärkten Aufnahme und Akkumulation von Radiocäsium zu rechnen ist, stieg im zweiten Jahr der Anteil an Grenzwertüberschreitungen bei den Lebensmitteln auf 4,0 %. In den Folgejahren nahm der Anteil an gesundheitsgefährdenden Nahrungsmitteln ab und lag in der letzten Überwachungsperiode bei 0,6 % (MHLW 2014b, Merz et al. 2015 D2). Die größte relative Anzahl an Nahrungsmittelproben, welche die gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerte überstiegen, weist mit 3,6 % die Präfektur Saitama auf. In Saitama ergibt sich der hohe Anteil an potentiell gesundheitsgefährdenden Lebensmittelproben ausschließlich durch Messungen von Teeblättern. Die japanische Teepflanze ist dafür bekannt, eine Deposition von Cäsium über die Blätter aufzunehmen und in die jungen Blätter zu transferieren, welche geerntet und zu Tee weiterverarbeitet werden (Shiraki et al. 2013, Merz et al. 2015 D2). Dieser Mechanismus ist nur im ersten

Jahr nach dem Unfall von Fukushima relevant, sodass in den Folgejahren in Saitama keine Grenzwertüberschreitungen in Teeproben festgestellt wurden. Während sich im ersten Jahr der Lebensmittelüberwachung in Saitama die Überschreitungen der Aktivitätsgrenzwerte auf eine Nahrungsmittelkategorie beschränkten, ließen in Fukushima praktisch alle Lebensmittelgruppen einen erhöhten Anteil an radioaktiv kontaminierten Proben erkennen (MHLW 2014a, MHLW 2014b, Merz et al. 2015 D2). In diesem Sinne war die Präfektur Fukushima erwartungsgemäß von der Deposition des freigesetzten radioaktiven Aerosols am stärksten betroffen.

1.3.1.2.2. Radiocäsiumkonzentration in pflanzlichen Lebensmitteln

Pflanzen- bzw. Vegetationsproben spiegeln nur einen Ausschnitt aus der im Boden befindlichen integralen Deposition wider. Dadurch lassen sich Messungen nicht auf einfache Weise vergleichen. Die Aufnahmemechanismen von Radionukliden durch (Nutz-)Pflanzen aus dem Boden bzw. der Umwelt sind von vielen verschiedenen Faktoren beeinflusst. Verschiedene Vegetationsarten unterschieden sich zum Teil deutlich in der Aufnahme von Radionukliden. Dabei sind sie durch die ökologische Umgebung, in der sie wachsen, stark beeinflusst. Flechten, Moose und Pilze weisen in diesem Zusammenhang oft sehr hohe Konzentrationen an Radionukliden auf (OECD & NEA 2003).

Die vorherrschende Radionuklidkonzentration ist auch von der Art des Bodens abhängig. Silikatreiche vulkanische Böden können zum Beispiel als Cäsiumabsorber betrachtet werden (Steinhauser & Bichler 2008). Lehm und Tonminerale weisen ein noch höheres Retentionsvermögen auf, wodurch Cäsium verstärkt über Ionenaustauschprozesse im Boden fixiert wird (Montes et al. 2013). Verschiedene Humusarten können einerseits effektiv als Cäsiumabsorber wirken, während andere Humuszusammensetzungen das Auswaschen von Cäsium unter jene Bodentiefe, in welcher sich Wurzeln befinden, ermöglichen (Kruyts et al. 2004, Ylipieti et al. 2008). Die Aktivitätskonzentration und Dauer, für die sich die Radionuklide in der Bodentiefe der Wurzeln aufhalten, ist verständlicher Weise mitbestimmend für die Cäsiummigration von Boden zu Vegetation (OECD & NEA 2003). Auch die vorhandene Vegetation selbst beeinflusst den Cäsiumgehalt im Boden (Zhdanova et al. 2005). Die Untersuchung einzelner Bodenschichten unterschiedlicher Bodenarten zeigt, dass sich die Aktivitätsprofile für die Cäsiumverteilung deutlich verschieden ausprägen können. Einerseits lässt sich in Abhängigkeit der Zusammensetzung der Bodenschichten ein Aktivitätsmaximum in einer Bodentiefe von etwa 10 cm bis 15 cm erkennen, während zum Beispiel lehmhaltige Böden praktisch eine stetige Verringerung des Cäsiumgehalts mit steigender Bodentiefe aufweisen (Carbol et al. 2003, Montes et al. 2013). Zusammengefasst ist die Migration von Cäsium im Boden unter anderem von der Mineralogie des Bodens

(Ionenaustauschvermögen), pH-Wert, organischem Material im Boden, dem symbiontischen Verhalten mit Mikroorganismen und der physikalischen Beschaffenheit des Bodens abhängig (Giannakopoulou et al. 2007, Montes et al. 2013). Im Allgemeinen ist die vertikale Ausbreitung von Cäsium im Boden ein sehr langsam voranschreitender Prozess (Carbol et al. 2003, OECD & NEA 2003, Montes et al. 2013).

Für die von den einzelnen japanischen Präfekturen gesammelten Nahrungsmittelproben ließ sich im Zuge der vorliegenden Arbeit zwischen den verschiedenen Nahrungsmittelgruppen ein Vergleich der Radiocäsiumaktivitätswerte anstellen. Es konnten für die betrachteten Nahrungsmittel unterschiedliche Verläufe der Radiocäsiumkonzentration über ein Jahr und in diesem Sinne der Einfluss verschiedener Mechanismen auf die Lebensmittel identifiziert werden. Aufgrund der großen Probenzahl im Allgemeinen und der Probennahme einer repräsentativen Anzahl für viele verschiedene Nahrungsmittel lassen sich die Zusammenhänge und Abläufe, bei der Betrachtung der Nahrungsmittelproben aus Fukushima, am besten nachvollziehen. In den umliegenden Präfekturen lassen sich die Mechanismen ebenfalls eindeutig erkennen, meist allerdings nur für eine ausgewählte Nahrungsmittelgruppe. Die erste Probennahme von vegetarischen Lebensmitteln fand in der Präfektur Fukushima am 21. März 2011 statt (MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2).

Die kumulierte Radiocäsiumkonzentration von ^{134}Cs und ^{137}Cs der Lebensmittel aus Fukushima wurde in der vorliegenden Arbeit für den Zeitraum von 11. März 2011 bis 31. März 2012 in Abhängigkeit des Datums des Erwerbs betrachtet. In Abbildung 10 ist die Radiocäsiumaktivitätskonzentration für fleischlose Nahrungsmittel wie Gemüse, Früchte, Pilze und Tee dargestellt. Die magentafarbene punktierte Linie gibt den zum Zeitpunkt der Probennahme in Japan gültigen Grenzwert von 500 Bq kg^{-1} für Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen in Nahrungsmittel an. Die hellblaue punktierte Linie repräsentiert den Aktivitätsgrenzwert für Radiocäsium von 100 Bq kg^{-1} , der seit 1. April 2012 in Japan gültig ist (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

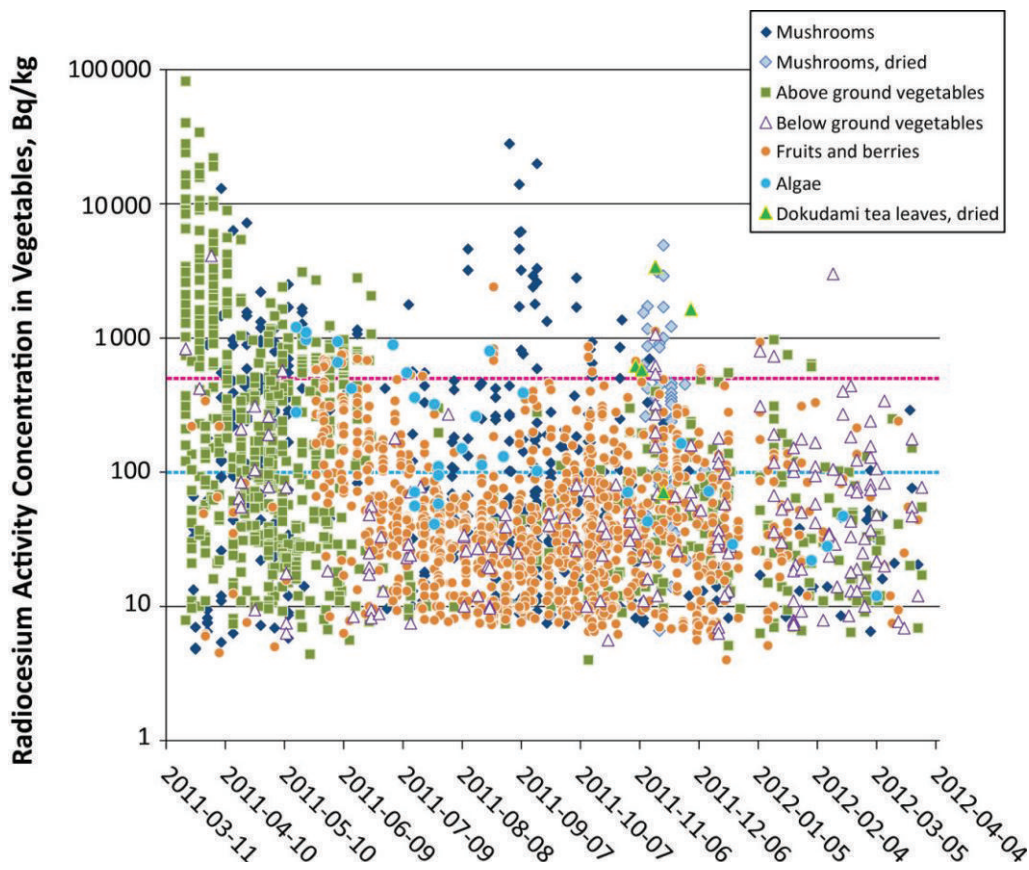


Abb. 10 Radiocäsiumaktivitätskonzentration kumuliert für ^{134}Cs und ^{137}Cs in Gemüse und pflanzlichen Produkten aus der Präfektur Fukushima, gemessen in der Zeit von 11. März 2011 bis 31. März 2012. Der bis zum 31. März 2012 gültige Aktivitätsgrenzwert von $500 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ für Radiocäsium in Gemüse, Zerealien, Fleischwaren, Eiern, Fischereiprodukten und anderen Lebensmitteln ist durch die magentafarbene punktierte Linie dargestellt. Der ab dem 1. April 2012 gültige Radiocäsiumaktivitätsgrenzwert von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ist durch die hellblaue punktierte Linie gegeben. Aus: [Merz et al. \(2015\) D2](#). This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

In Abbildung 10 erkennt man, dass Gemüse, dessen verzehrbare Teile außerhalb des Erdreichs wachsen, bereits zum Zeitpunkt der ersten Probennahme hohe Radiocäsiumkonzentrationen aufwies. Vor der Bestimmung der Radionuklidkonzentration wurden die Lebensmittel verzehrfertig gemacht. Das heißt, sie wurden gewaschen und von oberflächlichen Verunreinigungen gesäubert ([Hamada & Ogino 2012](#), [Merz et al. 2013 D1](#)). In diesem Sinne wurde die aufgetretene Radionukliddeposition rasch von den Pflanzen aufgenommen. Die Radiocäsiumaktivitätswerte in den Nahrungsmitteln sanken in den darauffolgenden Monaten, sodass Anfang August 2011 nur wenige Lebensmittelproben den zu diesem Zeitpunkt gültigen Aktivitätsgrenzwert von $500 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ überschritten. Danach ist ein deutlicher Anstieg an Lebensmittelproben, deren Radiocäsiumkontamination den Radiocäsiumaktivitätsgrenzwert überstiegen, erkennbar. Dieser Peak ist durch die Probennahme von Pilzen bedingt, die die Eigenschaft besitzen, Schwermetalle wie Cäsium verstärkt zu akkumulieren ([OECD & NEA 2003](#), [Merz et al. 2015 D2](#)). Im September 2011 wurden Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen in Pilzen bis zu $28 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ nachgewiesen. Vergleichbare Aktivitätskonzentrationen traten im

Zuge der Lebensmittelüberwachung nur in der Zeit direkt nach dem Reaktorunfall von Fukushima auf. Im November 2011 ist aufgrund der Radiocäsiumaktivitätskonzentration in getrockneten Pilzen und Teeblättern gegen Ende der Pilzsaison ein weiterer Peak erkennbar. In den darauffolgenden Monaten tritt für die gemessene Aktivitätskonzentration in den Nahrungsmitteln kein vergleichbar ausgeprägter Peak auf. Im Jänner 2012 lässt sich noch eine geringfügige Zahl an Grenzwertüberschreitungen, die vorrangig auf die Radiocäsiumkonzentration in getrockneten Lebensmitteln zurückzuführen ist, beobachten (Merz et al. 2015 D2).

In den umliegenden Präfekturen von Fukushima kann man für die verschiedenen Nahrungsmittelgruppen sehr ähnliche Abfolgen erkennen. Die Werte der gemessenen Radiocäsiumkonzentrationen waren dabei allerdings deutlich niedriger als in Fukushima (MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2). Eine schnelle Aufnahme der Radiocäsiumdeposition in die Nahrungsmittel war auch im Fall der umliegenden Präfekturen auszumachen. Danach sanken die in den pflanzlichen Lebensmitteln der umliegenden Präfekturen gemessenen Radiocäsiumkonzentrationen analog zu dem Abfall der Radiocäsiumaktivität in den Lebensmitteln aus Fukushima. Ab September 2011 traten bei den Lebensmittelproben ähnlich wie in Fukushima wieder vermehrt Überschreitungen des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes auf. Die hohen Radiocäsiumkonzentrationen wurden analog in Pilzen wie Shiitake beobachtet und überstiegen dabei teilweise die Radiocäsiumaktivitätswerte, die in den Nahrungsmitteln der umliegenden Präfekturen direkt nach dem Reaktorunfall gemessen wurden. Während die Nahrungsmittelproben, deren Radiocäsiumkonzentration den Aktivitätsgrenzwert überschritten, im März und April 2011 vorrangig aus Ibaraki stammten, war dies ab Oktober 2011 vorwiegend für Proben aus Tochigi der Fall (Merz et al. 2015 D2). Wie bereits im Zusammenhang mit Tabelle 1 erwähnt, wiesen in der Präfektur Saitama eine Vielzahl an Proben von getrockneten Teeblättern hohe Radiocäsiumaktivitätswerte auf. Ähnlich wie für die Präfektur Fukushima, bei der getrocknete Pilze und Teeblätter im November 2011 einen Peak der gemessenen Radiocäsiumaktivitätswerte verursachten, wurden die Überschreitungen des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes in den getrockneten Teeblättern aus Saitama Ende Oktober 2011 nachgewiesen (MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2).

1.3.1.2.3. Radiocäsiumkonzentration in tierischen Lebensmitteln

Analog zu pflanzlichen Lebensmitteln ließ sich bei der Betrachtung von tierischen Produkten, die im Zuge der in Japan durchgeführten Nahrungsmittelüberwachung untersucht wurden, durch die hier für verschiedene Lebensmittel durchgeführten Analysen, ein unterschiedlicher Verlauf in Bezug auf die nachgewiesene Radiocäsiumaktivitätskonzentration erkennen. Die erste Probennahme tierischer

Nahrungsmittel fand in der Präfektur Fukushima am 15. März 2011 statt. Im Gegensatz zu den ersten Proben pflanzlicher Lebensmittel aus Fukushima, die bereits eine deutliche Überschreitung des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes aufwiesen, konnte in den Rindfleischproben vom 15. März keine detektierbare Radiocäsiumkonzentration nachgewiesen werden (MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2). In Abbildung 11 ist die kumulierte Radiocäsiumaktivitätskonzentration von ^{134}Cs und ^{137}Cs für tierische Nahrungsmittel wie Rind, Wildschwein, Geflügel, Schwein und Hirsch für den Zeitraum von 11. März 2011 bis 31. März 2012 in Abhängigkeit des Datums des Erwerbs aufgetragen. Analog zu Abbildung 10 gibt die magentafarbene punktierte Linie den zum Zeitpunkt der Probennahme in Japan gültigen Grenzwert von 500 Bq kg^{-1} für Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen in Nahrungsmittel an. Die hellblaue punktierte Linie repräsentiert den Aktivitätsgrenzwert für Radiocäsium von 100 Bq kg^{-1} , der seit 1. April 2012 in Japan gültig ist (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

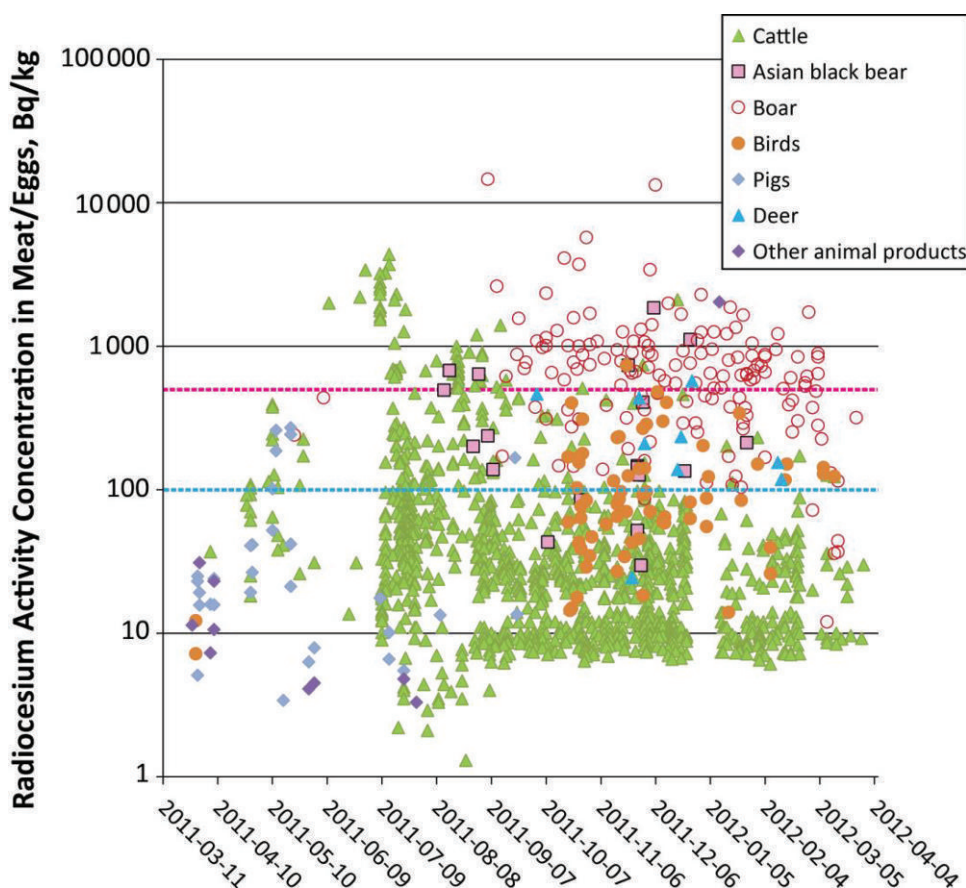


Abb. 11 Radiocäsiumaktivitätskonzentration kumuliert für ^{134}Cs und ^{137}Cs in tierischen Lebensmittelerzeugnissen aus der Präfektur Fukushima, gemessen in der Zeit von 11. März 2011 bis 31. März 2012. Der bis zum 31. März 2012 gültige Aktivitätsgrenzwert von 500 Bq kg^{-1} für Radiocäsium in Gemüse, Zerealien, Fleischwaren, Eiern, Fischereiprodukten und anderen Lebensmitteln ist durch die magentafarbene punktierte Linie dargestellt. Der ab dem 1. April 2012 gültige Radiocäsiumaktivitätsgrenzwert von 100 Bq kg^{-1} ist durch die hellblaue punktierte Linie gegeben. „Other animal products“ inkludiert Hühnereier, Hühnerleber, Schweineleber, Pferdefleisch und Hase. Aus: Merz et al. (2015) D2. This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

Wie aus Abbildung 10 und 11 ersichtlich ist, traten anders als für pflanzliche Produkte die höchsten Radiocäsiumkonzentrationen in tierischen Lebensmitteln nicht direkt nach den Radionuklidfreisetzungen des Reaktorunfalls von Fukushima auf. Bis zum 10. Juni 2011, an dem die erste Grenzwertüberschreitung in Rindfleisch nachgewiesen wurde, kann man einen kontinuierlichen Anstieg der Radiocäsiumkonzentrationen in Rindfleischproben beobachten (Merz et al. 2015 D2). Die kontinuierliche Radiocäsiumakkumulation in den Rindfleischproben, im Vergleich zu dem sprunghaften Auftreten hoher Radiocäsiumaktivitäten in pflanzlichen Lebensmittelproben, lässt sich durch den Umweg im Aufnahmepfad der Radiocäsiumdeposition erklären. Das freigesetzte Radiocäsium erreicht die Nutztiere erst über den Zwischenschritt der Aufnahme der Radiocäsiumkontamination in Nutzpflanzen. Bei der Ingestion der kontaminierten Nutzpflanzen durch die Nutztiere wird anschließend auch nur ein Teil der in den Pflanzen vorliegenden Radiocäsiumkontamination in den tierischen Organismus aufgenommen. Detailliertere Erklärungen zum analogen Ablauf der Akkumulation von Radioiod in die Schilddrüse finden sich in Kapitel 1.3.2.3.1. – „Akkumulation von Radioiod“. Die höchsten Radiocäsiumkonzentrationen in Rindfleisch aus der Präfektur Fukushima wurden Anfang Juli 2011 gemessen. Danach erkennt man im Allgemeinen ein Absinken der Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen in den Rindfleischproben (Merz et al. 2015 D2).

Ein Vergleich der Rindfleischproben mit Schweinefleisch zeigt, dass das Schweinefleisch deutlich niedrigere Radiocäsiumaktivitätswerte aufwies. Dies lässt sich durch die unterschiedliche Tierhaltung begründen. Während Schweine üblicher Weise in einem Stall gehalten werden, werden Rinder, die für die Rindfleischproduktion herangezogen werden, zu einem großen Teil auch auf freien Flächen gezüchtet. Dadurch sind Rinder einer Radionukliddeposition direkter ausgesetzt. In dem Zusammenhang kann das Füttern der Nutztiere mit nicht kontaminierten Futtermitteln im Falle von Schweinen als einfacher realisierbar und folglich auch als effektiver betrachtet werden. Gleichzeitig beinhaltet der Futterplan von Rindern, verglichen mit jenem von Schweinen, im Allgemeinen einen höheren Anteil an Frischfutter wie Gras und in Relation geringere Mengen an Futtermitteln aus Lagerbeständen. Das Füttern von Nutztieren mit nicht kontaminierten Futtermitteln, um die Einlagerung bzw. Akkumulation von Radionukliden im Muskelgewebe bzw. in der Milch zu reduzieren, gilt als eine der effektivsten Maßnahmen, um die Bevölkerung vor der Konsumation von kontaminierten Lebensmitteln zu schützen (IAEA 2006).

Die höchsten Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen wurden in Fukushima in Proben von Wildschweinefleisch gemessen. Ein Vergleich von Abbildung 10 und 11 zeigt, dass die Überschreitungen des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes in Fleisch von Wildschweinen dabei etwa zur selben Zeit bzw. kurz nach den Grenzwertüberschreitungen in Pilzen aus Fukushima auftraten. Da sich Wildschweine zu einem wesentlichen Teil auch von Pilzen, Flechten und anderen Pflanzen, die Cäsium verstärkt akkumulieren, ernähren, kann man

die beiden Peaks der Radiocäsiumaktivitätskonzentration in Pilzen und Wildschweinfleisch auf die gleichen Mechanismen in Zusammenhang mit der Radiocäsiumdeposition zurückführen (OECD & NEA 2003, Merz et al. 2015 D2).

In den umliegenden Präfekturen begann die systematische Messung von tierischen Produkten erst im Juli 2011. Zu diesem Zeitpunkt zeigte Rindfleisch aus Fukushima bereits deutliche Überschreitungen des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes. In diesem Sinne muss davon ausgegangen werden, dass Lebensmitteln aus den umliegenden Präfekturen in den Lebensmittelhandel gelangten, deren Radiocäsiumkonzentrationen teilweise den gültigen Grenzwert überschritten. Auch in den umliegenden Präfekturen zeigten vor allem Proben von Wildschwein-, Rind- und Hirschfleisch hohe Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen. Deutliche Überschreitungen des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes traten dabei ähnlich wie in Fukushima bis in den Februar 2012 auf (Merz et al. 2015 D2).

1.3.1.2.4. Identifikation radioökologisch sensibler Lebensmittel

Die hier durchgeführte Analyse, der im Zuge der in Japan durchgeführten Lebensmittelüberwachung gesammelten Lebensmittelproben, ermöglichte die Identifikation jener Lebensmittel, die aus radioökologischer Sicht einen besonders sensiblen Organismus aufweisen und in diesem Sinne die vorherrschende Radiocäsiumdeposition verstärkt akkumulierten. In Abbildung 12 sind die gemessenen Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen dieser Nahrungsmittelgruppen übergreifend für pflanzliche und tierische Lebensmittel und gesammelt für alle japanischen Präfekturen graphisch aufbereitet. Analog zu Abbildung 10 und 11 gibt die magentafarbene punktierte Linie den zum Zeitpunkt der Probennahme in Japan gültigen Grenzwert von $500 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ und die hellblaue punktierte Linie den seit 1. April 2012 gültigen Radiocäsiumaktivitätsgrenzwert von $100 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ in Nahrungsmitteln an (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

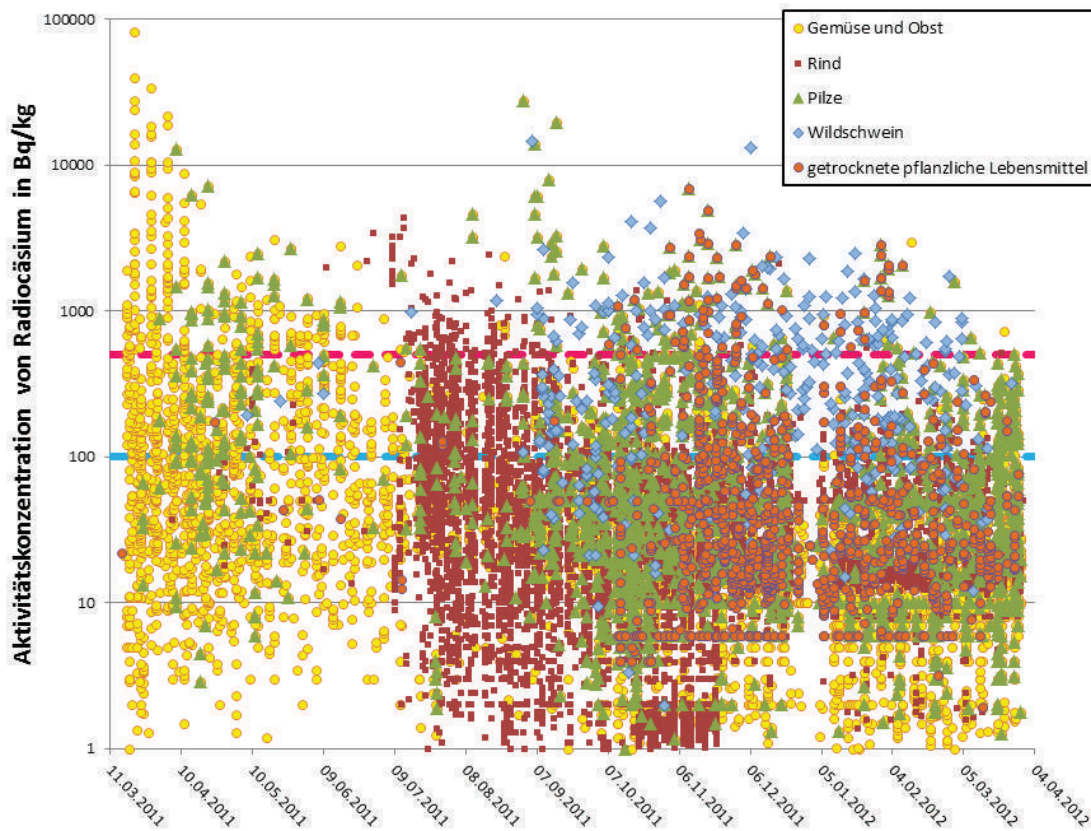


Abb. 12 Radiocäsiumaktivitätskonzentration kumuliert für ^{134}Cs und ^{137}Cs für aus radioökologischer Sicht besonders sensible Lebensmittelgruppen. Die Radiocäsiumaktivitätskonzentration der Lebensmittelerzeugnisse sind unabhängig von der Zuordnung der Herkunft zu einer Präfektur in der Zeit von 11. März 2011 bis 31. März 2012 dargestellt. Der bis zum 31. März 2012 gültige Aktivitätsgrenzwert von 500 Bq kg^{-1} für Radiocäsium in Gemüse, Zerealien, Fleischwaren, Eiern, Fischereiprodukten und anderen Lebensmitteln ist durch die magentafarbene punktierte Linie dargestellt. Der ab dem 1. April 2012 gültige Radiocäsiumaktivitätsgrenzwert von 100 Bq kg^{-1} ist durch die hellblaue punktierte Linie gegeben. Die Nahrungsmittelgruppe „Pilze“ ist dabei Teilmenge der Nahrungsmittelgruppe „Gemüse und Obst“. „Getrocknete pflanzliche Lebensmittel“ und „Pilze“ weisen ebenfalls eine Schnittmenge auf.

In Abbildung 12 lassen sich die Unterschiede, Analogien und Zusammenhänge im Verlauf der Radiocäsiumaktivitätskonzentration der einzelnen Nahrungsmittelgruppen, als Ergebnis der in dieser Arbeit durchgeführten Analyse, auf einen Blick erkennen. Wie bereits in Zusammenhang mit Abbildung 10 erwähnt, lässt sich direkt nach den Radionuklidfreisetzungen des Reaktorunfalls von Fukushima ein sprunghafter Anstieg der Radiocäsiumaktivitätskonzentration in Gemüse und Obst erkennen. Neben den Gemüsesorten, die oberhalb des Erdreichs wachsen, zeigten auch verschiedene Blattgemüse eine rasche Aufnahme der Radiocäsiumdeposition und wiesen verstärkt sehr hohe Radiocäsiumkonzentrationen auf (MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2).

Während die pflanzlichen Lebensmittel in den darauffolgenden Monaten ein Absinken der Radiocäsiumkonzentrationen aufweisen, lässt sich, wie bereits teilweise in Zusammenhang mit Abbildung 11 erwähnt, konträr für Proben von sowohl Rindfleisch als auch Wildschweinfleisch ein kontinuierlicher Anstieg der gemessenen

Radiocäsiumaktivitätswerte beobachten. Da Wildscheine in freier Natur leben und auch Rinder mit dem Ziel der Fleischverarbeitung zu einem großen Teil auf freien Flächen gezüchtet werden, sind die Tiere selbst und auch ihre Nahrung direkt der Radionukliddeposition ausgesetzt. Dadurch akkumulieren sie die vorherrschende Radiocäsiumdeposition fortlaufend im Organismus. Um diesem Mechanismus entgegenzuwirken, gilt die Fütterung der Nutztiere mit nicht kontaminierten Futtermitteln als effektivste Maßnahme. Da die Einflussnahme des Menschen auf die Entwicklung beim Aufwachsen von Wildschweine im Vergleich zu Rindern und anderen Nutztieren üblicher Weise deutlich geringer ist, lässt sich auch die kontrollierte Fütterung nur bis zu einem gewissen Ausmaß realisieren. Dies lässt sich auch in Abbildung 12 erkennen. Der Anteil an Lebensmittelproben von Rindfleisch, dessen Radiocäsiumaktivitätskonzentration den Grenzwert von 500 Bq kg^{-1} im beobachteten Zeitraum übersteigt, liegt bei 0,2 %. Für die Proben von Wildschweinfleisch ergibt sich ein Anteil von 35,6 %. Neben der grundsätzlich beschränkten Einflussmöglichkeit des Menschen auf die Fressgewohnheiten von Wildschweinen, besteht zusätzlich ein bedeutender Teil ihrer Nahrung aus Pilzen und Flechten, deren Eigenschaft es ist, Radiocäsium verstärkt zu akkumulieren (OECD & NEA 2003, MHLW 2014a, Merz et al. 2015 D2).

Für die Nahrungsmittelgruppe der Pilze ist in Abbildung 12 erkennbar, dass diese über den gesamten betrachteten Zeitraum mitunter die höchsten Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen aufweisen. Während im April die gemessenen Radiocäsiumkonzentrationen für Gemüse und Obst im Allgemeinen fallen, weisen die Lebensmittelproben von Pilzen einen Anstieg der Radiocäsiumkonzentration und im Vergleich zu „Gemüse und Obst“ einen hohen Anteil an Überschreitungen des Radiocäsiumgrenzwertes auf. „Pilze“ sind dabei als Teilmenge in der Nahrungsmittelgruppe „Gemüse und Obst“ inkludiert. Durch die Überlappung der Messpunkte in Abbildung 12 lässt sich der Anteil an Überschneidungen entsprechend identifizieren. Im September 2011 ist, wie bereits im Zusammenhang mit Abbildung 10 erwähnt, ein stark ausgeprägter Peak der Radiocäsiumaktivitätskonzentration erkennbar. Man sieht, dass die Überschreitung des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes von „Gemüse und Obst“ beinahe ausschließlich durch den Einfluss der Pilze bedingt ist. Analog erkennt man für den Peak der Radiocäsiumaktivitätskonzentration im November und allgemein in Verbindung mit „getrockneten pflanzlichen Lebensmitteln“, dass die Radiocäsiumgrenzwertüberschreitungen vorrangig auf getrocknete Pilze zurückzuführen sind (MHLW 2014a).

Obwohl die höchsten Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen in Nahrungsmitteln direkt nach dem Reaktorunfall von Fukushima beobachtet wurden, traten über das gesamte nachfolgende Jahr hinweg deutliche Überschreitungen des Radiocäsiumaktivitätsgrenzwertes auf. Vor allem Nahrungsmittel, auf die der Mensch bei

der Aufzucht bzw. Entwicklung nur wenig Einfluss ausübt, weisen über längere Zeit hinweg hohe Radiocäsiumaktivitätskonzentrationen auf. In diesem Sinne ist es auch notwendig, saisonale Produkte in die Lebensmittelüberwachung miteinzubeziehen und es kann die in Japan bis heute fortlaufende Lebensmittelüberwachung als unumgänglich betrachtet werden (OECD & NEA 2003, Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

1.3.1.3. Analyse des Aktivitätsverhältnisses von ^{90}Sr zu ^{137}Cs

1.3.1.3.1. Gesetzliche Annahmen bezüglich des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses

^{90}Sr ist ein reiner β -Strahler und wird im Zuge der Kernspaltung als Spaltprodukt gebildet. Die Bestimmung von reinen α - und β -Strahlern bzw. deren Konzentration in einem Stoffgemisch macht eine chemische Behandlung und Trennung der einzelnen Stoffe notwendig. In diesem Sinne ist die Aktivitäts- und Konzentrationsbestimmung, im Vergleich zur Messung und Bestimmung von Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden mittels Gammaskopie, bedeutend aufwändiger (Steinhauser et al. 2013c, Merz et al. 2015 D2).

Um das Vorkommen in der Umwelt und die gesundheitliche Relevanz von ^{90}Sr zu berücksichtigen, wurde von den japanischen Behörden ein konstantes Verhältnis zwischen dem β -Strahler ^{90}Sr und dem auf einfache Weise nachweisbaren γ -Strahler ^{137}Cs angenommen. Ausgehend von den Radionuklidfreisetzungen im Zuge des Reaktorunfalls von Tschernobyl und der Radionukliddeposition als Folge von Kernwaffentests wurde in den für Japan gültigen Regulatorien für die Aktivitätskonzentration von ^{90}Sr ein Verhältnis von 10 % im Vergleich zur ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration angenommen. Diese Annahme besaß bis 31. März 2012 Gültigkeit (Kodaira 1964, Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2). Für die gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerte, die am 1. April 2012 in Japan in Kraft traten, wurde das Aktivitätsverhältnis, das zwischen ^{90}Sr und ^{137}Cs angenommen wurde, angepasst. Da im Zuge des Reaktorunfalls von Fukushima, verglichen mit den Freisetzungseignissen von Tschernobyl, deutlich weniger Radiostrontium im Vergleich zu Radiocäsium freigesetzt wurde, beschlossen die japanischen Behörden, das als konstant angenommene Aktivitätsverhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs an den für Fukushima charakteristischen Verhältniswert anzugleichen. Für die Radionuklidfreisetzungen des Reaktorunfalls von Fukushima wurden die Verhältniswerte $^{238+239+240+241}\text{Pu} : ^{90}\text{Sr} : ^{106}\text{Ru} : ^{134}\text{Cs} : ^{137}\text{Cs} = 0,000\ 002 : 0,003 : 0,02 : 0,92 : 1$ angenommen. Seit dem 1. April 2012 ist somit im Zusammenhang mit den in Japan gültigen gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerten für Radionuklide in Lebensmitteln zwischen ^{90}Sr und ^{137}Cs ein konstantes Verhältnis von 0,3 % gültig (Schwantes et al. 2012,

Merz et al. 2015 D2, MHLW 2015b). Für jene Lebensmittelproben, die im Zuge der von den japanischen Präfekturen durchgeführten Lebensmittelüberwachung gewonnen und analysiert wurden, fand keine konkrete Bestimmung der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration statt. Da sich die japanischen Behörden darauf konzentrierten, mit den zur Verfügung stehenden begrenzten Ressourcen möglichst viele Lebensmittelproben zu bewerten und weiträumig Daten zu sammeln, musste auf aufwändige Behandlungen und Analysen der Nahrungsmittelproben verzichtet werden (Hamada & Ogino 2012, Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

Aufgrund des aufwändigen Analyseverfahrens zur Bestimmung der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration in Umweltproben lagen die ersten Analyseergebnisse diesbezüglich erst einige Monate nach den Freisetzungseignissen des Reaktorunfalls vor (Povinec et al. 2012, Casacuberta et al. 2013, Schneider et al. 2013, Steinhauser et al. 2013c). Die Analyse von Boden- und Vegetationsproben aus der Sperrzone um das Kraftwerk Fukushima Dai-ichi und weiter entfernt gelegenen Messpositionen ergab, dass keine der betrachteten Proben ein Verhältnis größer 10 % von ^{90}Sr zu ^{137}Cs aufwies. Die höchsten ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen und auch die höchsten Verhältniswerte zwischen den Aktivitätskonzentrationen von ^{90}Sr und ^{137}Cs wurden in Proben aus dem Gebiet innerhalb der 20km-Sperrzone nachgewiesen. Für Umweltproben, deren Probennahme in einer größeren Entfernung zum Reaktorgelände stattfand, waren die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen 3 bis 4 Größenordnungen kleiner als die in den Proben gemessenen ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen (Steinhauser et al. 2013c). Diese Ergebnisse können grundsätzlich als in Einklang mit den Annahmen, die von den japanischen Behörden bezüglich des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses im Zusammenhang mit den gesetzlichen Regulatorien getroffen wurden, betrachtet werden. Um weitere Informationen über das Auftreten von ^{90}Sr und dessen Korrelation zu ^{137}Cs speziell in Nahrungsmitteln ableiten zu können, wurden in der vorliegenden Arbeit Hintergrundaktivitäten von ^{90}Sr und ^{137}Cs in japanischen Lebensmittelproben analysiert, deren Probennahme vor dem Reaktorunfall von Fukushima stattfand (Merz et al. 2015 D2).

1.3.1.3.2. Zeitliche Entwicklung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses in Lebensmitteln vor dem Reaktorunfall von Fukushima

Die in der Folge betrachteten ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen der Lebensmittelproben setzen sich aus zwei Datensätzen zusammen. In den Jahren von 1987 bis 2004 wurden von der Nuclear Regulation Authority in Japan 776 Lebensmittelproben untersucht. Bei 418 dieser sowohl tierischen als auch pflanzlichen Nahrungsmittelproben wurde auch eine Bestimmung der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration durchgeführt (NRA 2004). Der zweite Datensatz beinhaltet die Bestimmung der ^{90}Sr - und

^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in Reis und Weizen in der Zeit von 1959 bis 1995. Dabei wurde von 516 bzw. 513 Reisproben die ^{90}Sr - bzw. ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration gemessen und analog für 363 bzw. 355 Weizenproben die Konzentration von ^{90}Sr bzw. ^{137}Cs bestimmt (Komamura et al. 2001, Komamura et al. 2002).

Wie bereits erwähnt, sind Radionukliddepositionen vor dem Reaktorunfall von Fukushima hauptsächlich auf den Reaktorunfall von Tschernobyl und atmosphärische Kernwaffentests zurückzuführen. Für die Korrelation der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration wurde dabei ein Verhältnis von maximal 10 % angenommen (Kodaira 1964, Steinhauser et al. 2013d D5, Merz et al. 2015 D2). In Übereinstimmung mit den in Japan gültigen gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerten in Nahrungsmitteln, die ein konstantes $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis voraussetzen, ist für das Verhältnis der Hintergrundaktivitäten, die in den Lebensmittelproben vor dem Reaktorunfall von Fukushima gemessen wurden, eine Verteilung um bzw. unterhalb dieses Verhältniswertes zu erwarten. In der vorliegenden Arbeit wurden die Daten, die von 1987 bis 2004 von der Nuclear Regulation Authority in Japan gesammelt wurden, analysiert und die Aktivitätsverhältnisse jener Lebensmittelproben, in denen sowohl ^{90}Sr als auch ^{137}Cs nachgewiesen werden konnte, in Abbildung 13 graphisch aufbereitet (Merz et al. 2015 D2).

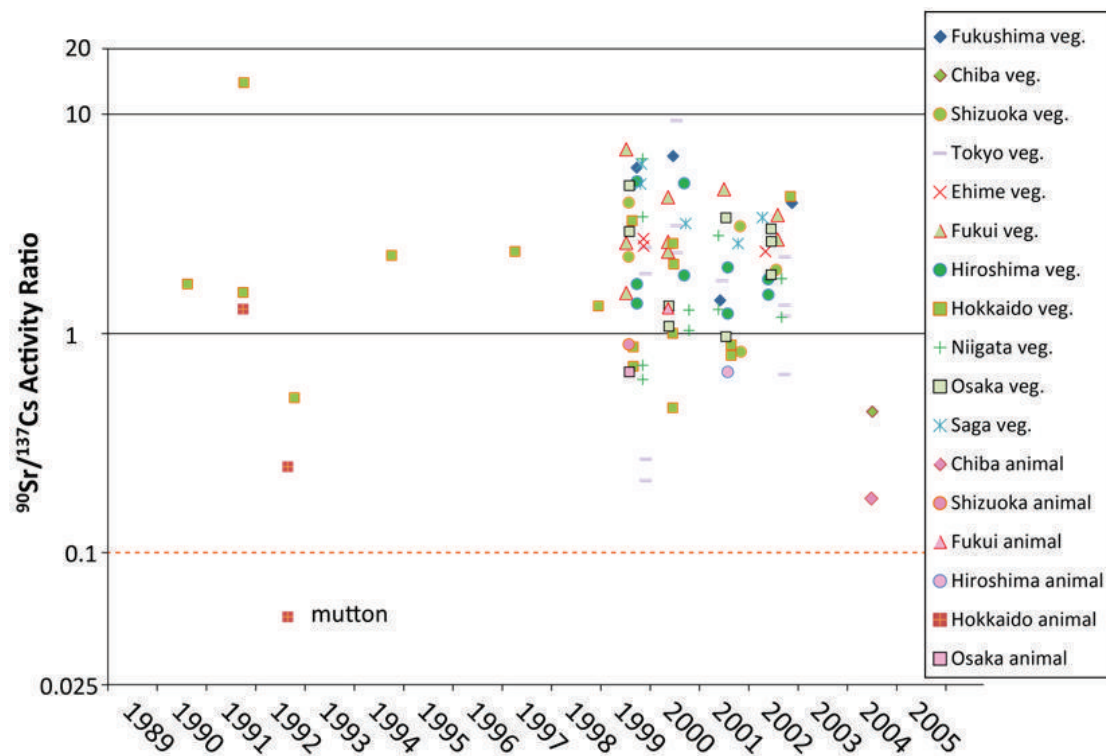


Abb. 13 Aktivitätsverhältnisse von $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ in pflanzlichen und tierischen Produkten aus Japan vor dem Reaktorunfall von Fukushima. Die punktierte Linie gibt das Aktivitätsverhältnis von 10 % an, welches von den japanischen Behörden als Maximalwert für den Anteil der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration angenommen wurde. Aus: Merz et al. (2015) D2. This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

Das Ergebnis der Analyse in Abbildung 13 zeigt, dass beinahe alle Lebensmittelproben, für die sowohl eine ^{90}Sr - als auch eine ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration nachgewiesen werden konnte und deren Probenahme vor dem Reaktorunfall von Fukushima stattfand, ein Aktivitätsverhältnis größer 0,1 aufweisen. Die einzige Ausnahme stellt eine Probe von Lammfleisch dar, die ein $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis kleiner 10 % aufweist. Für alle betrachteten Lebensmittelproben gilt jedoch, dass die nachgewiesenen ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen auf ein Aktivitätsverhältnis größer 0,3 % führen. Für die meisten Lebensmittelproben ist ein $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis größer 2 erkennbar, wobei die Proben aus tierischen Erzeugnissen ein geringfügig niedrigeres Verhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs als die pflanzlichen Produkte aufweisen (Merz et al. 2015 D2).

Die Aktivitätskonzentration, der in den Lebensmittel gemessenen ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Hintergrundwerte, lag sowohl für den Großteil der pflanzlichen als auch der tierischen Produkte unter $0,5 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Betrachtet man zunächst nur die ^{137}Cs -Hintergrundwerte, lässt sich erkennen, dass in den tierischen Erzeugnisse im Vergleich zu den pflanzlichen Lebensmitteln höhere ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen gemessen wurden. Im Fall der ^{90}Sr -Hintergrundaktivität der Proben wiesen vorrangig pflanzliche Lebensmittel eine nachweisbare ^{90}Sr -Aktivität auf und offenbarten verglichen mit tierischen Produkten höhere ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen (NRA 2004, Merz et al. 2015 D2). Es ist davon auszugehen, dass ^{90}Sr , welches von den Tieren aufgenommen wurde, in den Knochen eingelagert wird und somit ein geringerer Anteil in die produzierten Fleischerzeugnisse gelangt. Milcherzeugnisse könnten in diesem Zusammenhang eine Ausnahme darstellen, da Milch reich an Calcium ist und somit auch einen guten Träger für ^{90}Sr darstellt. Auf diese Weise lässt sich für die in Abbildung 13 betrachteten Nahrungsmittelproben das geringfügig niedrigere $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis der tierischen Lebensmittelerzeugnisse erklären (Merz et al. 2015 D2). Die Erkenntnis, dass die an dieser Stelle analysierten Lebensmittel Großteils ein $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis größer 2 aufwiesen, stellt dabei allerdings zu der bisherigen Annahme eines maximalen $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 10 % einen Widerspruch dar.

Wie bereits in Kapitel 1.3.1.1.2. – „Unterscheidbarkeit der beschädigten Reaktoren als Freisetzungsquellen“ beschrieben, weist das $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis aufgrund der unterschiedlichen Halbwertszeiten von ^{134}Cs und ^{137}Cs bereits innerhalb einiger Monaten eine nachweisbare Änderung auf. Im Gegensatz dazu lässt sich die in Abbildung 13 deutlich gemachte Abweichung von der Annahme eines konstanten $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 10 % nicht über Unterschiede der Halbwertszeiten von ^{90}Sr und ^{137}Cs erklären. Mit 28,6 Jahren und 30,1 Jahren weisen ^{90}Sr und ^{137}Cs vergleichbare Halbwertszeiten auf. Der im Zusammenhang mit Abbildung 13 betrachtete Datensatz setzt sich aus der Analyse unterschiedlichster Lebensmittelproben aus verschiedenen japanischen Präfekturen zusammen. Da es sich bei den analysierten

Lebensmitteln um Stichproben im Zuge der Lebensmittelüberwachung handelt, lassen sich Aussagen zu einer zeitlichen Entwicklung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis nur bedingt ableiten (NRA 2004). Die in den Jahren von 1959 bis 1995 kontinuierlich gewachsenen Datensätze der Aktivitätskonzentrationen von ^{90}Sr und ^{137}Cs von Reis und Weizen sollten in dem Zusammenhang weitere Aufschlüsse über die zeitliche Änderung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis ermöglichen (Komamura et al. 2001, Komamura et al. 2002). Die von Komamura et al. (2001, 2002) gesammelten Daten der ^{90}Sr - bzw. ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in Weizen und Reis aus Japan wurden in der vorliegenden Arbeit analysiert und die Entwicklung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses der Lebensmittelproben in Abbildung 14 graphisch dargestellt.

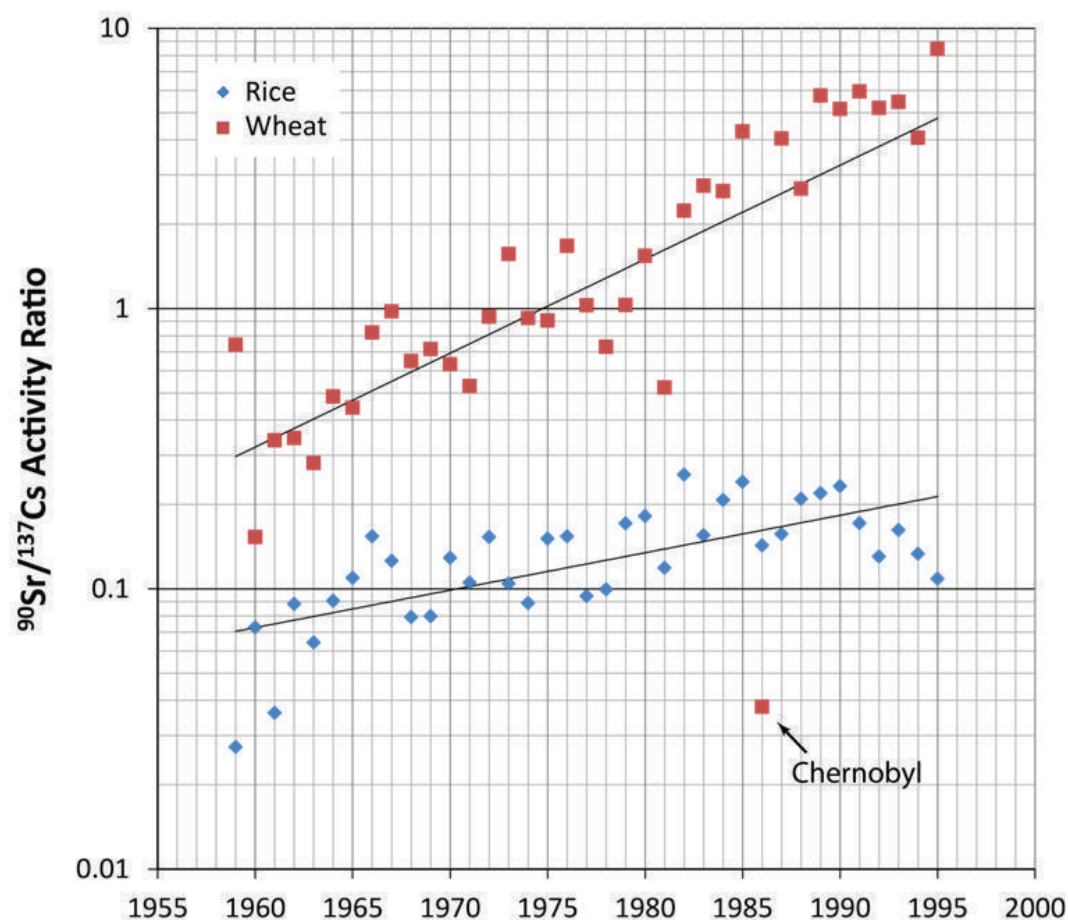


Abb. 14 Aktivitätsverhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs in Weizen (Wheat) und weißem Reis (Rice) aus Japan. Messungen der Aktivitätskonzentrationen von 1959 bis 1995 (Komamura et al. 2001, Komamura et al. 2002). Aus: Merz et al. (2015) D2. This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

Die Analyse der ^{90}Sr - bzw. ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration der japanischen Weizen- und Reisproben in Abbildung 14 zeigt, dass die entsprechenden $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisse der Proben nicht um einen konstanten Wert streuen. Das $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis der Lebensmittelproben weist über den betrachteten

Zeitraum sowohl für Weizen als auch für Reis einen deutlichen Anstieg auf. Beginnend mit der Probennahme in der Zeit, in der Kernwaffentests eine signifikante Radionukliddeposition verursachten, stiegen die Verhältniswerte in den Lebensmittelproben bis zu einem Wert größer 8 in der Weizenprobe von 1995 an. Ein niedriges $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis besitzt nur in der anfänglichen Phase der Probennahme Gültigkeit (Merz et al. 2015 D2). Die einzige Abweichung von dem kontinuierlich ansteigenden Verhalten des Aktivitätsverhältnisses stellt die Weizenprobe von 1986 dar. Während die Freisetzung von ^{90}Sr im Zuge des Reaktorunfalls von Tschernobyl hauptsächlich in der näheren Umgebung des zerstörten Reaktors von Bedeutung war, konnten in Japan nur signifikante Mengen an ^{137}Cs beobachtet werden. Die ^{137}Cs -Freisetzung von Tschernobyl führte im Vergleich zu den anderen Jahren in dieser Probe zu einer Erhöhung der ^{137}Cs -Kontamination, welche das $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis zu einem niedrigeren Wert verschob (Higuchi et al. 1988, Merz et al. 2015 D2).

Das in Abbildung 14 erkennbar ansteigende $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis in den Weizen- und Reisproben lässt sich auf die unterschiedliche biologische Verfügbarkeit von ^{90}Sr und ^{137}Cs zurückführen. Während ^{137}Cs in Tonmineralien rasch adsorbiert und gebunden wird, weist ^{90}Sr eine höhere Mobilität und somit auch biologische Verfügbarkeit im Fall der Aufnahme durch Pflanzen auf (Cornell 1993, Merz et al. 2015 D2). Vergleicht man die Ergebnisse der Analyse der beiden Datensätze von Weizen und Reis, lässt sich für die Weizenproben ein höheres $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis im Allgemeinen und ein steilerer Anstieg der Verhältniswerte erkennen. Dieser Unterschied lässt sich höchstwahrscheinlich durch eine radioökologische Anomalie im Zuge des Reisanbaus erklären. Im Zuge des Anbaus von Reis entsteht aufgrund von Fäulnisprozessen Ammoniak (NH_3). Das Ammoniak löst sich im Wasser der Reisfelder auf und bildet NH_4^+ -Ionen, welche für die in Tonmineralien adsorbierten Cs^+ -Ionen sehr effiziente Ionenaustauscher darstellen. Verglichen mit konventionellen Anbaumethoden für Getreide und ähnliche Pflanzen wird dadurch im Zuge des Reisanbaus die Mobilität von Cäsium und somit die biologische Verfügbarkeit von ^{137}Cs erhöht (Kodaira 1964, Merz et al. 2015 D2).

Die Annahme eines konstanten Aktivitätsverhältnisses zwischen ^{90}Sr und ^{137}Cs , wie sie im Zusammenhang mit den gesetzlichen Regulatorien in Japan getroffen wurde, steht im Einklang mit den vergleichbaren Halbwertszeiten von 28,6 Jahren und 30,1 Jahren der beiden Radionuklide. Die Analyse der Hintergrundwerte der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in verschiedenen Nahrungsmitteln verdeutlicht jedoch in den Abbildungen 13 und 14, dass die unterschiedliche biologische Verfügbarkeit von ^{90}Sr und ^{137}Cs das tatsächliche $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis stark beeinflusst. Die effektive Halbwertszeit von ^{137}Cs in Lebensmitteln und Nutzpflanzen ist in der Regel kürzer als jene von ^{90}Sr und variiert auch in Abhängigkeit der betrachteten Nahrungsmittel bzw. Pflanzen.

Die ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration, der zwischen den Jahren 1959 und 1995 analysierten Reis- bzw. Weizenproben aus Japan, wurde vorrangig durch die in den 1950er und 1960er Jahren durchgeführten Kernwaffentests hervorgerufen. In einer derzeit im Druck befindlichen Arbeit konnten basierend auf den Monitoringdaten ab dem Jahr 1963, in welchem der Vertrag über das Verbot von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, im Weltraum und unter Wasser unterschrieben wurde, die effektiven Halbwertszeiten von ^{90}Sr - und ^{137}Cs in Reis bzw. Weizen bestimmt werden. Die effektiven Halbwertszeiten von ^{137}Cs und ^{90}Sr in Weizen ergaben sich zu 3,48 bzw. 6,24 Jahren und im Fall von Reis zu 5,55 bzw. 6,66 Jahren (Merz et al. in press D3). Im Zusammenhang mit den gesetzlich gültigen Aktivitätsgrenzwerten für verschiedene Radionuklide in Lebensmitteln scheint es daher notwendig, ein zeitlich veränderliches $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis für die Gewährleistung der Lebensmittelsicherheit zu berücksichtigen. Bereits in wenigen Jahren könnte das seit dem 1. April 2012 in Japan gültige $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 0,3 % keine angemessene Abschätzung der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration in japanischen Lebensmitteln mehr darstellen und die vorherrschende ^{90}Sr -Kontamination deutlich unterschätzen (Merz et al. 2015 D2).

1.3.2. Radioiodmonitoring

Radioiod ist aufgrund seiner physikalischen und physikochemischen Eigenschaften zum Beispiel für den Nachweis und die Analyse des Ausbreitungsverhaltens einer radioaktiven Freisetzung aus nuklearforensischer Sicht besonders relevant. Aus Gründen der Flüchtigkeit wird bei Reaktorunfällen ein verhältnismäßig großer Anteil an Radioiod in die Umwelt freigesetzt (NEA 1994, OECD & NEA 2003). Im Fall des Reaktorunfalls von Tschernobyl geht man für die Freisetzung von ^{131}I von 50 bis 60 % des gesamten im Brennstoff vorhandenen Inventars aus. Im Vergleich dazu betrug der Ausstoß von ^{137}Cs 20 bis 40 % des Brennstoffinventars (Kirchner & Noack 1988, Güntay et al. 1997, OECD & NEA 2003). Für den Reaktorunfall von Fukushima sind die Angaben über die Freisetzung noch nicht eindeutig. In der Aufarbeitung durch das United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) wird die atmosphärische Freisetzung von ^{131}I mit 2 bis 8 % und jene von ^{137}Cs mit 1 bis 3 % des Brennstoffinventars angegeben (UNSCEAR 2013). Das Verhältnis zwischen der Freisetzung von ^{131}I und ^{137}Cs ist mit jenem von Tschernobyl vergleichbar. Koo et al. (2014) schätzen den freigesetzten Anteil für ^{131}I auf 1,1 bis 7,9 % und für ^{137}Cs auf 1,2 bis 6,6 % des zum Zeitpunkt des Unfalls im Brennstoff vorhandenen ^{131}I - bzw. ^{137}Cs -Inventars. Die Aktivität, die bei den Unfällen von Tschernobyl und Fukushima freigesetzten ^{131}I , lag dabei zumindest eine Größenordnung über jener von ^{137}Cs (OECD & NEA 2003, NERHQ 2011a, Steinhauser et al. 2014).

Durch die kurze Halbwertszeit von ^{131}I liegen vor allem in den ersten Tagen und Wochen nach einer Freisetzung hohe Aktivitäten von Radioiod vor, die sich einerseits gut nachweisen lassen, aber daher im Allgemeinen in unbelebten Umweltmedien auch rasch wieder abklingen (OECD & NEA 2003, Steinhauser et al. 2012 D4). In dem relativ engen Zeitfenster, in dem sich ^{131}I nachweisen lässt, wurden nach dem Reaktorunfall von Fukushima weltweit intensiv verschiedenste Umweltproben wie Luft, Regen, Schnee, Boden oder Vegetation genommen und auf Radioiod untersucht (Bolsunovsky & Dementyev 2011, Ioannidou et al. 2011, Masson et al. 2011, Parache et al. 2011, Ten Hoeve & Jacobson 2012, Thakur et al. 2013). In Österreich wurden Luft-, Regen-, Boden-, Grasproben und Schilddrüsen von frei lebenden Wildtieren so wie auch von Zootieren auf ihre Aktivität von ^{131}I untersucht. Die Daten wurden einerseits eigenständig gesammelt oder als Teil der Kooperationen mit z.B. dem Forschungsinstitut für Wildtierkunde und Ökologie (FIWI) oder der Österreichischen Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit (AGES) zur Verfügung gestellt. Luftproben wurden insgesamt an vier unterschiedlichen Positionen in Wien und Niederösterreich genommen. Die Probennahme von Regenwasser fand an zwei Standorten in Wien statt. Die gesammelten Schilddrüsen von Wildtieren stammten aus dem Einzugsgebiet Wien und Niederösterreich. Die Ergebnisse dieser Studien (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5) sind integraler Bestandteil der vorliegenden Arbeit.

1.3.2.1. Radioiod in Luft

1.3.2.1.1. Ausbreitungsverhalten von Radioiod über Europa

Die Aktivität des beim Kernkraftwerksunfall von Fukushima in die Atmosphäre freigesetzten ^{131}I wurde in Nordamerika am 17. März erstmalig in Luftproben registriert (Leon et al. 2011, Masson et al. 2011). In Europa wurde ^{131}I das erste Mal in Island zwischen dem 19. und 20. März gemessen. In den darauffolgenden Tagen breiteten sich die kontaminierten Luftmassen zunächst über dem Norden Skandinaviens und bis 24. März auch über den meisten anderen europäischen Ländern aus (Masson et al. 2011). Masson et al. (2011) sammelten europaweit im Zuge verschiedener internationaler Kooperationen eine große Datenmenge an Luftproben. Dazu gehört z.B. das Netzwerk „Ring of Five (Ro5)“, welches den schnellen Datenaustausch zwischen den einzelnen Laboren, beim Auftreten von auffälligen Konzentrationen von anthropogenen Radionukliden, zum Ziel hat. Auch die Zusammenarbeit mit nationalen meteorologischen Diensten, einzelnen Universitätsmitgliedern und der International Atomic Energy Agency lieferte einen entscheidenden Beitrag zu dem gesammelten Datensatz (Masson et al. 2011).

Die im Zuge der internationalen Zusammenarbeit gesammelten Daten wurden durch Masson et al. (2011) aufbereitet und sind in Abbildung 15 dargestellt.

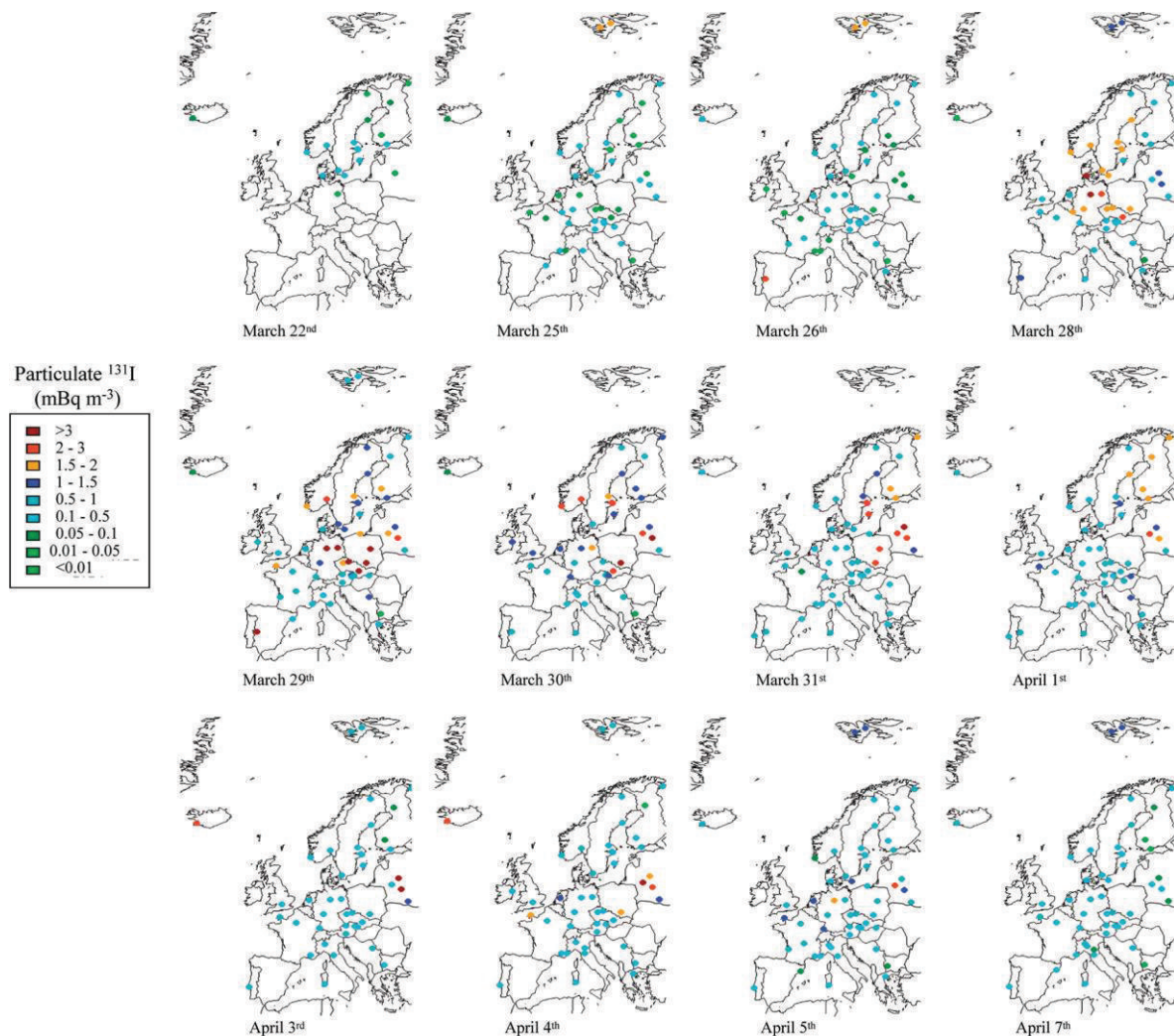


Abb. 15 Tägliche Messung der Aktivitätslevel von partikulärem ^{131}I zwischen 22.März und 7.April 2011. Aus: Masson et al. (2011). Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2011) American Chemical Society.

In Abbildung 15 lässt sich für West- und Mitteleuropa im Allgemeinen bis zum 28. bzw. 30.März ein Anstieg der Aktivitätskonzentration für ^{131}I erkennen. Die Wetterbedingungen führten zur Ausbildung eines Korridors mit erhöhten Aktivitätswerten. In der Abbildung ist erkennbar, dass sich die Luftmassen vom Nordwesten ausgehend in südöstlicher Richtung über Deutschland hinweg und anschließend in Richtung Polen, Tschechien und Weißrussland ausbreiteten (Masson et al. 2011).

1.3.2.1.2. Ausbreitungsverhalten von Radioiod über Österreich

Teil der Daten, die durch Masson et al. (2011) veröffentlicht wurden, sind aus Österreich stammende Messungen von partikulärem Radioiod in Luft aus Wien und Linz. Im Zuge der vorliegenden Arbeit wurde für die Analyse der Situation in Österreich ein umfangreicherer Datensatz betrachtet, der sich aus zusätzlichen Messungen von Radioiod in Luft und anderen Umweltproben aus Österreich zusammensetzt (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5). Für eine weiterführende Analyse innerhalb der vorliegenden Arbeit wurden die Ergebnisse wöchentlicher Messungen der ^{131}I -Aktivitätskonzentration in Luftproben der Österreichischen Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit (AGES) an drei Positionen in Wien und Niederösterreich graphisch aufbereitet. Das Ergebnis ist in Abbildung 16 dargestellt.

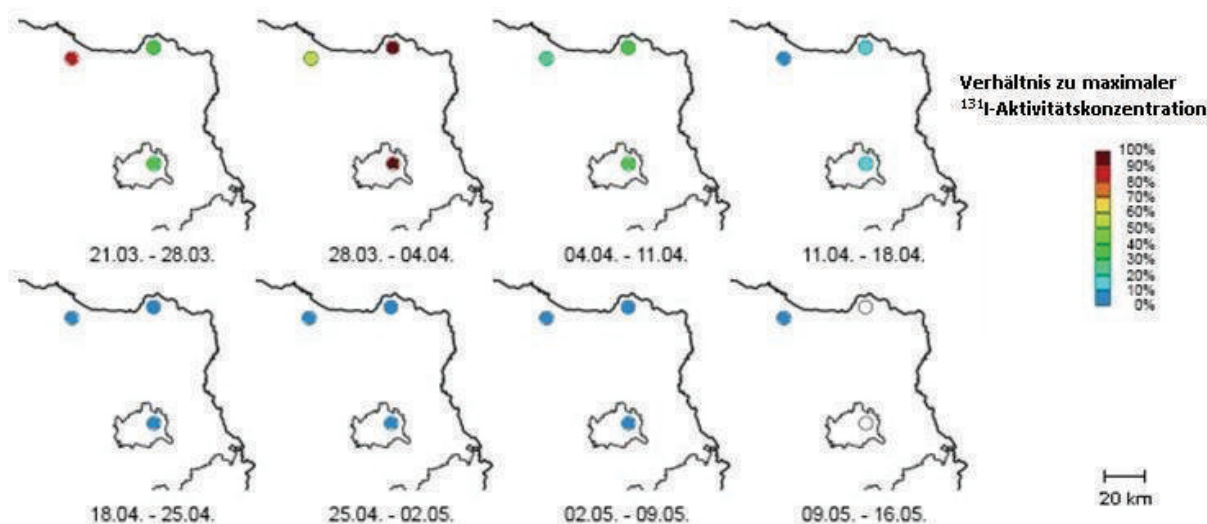


Abb. 16 Messung der Aktivitätslevel von partikulärem ^{131}I in Luftproben zwischen 21.März und 16.Mai 2011. Die Messungen fanden über den Zeitraum einer Woche statt. Die Messpositionen befinden sich in Retz, Alt-Prerau und im 22^{ten} Wiener Gemeindebezirk. Die angeführten Aktivitätskonzentrationen wurden in ein Verhältnis zum in der Woche vom 28.März bis 4.April in Alt-Prerau gemessenen Maximalwert von $0,74 \pm 0,027 \text{ mBq m}^{-3}$ gesetzt. Die Daten für diese Darstellung stammen von der AGES und wurden in Steinhauser et al. (2012) D4 publiziert.

Die Daten wurden von der AGES im Zeitraum vom 21.März 2011 bis zum 16.Mai 2011 gesammelt und für weitere Analysen zur Verfügung gestellt. Die nordwestliche Messposition befindet sich in Retz (N 48,75840, E 15,95466 – NÖ), die etwas weiter östlich gelegene Messstation ist in Alt-Prerau (N 48,79574, E 16,47687 – NÖ) lokalisiert und der südlichste Messpunkt ist im 22^{ten} Wiener Gemeindebezirk stationiert (N 48,24568, E 16,47764). Die Grafik zeigt die Aktivitätskonzentration von partikulärem ^{131}I in den gewonnenen Luftproben. Die Aktivitätskonzentration für ^{131}I wurde dabei in das Verhältnis zu einem Maximalwert gesetzt, welcher in dem betrachteten Zeitraum von acht

Wochen gemessen wurde. Der Maximalwert beträgt etwa $0,74 \pm 0,027 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ und wurde in der Woche vom 28.März bis zum 4.April von der Messstation in Alt-Prerau gemessen (Steinhauser et al. 2013d D5). Die farblich nicht gekennzeichneten Messpositionen in Wien und Alt-Prerau in der Woche vom 9.Mai bis zum 16.Mai zeigen an, dass dort im Unterschied zur Messstation in Retz bereits in diesem Zeitraum keine Konzentration von ^{131}I mehr nachgewiesen werden konnte.

In der ersten Woche zeigt die nordwestliche Messstation in Retz die lokalen Höchstwerte, während man für Wien und Alt-Prerau die höchsten ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen in der darauffolgenden Woche erkennt. Auch in den beiden Wochen vom 4.April bis 18.April zeigen diese beiden Stationen höhere Konzentrationswerte als Retz. Die Probennahme über die Dauer von einer Woche verschlechtert naturgemäß die Möglichkeit für das Ableiten einer detaillierten Aussage über das Fortschreiten bzw. die Ausbreitung der Luftmassen. Es lässt sich dennoch zumindest feststellen, dass die Ausbreitungsrichtung der Radioiodkonzentration und der Luftmassen von West nach Ost angenommen werden kann. Dies erkennt man im Zeitraum von 21.März bis 18.April. Die höchsten gemessenen Konzentrationen sind dabei in den ersten beiden Wochen zu erkennen. Berücksichtigt man, dass anders als in der ersten Woche die Messstationen in Wien und Alt-Prerau höhere Konzentrationen als Retz aufweisen, ist es wahrscheinlich, dass sich das Konzentrationsmaximum von ^{131}I um den 28.März herum über Niederösterreich und Wien befand. Masson et al. (2011) sprechen von Luftmassen, welche sich aus nordwestlicher Richtung über Deutschland, Polen und Tschechien ausbreiteten und von dort weiter Richtung Weißrussland in den Nordosten bewegten. Die Aktivitätskonzentrationen stiegen dabei über West- und Mitteleuropa bis zum 28. bzw. 30.März (Masson et al. 2011). In diesem Sinne lassen sich die in der vorliegenden Arbeit (siehe Abbildung 16) gewonnenen Erkenntnisse mit den Angaben von Masson et al. (2011) vereinbaren.

Für den 2^{ten} und den 22^{ten} Wiener Gemeindebezirk liegen auch Messungen der Aktivitätskonzentration von partikulärem ^{131}I in Luftproben vor, die in einem täglichen Intervall gewonnen wurden. Die hier durchgeführte Aufarbeitung dieser Daten ist, zusammen mit der Auswertung zweier weiterer Arten an Umweltproben, für den Zeitraum vom 24.März bis 12.April in Abbildung 17 dargestellt.

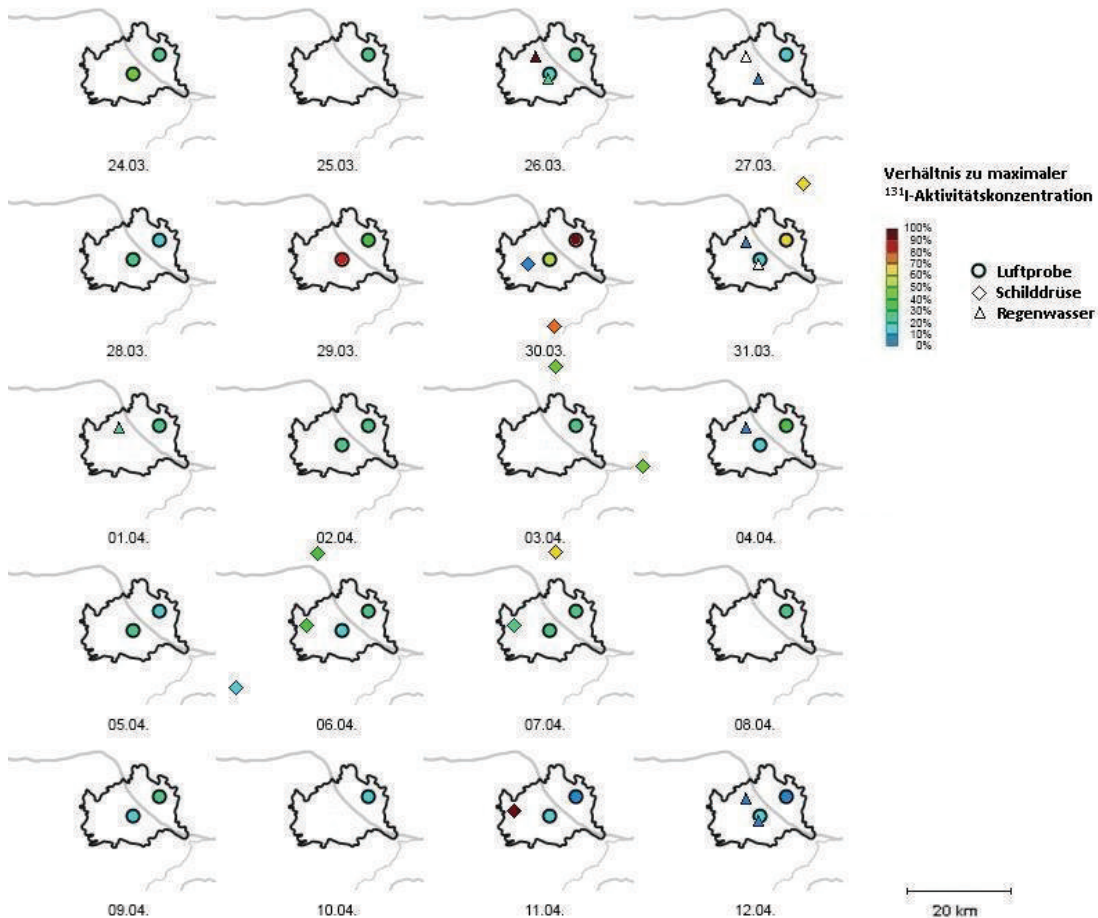


Abb. 17 Messung der Aktivitätslevel von ^{131}I in unterschiedlichen Umweltproben zwischen 28. März und 12. Mai 2011. Luftproben wurden im 22^{ten} (nordöstlich) und 2^{ten} (südwestlich) Wiener Gemeindebezirk genommen. Regenwasserproben wurden im 19^{ten} (nordwestlich) und 2^{ten} (südwestlich) Wiener Gemeindebezirk genommen. Schilddrüsenproben stammen aus Wien und Niederösterreich. Die Fundorte/Abschusspositionen für Schilddrüsenproben sind nicht maßstabsgetreu eingezeichnet. Die angegebenen Aktivitätslevel orientieren sich für die drei unterschiedlichen Umweltproben an jeweils einem probenspezifischen Maximalwert der Aktivitätskonzentration. Die Daten für diese Darstellung stammen teilweise von der AGES und wurden in [Steinhauser et al. \(2012\) D4](#) und [Steinhauser et al. \(2013d\) D5](#) publiziert.

Die kreisrunden Symbole markieren wie in Abbildung 16 die Positionen der Luftmessungen. Die Messungen der nordöstlichen Messstation wurden im 22^{ten} Bezirk in Wien von der AGES gesammelt und für weitere Betrachtungen zur Verfügung gestellt. Bei der südwestlichen Messstation, auf der anderen Seite der Donau gelegen, handelt es sich um Luftfilteranlagen des Atominstutts der Technischen Universität Wien, deren Zweck die Überwachung von Radionuklidemissionen während des Reaktorbetriebs ist. An jenen Tagen wie etwa dem 25. März 2011, für welche diese Messposition nicht in der Abbildung dargestellt ist, konnte aus technischen Gründen keine zuverlässige Probe genommen werden ([Steinhauser et al. 2012 D4](#), [Steinhauser et al. 2013d D5](#)). Die dreieckigen Markierungen repräsentieren die Probennahme von Regenwasser. Die rautenförmigen Symbole stellen den Lebensraum bzw. die Abschussposition von Wildtieren dar, deren

Schilddrüse für die Untersuchung der akkumulierten Aktivitätskonzentration von ^{131}I entnommen wurde. Die relativen Konzentrationswerte, die in Abbildung 17 via Farbcodierung angegeben sind, richten sich nach dem jeweils für eine Probenart in dem betrachteten Zeitraum gemessenen Maximalwert. Für die dargestellten Luftproben betrug der gemessene Maximalwert $1,44 \pm 0,122 \text{ mBq m}^{-3}$ und wurde am 30. März im 22^{ten} Bezirk gemessen (Steinhauser et al. 2012 D4). Die detaillierte Diskussion der Regenproben und der Schilddrüsenuntersuchungen erfolgt entsprechend in Kapitel 1.3.2.2. – „Radioiod in Regenwasser“ bzw. Kapitel 1.3.2.3. – „Radioiod in tierischen Schilddrüsen“.

Betrachtet man die Ergebnisse der Luftmessungen, kann man erkennen, dass am 28. und 29. März zunächst an der südwestlich gelegenen Messposition am Atominstitut der TU-Wien höhere Aktivitätswerte von ^{131}I registriert werden konnten als an der Messtation der AGES im 22^{ten} Bezirk. Analog zu Abbildung 16 wies an den beiden Tagen danach die Messtation im 22^{ten} Bezirk die höheren Aktivitätskonzentrationen auf, während die im 19^{ten} Bezirk gemessenen Werte vom 29. bis zum 31. März gewissermaßen abklagen. Diesen Peak der Aktivitätskonzentration von ^{131}I konnten auch Masson et al. (2011) ausmachen. Die höchsten Werte über Tschechien an der Grenze zu Österreich wurden für den 29. bzw. 30. März registriert und sind in Abbildung 15 erkennbar. In guter Übereinstimmung mit den im Zuge dieser Arbeit gewonnenen und analysierten Daten, wurde durch Masson et al. (2011) für Wien am 29. bzw. 30. März eine maximale Aktivitätskonzentration von circa 1,3 bzw. 1 mBq m^{-3} ausgewiesen. Die hier vorliegenden Maximalwerte für den 29. bzw. 30. März sind $1,2 \pm 0,17$ bzw. $1,44 \pm 0,122 \text{ mBq m}^{-3}$ (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5).

In Zusammenhang mit den Erkenntnissen aus Abbildung 16, in welcher die Ergebnisse der Luftmessungen mit einer Messdauer von einer Woche abgebildet sind, lässt sich eine Bewegung der Luftmassen ableiten. Die höchsten Aktivitätskonzentrationen wurden zunächst an der nordwestlichen Messstation in Retz registriert. Anschließend zeigten die südwestliche Messstation des Atominstituts in Wien und darauffolgend jene im 22^{ten} Bezirk, etwas nordöstlich gelegen, die Erhöhung an. Für die nördlichste Messstation in Alt-Prerau ist aufgrund der Probennahme über die Dauer einer Woche hinweg nicht eindeutig bestimmbar, ob die höchsten Aktivitätskonzentrationen zur selben Zeit wie im 22^{ten} Bezirk oder danach gemessen wurden. Die vorliegenden Erkenntnisse lassen sich dennoch gut mit der von Masson et al. (2011) getroffenen Annahme eines Ausbreitungskorridors der Luftmassen, der vom Nord-Westen aus in Europa eintraf und über Tschechien und Polen in dem betrachteten Zeitraum sein Richtung entsprechend änderte, in Einklang bringen. Auch das Verhalten der Konzentrationswerte in den Tagen vom 1. bis zum 3. April zeigen, übereinstimmend für die vorliegenden Studien und jene von Masson et al. (2011), ein Angleichen der gemessenen Werte an den verschiedenen Messpositionen in Wien bzw. in Europa.

1.3.2.1.3. Plausibilisierung des Ausbreitungsverhaltens mittels HYSPLIT Simulation

Um die hier erlangten Erkenntnisse bzw. Hypothesen zu testen, wurde das Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) Model der National Oceanic and Atmospheric Administration-Air Resources Laboratory (NOAA-ARL) benutzt (Draxler & Hess 1998, Ioannidou et al. 2013, Draxler & Rolph 2014, Rolph 2014). Die Ergebnisse der Kalkulationen sind in Abbildung 18 dargestellt.

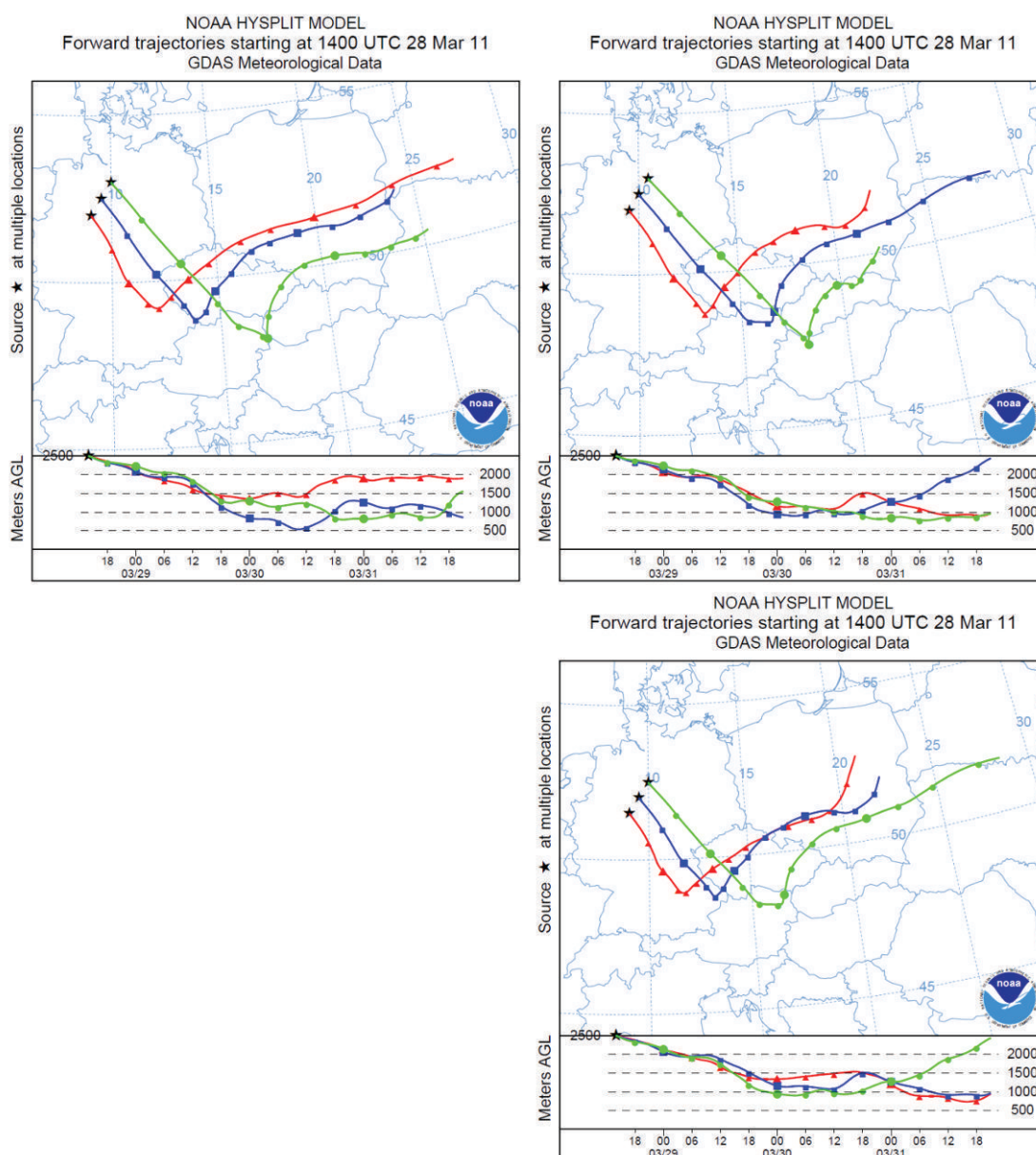


Abb. 18 Vorwärtskalkulation der Ausbreitungstrajektorien der Luftmassen über Mitteleuropa von 14:00 am 28. März bis 20:00 am 31. März 2011. Die Berechnung wurde mittels Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) Model der National Oceanic and Atmospheric Administration-Air Resources Laboratory (NOAA-ARL) durchgeführt (Draxler & Hess 1998, Draxler & Rolph 2014, Rolph 2014).

Das HYSPLIT-Modell eignet sich hervorragend für die Berechnung und Darstellung des Ausbreitungsverhaltens von einzelnen Luftpaketen. Die Simulation kann dabei auf unterschiedliche meteorologische Datensätze wie jenen des Global Data Assimilation System (GDAS) zurückgreifen und ermöglicht die Vorwärts- und Rückwärtskalkulation von Ausbreitungstrajektorien der Luftmassen (Ioannidou et al. 2013, Draxler & Rolph 2014). Der Startpunkt für die hier durchgeführte Vorwärtsberechnung der Trajektorien wurde so gewählt, dass er sich in die Daten von Masson et al. (2011) einbinden lässt.

Man erkennt, dass die kontaminierten Luftmassen zwischen dem 29. und 30. März 2011 Österreich bzw. Wien erreichten und in diesem Zeitraum eine Richtungsänderung erfuhren. Wie bereits erwähnt, wurden auch von Masson et al. (2011) für diesen Zeitraum die Maximalwerte der Aktivitätskonzentration von ^{131}I über Tschechien registriert, von wo aus die Luftmassen eine neue Ausbreitungsrichtung in nordöstliche Richtung einschlugen. Die berechneten Ausbreitungstrajektorien in Abbildung 18 streben Richtung Weißrussland und erreichen die weißrussische Grenze etwa um den 1. April. In Minsk und Mstislavl wurden im Zeitfenster von 1. bis 3. April steigende Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I gemessen, welche am 3. April mit 4 bis 5 mBq m^{-3} bzw. mit 5 bis 6 mBq m^{-3} ihre lokalen Höchstwerte erreichten (Masson et al. 2011). Die vorliegenden Daten und Simulationsergebnisse zeigen somit gute Übereinstimmung mit den in Europa und den in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Messungen.

1.3.2.2. Radioiod in Regenwasser

In dem in Abbildung 17 betrachteten Zeitraum von 24. März bis 12. April 2011 war es neben den täglichen Luftmessungen an mehreren Tagen möglich, an zwei verschiedenen Positionen in Wien auch Proben von Regenwasser zu sammeln und im Zuge dieser Arbeit auf ihre Aktivitätskonzentration von ^{131}I zu untersuchen. Die dreieckigen Markierungen repräsentieren die Probennahme von Regenwasser einerseits am Gelände des Atominstututs der TU-Wien, andererseits im 19^{ten} Wiener Gemeindebezirk. Hier gilt analog zur Abbildung 16, dass bei den Probennahmen, welche durch farblose Markierungen dargestellt sind, keine Konzentration von ^{131}I nachgewiesen werden konnte (Steinhauser et al. 2013d D5). Die Farbcodierung der relativen Konzentrationswerte richtet sich, wie bereits erwähnt, nach dem probenspezifischen Maximalwert. Die maximale Aktivitätskonzentration der Regenproben betrug $5,2 \pm 0,95 \text{ Bq L}^{-1}$ und wurde am 26. März im 19^{ten} Bezirk in Wien gemessen (Steinhauser et al. 2013d D5).

Speziell an vier Tagen ließen die Niederschlagsmengen eine Probennahme an beiden Messpositionen zu. Es konnten dabei an den beiden Positionen vergleichbare Mengen an

Regenwasser gesammelt werden. Im Vergleich zu den anderen drei Tagen, an denen Regenproben genommen werden konnten, weisen die Messungen vom 26. März eine stark unterschiedliche Aktivitätskonzentration von ^{131}I für die beiden Messpositionen auf. Am 27. und am 31. März sowie am 12. April kann man von vergleichbaren Werten für die Regenwasserproben aus den beiden Bezirken sprechen. Konkret konnte am 27. und am 31. März an jeweils einer der Positionen keine ^{131}I -Konzentration in den Proben nachgewiesen werden, aber auch die Aktivitätskonzentration des Regenwassers der anderen Messposition lag dabei nahe an der Nachweisgrenze (Steinhauser et al. 2013d D5).

Am 26. März wurde an der nördlicheren Position im 19^{ten} Bezirk eine Aktivitätskonzentration von ^{131}I von $5,2 \pm 0,95 \text{ BqL}^{-1}$ gemessen und im 22^{ten} Bezirk nur ein Wert von $1,1 \pm 0,20 \text{ BqL}^{-1}$. Die unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen an den verschiedenen Messstationen lassen sich üblicher Weise mit der angewandten Messtechnik gut auflösen, allerdings zeigen Messpositionen, die so nahe beisammen liegen, normaler Weise keine so stark abweichenden Messergebnisse (Bolsunovsky & Dementyev 2011, Steinhauser et al. 2013d D5). Die Aktivitätskonzentrationen der vorliegenden Regenwasserproben vom 26. März unterscheiden sich beinahe um einen Faktor 5, bei einer Entfernung der Messstationen von nur etwa 8 km (Steinhauser et al. 2013d D5). Bolsunovsky und Dementyev (2011) untersuchten im April 2011 Regen- und Schneeproben von zwei Positionen in Krasnojarsk, die etwa 16 km voneinander entfernt lagen (GPSies 2014). Die gemessenen Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I unterschieden sich dabei maximal um den Faktor 1,6 (Bolsunovsky & Dementyev 2011).

Neben anderen möglichen Faktoren wie etwa der Regenmenge, die im Fall der aus Wien stammenden Proben vergleichbar war, musste als mögliche Erklärung ein Unterschied in der Ausbreitung der kontaminierten Luftmassen, aus denen das ^{131}I mit dem Regen ausgewaschen wurde, geprüft werden. Die aus Fukushima stammenden Luftmassen trafen aus dem Nordwesten in Europa ein und breiteten sich zunächst über Deutschland, Polen und Tschechien aus (Masson et al. 2011). Grundsätzlich bedeutet die unterschiedliche räumliche Ausbreitung der Aktivität in der Luft, die sich in den unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen der Proben vom 26. März widerspiegelt, dass die relevanten Luftmassen im Süden Wiens weniger stark kontaminiert waren. Basierend auf diesen Beobachtungen, musste sich die Messstation im 2^{ten} Bezirk außerhalb bzw. am Rand des Ausbreitungskorridors der Luftmassen befinden. Dies lässt sich zum Beispiel durch eine Richtungsänderung der Ausbreitungstrajektorie erklären (Steinhauser et al. 2013d D5). Um diese Annahme zu testen, wurde hier auch in diesem Zusammenhang eine Berechnung der Ausbreitungstrajektorie der Luftmassen mittels HYSPLIT Modell von NOAA-ARL durchgeführt (Draxler & Hess 1998, Draxler & Rolph 2014, Rolph 2014). Das Ergebnis ist in Abbildung 19 dargestellt.

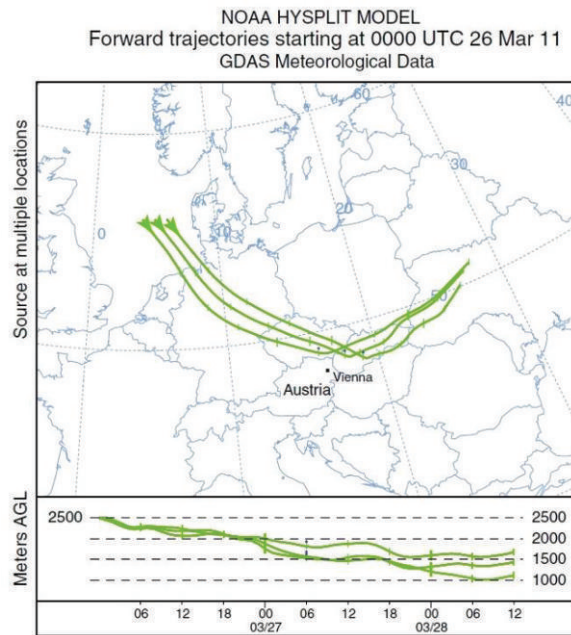


Abb. 19 Vorwärtskalkulation der Ausbreitungstrajektorien der Luftmassen über Mitteleuropa von 26. bis 28. März 2011. Die Berechnung wurde mittels Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) Model der National Oceanic and Atmospheric Administration-Air Resources Laboratory (NOAA-ARL) durchgeführt (Draxler & Hess 1998, Draxler & Rolph 2014, Rolph 2014). Aus: Steinhauser et al. (2013d) D5. Reprinted with permission from Springer © 2013.

Die Kalkulation ergibt, dass im relevanten Zeitrahmen von 26. bis 28. März die in Europa eingetroffenen Luftmassen in südöstlicher Richtung bis nach Tschechien und zur österreichischen Grenze vordrangen. Die betrachteten Luftmassen befanden sich dabei in einer Höhe von etwa 2000 m, was sich mit dem Auftreten und der üblichen Höhe von Regenwolken vereinbaren lässt. Von Tschechien bzw. Österreich ausgehend verlief die Ausbreitungstrajektorie in nordöstliche Richtung und wies an der Grenze zu Österreich einen deutlichen Knick des Ausbreitungskorridors der kontaminierten Luftmassen auf. In diesem Sinne befand sich die Messstation im 19^{ten} Bezirk in Wien näher dem Zentrum der Luftmassen, während die Messposition im 2^{ten} Bezirk eher am Rand des Korridors gelegen war. Die Änderung der Ausbreitungsrichtung der Luftmassen bietet somit eine Erklärung für den starken Gradienten der Aktivitätskonzentration von ^{131}I in den Regenproben vom 26. März (Steinhauser et al. 2013d D5).

Das Auftreten von Regen kann im Zusammenhang mit den möglichen Depositionsmechanismen von Radionukliden aus der Luft zum Auftreten von Hot Spots führen (OECD & NEA 2003). Im vorliegenden Fall offenbarte der gleiche Mechanismus für die Aktivitätskonzentration der Radionuklide eine starke Lokalisierung bereits im Transportmedium. Die Luftmassen bewegten sich der HYSPLIT-Kalkulation zufolge weiter Richtung Weißrussland. In Übereinstimmung dokumentierten Masson et al. (2011) für den relevanten Zeitraum von 29. bis 31. März eine erste deutlich erhöhte Konzentration

an partikulärem ^{131}I von 2 bis 3 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ in Minsk und Mstislavl (Steinhauser et al. 2013d D5).

1.3.2.3. Radioiod in tierischen Schilddrüsen

Die erste Probe von tierischen Schilddrüsen, die durch das Forschungsinstitut für Wildtierkunde und Ökologie (FIWI) für weitere Analysen im Zuge dieser Arbeit übergeben wurde, stammte vom 30. März, etwa zehn Tage nachdem die kontaminierten Luftmassen in Europa eintrafen (Masson et al. 2011, Steinhauser et al. 2012 D4). In Abbildung 17 stellen die rautenförmigen Symbole den Lebensraum bzw. die Abschussposition von Wildtieren dar, deren Schilddrüse für die Untersuchung der akkumulierten Aktivitätskonzentration von ^{131}I entnommen wurde. Für die analysierten Schilddrüsen wurde am 11. April bei einem Mufflon der Maximalwert, auf den sich die Angaben der relativen Aktivitätskonzentration beziehen, von $1510 \pm 63,4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ gemessen (Steinhauser et al. 2012 D4). Die Tiere wurden zum Zweck der veterinärmedizinischen Krankheitsüberwachung geschossen bzw. von Tiergärten oder Privatpersonen dem Forschungsinstitut für Wildtierkunde und Ökologie übergeben bzw. gemeldet. Die nuklearforensische Untersuchung der Schilddrüsen erfolgte im Zuge der vorliegenden Arbeit am Atominstitut der TU-Wien (Steinhauser et al. 2012 D4).

1.3.2.3.1. Akkumulation von Radioiod

Die Schilddrüsen von Wildtieren und/oder Weidevieh sind ein im Allgemeinen leicht zugänglicher und in adäquater Zahl verfügbarer Biomonitor, der – im Gegensatz zu Luftsamplern – auch in unbesiedeltem bzw. schwer zugänglichem Gebiet häufig zur Verfügung steht. Die Bestimmung der Radioiodkonzentration in Schilddrüsen nach der Freisetzung von radioaktivem Material in die Umwelt ermöglicht außerdem Rückschlüsse auf gesundheitliche Konsequenzen für den Menschen (Steinhauser et al. 2012 D4). Eine detailliertere Betrachtung der Gesundheitsaspekte folgt in Kapitel 1.4. – „Rechtliche und gesundheitliche Aspekte der Strahlenbelastung“.

Die in Abbildung 17 dargestellten und auf ihre Aktivitätskonzentration von ^{131}I untersuchten Schilddrüsen stammten von wildlebenden Pflanzenfressern, die in Wien und Niederösterreich gefunden bzw. geschossen wurden. Speziell für die in Niederösterreich angegebenen Messpositionen bzw. Fund- und Abschussorte ist anzumerken, dass diese zum Zweck der besseren Darstellung teilweise nicht maßstabsgetreu eingezeichnet werden konnten. Für die hier durchgeführte Diskussion der in Abbildung 17 dargestellten Ergebnisse ist dies jedoch unerheblich. Bereits die ersten Messungen am 30. und 31. März

zeigten teilweise relativ hohe Werte der Aktivitätskonzentration von ^{131}I in den Schilddrüsen. Das Ansteigen der Aktivitätskonzentration in den Tagen davor, beginnend mit dem Eintreffen der kontaminierten Luftmassen in Europa, konnte aufgrund der fehlenden Proben nicht im Detail beobachtet werden (Steinhauser et al. 2012 D4). Die vorliegenden Messergebnisse lassen allerdings darauf schließen, dass das Radioiod rasch in die Schilddrüsen der Tiere aufgenommen wurde.

Da das Radioiod üblicher Weise über mehrere Tage hinweg in den Schilddrüsen akkumuliert wird, lassen sich die Umweltbedingungen, die an den einzelnen Tagen der Aufnahmeperiode vorherrschten, nicht aus den Messungen der ^{131}I -Aktivitätskonzentration nach dem Ableben des Tieres ablesen. Die gewonnenen Ergebnisse repräsentieren eher den gesamten, bis zum Zeitpunkt der Probennahme aufgetretenen Einfluss des freigesetzten bzw. in der Umwelt vorliegenden ^{131}I . In diesem Sinne gehen im Vergleich zu den Luft- und Regenwasserproben ein Teil der zeitlichen Auflösung, zusätzliche Ausbreitungsinformationen und somit auch detailliertere räumliche Informationen verloren. Details und Zusammenhänge bezüglich der verschiedenen Umweltproben und ihrer Vor- und Nachteile ergeben sich in der hier durchgeführten nachfolgenden Betrachtung der in den verschiedenen Umweltproben gemessenen ^{131}I -Konzentrationen. Dabei konnte die aus Fukushima stammende Freisetzung von Radioiod bis in den Juni 2011 nachgewiesen werden. Daneben trat im Spätherbst von 2011 ein weiteres Freisetzungseignis auf, das seinen Ursprung in Ungarn hatte. Diese von dem Reaktorunfall in Fukushima völlig unabhängige Radionuklidfreisetzung konnte dazu benutzt werden, die in Zusammenhang mit Fukushima gemachten Beobachtungen zu verifizieren. In Abbildung 20 sind die von März bis Dezember 2011 in den Schilddrüsen von österreichischen Wildtieren gemessenen ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen im Vergleich zu den Radioiodmessungen von Regenwasser und Luftproben dargestellt.

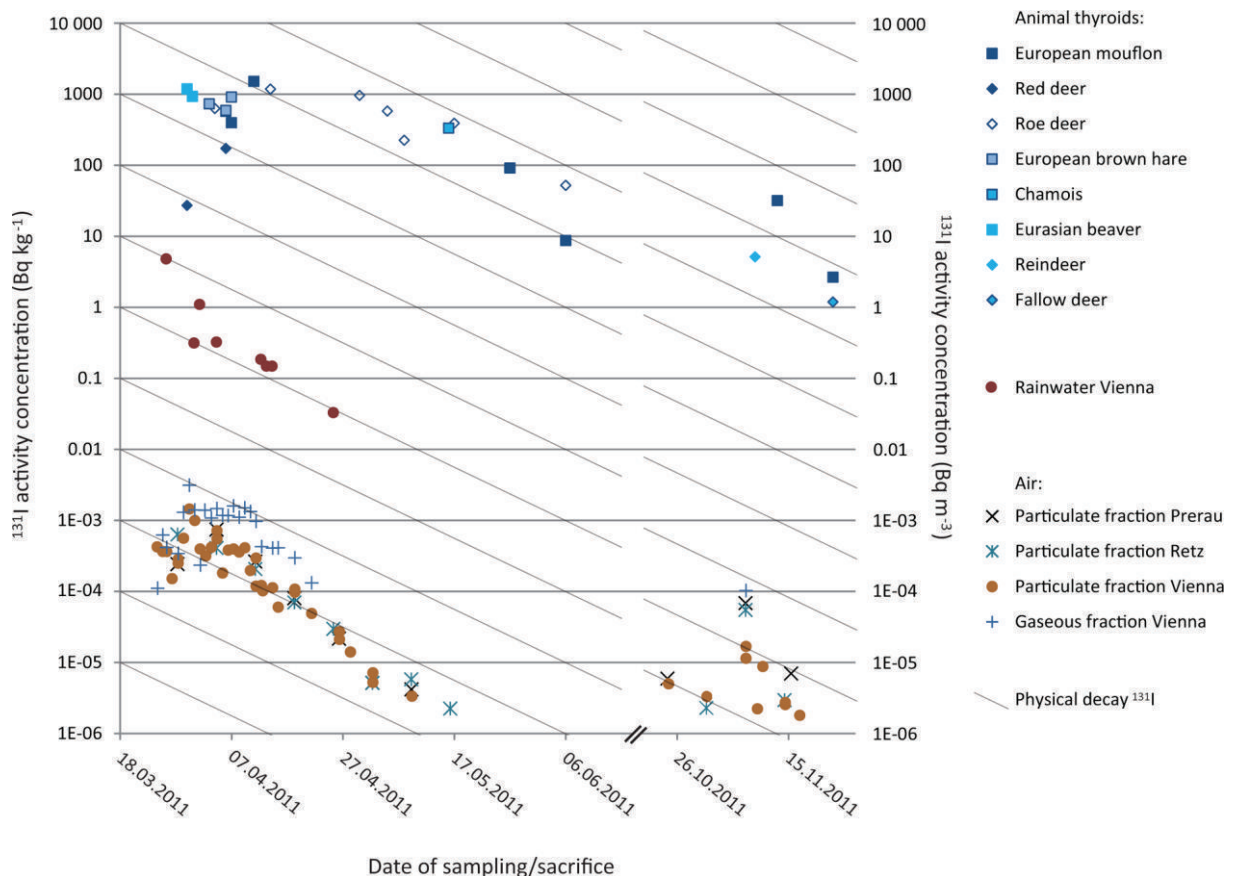


Abb. 20 ^{131}I -Aktivitätskonzentration in Schilddrüsen österreichischer Wildtiere (Bq kg^{-1}) im Vergleich zu Luft- (Bq m^{-3}) und Regenwasserproben (Bq L^{-1}) in Abhängigkeit des Zeitpunktes der Probenahme. Der Bereich links dokumentiert die aus Fukushima stammende Radioiodfreisetzung. Der Bereich rechts zeigt die Monitoringergebnisse in Zusammenhang mit der Freisetzung aus einem Radionuklidlabor in Ungarn. Auf Fehlerbalken wurde mit Hinblick auf Übersichtlichkeit verzichtet. Die diagonalen Linien repräsentieren das Abklingen von ^{131}I aufgrund seiner physikalischen Halbwertszeit. Aus: Steinhauser et al. (2012) D4. Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2012) American Chemical Society.

Die in den Regenproben und den Schilddrüsen gemessenen Aktivitätskonzentrationen sind in Bq kg^{-1} angegeben. Die Ergebnisse der Luftproben orientieren sich an der rechten Ordinate des Diagramms und sind in Bq m^{-3} dargestellt. Das Abklingen aufgrund des physikalischen Zerfalls von ^{131}I entsprechend der Halbwertszeit ist mittels der diagonalen, grauen Linien angezeigt. Die Schilddrüsenproben wurden nach der Tierart, von der die Schilddrüse stammt, unterschieden. Die Unterteilung der Ergebnisse der Luftproben berücksichtigt mit der Angabe des Messortes die geographische Herkunft und unterscheidet auch die physikalische Form, in der das ^{131}I in der Luftprobe auftrat (Steinhauser et al. 2012 D4). Eine detaillierte Betrachtung der Zusammenhänge zwischen den unterschiedlichen Umweltproben folgt in Kapitel 1.3.2.3.2. – „Vergleich der verschiedenen Umweltproben“.

Betrachtet man zunächst die Werte der ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen der Schilddrüsen in Abhängigkeit der unterschiedlichen Tierart, lassen sich zwischen den einzelnen Tierarten

der dargestellten Pflanzenfresser keine systematischen Unterschiede ausmachen. Der Abschusszeitpunkt bzw. der Zeitpunkt an dem der natürliche Tod eingetreten ist, stellt für den Wert der Aktivitätskonzentration den vorrangigen Einfluss dar. Es ist anzunehmen, dass größere Tiere mit größerem Futterbedarf auch entsprechend größere Schilddrüsen besitzen, sodass sich trotz der unterschiedlichen Größe der Tiere bzw. Tierarten vergleichbare ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen ergeben (Van Middlesworth 1958, Van Middlesworth 1960, Steinhauser et al. 2012 D4). Anders als in den in Abbildung 20 betrachteten Schilddrüsen der Pflanzenfresser, konnte in den Schilddrüsen von Fleischfressern und Zootieren keine Aktivitätskonzentration von ^{131}I nachgewiesen werden. Im April 2011 wurden von dem FIWI die Schilddrüsen einer Strausswachtel (Zootier) und eines Dachses für eine Analyse zu Verfügung gestellt. Im Mai 2011 wurden dem Atominstitut der TU-Wien die Schilddrüsen eines Marderhundes und eines Braunbären (Zootier) übergeben. Marderhunde sind Allesfresser und Dachse ernähren sich im Frühling vorwiegend von Regenwürmern, Insekten, Käfern und Larven in ihren unterirdischen Wohnhöhlen. Die Aktivitätskonzentration von ^{131}I in den Schilddrüsen der Zootiere bzw. Fleischfresser lag zumindest zwei Größenordnungen unterhalb des am 11. April gemessenen maximalen Konzentrationswert. Die Aktivitätskonzentration konnte für diese Tiere nicht eindeutig bestimmt werden, während im gleichen Zeitraum die Schilddrüsen der Pflanzenfresser deutliche Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I aufwiesen. Dieser Unterschied zwischen Fleischfressern bzw. Zootieren und Pflanzenfressern zeigt deutlich, dass die Art der Nahrung eine große Rolle spielt und die Ingestion im Vergleich zur Inhalation der vorrangig relevante Aufnahmemechanismus von Iod in die Schilddrüse ist (Steinhauser et al. 2012 D4). Aufgrund des durchaus raschen Auftretens relativ hoher Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I in den Schilddrüsen der Pflanzenfresser und der kurzen Halbwertszeit von ^{131}I , scheint es wahrscheinlich, dass das Radioiod als Oberflächendeposition auf Gräsern, Sträuchern und Pflanzen direkt von den Tieren aufgenommen wurde und nicht zunächst über die Wurzeln der Pflanzen in die Nahrungskette eintrat (Steinhauser et al. 2012 D4). Diesen Ingestionsumweg muss das Radioiod allerdings im Fall der Aufnahme durch Fleischfresser durchlaufen. Abgesehen von der Aufnahme von Wasser, müsste das Radioiod im Fall von Fleischfressern oder auch Allesfressern zunächst von den entsprechenden Kleintieren, Insekten, Käfern und Larven aufgenommen werden, welche die Nahrungsgrundlage der Fleisch- und Allesfresser bilden.

Da externe Strahlenbelastung durch radioaktives Aerosol nach z.B. einem Reaktorunfall vor allem im Nahbereich um das Kraftwerksgelände auftritt, kann man die Inhalation und die Ingestion von Radionukliden als wichtigste Aufnahme- bzw. Gefährdungsmechanismen für Tier und Mensch betrachten (OECD & NEA 2003). Dabei ist die Aufnahme von z.B. Radioiod in die Schilddrüse durch Inhalation vor allem in der Anfangsphase und in der näheren Umgebung des Freisetzungseignisses relevant. Mit

zunehmender Entfernung wird die Konzentration der Radionuklide in Luft stark verdünnt. In diesem Sinne stellt die Ingestion die größte Bedrohung und den vorrangig relevanten Aufnahmemechanismus von Radionukliden dar (OECD & NEA 2003, UNSCEAR 2008, Hamada & Ogino 2012). Ein Vergleich der Dosiskoeffizienten für Ingestion und Inhalation von ^{131}I , die zur Berechnung der Strahlenbelastung, die aufgrund der Aufnahme der radioaktiven Teilchen hervorgerufen wird, dienen, gibt Aufschluss über die Effektivität der Mechanismen und in diesem Sinne über deren Relevanz. Der Dosiskoeffizient für Erwachsene für Ingestion liegt bei $2,2 \cdot 10^{-8} \text{ SvBq}^{-1}$ und damit etwa eine Größenordnung über jenem für Inhalation von $2,4 \cdot 10^{-9} \text{ SvBq}^{-1}$ bei mittlerer Aufnahmegeschwindigkeit. Wird die gleiche Menge an Radioaktivität über die Atemluft aufgenommen, so führt dies zu einer um den Faktor 10 geringeren Strahlenbelastung für den Menschen, als dies aufgrund von Ingestion der Fall wäre. Die Dosiskoeffizienten der Schilddrüsens dosis für Ingestion und Inhalation zeigen ein ähnliches Verhältnis. Wird das radioaktive ^{131}I über Ingestion in den Körper aufgenommen, so muss für die Berechnung der Schilddrüsens dosis ein Dosiskoeffizient von $4,3 \cdot 10^{-7} \text{ SvBq}^{-1}$ berücksichtigt werden. Für Inhalation beträgt der Dosiskoeffizient zur Berechnung der Schilddrüsens dosis in Abhängigkeit der chemischen Form des ^{131}I bei mittlerer Aufnahmegeschwindigkeit $2,2 \cdot 10^{-8} \text{ SvBq}^{-1}$ (ICRP 1995). Die wichtigste Maßnahme, um die Aufnahme von Radionukliden im Allgemeinen aber auch die Akkumulation von Radioiod bei Nutztieren deutlich zu reduzieren, ist die Bereitstellung von nicht kontaminiertem Futter. Das Füttern mit Hilfe von Getreide- und Futtermittelvorräten war nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl eine effektive Maßnahme um die Einlagerung bzw. Akkumulation von ^{137}Cs im Muskelgewebe bzw. von ^{131}I in der Milch von Rindern zu reduzieren (IAEA 2006). Dieser Zusammenhang zwischen der Nahrungsaufnahme und der Akkumulation von Radionukliden bzw. speziell von Radioiod in den Schilddrüsen der Tiere erklärt die sozusagen fehlende Aktivitätskonzentration von ^{131}I in den Schilddrüsenproben der Fleischfresser bzw. Zootiere. Es lässt sich dadurch auch bestätigen, dass vor allem die Schilddrüsen wildlebender Pflanzenfresser als Biomonitor für ^{131}I bzw. Radioiod im Allgemeinen geeignet sind (Steinhauser et al. 2012 D4).

Die in den Schilddrüsen gemessenen Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I lassen sich für eine grobe Dosisabschätzung aufgrund der Aktivität des inkorporierten ^{131}I heranziehen. Studien an freiwilligen Probanden und auch an betroffenen Patienten ergaben, dass innerhalb der ersten 24 Stunden nach einer oralen Einnahme von radioaktivem Iod ein Anteil von etwa 14 bis 30 Prozent des Radioiods in der Schilddrüse eingelagert wird. Der Großteil des nicht in der Schilddrüse verbliebenen Radioiods wird über den Urin ausgeschieden. Nur wenige Prozent des verabreichten radioaktiven Iods verteilen sich auf andere Organe bzw. Körperregionen (ICRP 1987, Kramer et al. 2002, Kim & Whang 2009). Der höchste in einer der vorliegenden Schilddrüsenproben gemessene Aktivitätswert von $11,2 \pm 0,47 \text{ Bq}$ für ^{131}I wurde in der Schilddrüse des Mufflons

registriert, das auch mit seinem Ableben am 11. April die höchste Aktivitätskonzentration von $1510 \pm 63,4 \text{ Bq kg}^{-1}$ an ^{131}I zeigte. Geht man für Säugetiere nun von einer Radioiodaufnahme von etwa 20 % innerhalb der ersten 24 Stunden aus, so würde dieser Aktivitätswert auf eine einmalige Ingestion von 56 Bq schließen lassen. Gemeinsam mit dem Dosiskoeffizienten für Ingestion von ^{131}I für einen Erwachsenen führt dieser Aktivitätswert auf eine Körperdosis für einen Menschen von etwa $1,2 \mu\text{Sv}$.

1.3.2.3.2. Vergleich der verschiedenen Umweltproben

Betrachtet man in Abbildung 17 die Entwicklung der relativen ^{131}I -Aktivitätskonzentration in Luft und den Schilddrüsen, erkennt man, dass in den Luftproben des Atominstituts der TU-Wien die Konzentrationswerte mit dem 30. März zu sinken begannen und nach dem 12. April nicht mehr nachweisbar waren, während für die Schilddrüsenproben die maximale Aktivitätskonzentration am 11. April gemessen wurde (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5). Eine generelle Problematik des Monitorings von ^{131}I in Umweltproben ist, dass sich bei Radionuklid ausstößen von geringem Ausmaß (womöglich bei zusätzlich ungünstigen Wetterbedingungen) das Zeitfenster für die Nachweisbarkeit in Luft bereits nach wenigen Tagen schließt. Aus Abbildung 17 lässt sich in diesem Sinne ein erster Hinweis auf die Vorteile von Schilddrüsen als Biomonitore bezüglich der Nachweisbarkeit von Radioiod ableiten (Steinhauser et al. 2012 D4).

In Abbildung 20 lässt sich, verdeutlicht durch die grauen Linien, die das physikalische Abklingen von ^{131}I repräsentieren, das unterschiedliche Verhalten bezüglich der effektiven Halbwertszeit von ^{131}I in den verschiedenen Umweltproben beobachten. Verfolgt man das Abklingen der Aktivität einer ^{131}I -Konzentration, deren Änderung nur durch den physikalischen Zerfall mit einer Halbwertszeit von 8,03 Tagen bedingt ist, so würde sich der Verlauf der Aktivitätskonzentration parallel zu einer der mit „Physical decay ^{131}I “ bezeichneten Linien entwickeln. Abweichungen von diesem Verlauf sind allgemein durch das zusätzliche Abführen der Radioiodkonzentration aus dem betrachteten System bedingt oder analog durch eine Zufuhr von ^{131}I in das System. Betrachtet man die Aktivitätskonzentrationen der Luftproben, so überschreiten sie zunächst eine der eingezeichneten Zerfallslinien, da in dieser Phase die kontaminierten Luftmassen aus Fukushima nach und nach an den Messpositionen eintrafen. Wie die hier durchgeführte Aufarbeitung der vorliegenden Daten in Abbildung 17 und Abbildung 20 zeigt, wurde die maximale Aktivitätskonzentration von ^{131}I der Luftproben am 30. März erreicht. Von diesem Zeitpunkt an sinkt die gemessene Aktivitätskonzentration und unterschreitet dabei auch wieder eine der Zerfallslinien. Das bedeutet, dass die effektive Halbwertszeit von ^{131}I im Medium Luft geringer als die physikalische Halbwertszeit des Isotops ist. Neben dem physikalischen Zerfall unterliegt das Radioiod in der Luft auch Effekten wie der

Verdünnung in der Atmosphäre und dem Auswaschen aus den Luftmassen (Chamberlain 1960, Chamberlain & Chadwick 1966, Rosner et al. 1990, Steinhauser et al. 2012 D4). Dies führt zu einer effektiven Halbwertszeit in den betrachteten Luftproben von 4 bis 6 Tagen (Steinhauser et al. 2012 D4). Die Messungen von partikulärem und gasförmigem Radioiod in Wien zeigen dabei ein vergleichbares Verhalten. In Abbildung 20 lässt sich erkennen, dass die Werte der Aktivitätskonzentration von gasförmigem Radioiod in Wien jene Aktivitätswerte für partikuläres Radioiod übersteigen. Masson et al. (2011) bestimmten den Anteil von gasförmigem Radioiod an der gesamten in Luft vorliegenden Radioiodkonzentration zu $77,2 \pm 13,6$ %. Das entspricht dem gleichen durchschnittlichen Verhältnis von gasförmigem zu gesamtem Radioiod, das nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl vorlag (Cambray et al. 1987, Masson et al. 2011). Die vergleichbaren Konzentrationswerte und die in Kapitel 1.2.2. – „Physiko-chemische Verteilung der freigesetzten Radionuklide“ bereits erwähnte stattfindende Umwandlung von gasförmigem zu partikulärem Radioiod machen es notwendig, im Zuge des Radioiodmonitorings in Luftproben sowohl den partikulären als auch den gasförmigen Anteil von Radioiod zu betrachten (Masson et al. 2011). Auf das Abklingverhalten und die effektive Halbwertszeit der in Abbildung 20 angeführten Regenwasserproben lassen sich analoge Erklärungen wie für das Verhalten der Aktivitätskonzentration der Luftproben anwenden.

Für die Schilddrüsenproben erkennt man in Abbildung 20 sowie auch in Abbildung 17 ansteigende Werte der Aktivitätskonzentration bis zum 11. April. Im Vergleich zu den Luftproben wurde der Maximalwert beinahe zwei Wochen später erreicht. Das darauffolgende Abklingen der Aktivitätswerte schreitet im Vergleich zu den Luft- und Regenwasserproben deutlich langsamer voran. Man kann während der Abklingphase eine leichte Annäherung der Konzentrationswerte zu der darüber gelegenen Zerfallslinie erkennen, was darauf hindeutet, dass die effektive Halbwertszeit von ^{131}I in Schilddrüsen größer als dessen physikalische Halbwertszeit ist. Ausgehend vom Maximalwert der ^{131}I -Aktivitätskonzentration am 11. April konnte hier für die nachfolgenden Schilddrüsenproben eine effektive Halbwertszeit von etwa 9 Tagen berechnet werden (Steinhauser et al. 2012 D4). Marston (1958) bestimmte nach einem Atombombentest eine effektive Halbwertszeit von etwa 10,5 Tagen für die Aktivitätskonzentration von ^{131}I in den Schilddrüsen von Rindern. Für diese effektive Erhöhung der Halbwertszeit ist die aktive Aufnahme von Radioiod durch die Tiere und dessen Akkumulation in der Schilddrüse verantwortlich (Van Middlesworth 1963, OECD & NEA 2003, Steinhauser et al. 2012 D4). Durch diesen Unterschied in der effektiven Halbwertszeit ließ sich ^{131}I in den Schilddrüsen über drei Wochen länger nachweisen als in den Luftproben (Steinhauser et al. 2012 D4).

In der Zeit vom 8. September bis 16. November kam es unabhängig von den Ereignissen in Fukushima zum Auftreten von ^{131}I -Konzentrationen in der Luft in Europa. Die Hungarian Atomic Energy Authority (HAEA) meldete der IAEA das Institute of Isotopes Co., Ltd. als die wahrscheinlichste Quelle des Freisetzungereignisses (IAEA 2011). Aus diesem Grund wurden die vergleichenden Messungen der unterschiedlichen Umweltproben im Oktober bzw. November 2011 wieder aufgenommen. Die in diesem Zeitraum im Zuge der vorliegenden Arbeit gemessenen bzw. analysierten Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I in Schilddrüsen und Luftproben sind ebenfalls in Abbildung 20 dargestellt. Da das Freisetzungereignis mit einer längeren Trockenphase in Österreich zusammenfiel, konnten keine Regenwasserproben genommen werden (Steinhauser et al. 2012 D4).

Ein Vergleich der über das ganze Jahr 2011 gesammelten Daten zeigt, dass die maximalen Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I , die durch den Ausstoß in Ungarn hervorgerufen wurden, sowohl für die Schilddrüsen- als auch für Luftproben um zwei Größenordnungen geringer waren, als die im Zuge der Freisetzungen von Fukushima aufgetretenen Aktivitätskonzentrationen. Die Größenordnung der Minimalwerte der gemessenen Aktivitätskonzentrationen waren in beiden Fällen bzw. über das ganze Jahr konsistent und spiegeln die Nachweisgrenze des verwendeten Detektors in vorgegebenen Messgeometrien wider. Setzt man die Höchstwerte der ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen der Luftproben in ein Verhältnis zu jenen der Schilddrüsenproben, ergeben sich, sowohl für die im Zuge des Unfalls in Fukushima als auch während der Freisetzung in Ungarn aufgenommenen Daten, vergleichbare Werte. Für die mit dem Unfall von Fukushima in Zusammenhang stehenden Proben konnte hier ein Verhältnis $A_{\max SD}/A_{\max L}$ von $1,1 \cdot 10^6 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ zwischen der ^{131}I -Aktivitätskonzentration der Schilddrüsenprobe und der Messung von partikulärem Radioiod in Luft bestimmt werden. Die maximalen Aktivitätskonzentrationen der Schilddrüsen- und Luftproben für partikuläres Radioiod, die im Oktober und November 2011 gesammelt wurden, waren über einen Faktor von $1,9 \cdot 10^6 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ korreliert. Die ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen der Schilddrüsen- bzw. Luftproben wurden dabei wie in Abbildung 20 mit $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ bzw. $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ angenommen. Das Verhältnis der Aktivitätskonzentration von ^{131}I in Schilddrüsen zu jener in Luft kann als Korrelationsfaktor bezeichnet werden. Durch diesen Faktor wurde es erstmals ermöglicht, durch die Bestimmung der Aktivitätskonzentration in Schilddrüsen, eine erste Abschätzung über die in Luft vorherrschende ^{131}I -Konzentration zu tätigen, wie in der vorliegenden Arbeit an zwei unterschiedlichen Ereignissen im Jahr 2011 gezeigt werden konnte (Steinhauser et al. 2012 D4).

Im Vergleich zur Probennahme von Luft stellt die Beprobung von Schilddrüsen ein technisch deutlich weniger aufwändiges Verfahren dar. Vor allem die Bestimmung der Aktivitätskonzentration von gasförmigem Radioiod in Luft macht, wie bereits am Ende der

Einleitung von Kapitel 1.3. – „Radionuklidmonitoring – Messungen der Umweltradioaktivität“ beschrieben, ein aufwändiges Messsystem erforderlich. Hinzu kommt, dass nicht alle Detektoren von Messstationen für Luftmessungen den Anforderungen, um Aktivitätskonzentrationen im Bereich von $\mu\text{Bq m}^{-3}$ zu messen, gerecht werden (Ungar et al. 2007, Steinhauser et al. 2012 D4). Die Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization (CTBTO), welche die Einhaltung des Vertrags über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen überwacht, nutzt zu diesem Zweck entsprechend durchflussstarke high volume Luftfilter. Durch die zahlreichen radioanalytischen Messstationen und die entsprechende Infrastruktur wie das International Data Center des CTBTO-Hauptquartiers und einem globalen Satellitenkommunikationsnetzwerk, auf das die CTBTO zurückgreifen kann, wurde eine Vielzahl an Daten gesammelt, die auch für die Bewältigung der akuten Notsituation nach dem Unfall von Fukushima von großer Relevanz war (Masson et al. 2011, Thakur et al. 2013, Steinhauser et al. 2014).

Wie bereits erwähnt, liegt die Anforderung der CTBTO, die in diesem Sinne als erstrebenswerter anzuwendender Maßstab herangezogen werden kann, bezüglich Nachweisgrenze von aerosolgebundenem Radioiod in Luft in einer Größenordnung von $\mu\text{Bq m}^{-3}$ (Ungar et al. 2007, Steinhauser et al. 2012 D4). Unter Berücksichtigung des soeben eingeführten Korrelationsfaktors und der Annahme, dass die betrachteten Schilddrüsen etwa eine Masse im Bereich von wenigen Gramm aufweisen, führt dies zu der Anforderung, eine Aktivität im Bereich von mBq in Schilddrüsen nachweisen zu können. Dieses Kriterium kann mittels Low-Level- γ -Spektroskopie erfüllt werden (Steinhauser et al. 2012 D4). In Abbildung 20 lässt sich in diesem Zusammenhang erkennen, dass sich sowohl die Maximalwerte als auch die Minimalwerte der gemessenen Aktivitätskonzentrationen der Luft- und Schilddrüsenproben durch den Korrelationsfaktor unterscheiden. In diesem Sinne konnte der gesamte Bereich der Aktivitätskonzentration, der mit den Luftmessungen dargestellt wurde, auch mit den Schilddrüsen abgedeckt werden. Die Verwendung der Schilddrüsen als Biomonitor kann also somit im Sinne der üblichen technischen Standards als adäquater Radioiodmonitor verstanden werden, der auch die Möglichkeit einer groben Abschätzung, der in der Atmosphäre auftretenden Radioiodkonzentration, bietet.

Das Zeitfenster, in dem eine Radioiodkonzentration nachgewiesen werden kann, hängt, bei der Analyse der gleichen Art von Umweltproben, direkt von den Nachweisgrenzen der verwendeten Messsysteme ab und ist grundsätzlich gleichzeitig stark durch die Art der analysierten Umweltproben bzw. des Biomonitor bestimmt. Während die high volume Messstation der CTBTO am Dach des Vienna International Center bis 7. Mai aus Fukushima stammendes ^{131}I in der Umwelt nachweisen konnte, konnte an der Messstation des Atominstututs der TU-Wien, bedingt durch die deutlich niedrigere Durchflussrate,

bereits nach dem 12. April keine messbare Aktivitätskonzentration von ^{131}I in Luft registriert werden (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5). Das illustriert die hohe Empfindlichkeit der von der CTBTO für die Luftmessungen verwendeten Systeme. Im Fall der in der vorliegenden Arbeit als Biomonitor verwendeten Schilddrüsen führte die aktive Aufnahme von Radioiod durch die Tiere und dessen Akkumulation zu einer effektiven Erhöhung der Halbwertszeit. Dadurch ließ sich das ^{131}I in den Schilddrüsen über drei Wochen länger als in den Luftproben nachweisen (Steinhauser et al. 2012 D4).

1.4. Rechtliche und gesundheitliche Aspekte der Strahlenbelastung

Im Zuge der Freisetzung von radioaktivem Material in die Umwelt stellen die externe Exposition und die interne Strahlenbelastung, welche durch Inhalation und Ingestion von Radionukliden hervorgerufen werden kann, die größte Gefährdung für die menschliche Gesundheit dar (OECD & NEA 2003, Merz et al. 2013 D1). Die externe Strahlenbelastung durch radioaktive Aerosole und Deposition von Radionukliden nach dem Reaktorunfall von Fukushima stellte vorrangig im Nahbereich des Reaktorgeländes und für die vor Ort befindlichen Arbeiter ein relevantes Gefährdungspotential dar. Im Jänner 2014 wurde die Zahl der Arbeiter, welche eine Dosis von über 100 mSv erhielten, von 167 auf 173 korrigiert. Für sechs von diesen Arbeitern zeigten die Dosimeter eine Dosis größer 250 mSv. Zwei Arbeiter erhielten eine Hautdosis von 2 bis 3 Sv, während sie in hoch radioaktiv kontaminiertem Wasser standen (Ten Hoeve & Jacobson 2012, WNA 2014). Anders als nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl wurden für die Arbeiter in Fukushima keine Symptome der akuten Strahlenkrankheit diagnostiziert (OECD & NEA 2003, Michel & Voigt 2006, WNA 2014). Die Inhalation als Gefährdungsmechanismus hat ebenfalls in der näheren Umgebung der radioaktiven Freisetzungen größte Bedeutung. Mit zunehmender Entfernung vom Ort der Freisetzung wird die Konzentration der Radionuklide in Luft stark verdünnt (Chamberlain 1960, Carbol et al. 2003, Nho-Kim et al. 2004, Steinhauser et al. 2012 D4). Jene Arbeiter, bei denen Strahlendosen von bis zu 678 mSv errechnet wurden, waren kurz nach dem Unfall mit ^{131}I kontaminiertem Dampf ausgesetzt, ohne dabei mit Atemschutzgeräten ausgerüstet gewesen zu sein (WNA 2014). Die Aktivität der kurzlebigen Radionuklide wie ^{131}I klingt im Verlauf der Ausbreitung rasch ab, während die langlebigen Radionuklide wie ^{137}Cs über

große Entfernungen hinweg relevante Ablagerungen hervorrufen können. Durch die Deposition auf Pflanzen, im Boden mit nachfolgender Aufnahme durch Pflanzen und in Wasser gelangen sie in die Nahrungskette, wodurch die Ingestion für den Großteil der Bevölkerung den relevantesten Aufnahmemechanismus von Radionukliden darstellt (UNSCEAR 2008, Hamada & Ogino 2012).

Die ersten Maßnahmen zum Schutz der japanischen Bevölkerung wurden bereits vor dem Auftreten der ersten Explosion am Nachmittag des 12. März, bei dem das Reaktorgebäude 1 zerstört wurde, bzw. vor der ersten großen Freisetzung von Radionukliden am 15. März veranlasst. Die japanische Regierung ordnete am späten Abend des 11. März die Evakuierung einer 3km-Zone um das Reaktorgelände an und weitete diese in den Morgenstunden des 12. März auf eine 10km-Zone aus (Dauer et al. 2011, GRS 2011, Baba 2013, WNA 2014). Im Vergleich dazu wurde nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl die Evakuierung der etwa 5 km entfernt gelegenen Stadt Pripjat erst am 27. April 1986 um 11 Uhr angekündigt. Seit der Explosion des Reaktors und somit dem Beginn der Freisetzung von radioaktivem Material bis zu dem Entscheid über eine Evakuierung vergingen damit beinahe 36 Stunden (OECD & NEA 2003, IAEA 2006). Eine weitere Maßnahme betrifft die Ingestion von Radionukliden über Milch. In den ersten Wochen nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl führte vorrangig die Konsumation von mit Radioiod kontaminierter Milch zu relevanten Schilddrüsendosen (OECD & NEA 2003). Die gesundheitliche Belastung durch die Aufnahme von ^{137}Cs in den Körper ist ebenfalls stark mit dem Milchkonsum in der Anfangsphase nach dem Reaktorunfall korreliert (Travnikova et al. 2001). Am 12. März wurde in diesem Zusammenhang bei dem Beschluss, eine 20km-Zone um das Kernkraftwerk Fukushima Dai-Ichi zu evakuieren, auch die Ausgabe von stabilem Iod an jene Personen veranlasst, die innerhalb dieser Zone verblieben. Am 16. März wurde diese Maßnahme auch auf die Bevölkerung erweitert, welche aus der 20km-Zone evakuiert wurde. Personen mit einem Alter unterhalb von 40 Jahren wurden angewiesen Kalium-Iodid-Tabletten einzunehmen, während für Kinder ein entsprechender Sirup bereitgestellt wurde (NERHQ 2011a, NERHQ 2011b, WNA 2014). Da zu diesem Zeitpunkt die Evakuierung der 20km-Zone weitgehend abgeschlossen war, wurde die Iodprophylaxe tatsächlich nur von einer geringen Anzahl an evakuierten Personen eingenommen (Hamada et al. 2012). Im Zuge des Unfalls in Tschernobyl sollte den Betroffenen ebenfalls stabiles Iod verabreicht werden. Die Verteilung war jedoch nicht ausreichend gut organisiert und vor allem in den stark kontaminierten Gebieten des heutigen Weißrussland nur beschränkt erfolgreich (UNSCEAR 2008). Die kurzfristig getroffenen Maßnahmen wie die Evakuierung und die Ausgabe von Iod-Tabletten zum Schutz der Bevölkerung nach dem Unfall von Fukushima wurden in Übereinstimmung mit den international empfohlenen Kriterien zur Ausführung von Notfallmaßnahmen durchgeführt (WHO 2013). Durch die heutige Möglichkeit eines weltweiten Vertriebs

regionaler Produkte, die großflächige Ausbreitung in der Atmosphäre und die Deposition von langlebigen Radionukliden stellt die Ingestion von Radionukliden für den Großteil der Bevölkerung das größte gesundheitliche Risiko dar (UNSCEAR 2008, Hamada & Ogino 2012). Um die Bevölkerung auch in von dem Freisetzungsort entfernt gelegenen Regionen vor der Ingestion von radioaktiv kontaminierten Nahrungsmitteln mit gefährlichen Aktivitätswerten zu schützen, wurde wenige Tage nach dem Reaktorunfall von der japanischen Regierung die Überwachung von Lebensmittel-, Wasser- und Luftproben veranlasst (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2).

Die Beurteilung des Gefahrenpotentials der Proben orientiert sich an gesetzlich festgelegten Aktivitäts- bzw. Dosisgrenzwerten. In Österreich sind die Aktivitätsgrenzwerte für Luft-, Wasser- und Bodenproben, Nutzmateriale und auch die Dosisgrenzwerte, die zwischen Einzelpersonen der Bevölkerung und beruflich strahlenexponierten Personen unterscheiden, in der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung tabelliert bzw. angegeben (BGBl.II 2006a, BGBl.II 2006b, BGBl.II 2006c). Die in Österreich gültigen Aktivitätsgrenzwerte für verschiedene Radionuklide in Lebensmitteln wurden auf europäischer Ebene festgelegt. Nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl wurde für das konkrete Bedrohungsszenario eine Verordnung über die Einfuhrbedingungen für landwirtschaftliche Erzeugnisse mit Ursprung in Drittländern nach dem Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl erlassen. In diesem Zusammenhang haben sich die Mitgliedstaaten der Europäischen Gemeinschaft verpflichtet, die angeführten Höchstwerte für Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden in Lebensmitteln auch beim Handel innerhalb der Gemeinschaft anzuwenden (REG 1986, EC 2003). Im Jahr 2003 wurde die Empfehlung, die festgelegten Grenzwerte auch beim Inverkehrbringen in den europäischen Binnenmarkt einzuhalten, erneuert (EC 2003). Auf Basis dieser Empfehlung wird auch die aktuell gültige Verordnung über die Einfuhr von Lebensmitteln aus Drittländern, welche von dem Unfall in Tschernobyl betroffen waren, beim Handel innerhalb der EU angewendet (CEU 2008, Stöger 2011). Nach dem Unfall von Fukushima wurde eine weitere zusätzliche Verordnung über den Import von aus Japan stammenden Nahrungsmitteln verabschiedet (EC 2014).

Zur Analyse und Diskussion der Dosis- und Gesundheitsaspekte wurde in der vorliegenden Arbeit das Konzept der jährlichen Tageskonsumation eingeführt. Die gesetzlich festgelegten Grenzwerte für Nahrungsmittel und die in den Lebensmittelproben gemessenen Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide sollen auf diese Weise mit intuitiv besser verständlichen Größen verglichen und greifbarer gemacht werden. Für eine Einzelperson der Bevölkerung beträgt der Grenzwert der effektiven Dosis 1 Millisievert pro Jahr (BGBl.II 2006a). Dieser Dosiswert kann als akzeptierte zusätzliche Strahlenbelastung interpretiert werden, welcher nicht als gesundheitsgefährdend eingestuft

werden muss. Die effektive Dosis, welche die Aufnahme einer definierten Aktivität in den Körper hervorruft, wird mithilfe der nachstehenden Formel (Gl. 3) berechnet:

$$E = \sum_j h(g)_{j,ing/inh} \cdot A_{j,ing/inh} \quad (\text{Gl. 3})$$

Dabei ist E die effektive Dosis (Sv), $A_{j,ing/inh}$ die Aktivität (Bq), welche inkorporiert wird und $h(g)_{j,ing/inh}$ bezeichnet die Dosiskoeffizienten (Sv Bq^{-1}), welche für die Ingestion bzw. Inhalation entsprechend der betrachteten Radionuklide j gewählt werden müssen. Die berechnete effektive Dosis E ist dabei für Erwachsene als Folgedosis der nächsten 50 Jahre nach der Inkorporation zu betrachten. Im Fall von Kindern spiegelt der berechnete Dosiswert die Folgedosis bis zum Erreichen eines Alters von 70 Jahren wieder (BGBl.II 2006d). Die in dieser Arbeit vorgestellte jährliche Tageskonsumation stellt in diesem Zusammenhang jene Menge an Nahrungsmittel dar, welche täglich über ein Jahr hinweg konsumiert werden darf bzw. müsste, um den Grenzwert von 1 mSv bei gegebener Aktivität A des Nahrungsmittels zu erreichen (Merz et al. 2013 D1). Geht man davon aus, dass eine erwachsene Person über 365 Tage hinweg täglich mit Radionukliden kontaminierte Nahrungsmittel aufnimmt, welche zum Zeitpunkt der Einnahme die gleiche Aktivität aufweisen, wird die Folgedosis von 1 mSv formal erst nach 51 Jahren erreicht. Dabei müsste außerdem berücksichtigt werden, dass die am ersten Tag inkorporierten Radionuklide somit zusätzliche 365 Tage ihre Energie im Körper deponieren können und zur effektiven Dosis beitragen. Der größtmögliche zusätzliche Beitrag zur effektiven Dosis würde auftreten, wenn man von einem extrem langlebigen Radionuklid ausgeht und den Einfluss des Organismus auf die Verweildauer des Radionuklids durch Ausscheidung nicht miteinbezieht. Der Dosisaufbau würde in diesem Fall linear ablaufen und wäre im letzten betrachteten Jahr gleich groß wie zu Beginn. Unter diesen Voraussetzungen ergibt die Abschätzung der zusätzlichen Beiträge, der an den aufeinanderfolgenden Tagen aufgenommen Radionuklide für das letzte betrachtete Jahr, dass sich die gesamte effektive Dosis höchstens um 1 % erhöhen würde. Für die in dieser Arbeit betrachteten Radionuklide wie ^{131}I , das eine kurze physikalische Halbwertszeit hat und ^{134}Cs bzw. ^{137}Cs , die eine kurze biologische Halbwertszeit aufweisen, erhält eine Person beinahe die gesamte Dosis bereits im ersten Jahr nach der Aufnahme (Semioshkina et al 2007). In diesem Sinne stellt die jährliche Tageskonsumation eine angemessene Abschätzung der Menge an mit Radionukliden kontaminierten Lebensmittel dar, welche nach ihrer Aufnahme innerhalb eines Jahres zu einer Dosis von 1 mSv für den Konsumenten führt.

1.4.1. Gesetzliche Regulatorien

1.4.1.1. Aktivitätsgrenzwerte für die Konzentration von Radionukliden in Lebensmitteln

1.4.1.1.1. Entwicklung der gesetzlichen Aktivitätsgrenzwerte

Die gesetzlich festgelegten Grenzwerte für die Aktivitätskonzentration verschiedener Radionuklide in Nahrungsmitteln sollen die Bevölkerung vor den gesundheitsgefährdenden Auswirkungen durch eine Konsumation von kontaminierten Lebensmitteln schützen. In Tabelle 2 sind die in Japan und Europa seit dem 1. April 2012 bzw. 1. April 2014 gültigen Grenzwerte zusammen mit jenen, die nach dem Reaktorunfall von Fukushima bis dahin Gültigkeit besaßen, angegeben.

Tab. 2 Auflistung ausgewählter gesetzlicher Grenzwerte für verschiedene Radionuklidkonzentrationen in Lebensmittel. Vergleich der in den EU-Mitgliedstaaten für aus Japan stammende Lebensmittelimporte und die in Japan gültigen Grenzwerte und deren historische Entwicklung. Die tabellierten Grenzwerte der Aktivitätskonzentrationen zum Zeitpunkt der Konsumation sind in Bq kg^{-1} angegeben. Aus: Merz et al. (2013) D1. Reprinted and adapted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

	European Union				Japan				
	Baby foods ¹	Dairy produce	Other foodstuffs except minor foodstuffs	Liquid foodstuffs ²		Infant foods	Milk	Vegetables, cereals, meats, eggs, seafood and other foodstuffs	Drinking water
Isotopes of iodine, notably I-131	150 ^a /100 ^b /- ^{c,f}	500 ^a /300 ^b /- ^{c,f}	2000 ^a /2000 ^b /- ^{c,f}	500 ^a /300 ^b /- ^{c,f}	Radioiodine	100 ^d /- ^e	300 ^d /- ^e	2000 ^d /- ^e	300 ^d /- ^e
All other nuclides of half-life greater than 10 days ³ , notably Cs-134, Cs-137	400 ^a /200 ^b /50 ^{c,f}	1000 ^a /200 ^b /50 ^{c,f}	1250 ^a /500 ^b /100 ^{c,f}	1000 ^a /200 ^b /10 ^{c,f}	Radiocesium	- ^d /50 ^e	200 ^d /50 ^e	500 ^d /100 ^e	200 ^d /10 ^e
Alpha-emitting isotopes of plutonium and transplutonium elements, notably Pu-239, Am-241	1 ^a /1 ^b /- ^{c,f}	20 ^a /1 ^b /- ^{c,f}	80 ^a /10 ^b /- ^{c,f}	20 ^a /1 ^b /- ^{c,f}	Plutonium and other transuranic α emitters	1 ^d /1 ^e	1 ^d /1 ^e	10 ^d /10 ^e	1 ^d /1 ^e
Isotopes of strontium, notably Sr-90	75 ^a /75 ^b /- ^{c,f}	125 ^a /125 ^b /- ^{c,f}	750 ^a /750 ^b /- ^{c,f}	125 ^a /125 ^b /- ^{c,f}					
					Uranium	20 ^d /- ^e	20 ^d /- ^e	100 ^d /- ^e	20 ^d /- ^e

^a gültig ab 25.März 2011 bis 10.April 2011

^b gültig ab 11.April 2011 bis 31.März 2012

^c gültig ab 1. April 2012 bis 1. April 2014

^d gültig ab 17. März 2011 bis 31. März 2012

^e gültig seit 1. April 2012

^f gültig seit 1. April 2014

¹ Als Nahrungsmittel für Säuglinge gelten Lebensmittel, für die Ernährung speziell von Säuglingen während der ersten vier bis sechs Lebensmonate, die für sich genommen den Nahrungsbedarf dieses Personenkreises decken und in Packungen für den Einzelhandel dargeboten werden, die eindeutig als „Zubereitung für Säuglinge“ gekennzeichnet und etikettiert sind (REG 1989).

² Flüssige Nahrungsmittel gemäß Code 2009 und Kapitel 22 der Kombinierten Nomenklatur. Die Werte werden unter Berücksichtigung des Verbrauchs von Leitungswasser berechnet; für die Trinkwasserversorgungssysteme sollten nach dem Ermessen der zuständigen Behörden der Mitgliedstaaten identische Werte gelten (REG 1989).

³ Diese Gruppe umfasst nicht Kohlenstoff C-14, Tritium und Kalium-40 (REG 1989).

Die in Japan mit dem 17. März 2011 eingeführten Grenzwerte waren bis zum 1. April 2012 in Kraft und wurden anschließend durch niedrigere Grenzwerte ersetzt (Hamada & Ogino 2012, MHLW 2012, Merz et al. 2013 D1). Die am 25. März in Europa in Kraft getretenen Grenzwerte basierten auf Verordnungen aus den Jahren 1987, 1989 bzw. 1990 und waren, vor allem Radiocäsium betreffend, deutlich höher als die japanischen Grenzwerte. In der Verordnung (Euratom) Nr. 3954/87 des Rates vom 22. Dezember 1987 sind die Höchstwerte an Radioaktivität in Nahrungsmitteln und Futtermitteln im Falle eines nuklearen Unfalls oder einer anderen radiologischen Notstandssituation festgelegt. Analog legt die Verordnung (Euratom) Nr. 944/89 der Kommission vom 12. April 1989 die Höchstwerte für Nahrungsmittel geringerer Bedeutung fest. Die Verordnung (Euratom) Nr. 770/90 der Kommission vom 29. März 1990 betrifft die Höchstwerte an Radioaktivität in Futtermitteln. Nach intensiven Diskussionen aufgrund der Unterschiede zwischen den japanischen und den europäischen Grenzwerten wurde die Durchführungsverordnung (EU) Nr. 297/2011 der Kommission vom 25. März 2011 durch die Durchführungsverordnung (EU) Nr. 351/2011 der Kommission vom 11. April 2011 abgeändert und die in Japan gültigen Grenzwerte übernommen (EC 2011a, EC 2011b, Merz et al. 2013 D1). Die Verordnung Nr. 297/2011 wurde am 27. September 2011 durch die Durchführungsverordnung (EU) Nr. 961/2011 der Kommission ersetzt, welche eine monatliche Überprüfung der Entwicklung der Kontaminationslage vorsieht. Die Durchführungsverordnung (EU) Nr. 284/2012 der Kommission, welche am 1. April 2012 in Kraft trat, beschränkt analog zu den in Japan gültigen Grenzwerten die Angabe von Höchstwerten an Radioaktivität auf Radiocäsium. Die Verordnung sieht die Freisetzung von Radioisotopen von Strontium, Plutonium und Americium als nachweislich sehr begrenzt an und geht zu dem Zeitpunkt von einem vollständigen Abklingen der ¹³¹I-Aktivität in der Umwelt aus (EC 2011c, EC 2012, Merz et al. 2013 D1). Um der weiteren Entwicklung der Lage Rechnung zu tragen, trat nach weiteren geringfügigen Änderungen am 1. April 2014 die aktuell gültige „Durchführungsverordnung (EU) Nr. 322/2014 der Kommission zum Erlass von Sondervorschriften für die Einfuhr von Lebens- und Futtermitteln, deren Ursprung oder Herkunft Japan ist, nach dem Unfall im Kernkraftwerk Fukushima“ in Kraft (EC 2014).

1.4.1.1.2. Inkonsistente Aspekte der gesetzlichen Verordnungen

Betrachtet man die zu unterschiedlichen Zeitpunkten gültigen Grenzwerte, die durch die verschiedenen Durchführungsverordnungen gesetzlich festgelegt wurden, so ergeben sich Unstimmigkeiten sowohl innerhalb einer Durchführungsverordnung als auch im Vergleich zu Verordnungen, die die gesetzliche Grundlage für analoge Bedrohungsszenarien darstellen. In Verordnung (EG) Nr. 733/2008 des Rates sind die gesetzlichen Höchstwerte für die Aktivitätskonzentration von Radiocäsium in Importwaren aus Drittländern, die

durch den Reaktorunfall in Tschernobyl betroffenen waren, definiert. Die Verordnung ist seit dem 15. Juli 2008 in Kraft und besaß somit parallel zu den Durchführungsverordnungen Nr. 297/2011, Nr. 351/2011 und Nr. 284/2012, die den Import von Lebensmitteln aus Japan nach dem Unfall von Fukushima regulierten, Gültigkeit. In der „Tschernobyl-Verordnung“ (EG) Nr. 733/2008 ist ein Grenzwert für Radiocäsium von 370 Bq kg^{-1} für Milch und Milcherzeugnisse bzw. 600 Bq kg^{-1} für alle anderen betroffenen landwirtschaftlichen Erzeugnisse festgelegt (CEU 2008, Merz et al. 2013 D1). Ein Vergleich dieser Grenzwerte mit Tabelle 2 zeigt, dass die europäischen Grenzwerte für japanische Importe zu keinem Zeitpunkt in eindeutiger Übereinstimmung mit jenen der „Tschernobyl-Verordnung“ standen. In der erstgültigen Version der Festlegung der Höchstwerte vom 25. März 2011 waren bedeutend höhere Grenzwerte für Radiocäsium erlaubt. Danach wurden die Grenzwerte für japanische Nahrungsmittelimporte in mehreren Schritten abgesenkt und definieren aktuell einen Grenzwert für Radiocäsium von 50 Bq kg^{-1} für Milcherzeugnisse bzw. 100 Bq kg^{-1} für alle anderen Lebensmittel. Lebensmittelimporte aus von Tschernobyl betroffenen Drittländern könnten somit eine Importfreigabe erhalten, während sie im Sinne der Durchführungsverordnung für Importe aus Japan die gesetzlichen Grenzwerte bereits mehrfach überschritten hätten (EC 2012, Merz et al. 2013 D1).

Im Zuge der Übernahme der japanischen Grenzwerte in die europäische Durchführungsverordnung (EU) Nr. 351/2011 der Kommission vom 11. April 2011 ergaben sich Unstimmigkeiten bei den höchstzulässigen Aktivitätskonzentrationen für Radiocäsium und Radiostrontium. Während die japanischen Grenzwerte ein konstantes Auftreten von Radiostrontium, in Korrelation zu der Konzentration von Radiocäsium, annehmen, wurde diese Koexistenz bei der Adaptierung der europäischen Grenzwerte nicht berücksichtigt (Hamada & Ogino 2012, Steinhauser et al. 2013c). Somit waren von 1. April 2011 bis 1. April 2012 für ^{90}Sr in Lebensmitteln höhere Aktivitätskonzentration zulässig als z.B. für ^{137}Cs (EC 2011b, EC 2011c). Dabei weisen ^{90}Sr mit 28,6 Jahren und ^{137}Cs mit 30,1 Jahren vergleichbar lange physikalische Halbwertszeiten auf, während ^{90}Sr , welches sich in den menschlichen Knochen einlagert, mit etwa 18 Jahren eine bedeutend längere biologische Halbwertszeit als ^{137}Cs besitzt (Glasstone & Dolan 1977, Semioshkina et al. 2007). Studien des Metabolismus von Radiocäsium ergaben, dass 10 % des Cäsium mit einer Halbwertszeit von 2 Tagen und 90 % mit einer Halbwertszeit von 110 Tagen aus dem Körper ausgeschieden werden (ICRP 1979, Rühm et al. 1999). In einem vereinfachten Ansatz wird für die Halbwertszeit von Radiocäsium im Körper einer erwachsenen Person oftmals ein Wert von 100 Tagen angenommen (Steinhauser et al. 2014). Vergleicht man die Dosiskoeffizienten für Ingestion für erwachsene Personen dieser beiden Radionuklide miteinander, ergibt sich ein weiterer Hinweis darauf, dass ^{90}Sr keineswegs als geringeres Gesundheitsrisiko wie ^{137}Cs betrachtet werden kann. ^{90}Sr hat mit $2,8 \cdot 10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ einen höheren Dosiskoeffizienten als

^{137}Cs mit $1,3 \cdot 10^{-8} \text{ Sv Bq}^{-1}$ und führt somit bei gleicher aufgenommener Aktivität zu einer höheren effektiven Dosis für den menschlichen Organismus (ICRP 1995, BGBl.II 2006d).

Daneben gibt es weitere deutliche Anzeichen dafür, dass die für die gesetzlichen Regulatorien aktuell gültige, konstante Korrelation von ^{90}Sr mit ^{137}Cs weiteren fehlerhaften Annahmen unterliegt und die tatsächlichen Ausmaße des ^{90}Sr -Vorkommens nicht adäquat berücksichtigt. Die nach dem Reaktorunfall von Fukushima in Japan gültigen Aktivitätsgrenzwerte für Radionuklide in Lebensmitteln gingen zunächst von einem $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 10 % aus. Mit dem 1. April 2012 wurden sowohl die zulässigen Grenzwerte der Radionuklidaktivitätskonzentrationen herabgesetzt, als auch die Annahme bezüglich des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis auf ein konstantes Verhältnis von 0,3 %, welches für die Radionuklidfreisetzungen von Fukushima als charakteristisch gilt, angepasst (Hamada & Ogino 2012, Steinhauser et al. 2013c, Merz et al. 2015 D2, MHLW 2015b). Wie in Kapitel 1.3.1.3. – „Analyse des Aktivitätsverhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs “ anhand der Analyse der Messung der Hintergrundaktivität von ^{90}Sr und ^{137}Cs in Lebensmittelproben gezeigt werden konnte, ist die Annahme eines konstanten $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis höchstwahrscheinlich nicht haltbar. Ausgehend von einem niedrigen $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis, welches sich nur in der Anfangsphase der Probenahme als gültig erwies, konnte ein starker Anstieg bis zu einem Verhältniswert größer 8 und einzelne Messungen mit einem Verhältnis bis zu 10 beobachtet werden. Die Auswirkungen der Annahme eines falschen $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis in Lebensmitteln auf die Folgedosis, in der vorliegenden Arbeit berechnet nach Gleichung 3 für die Konsumation durch eine erwachsene Person über die Dauer eines Jahres, sind in Abbildung 21 veranschaulicht (Merz et al. 2015 D2).

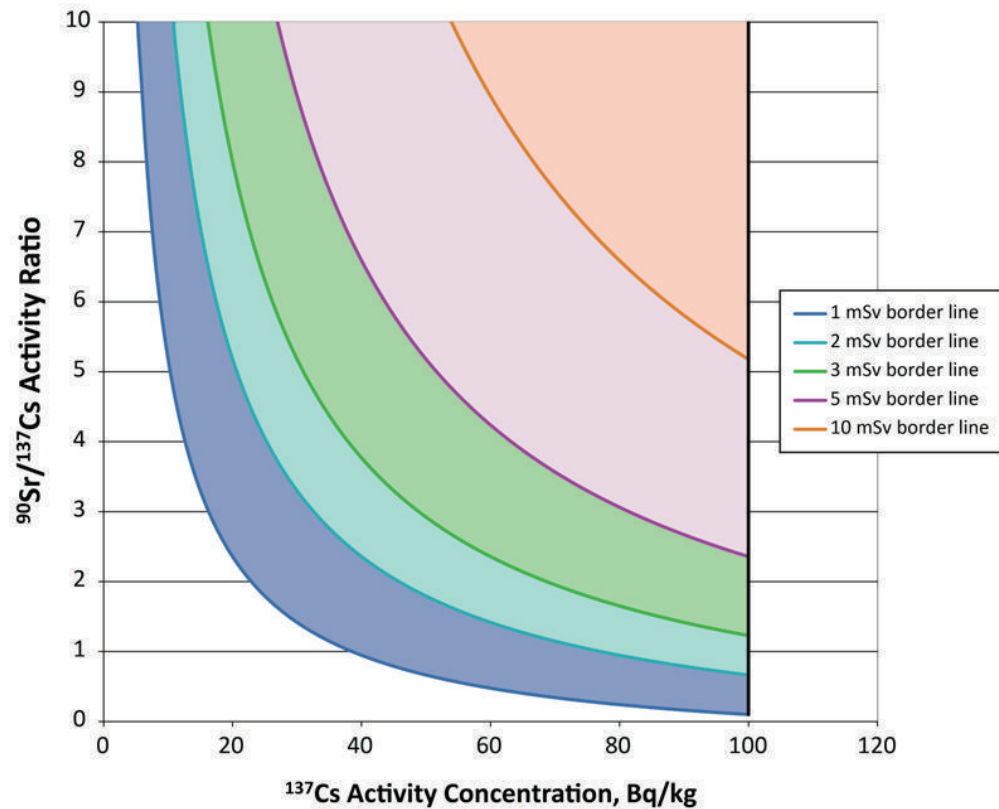


Abb. 21 Auswirkung der Änderung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses bei einer gegebenen ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in Lebensmitteln unter der Annahme der Konsumation der kontaminierten Nahrungsmittel über den Zeitraum eines Jahres. Die farbigen Flächen repräsentieren die „Blinden Bereiche“, die trotz einer höheren Folgedosis aufgrund der betrachteten Kombination der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration, durch die derzeit gültigen Regulatorien nicht berücksichtigt werden. Aus: [Merz et al. \(2015\) D2](#). This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

Der Zusammenhang zwischen einer gegebenen ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration, der Annahme eines Anstiegs des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis und der dadurch hervorgerufenen Erhöhung der von einer Person erhaltenen Folgedosis, ist in Abbildung 21 quantitativ dargestellt. Für die in dieser Arbeit durchgeführte Berechnung der Folgedosis nach Gleichung 3 wurde die Aufnahme von konstant kontaminierten Lebensmitteln über die Dauer eines Jahres vorausgesetzt. In Übereinstimmung mit dem National Nutrition Survey of Japan (NNSJ) wurde eine tägliche Konsumation von 1,7 kg fester Nahrung für einen Erwachsenen angenommen ([Kasuga et al. 2013](#), [Kobayashi et al. 2013](#), [Merz et al. 2015 D2](#)). Eine weitere Annahme im Zuge der Berechnungen setzt voraus, dass das kurzlebige Radionuklid ^{134}Cs keinen Beitrag zur Folgedosis leistet, da ein Anstieg des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis erst nach einigen Jahren kritische Auswirkungen hervorruft. Unter diesen Voraussetzungen führt der Verzehr von Lebensmitteln, die eine Aktivitätskonzentration von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^{137}Cs und $10 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^{90}Sr aufweisen, über die Dauer eines Jahres hinweg zu einer Folgedosis von 1 mSv für den menschlichen Organismus einer erwachsenen Person. Die Korrelation der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in einem Verhältnis von 0,1 entspricht dem maximalen

$^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis, das in Zusammenhang mit den gesetzlichen Regulatorien Gültigkeit besaß (Merz et al. 2015 D2). Die in Kapitel 1.3.1.3. – „Analyse des Aktivitätsverhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs “ in Zusammenhang mit Abbildung 13 durchgeführte Analyse der Lebensmittelproben, die von 1987 bis 2004 von der Nuclear Regulation Authority in Japan gesammelt wurden, führte für den Großteil der Proben auf ein $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis größer 2 (NRA 2004, Merz et al. 2015 D2). Nimmt man in diesem Sinne für die Lebensmittel, die über ein Jahr hinweg konsumiert werden, ein $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 2 an, so führt bereits eine ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration von $23 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ zu einer Folgedosis von 1 mSv. Eine ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration von $46 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ in den Nahrungsmitteln, was einem Wert unterhalb der Hälfte des derzeit gültigen Aktivitätsgrenzwertes für ^{137}Cs entspricht, zieht für dieses $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis eine Folgedosis von 2 mSv nach sich. Dies entspricht einer doppelt so hohen Folgedosis wie für die ursprünglich getroffene Annahme einer ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in der Höhe des Aktivitätsgrenzwertes von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ und einem $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 0,1 (Merz et al. 2015 D2). In diesem Sinne weisen die farbig gekennzeichneten Flächen die „blinden Bereiche“ der gesetzlich gültigen Regulatorien aus. Lebensmittel, die eine ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration größer $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ aufweisen, sind mit Hinblick auf den derzeit gültigen Aktivitätsgrenzwert grundsätzlich nicht für den Verzehr geeignet. Für die Kombinationen einer ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration kleiner $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ und eines $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses, die einem weißen Bereichen zuzuordnen ist, ergibt sich eine Folgedosis kleiner 1 mSv. Diese ist somit niedriger als für die Annahme einer ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in der Höhe des Aktivitätsgrenzwertes von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ und einem $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 0,1. Im Gegensatz dazu führt jede Kombination aus ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration und $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis, die in einen farbig gekennzeichneten „blinden Bereich“ fällt, auf eine Folgedosis größer als 1 mSv. Die farbigen Grenzlinien und die zugehörigen Bereiche geben den entsprechenden Dosiswert an. Die Nahrungsmittel, welche die entsprechenden ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen aufweisen, sind somit im Sinne des aktuell gültigen ^{137}Cs -Aktivitätsgrenzwertes von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ für den Verzehr freigegeben, obwohl ihr Konsum möglicherweise gesundheitsschädigend ist. Die hier analysierten Zusammenhänge und die in Kapitel 1.3.1.3. – „Analyse des Aktivitätsverhältnis von ^{90}Sr zu ^{137}Cs “ identifizierte zeitliche Entwicklung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnisses verlangen danach, einen neuen Zugang für die Berücksichtigung der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration in Lebensmitteln zu evaluieren. Die Anpassung des $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis von 10 % auf 0,3 % mit 1. April 2012 stellt im Sinne der Lebensmittelsicherheit demnach eine Änderung in die falsche Richtung dar (Merz et al. 2015 D2).

Die Betrachtung der Durchführungsverordnungen (EU) Nr. 284/2012 und Nr. 322/2014 der Kommission liefert einen weiteren Hinweis darauf, dass auch im Zuge etwaiger

künftiger radioaktiver Freisetzungen Uneinigkeit bezüglich der anzuwendenden Grenzwerte für Radionuklide in Lebensmittel bestehen wird. In der aktuell gültigen Durchführungsverordnung sind keine Grenzwerte für Radioiod oder andere kurzlebige Radionuklide festgelegt (EC 2014). In diesem Sinne müssten, analog zu der Reaktivierung der nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl festgelegten Grenzwerte mittels der Durchführungsverordnung (EU) Nr. 297/2011 der Kommission vom 25. März 2011, ebenfalls alte Radioiodgrenzwerte wiedereingesetzt werden (Merz et al. 2013 D1). Ein weiteres Anzeichen dafür, dass die seit 1. April 2014 gültigen gesetzlichen Grenzwerte im Zuge eines akuten nuklearen Notfalls keine Anwendung finden würden, sind die für die Durchführungsverordnungen (EU) Nr. 322/2014 der Kommission angewandten Übergangsmaßnahmen. Für Milch, Molkereierzeugnisse, Mineralwasser und ähnliche Getränke die vor dem 31. März 2012 hergestellt wurden, gilt für Radiocäsium ein Aktivitätsgrenzwert von $200 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Für aus Reis gewonnene Erzeugnisse gilt vor dem Stichtag des 30. September 2012 ein Grenzwert von $500 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ für Radiocäsium. Für Sojabohnen und aus Sojabohnen gewonnene Erzeugnisse gilt der Stichtag des 31. Dezember 2012 und ebenfalls ein Grenzwert von $500 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ (EC 2014). Ein Vergleich mit Tabelle 2 zeigt, dass die Grenzwerte dieser Übergangsbestimmungen vier bzw. fünfmal höher sind als die für Radiocäsium aktuell gültigen höchstzulässigen Aktivitätskonzentrationen für Lebensmittelimporte aus Japan.

1.4.1.2. Aktivitätsgrenzwerte für die Kontamination von Bodenaushub und Nutzmaterialeien

Für die strahlenschutztechnische Einordnung von Bodenkontaminationen bzw. der Kontamination von Nutzmaterialeien in Österreich sind in Anlage 1 der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung Grenzwerte für die Aktivität bzw. Aktivitätskonzentration von verschiedenen Radionukliden in einer Probe tabelliert. Für einen Stoff, dessen Kontamination nur durch ein einzelnes Radionuklid bedingt ist, darf die gemessene Aktivität bzw. Aktivitätskonzentration den angegebenen Grenzwert nicht überschreiten. Es gilt nach Anlage 1 der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung

$$\frac{\text{Aktivität}}{\text{Grenzwert}} \leq 1. \quad (\text{Gl. 4})$$

Für ein Material, welches mehr als nur ein Radionuklid beinhaltet, muß die Summe all dieser Quotienten kleiner Eins sein. Es gilt

$$\sum_i \frac{\text{Aktivität}_i}{\text{Grenzwert}_i} \leq 1. \quad (\text{Gl. 5})$$

„i“ bezeichnet dabei eines der in der Probe auftretenden und das jeweils betrachtete Radionuklid (BGBI.II 2006b, Merz et al. 2011). In Tabelle 1 der Anlage 1 der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung werden unter Berücksichtigung des zukünftigen Verwendungszwecks Grenzwerte für uneingeschränkte bzw. eingeschränkte Freigaben von Materialien unterschieden (BGBI.II 2006b). Tabelle 3 stellt einen Auszug aus Tabelle 1 der Anlage 1 der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung dar und beinhaltet eine Auswahl an Radionukliden, die während des Reaktorbetriebs als Spaltprodukte oder Aktivierungsprodukte auftreten und im Zuge des Reaktorunfalls von Fukushima in die Umwelt freigesetzt wurden (Steinhauser 2014).

Tab. 3 Auszug aus „Anlage 1 Tabelle 1 Freigrenzen, hoch radioaktive Quellen, Oberflächenkontamination, Freigabewerte“ der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung. Auswahl an Radionukliden, die im Zuge des Reaktorunfalls von Fukushima freigesetzt wurden (BGBI.II 2006b, Steinhauser 2014).

1	2	3	6	7	10	13
Radio-nuklid	Freigrenze		Uneingeschränkte Freigabe von		Eingeschränkte Freigabe von	Halb-werts-zeit
	Aktivität in Bq	Spezifische Aktivität in Bq/g	festen Stoffen, Flüssigkeiten mit Ausn. von Sp. 7 in Bq/g	Bauschutt, Bodenaushub von mehr als 1000 t/a in Bq/g	festen Stoffen zur Entsorgung mit Ausn. von Sp. 7 in Bq/g	
Kr-85 ¹	1E+10	1E+3				4,5 h
Sr-89	1E+6	1E+3	2E+1	2E+1	1E+3	50,5 d
Sr-90 ¹	1E+4	1E+2	2	2	2	28,5 a
Te-132 ¹	1E+7	1E+2	1E+2	9E-2	1E+2	76,3 h
I-131 ¹	1E+6	1E+2	2	6E-1	20	8,0 d
I-132 ¹	1E+5	1E+1	1E+1	1E-1	1E+1	2,3 h
I-133	1E+6	1E+1		4E-1		20,8 h
Xe-131m	1E+4	1E+4				11,9 d
Xe-133	1E+4	1E+3				5,3 d
Xe-133m	1E+4	1E+3				2,2 d
Xe-135	1E+10	1E+3				9,1 h
Cs-134 ¹	1E+4	1E+1	2E-1	1E-1	6	2,1 a
Cs-137 ¹	1E+4	1E+1	5E-1	4E-1	10	30,2 a
Ba-140+ ¹	1E+5	1E+1	2	8E-2	3	12,8 d
La-140 ¹	1E+5	1E+1	1E+1	1E-1	1E+1	40,3 h
Np-239 ¹	1E+7	1E+2	1E+2	2	1E+2	2,4 d
Pu-238	1E+4	1	4E-2	8E-2	1	87,7 a
Pu-239 ¹	1E+4	1	4E-2	8E-2	1	2,4E+4 a
Pu-240 ¹	1E+3	1	4E-2	8E-2	1	6,6E+3 a
Pu-241	1E+5	1E+2	2	2	1E+2	14,4 a

¹ Die gekennzeichneten Radionuklide konnten in Bodenproben aus der Präfektur Fukushima und vom Reaktorgelände des Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi nachgewiesen werden (Shozugawa et al. 2012, Schneider et al. 2013, Steinhauser et al. 2013c).

² Soweit in „Anlage 1 Tabelle 1 Freigrenzen, hoch radioaktive Quellen, Oberflächenkontamination, Freigabewerte“ Spalte 6 bis 12 für Radionuklide keine Freigabewerte angegeben sind, sind diese im Einzelfall zu berechnen. Bei Radionukliden, deren Halbwertszeit kleiner als 7 Tage ist, oder bei kleinen Massen können die entsprechenden Freigrenzen der Tabelle 1 Spalte 3 als Freigabewerte der Spalten 6 oder 10 zugrunde gelegt werden (BGBI.II 2006b).

Das betrachtete Radionuklid ist in Spalte 1 angegeben. Spalte 2 und 3 definieren eine Freigrenze unterhalb dieser der Umgang mit radioaktiven Stoffen von der Bewilligungspflicht gemäß § 7 oder 10 StrSchG ausgenommen ist. In Spalte 6 sind jene Grenzwerte angegeben, bis zu denen ein Material ohne Auflagen zur weiteren Verwendung freigegeben werden kann. Spalte 7 definiert eine Ausnahme von Spalte 6. Liegt der Aktivitätswert eines Stoffes zwischen den in Spalte 6 und 10 definierten Grenzen, wird das Material als inaktiver Abfall eingeordnet. Überschreiten die gemessenen Aktivitätskonzentrationen die angegebenen Höchstwerte in Spalte 10, muss das Material als radioaktiver Abfall betrachtet werden. Die hier nicht angeführten Spalten 8, 9, 11 und 12 definieren Höchstwerte für Bodenflächen, Gebäude und Metallschrott ([BGBl.II 2006a](#), [BGBl.II 2006b](#)).

1.4.1.3. Dosisgrenzwerte für Einzelpersonen der Bevölkerung

Unabhängig davon ob die Strahlenbelastung durch Ingestion, Inhalation oder externer Bestrahlung hervorgerufen wird, muss für eine Einzelperson der Bevölkerung eine zusätzliche jährliche Strahlendosis von 1 mSv nicht als gesundheitsgefährdend eingestuft werden. Beruflich strahlenexponierte Personen werden nach § 11 der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung in zwei Kategorien eingeteilt. Besteht die Möglichkeit, dass eine Person aufgrund ihrer beruflichen Tätigkeit in 12 aufeinanderfolgenden Monaten einer gesamten effektiven Dosis von über 1 mSv ausgesetzt ist, gilt sie als strahlenexponiert nach Kategorie B. Kann im Zuge der Berufsausübung ein Wert von 6 mSv überschritten werden, so handelt es sich um eine strahlenexponierte Person der Kategorie A. Nach § 25 muss die Strahlenbelastung für beruflich strahlenexponierte Personen durch eine geeignete Nutzung von Personendosimetern überwacht werden. Die höchstzulässige Dosis für beruflich strahlenexponierte Personen ist in § 12 mit 20 mSv festgelegt. Dies gilt sowohl für Personen der Kategorie A als auch für jene, die der Kategorie B zuzuordnen sind. Zusätzlich ist in begründeten Ausnahmefällen bei beruflich strahlenexponierten Personen der Kategorie A in einzelnen Jahren eine effektive Dosis von 50 Millisievert zulässig, sofern in 60 aufeinanderfolgenden Monaten eine effektive Dosis von insgesamt 100 Millisievert nicht überschritten wird ([BGBl.II 2006a](#)).

1.4.2. Dosisaspekte und gesundheitliche Auswirkungen

Die in Kapitel 1.4.1. – „Gesetzliche Regulatorien“ diskutierten gesetzlichen Regulatorien sollen die Dosis für Personen der Bevölkerung, die durch externe und auch interne Strahlenbelastung hervorgerufen wird, auf einen gesundheitlich vertretbaren Rahmen

beschränken. Unter Zuhilfenahme der Dosiskoeffizienten und mittels Gleichung 3 lässt sich für die Aufnahmepfade der Ingestion und Inhalation, ausgehend von einer gegebenen Aktivität, eine Dosisberechnung durchführen (ICRP 1995, BGBl.II 2006d). Das zu Beginn von Kapitel 1.4. – „Rechtliche und gesundheitliche Aspekte der Strahlenbelastung“ in dieser Arbeit vorgestellte Konzept der jährlichen Tageskonsumation, ermöglicht das Ableiten eines Aufnahmeszenarios, welches zusätzliche Informationen für das Verständnis der bestehenden Gesundheitsgefährdung liefert (Merz et al. 2013 D1).

1.4.2.1. Dosisberechnungen und Aufnahmeszenarien

1.4.2.1.1. Japanische Lebensmittelproben

Im Zuge der vorliegenden Arbeit wurden 18 Lebensmittelproben aus Japan an das Atominstitut der TU Wien geschickt, um sie unabhängig von der in Japan stattfindenden Lebensmittelüberwachung auf ihre Radionuklidkonzentration zu untersuchen. Die Proben wurden von Privatpersonen in der Zeit vom 30.März bis 15.September 2011 auf reguläre Weise bei lokalen Nahversorgern oder Märkten erworben und können als repräsentativ für die japanische Küche betrachtet werden. Darunter waren Pflaumen und Reis aus Fukushima, Chingensai (Senfkohl), Tomaten und Milch aus Ibaraki oder auch Weißkohl und Onigiri (japanische Reisbällchen) aus der Präfektur Kanagawa. Die stärkste Kontamination wiesen dabei mit einer spezifischen Aktivität von $68 \pm 3,3 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ die aus Fukushima stammenden Pflaumen auf (Merz et al. 2013 D1). In der nachstehenden Tabelle 4 sind die detaillierten Ergebnisse der Analyse der 18 japanischen Lebensmittelproben angeführt.

Tab. 4 Ergebnisse der Radioaktivitätsanalyse von 18 japanischen Lebensmittelproben; Angaben zu Aktivitätskonzentration, spezifischer effektiver Dosis und jährlicher Tageskonsumation, die zu einer Jahresdosis von 1 mSv führt. Die Angaben wurden auf das jeweilige Datum des Erwerbs abklingskorrigiert. Aus: [Merz et al. \(2013\) D1](#). Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

Sample description	Prefecture	Approximate distance to reactor (km)	Date of purchase	Activity concentration						Specific dose sum of listed radionuclides (mSv/kg)	Annual daily consumption leading to a dose of 1 mSv (kg)
				I-131 (Bq/kg) ±		Cs-134 (Bq/kg) ±		Cs-137 (Bq/kg) ±			
Plums	north Fukushima	80	15.06.2011	n.d.		32	1.7	36	1.6	1.1E-03	2.6
Rice	north Fukushima	80	15.09.2011	n.d.		2.3	0.26	3.6	0.27	9.1E-05	30
Chingensai	Ibaraki	130	21.05.2011	n.d.		5.2	0.29	5.7	0.25	1.7E-04	16
Shungiku	Ibaraki	130	21.05.2011	n.d.		4.2	0.23	4.1	0.20	1.3E-04	21
Tomatoes	Ibaraki	130	21.05.2011	n.d.		1.4	0.10	1.3	0.079	4.2E-05	65
Green Pepper	Ibaraki	130	21.05.2011	n.d.		0.28	0.016	0.29	0.015	9.2E-06	300
Milk	Ibaraki	130	21.05.2011	n.d.		0.14	0.011	0.22	0.012	5.6E-06	490
Strawberries	Tochigi	140	21.05.2011	n.d.		3.4	0.099	4.1	0.095	1.2E-04	23
Leeks	Gunma/Chiba	210	21.05.2011	n.d.		1.1	0.031	1.2	0.030	3.7E-05	75
Spinach	Saitama	210	21.05.2011	n.d.		2.9	0.15	3.5	0.15	1.0E-04	27
Mizuna	Saitama	210	21.05.2011	n.d.		0.54	0.059	0.54	0.050	1.7E-05	160
Salad	Chiba	220	21.05.2011	n.d.		2.2	0.072	2.6	0.065	7.4E-05	37
Carrots	Chiba	220	21.05.2011	n.d.		1.5	0.050	1.7	0.049	5.1E-05	54
Tap water 1	Tokyo	230	30.03.2011	6.3	0.13	0.29	0.035	0.31	0.038	1.5E-04	18
Tap water 2	Tokyo	230	06.04.2011	1.9	0.14	< 0.12		0.36	0.056	< 4.9E-05	> 56
Tap water 3	Tokyo	230	24.04.2011	0.51	0.031	0.11	0.015	0.14	0.017	1.5E-05	180
Cabbage	Kanagawa	250	21.05.2011	n.d.		2.0	0.087	2.0	0.094	6.5E-05	42
Onigiri	Kanagawa	250	21.05.2011	< 0.34		< 0.11		< 0.12		< 1.1E-05	> 250

Ein Vergleich mit Tabelle 2 zeigt, dass die spezifische Aktivität der Pflaumen keine der angegebenen Grenzwerte für Radiocäsium, die seit dem Unfall von Fukushima gültig waren, überschritten hätte. Die hier durchgeführte Berechnung der jährlichen Tageskonsumation ergibt einen Wert von 2,6 kg. Das bedeutet, dass man über die Dauer eines Jahres täglich eine Menge von 2,6 kg dieser Pflaumen zu sich nehmen könnte, ohne den für eine Einzelperson der Bevölkerung akzeptierten Dosisgrenzwert von 1 mSv zu überschreiten. Für die weiteren 17 Lebensmittelproben, in denen im Vergleich zu den Pflaumen geringere spezifische Aktivitäten gemessen wurden, liefert die Berechnung folglich noch höhere Werte der jährlichen Tageskonsumation (Merz et al. 2013 D1). Unter den Nahrungsmittelproben befand sich auch eine Reisprobe aus Fukushima mit einer spezifische Aktivitätskonzentration von ^{134}Cs und ^{137}Cs von $5,9 \pm 0,53 \text{ Bq kg}^{-1}$. Diese Radiocäsiumkontamination ist gleichbedeutend mit einer jährlichen Tageskonsumation von 30 kg. Die Radionuklidkontamination dieser Reisprobe kann aus gesundheitlicher Sicht als unbedenklich eingestuft werden. Ein Vergleich mit Daten, die die Aktivitätskonzentration von Radiocäsium in Reis aus Fukushima vor dem Reaktorunfall dokumentieren, zeigt allerdings, dass die Radiocäsiumkonzentration der vorliegenden Lebensmittelprobe ungefähr 100 Mal höher ist als in den Reisproben, die vor dem Nuklearunfall genommen wurden (Smolders & Tsukada 2011, Merz et al. 2013 D1). Die bereits vor dem Reaktorunfall von Fukushima messbaren ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen stammen vorrangig von den atmosphärischen Kernwaffentests in den 1950er und 1960er Jahren (Kumamoto et al. 2015). Der Reis und die Pflaumen aus Fukushima sowie die weiteren 16 Lebensmittelproben, die unabhängig von der durch die japanischen Präfekturen durchgeführten Lebensmittelüberwachung erworben und untersucht wurden, können nur als einzelne Stichproben der Marktsituation betrachtet werden. Von dem Probensatz kann nicht pauschal abgeleitet werden, dass der japanische Markt im Sinne der gesetzlich gültigen Regulatorien nach dem Unfall von Fukushima immer frei von kontaminierten Lebensmitteln war und ist. Die spezifischen Aktivitäten der Proben, die in keinem Fall die gesetzlichen Grenzwerte überschritten, können als Hinweis auf die Wirksamkeit der Maßnahmen der Regierung zum Schutz der Bevölkerung gewertet werden.

Die Lebensmittelüberwachung der japanischen Präfekturen konnte verhindern, dass Lebensmittel mit Aktivitätskonzentrationen sowohl für ^{131}I als auch für ^{134}Cs bzw. ^{137}Cs von mehreren 10000 Bq kg^{-1} in den Handel gelangten. Die höchste Aktivitätskonzentration von ^{131}I , die im Zeitraum vom 15. März 2011 bis 30. März 2012 bei den Lebensmitteluntersuchungen gemessen wurde, betrug 54000 Bq kg^{-1} . Es handelte sich dabei um Spinat aus der Präfektur Ibaraki, der am 18. März 2011 untersucht wurde. Die höchste ^{134}Cs - bzw. ^{137}Cs -Kontamination wies mit jeweils 41000 Bq kg^{-1} im gleichen betrachteten Zeitraum eine Probe der Kohllart Kukitachina aus der Präfektur Fukushima am 21. März 2011 auf (Hamada & Ogino 2012, MHLW 2014a, U. S. Embassy 2014). Die

^{131}I -Kontamination des Spinats hätte bei einer einmaligen Aufnahme und einer Portionsgröße von 300 g bereits zu einer Folgedosis von 0,36 mSv geführt. Für den Kunitachina und die ^{134}Cs - und ^{137}Cs -Kontamination ergibt eine analoge Rechnung eine Folgedosis von 0,39 mSv. Auch bei geringeren Portionsgrößen würde eine Person bereits nach wenigen wiederholten Aufnahmen den gesetzlich akzeptierten Grenzwert von 1 mSv überschreiten.

1.4.2.1.2. Gesetzliche Aktivitätsgrenzwerte in Nahrungsmitteln

Im Sinne der bisherigen Betrachtungen von gemessenen Aktivitätskonzentrationen und den entsprechenden Zusammenhängen mit Folgedosis und jährlicher Tageskonsumation lassen sich auch die gesetzlich festgelegten Aktivitätsgrenzwerte veranschaulichen. Seit 1. April 2012 gilt in Europa für aus Japan importierte Lebensmittel ein Grenzwert von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ für ^{134}Cs und ^{137}Cs (EC 2012). Eine spezifische Aktivität von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ bei gleichen Verhältnissen von ^{134}Cs und ^{137}Cs ergibt eine jährliche Tageskonsumation von 1,7 kg für das bzw. die betrachteten Nahrungsmittel. Für eine erwachsene Person kann man davon ausgehen, dass sie täglich etwa 1,5 bis 1,7 kg Nahrung zu sich nimmt (Cuellar & Webber 2010, Kasuga et al. 2013). Der aktuell gültige Grenzwert von $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ für die Radiocäsiumkonzentration in Lebensmitteln nimmt somit an, dass 100 % der in einem Jahr aufgenommenen Nahrung auf dem Niveau des Grenzwertes kontaminiert sein könnten. Durch die direkte Anpassung der europäischen Durchführungsverordnung für die Einfuhr von Lebensmitteln aus Japan an die japanischen Aktivitätsgrenzwerte, verfolgen die europäischen Bestimmungen tatsächlich den Ansatz, dass die von einer Person in Europa zu sich genommenen Nahrungsmittel ebenfalls zu 100 % kontaminiert und gleichzeitig aus Japan stammen könnten (Merz et al. 2013 D1). Die nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl in Europa festgelegten Aktivitätsgrenzwerte gingen davon aus, dass nur 10 % der konsumierten Nahrungsmittel aus den durch den Reaktorunfall betroffenen Drittländern stammen und eine Kontamination in der Höhe der Grenzwerte aufweisen würden (Ditto 2012). Mit dem Ansatz, dass 100 % der Lebensmittel über ein Jahr hinweg auf konstantem Niveau kontaminiert sein könnten, werden der physikalische Zerfall von Radionukliden, die effektive ökologische Halbwertszeit in der Umwelt und auch mögliche Maßnahmen der Regierung zum Schutz der Bevölkerung nicht berücksichtigt (Merz et al. 2013 D1).

Im Falle eines zukünftigen nuklearen Unfalls ist es sehr wahrscheinlich, dass zunächst bereits bestehende Regulatorien auf das neue Bedrohungsszenario angewendet werden. Dies entspricht einer analogen Vorgehensweise zu den Abläufen in Europa, wo nach dem Reaktorunfall von Fukushima zunächst jene Grenzwerte eingesetzt wurden, die im Zusammenhang mit dem Reaktorunfall von Tschernobyl festgelegt wurden. Sollten im

Falle einer neuerlichen Notsituation die aktuell in Japan bzw. in Europa für japanische Lebensmittelimporte gültigen Ansätze der Regulatorien und die stark herabgesetzten Grenzwerte implementiert werden, könnte dies die Regierung der betroffenen Bevölkerung vor die Wahl zwischen zwei nicht zufriedenstellender Maßnahmen stellen. Um die Nahrungsmittelversorgung der Bevölkerung sicherzustellen, könnte es vor allem in der ersten Phase nach Eintreten der Notsituation notwendig werden, die festgelegten Grenzwerte wieder anzuheben. Neben dieser unpopulären Maßnahme hätte die betroffene Regierung nur die Möglichkeit an den strengen Aktivitätsgrenzwerten festzuhalten und die Versorgung der Bevölkerung mit ausreichend Lebensmitteln zu gefährden (Merz et al. 2013 D1).

1.4.2.1.3. Pilze aus Österreich und Europa

In Österreich und Europa weisen seit dem Reaktorunfall von Tschernobyl Nahrungsmittel wie Beeren und Pilze nach wie vor häufig erhöhte Radiocäsiumkonzentrationen auf. Neben ihrer grundsätzlichen Eigenschaft, Schwermetalle wie Cäsium zu akkumulieren, findet zusätzlich durch den dichten Baumstand, der die Radionuklide verstärkt aus der Luft filtert und den hohen Anteil an organischem Material im Boden eine erhöhte Anreicherung an Radionukliden in Flechten, Moosen und Pilzen statt (OECD & NEA 2003). In diesem Sinne schienen Eierschwammerl dazu geeignet, um einerseits die Deposition von aus Fukushima stammendem Radiocäsium nachzuweisen und andererseits die gemessenen Aktivitätskonzentrationen im Zusammenhang der Nahrungsmittelüberwachung zu betrachten.

Zu diesem Zweck wurden im Zuge der vorliegenden Arbeit kommerziell erhältliche Eierschwammerl gammaspektrometrisch untersucht. Im September 2011 wurden Eierschwammerl aus Litauen erworben und im Oktober 2011 konnten Eierschwammerl aus Niederösterreich gekauft werden. Die aus Litauen stammenden Eierschwammerln wiesen eine spezifische Aktivität von $211 \pm 0,3 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ von ^{137}Cs auf. Dies ist gleichbedeutend mit einer jährlichen Tageskonsumation von 1,0 kg. Für die niederösterreichischen Eierschwammerln wurde eine Aktivitätskonzentration von ^{137}Cs von $138 \pm 0,9 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ festgestellt. Die Berechnung der entsprechenden jährlichen Tageskonsumation ergibt eine Menge von 1,5 kg. In keiner der beiden Proben konnte ^{134}Cs nachgewiesen werden. Das bedeutet, dass die festgestellte Kontamination nicht durch eine Deposition von Radionukliden, die aus Fukushima stammen, bedingt ist, sondern größtenteils auf den Reaktorunfall von Tschernobyl zurückgeführt werden kann. Ein Vergleich mit den Aktivitätsgrenzwerten für die Einfuhr von Nahrungsmitteln aus Drittländern, die von dem Unfall in Tschernobyl betroffen waren, zeigt, dass die Aktivitätskonzentration der Eierschwammerln mit 211 bzw. 138 $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ an ^{137}Cs den festgelegten Grenzwert von

600 Bq·kg⁻¹ nicht überschritten. Eine widersprüchliche Situation ergibt sich bei dem Vergleich der Aktivitätskonzentrationen mit den Bestimmungen, die für die Einfuhr von Lebensmitteln aus Japan gelten. Sowohl die aus Litauen stammenden als auch die niederösterreichischen Eierschwammerln übersteigen den gesetzlich festgelegte Aktivitätsgrenzwert von 100 Bq·kg⁻¹. In diesem Sinne dürften die Eierschwammerln in Japan nicht in den Verkauf gelangen und auch die Einfuhr aus Japan nach Österreich bzw. Europa wäre nicht zulässig.

In einem Wald im Bezirk Deutschlandsberg in der Steiermark wurden von Pichl & Rabitsch (2006) im Jahr 2001 in Eierschwammerln Aktivitätskonzentrationen von ¹³⁷Cs über 1300 Bq·kg⁻¹ festgestellt. Im Zuge der entsprechenden Studie, die Radiocäsium und Kalium-40 in ausgewählten Lebensmitteln der Steiermark nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl analysierte, wurden von 1996 bis 2005 Proben von Eierschwammerln auf ihre ¹³⁷Cs-Konzentration untersucht. Mit Ausnahme der Proben des Jahres 1996 überschritten die ¹³⁷Cs-Aktivitätskonzentrationen der Eierschwammerln durchgehend einen Wert von 600 Bq·kg⁻¹ (Pichl & Rabitsch 2006). In diesem Sinne würden diese aus Österreich stammenden Produkte keine Freigabe zur Einfuhr nach Österreich bzw. Europa aus von Tschernobyl betroffenen Drittländern oder auch Japan erhalten und sollten auch nicht innerhalb der EU in den Handel gebracht werden.

1.4.2.1.4. Radionuklidkonzentration in Luft

Analog zu den bisherigen Dosisberechnungen für den Aufnahmepfad der Ingestion lässt sich mit Hilfe von Gleichung 3 die Strahlenbelastung aufgrund der Inhalation, der in Luftproben nachgewiesenen ¹³¹I-Aktivitätskonzentration, in der vorliegenden Arbeit abschätzen. Als Ausgangspunkt der Dosisabschätzung für die Inhalation von Radionukliden in Österreich dient der am 30. März im 22^{ten} Wiener Gemeindebezirk gemessene Maximalwert der ¹³¹I-Aktivitätskonzentration von 1,44±0,122 mBq·m⁻³ (Masson et al. 2011, Steinhauser et al. 2012 D4). Das betrachtete Szenario zur Berechnung der Folgedosis setzt eine konstant anhaltende Aktivitätskonzentration von ¹³¹I in Luft über ein Jahr hinweg voraus. Um jenes Volumen an Luft abzuschätzen, welches ein Erwachsener über ein Jahr hinweg ein- und ausatmet, wird das Atemzeitvolumen betrachtet. Dabei handelt es sich um die Luftmenge, die pro Zeiteinheit bei normaler Ein- und Ausatmung bewegt wird. Für das Atemminutenvolumen kann bei Ruhebedingungen von 7,5 l·min⁻¹ ausgegangen werden. Pro Minute wird dabei mit 15 Atemzügen und einem Lungenvolumen von 0,5 l gerechnet. Unter starker körperlicher Belastung kann sich das Atemminutenvolumen auf bis zu 50 l·min⁻¹ steigern (Gerrer 2014). In Abhängigkeit von der chemischen Form des Radionuklids und der Partikelgröße des Aerosols unterscheidet man bei den Dosiskoeffizienten für Inhalation

zwischen schneller, mittlerer und langsamer Clearance aus der Lunge. Die Dosiskoeffizienten sind in die Klassen F für fast, M für moderate und S für slow eingeteilt. Äquivalent zu der Clearance aus der Lunge wird auch von schneller, mittlerer und langsamer Aufnahme des Radionuklids in den Körper gesprochen. Die Dosiskoeffizienten für die Organdosis der Lunge und der effektiven Körperdosis weisen erwartungsgemäß ein sozusagen inverses Verhalten auf. Während der Dosiskoeffizient und folglich die erhaltene Lungendosis bei schneller Clearance geringer sind als bei langsamer Clearance aus der Lunge, führt eine schnelle Aufnahme des Radionuklids aus der Lunge zu einer höheren effektiven Körperdosis als bei langsamer Aufnahme (ICRP 1995, BGI.II 2006d). Für die weitere Rechnung, zur Abschätzung der Körperdosis aufgrund der Inhalation von ^{131}I , wurde der Dosiskoeffizient für Inhalation von aerosolgebundenem ^{131}I für erwachsene Einzelpersonen und mittlerer Clearance von $2,4 \cdot 10^{-9} \text{ SvBq}^{-1}$ herangezogen (ICRP 1995, BfS 2001). Bei der Annahme eines Atemminutenvolumens von $7,5 \text{ lmin}^{-1}$ unter Ruhebedingungen ergibt sich bei der Inhalation von Luftmassen mit einer ^{131}I -Aktivitätskonzentration von $1,44 \text{ mBq m}^{-3}$ über ein Jahr hinweg eine effektive Körperdosis von $13,6 \text{ nSv}$. Diese Dosis ist analog zur Ingestion formal als Folgedosis der nächsten 50 Jahren nach Inkorporation zu betrachten. Aufgrund der kurzen physikalischen Halbwertszeit von ^{131}I erhält eine Person beinahe die gesamte Dosis bereits im ersten Jahr nach der Aufnahme. Unter der Annahme einer permanenten hohen körperlichen Belastung führt die Rechnung zu einem Dosiswert von $90,8 \text{ nSv}$. Die im Raum Wien und Niederösterreich gemessenen Konzentrationen von ^{131}I in Luft müssen in diesem Sinne nicht als gesundheitsgefährdend betrachtet werden. Selbst unter der Annahme, dass die nachgewiesenen Aktivitätskonzentrationen konstant über ein Jahr hinweg vorherrschen und das Atemminutenvolumen in dem betrachteten Zeitraum dauerhaft einen maximalen Wert annimmt, liegt die zu erwartende Folgedosis vier Größenordnungen unterhalb des für eine Einzelperson der Bevölkerung akzeptierten Grenzwertes von 1 mSv .

Für die beiden betrachteten Szenarien des Ruhezustandes bzw. einer dauerhaften erhöhten körperlichen Belastung lassen sich analog die Aktivitätskonzentrationen von ^{131}I in Luft berechnen, welche innerhalb eines Jahres zu einer Körperdosis von 1 mSv führen. Unter der Annahme von Ruhebedingungen für eine Person müsste die Umgebungsluft eine ^{131}I -Konzentration von $105,7 \text{ Bq m}^{-3}$ aufweisen. Im Falle anhaltender starker körperlicher Belastung führt bereits eine ^{131}I -Konzentration von $15,9 \text{ Bq m}^{-3}$ zu einer Folgedosis von 1 mSv .

Äquivalente Berechnungen lassen sich auch für eine Kontamination der Umgebungsluft mit langlebigem ^{137}Cs durchführen. Der Dosiskoeffizient für Inhalation von aerosolgebundenem ^{137}Cs für erwachsene Einzelpersonen und mittlerer Clearance beträgt dabei $9,7 \cdot 10^{-9} \text{ SvBq}^{-1}$ (ICRP 1995). Bei körperlichen Ruhebedingungen müsste die Umgebungsluft eine ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration von $26,2 \text{ Bq m}^{-3}$ aufweisen. Bei

anhaltender starker körperlicher Belastung führt bereits eine ^{137}Cs -Konzentration von $3,9 \text{ Bq m}^{-3}$ in der Umgebungsluft innerhalb eines Jahres zu einer Körperdosis von 1 mSv.

1.4.2.2. Radionuklidkonzentrationen in österreichischen Bodenproben

Wie bereits mehrfach erwähnt, stellt die externe Strahlenbelastung vor allem im Nahbereich um den Freisetzungsort des radioaktiven Materials eine mitunter beträchtliche Gesundheitsgefährdung dar. In Abhängigkeit von Depositionsmechanismen und der lokalen Bodenbeschaffenheit können wie nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl auch in mehreren hundert Kilometern Entfernung vom Freisetzungszentrum Kontaminationen auftreten, die eine nicht vernachlässigbare externe Strahlenbelastung darstellen (OECD & NEA 2003, Montes et al. 2013). In der vorliegenden Arbeit wurden in diesem Zusammenhang österreichische Bodenproben auf Ablagerungen von Radionukliden, die mit dem Reaktorunfall von Fukushima in Verbindung gebracht werden könnten, untersucht. Um das gesundheitliche Gefahrenpotential der Bodenablagerungen einordnen zu können, wurden die gemessenen Aktivitätskonzentrationen analog zu Baustoffen oder Bodenaushub mit den in der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung tabellierten, gesetzlich festgelegten Grenzwerten verglichen (BGBl.II 2006b, Merz et al. 2011). Das Ergebnis der Analyse der in Wien genommenen Bodenproben sind zusammen mit den relevanten Grenzwerten in Tabelle 5 gelistet.

Tab. 5 Aktivitätskonzentration der in Bodenproben identifizierten Radionuklide. Die Angaben wurden auf das jeweilige Datum der Probenahme abklingkorrigiert.

Probe	Radionuklid	gemessene Aktivitätskonzentration [Bq·g ⁻¹]	±	Spalte 6 Allg.Str.Sch.V. [Bq·g ⁻¹]	Spalte 10 Allg.Str.Sch.V. [Bq·g ⁻¹]
Boden, Wien, 30.09.2011	¹³⁴ Cs	< 0,3·10 ⁻³		0,2	6
	¹³⁷ Cs	22,0·10 ⁻³	0,3·10 ⁻³	0,5	10
	⁷ Be	6,9·10 ⁻³	0,9·10 ⁻³	30	200
	²¹⁴ Pb ¹	37,3·10 ⁻³	0,5·10 ⁻³	100 ²	-
	²¹⁴ Bi ¹	35,8·10 ⁻³	0,5·10 ⁻³	10 ²	-
Boden, Wien, 01.11.2011	¹³⁴ Cs	< 0,1·10 ⁻³		0,2	6
	¹³⁷ Cs	6,6·10 ⁻³	0,1·10 ⁻³	0,5	10
	⁷ Be	4,8·10 ⁻³	0,4·10 ⁻³	30	200
	²¹⁴ Pb ¹	30,0·10 ⁻³	0,2·10 ⁻³	100 ²	-
	²¹⁴ Bi ¹	27,9·10 ⁻³	0,2·10 ⁻³	10 ²	-

¹ ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi sind Tochternuklide von ²²²Rn und entstehen im Zuge der natürlichen Zerfallsreihe von ²³⁸U. ²²²Rn wird als Zerfallsprodukt von ²²⁶Ra in der Erdkruste gebildet. In Abhängigkeit der Bodenbeschaffenheit, Wetterbedingungen und vorherrschenden Luftzirkulation unterliegt die Verdünnung bzw. Anreicherung von ²²²Rn in Luft mitunter starken Schwankungen. Messungen von ²²²Rn über Land variieren typischer Weise zwischen 1 Bq m⁻³ und 100 Bq m⁻³ (ICRP 2011).

² Die Freigabewerte für ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi in „Spalte 6 Allg.Str.Sch.V.“ wurden aus Spalte 3 „Freigrenze“ der „Anlage 1 Tabelle 1 Freigrenzen, hoch radioaktive Quellen, Oberflächenkontamination, Freigabewerte“ übernommen.

Die Aktivitätskonzentrationen der in den Bodenproben identifizierten Radionuklide müssen für eine strahlenschutztechnische Einordnung der Probe in ein Verhältnis zu den Grenzwerten der Spalte 6 bzw. 10 der Tabelle 1 aus Anlage 1 der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung gesetzt werden. Für die beiden Zerfallsprodukte ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi der ²³⁸U-Zerfallsreihe, sind in der Allgemeinen Strahlenschutzverordnung in Spalte 6 bzw. 10 keine Freigabewerte angegeben. Ist die Halbwertszeit der betrachteten Nuklide kleiner als 7 Tage, so können die entsprechenden Freigrenzen der Spalte 3 der Tabelle 1 als Freigabewerte der Spalten 6 oder 10 zugrunde gelegt werden (BGBl.II 2006b). Diese Annahme wurde hier in Tabelle 5 für ²¹⁴Pb und ²¹⁴Bi, die eine Halbwertszeit von 26,8 min bzw. 19,9 min aufweisen, getroffen. Für die vorliegenden Proben, welche mehr als nur ein Radionuklid aufweisen, gilt nach Gleichung 5, dass die Summe der Quotienten aus Aktivitätskonzentration und Freigabewert für die einzelnen Radionuklide kleiner 1 sein muss. Jene Radionuklide, deren Verhältniszahlen zusammen nur einen relativen Fehler von unter 10 % an der Gesamtsumme ausmachen, können bei der Summenbildung vernachlässigt werden (BGBl.II 2006b).

Für die vorliegenden Bodenproben wäre es also zulässig, bei der Summenbildung über die einzelnen Quotienten nur jene von ¹³⁷Cs und ²¹⁴Bi zu berücksichtigen. Die Aktivitätskonzentrationen der betrachteten Radionuklide sind im Fall der betrachteten Proben so gering, dass keiner der in Tabelle 3 angegebenen Grenzwerte überschritten wird. Auch die Summe aller Verhältniszahlen für die Betrachtung der Freigabe nach Spalte 6

bzw. 10 ist kleiner 1, weshalb die vorliegenden Bodenproben ohne Auflagen zur weiteren Verwendung freigegeben werden könnten. Von den vorliegenden Proben geht keine gesundheitliche Gefährdung aus. Analog zu den aus Österreich bzw. Litauen stammenden Eierschwammerln konnte in den Bodenproben aus Wien keine Kontamination mit ^{134}Cs nachgewiesen werden. Die ^{137}Cs -Aktivität der Proben ist hauptsächlich auf den Reaktorunfall von Tschernobyl zurückzuführen. Erwartungsgemäß konnte in den untersuchten Bodenproben kein ^{131}I nachgewiesen werden, da die Probennahme etwa ein halbes Jahr nach dem Reaktorunfall von Fukushima stattfand, wodurch jede eventuelle Belastung mit ^{131}I bereits abgeklungen war.

1.4.2.3. Indirekte gesundheitliche Belastung aufgrund der radiologischen Bedrohung

Im Sinne der Minimierung der direkten gesundheitlichen Gefährdung des Menschen durch radioaktive Stoffe sind die in diesem Kapitel betrachteten, gesetzlich festgelegten Grenzwerte für Radionuklide sehr niedrig angesetzt. Gerade nach den Reaktorunfällen von Tschernobyl und Fukushima war und ist die betroffene Bevölkerung allerdings neben der direkten Gesundheitsgefährdung durch ionisierende Strahlung einer Vielzahl von belastenden Faktoren ausgesetzt, welche auch in Zusammenhang mit der Größe der gewählten Grenzwerte stehen können. Unabhängig von der radiologischen Bedrohung stellen in Notsituationen von diesen Ausmaßen die Evakuierung der Bevölkerung aus ihrer gewohnten Umgebung, die Neuansiedelung in anderen Kulturkreisen, der Verlust des Arbeitsplatzes, die Auslösung aus bzw. der Abbruch der bestehenden sozialen Kontakte, die Störung der üblichen Lebensweise bzw. des gewohnten Alltags und der vorherrschenden Traditionen, die oftmals nur eingeschränkt mögliche humanitäre Versorgung, die Zerstörung von sozialen Gemeinschaften und der materielle und finanzielle Verlust eine enorme psychische Belastung dar (OECD & NEA 2003, Bromet 2012, UNSCEAR 2013, WHO 2013, Bromet 2014). Die Radioaktivität, als ein für den Menschen nicht sichtbarer physikalischer Effekt, führt als nicht wahrnehmbare gesundheitliche Bedrohung zu einem zusätzlichen, schwerwiegenden psychologischen Einfluss auf die Betroffenen (OECD & NEA 2003, Bromet 2012, WHO 2013). Hinzu kommen die mögliche Langzeitbedrohung durch radioaktive Teilchen und die vergleichsweise aufwändigen Schutzmaßnahmen, um sich vor einer akuten Bedrohung schützen zu können. Die außergewöhnliche Art der Gesundheitsgefährdung, die von ionisierender Strahlung ausgeht, bewirkt außerdem unter den Betroffenen und Personen, die mit Betroffenen in Kontakt kommen, sowohl durch reale als auch durch angenommene Gesundheitsrisiken eine starke soziale Stigmatisierung (Bromet 2012, UNSCEAR 2013, WHO 2013).

Im Zusammenhang mit Strahlenschutzkonzepten werden von der Bevölkerung intuitiv immer niedrigere Radioaktivitätsgrenzwerte gefordert. Dabei ist das Verständnis für die angewandten Konzepte oftmals nicht vollständig gegeben und die tatsächliche physikalische Sinnhaftigkeit und Realisierbarkeit einer „zero level“ Forderung von geringer Bedeutung (Paschoa 1998, WHO 2013). Die involvierten Experten sind gleichzeitig oftmals nicht in der Lage, die Bedrohungen, Maßnahmen, Aufgaben und deren Zusammenhänge auf verständliche Weise darzustellen (OECD & NEA 2003). Durch die Komplexität einer radiologischen Notsituation und dem Wunsch der Bevölkerung nach eindeutigen Bestimmungen werden Anpassungen des Strahlenschutzkonzepts bzw. konkret der gesetzlich geregelten Grenzwerte für Dosis und Aktivität üblicher Weise negativ aufgenommen. Eine Erhöhung von Grenzwerten wird verständlicher Weise als zusätzliche Gefährdung der Bevölkerung eingestuft. Eine Verringerung der Grenzwerte kann als Maßnahme wahrgenommen werden, die notwendig wurde, da die bisherigen Grenzwerte nicht niedrig genug waren und deshalb bereits Personen geschädigt wurden. Die Reaktionen der Medien auf die Anpassungen der Dosis- und Aktivitätsgrenzwerte, die nach dem Reaktorunfall von Fukushima stattfanden, zeigen, dass die offizielle Vorgehensweise nicht nachvollziehbar war und als äußerst negative Handlung wahrgenommen wurde (CIB 2011, Totz 2011, JR 2012). Wie bereits in Kapitel 1.4.1.1.2. – „Inkonsistente Aspekte der gesetzlichen Verordnungen“ erwähnt, ist allerdings für zukünftige radiologische Notsituationen davon auszugehen, dass die aktuell gültigen Durchführungsverordnungen und die darin festgelegten Grenzwerte angepasst werden müssen (EC 2014). Dieses aus Sicht der Bevölkerung inkonsistente Handeln kann wachsendes Misstrauen gegenüber den öffentlichen Regierungseinrichtungen hervorrufen (OECD & NEA 2003).

Der Reaktorunfall von Tschernobyl machte die große Bandbreite an Auswirkungen, die eine nukleare Notsituation durch die potentielle Strahlenbelastung mit sich bringt, deutlich. Dabei ist in vielen Fällen die physikalische Wechselwirkung von ionisierender Strahlung mit Materie nicht die direkte Ursache. Viele gravierende Probleme, die im Zuge der Bewältigung des Reaktorunfalls auftraten, stehen nicht in direkter Verbindung zur Strahlendosis, die eine Person erhielt (OECD & NEA 2003, UNSCEAR 2008). Die Gewährleistung der Lebensmittelsicherheit stellte die Behörden der ehemaligen UdSSR vor große Probleme. Da nicht kontaminierte Futtermittel und Möglichkeiten zur Kontaminationsbeurteilung nicht ausreichend zur Verfügung standen, wurden in der frühen Phase nach dem Reaktorunfall Nutztiere in großer Zahl geschlachtet, auch wenn dies aus radiologischer Sicht nicht gerechtfertigt war. Die Tiere wurden vergraben oder auch tiefgefroren aufbewahrt, was zu beträchtlichen hygienischen, organisatorischen und wirtschaftlichen Schwierigkeiten führte. Das Schlachten der Nutztiere dämmte die Gefahr der Ingestion von kontaminierten Lebensmittel ein. Das Vorgehen war aber gleichzeitig sehr kostspielig und erzeugte große Mengen an Abfall, welcher als kontaminiert betrachtet

werden musste (IAEA 2006). Der Reaktorunfall von Tschernobyl stellte auch eine enorme psychische Belastung für die betroffene Bevölkerung dar. Es wurde festgestellt, dass die emotionalen Auswirkungen dabei unabhängig von der tatsächlichen Strahlenbelastung der einzelnen Personen waren (Bromet 2014). Bereits die Annahme einer gesundheitsgefährdenden Strahlendosis ausgesetzt gewesen zu sein, konnte zu Stress, Angstzuständen, Depressionen und medizinisch unerklärlichen physischen Symptomen führen (Bromet 2012, Bromet 2014). Unabhängig von einer tatsächlich aufgetretenen Strahlenexposition lösten Zukunftsängste, die Änderungen bezüglich Nahrungsversorgung, Rauch- und Trinkverhalten bzw. der Lebensgewohnheiten im Allgemeinen großen Stress in der Bevölkerung aus (UNSCEAR 2008). Die psychischen und physischen Symptome traten oftmals als Langzeitfolgen auf. Da die mentale Verfassung als eine der Hauptursachen für Behinderungen, physischen Verfall und Sterblichkeit wahrgenommen wird, wurde die psychische Belastung der Bevölkerung teilweise als das größte Gesundheitsproblem nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl identifiziert (The Chernobyl Forum 2005, Bromet 2012). Die psychologischen Auswirkungen des Reaktorunfalls auf die Bevölkerung gingen dabei über den Einfluss auf die mentale Verfassung von Einzelpersonen hinaus. Nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl konnten Verhaltensänderungen bezüglich der Nutzung von medizinischen Einrichtungen, wachsendes Misstrauen gegenüber der Regierung und auch Änderungen der Zahlen der Nachkommenschaft festgestellt werden (WHO 2006).

Die im Zuge der nuklearen Notsituation nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl aufgetretenen Probleme können durch das Festlegen sehr niedriger Strahlenschutzgrenzwerte noch weiter verschärft werden (Merz et al. 2011). Dies betrifft Engpässe bei der Versorgungssicherheit und das Ausmaß der nötigen Aufwände mit Hinblick auf Nahrungsmittelversorgung und medizinischer Betreuung sowie die psychische Belastung und die psychosomatischen Auswirkungen auf die Bevölkerung gleichermaßen. Für den Reaktorunfall von Fukushima wurden die Auswirkungen auf die Psyche und das soziale Wohlergehen als die wichtigsten gesundheitlichen Konsequenzen für die Bevölkerung genannt (UNSCEAR 2013, WHO 2013). Die Bewertung der physischen Folgen des Reaktorunfalls von Fukushima erfolgte ausgehend von einer Dosisabschätzung für verschiedene Bevölkerungsgruppen. Für erwachsene Personen, die aus der 20km-Zone evakuiert wurden, geht man von einer effektiven Dosis von etwa 10 mSv aus, die sie vor bzw. im Zuge der Evakuierung erhielten. Die Strahlendosis, der die Bevölkerung der Stadt Fukushima im ersten Jahr nach dem Unfall ausgesetzt war, wird mit bis zu 4 mSv bewertet. Für die Einwohner anderer Bezirke der Präfektur Fukushima und der umliegenden Präfekturen geht man von vergleichbaren Dosiswerten aus. Für die weiteren Präfekturen Japans werden geringere Strahlenbelastungen angenommen. Die effektive Dosis für die Bevölkerung in anderen Teilen der Welt ist nochmals weitaus geringer und wird auf weniger als 0,01 mSv geschätzt. Eine Strahlendosis in dieser Höhe

hat keine Auswirkungen auf die gesundheitliche Verfassung von Einzelpersonen (UNSCEAR 2013).

Die Strahlendosiswerte, denen die Bevölkerung und auch die Arbeiter am Reaktorgelände ausgesetzt waren, sind geringer als der für akute Strahlenkrankheit oder andere deterministische Gesundheitseffekte angenommene Schwellenwert. In diesem Sinne wurden bisher keine akuten Krankheitsbilder gemeldet, die auf eine Strahlenexposition zurückzuführen waren. Ein nachweisbarer Anstieg des Krebsrisikos für die erwachsene japanische Bevölkerung wird nicht erwartet. Es ist davon auszugehen, dass die Zahl der durch Strahlung ausgelösten Krebsfälle nicht von der aktuellen Schwankungsbreite der auftretenden Krebsfälle zu unterscheiden ist (UNSCEAR 2013, WHO 2013). Das Risiko für das Auftreten von stochastischen Gesundheitseffekten wie Krebs ist für Dosiswerte, die deutlich größer sind als jene, die für die Bevölkerung nach dem Reaktorunfall von Fukushima angenommen werden, gut quantifiziert. Für geringe Risiken und bzw. oder eine geringe Anzahl an betroffenen Personen ist davon auszugehen, dass die aktuellen Methoden und Modelle Änderungen in der Krankenstatistik, die eindeutig mit der aufgetretenen Strahlenexposition in Zusammenhang stehen, nicht belegen können. In Zukunft könnte durch genauere statistische Modelle die Möglichkeit der Definition der Krebsursache oder auch durch den Gewinn an Langzeitinformationen eine bessere Einschätzung des Krebsrisikos und eine Differenzierung der Ursachen von auftretenden Krebsfällen möglich sein (UNSCEAR 2013). Für Kinder wird aufgrund des Reaktorunfalls von Fukushima auch aktuell ein erhöhtes Krebsrisiko für das Auftreten von Schilddrüsenkrebs als möglich erachtet (UNSCEAR 2013, WHO 2013).

Psychologische Auswirkungen wie Depressionen, posttraumatischer Stress, Angst, Selbstmord, Wut und Misstrauen wurden nach dem Reaktorunfall in großem Ausmaß unter den Betroffenen beobachtet. Bereits das Erdbeben und der nachfolgende Tsunami beeinflussten durch den Tod unzähliger Menschen, den Verlust von Angehörigen und Freunden, den materiellen und finanziellen Verlust und die Einbußen an Lebensqualität die betroffene Bevölkerung und deren psychische Verfassung stark (UNSCEAR 2013, WHO 2013). Da die Bedrohung durch Radioaktivität vom Menschen nicht mit seinen Sinnen wahrgenommen werden kann und in den meisten Fällen das fachliche Verständnis der Situation nicht ausreichend ist, erhöht sich die psychische Belastung zusätzlich. Es kann sich in dem Zusammenhang im Vergleich zu nicht radiologischen Notsituationen ein stark übersteigertes Maß an Hilflosigkeit und Verletzlichkeit unter den Betroffenen ausbilden. Notsituationen mit unklaren Zukunftsaussichten für die Gesundheit werden von der Bevölkerung weitaus schlechter verarbeitet als Katastrophenszenarien mit sichtbaren, unmittelbaren und besser vorhersagbaren Folgen (WHO 2013). Die Unklarheit über die real erhaltene Strahlendosis bzw. die Annahme, eine gesundheitsgefährdenden Strahlendosis erhalten zu haben, führt in der Bevölkerung zu weit verbreiteten und

teilweise anhaltenden Angstzuständen und Stigmatisierung (UNSCEAR 2013). Um die betroffenen Menschen angemessen medizinisch zu versorgen, müsste die Betreuung neben den physischen Gesundheitsauswirkungen auch auf die psychische Belastung und die auftretenden Symptome wie Angstzustände, Depressionen und posttraumatischer Stress Rücksicht nehmen (WHO 2013). Um die Bevölkerung in einer radiologischen Notsituation vor der radioaktiven Strahlung zu schützen, aber auch Versorgungsengpässen und den psychischen Auswirkungen vorzubeugen, benötigt es ein Konzept, das auch die humanitären Aspekte miteinbezieht. Die Nachvollziehbarkeit des Strahlenschutzkonzepts und den in diesem Zusammenhang von öffentlichen Einrichtungen getroffenen Entscheidungen sowie eine entsprechende Aufklärung der Bevölkerung, können stark zur Verbesserung der psychischen Konstitution und Widerstandsfähigkeit in derartigen Notsituationen beitragen.

2. Publikationen

2.1. Eignung der behördlichen Lebensmittelüberwachung zur Identifikation von Freisetzungquellen von Reaktornukliden und Diskussion rechtlicher und ökologischer Aspekte

Publikation D1

Anthropogenic radionuclides in Japanese food: environmental and legal implications

S. Merz, G. Steinhauser, N. Hamada

Environmental Science & Technologie **2013**, 47 (3), 1248–56

Autorenbeiträge: SM und GSt konzipierten die Studie. GSt entwarf die Experimente. SM und GSt führten die Experimente aus. NH stellte zusätzliche Daten bereit. SM analysierte die Proben und Daten unter der Anleitung von GSt. Alle Autoren erörterten die Ergebnisse. GSt und SM verfassten die Veröffentlichung. SM entwarf die Diagramme.

Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2013) American Chemical Society.

2.2. Analyse der zeitlichen Entwicklung verschiedener Radionuklidkonzentrationen in japanischen Lebensmitteln vor und nach dem Reaktorunfall von Fukushima

Publikation **D2**

Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima nuclear accident

S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser

Environmental Science & Technologie **2015**, 49 (5), 2875–2885

Autorenbeiträge: SM und GSt konzipierten die Studie, entwarfen die Experimente und führten diese aus. KS stellte zusätzliche Daten bereit. SM analysierte die Daten unter der Anleitung von GSt. Alle Autoren erörterten die Ergebnisse. SM und GSt verfassten die Veröffentlichung. SM und GSt entwarfen die Diagramme.

This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

2.3. Analyse der zeitlichen Entwicklung der ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in japanischen Lebensmitteln und der auftretenden Aufnahmemechanismen

Publikation D3

Effective and ecological half-lives of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in wheat and rice in Japan

S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser

Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, **in press**, DOI: 10.1007/s10967-015-4352-6

Autorenbeiträge: SM und GSt konzipierten die Studie und entwarfen die Experimente. KS half bei der Übersetzung japanischer Textstellen. SM und GSt analysierten die Daten. Alle Autoren erörterten die Ergebnisse. SM und GSt verfassten die Veröffentlichung. SM und GSt entwarfen die Diagramme.

This is an open access article published under a Creative Commons Attribution (CC-BY) License.

2.4. Verwendung von Schilddrüsen als Biomonitore für ^{131}I in Österreich und Gegenüberstellung der Eigenschaften verschiedener Umweltmonitore

Publikation D4

Using animal thyroids as ultra-sensitive biomonitors for environmental radioiodine

G. Steinhauser, S. Merz, A. Kübber-Heiss, C. Katzlberger

Environmental Science & Technologie **2012**, 46 (23), 12890–12894

Autorenbeiträge: GSt konzipierte die Studie und entwarf die Experimente. SM und GSt führten die Experimente aus. AKH stellte die Schilddrüsen bereit. CK stellte zusätzliche Daten bereit. SM analysierte die Proben und Daten unter der Anleitung von GSt. Alle Autoren erörterten die Ergebnisse. GSt verfasste die Veröffentlichung. SM entwarf die Diagramme.

Reprinted with permission from Environmental Science & Technology. Copyright (2012) American Chemical Society.

2.5. Verfolgung und Plausibilisierung der Radioaktivitätsfreisetzungen aus Fukushima in Österreich im europäischen Kontext

Publikation D5

Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident

G. Steinhauser, S. Merz, D. Hainz, J.H. Sterba

Environmental Science and Pollution Research **2013d**, 20 (4), 2527–2534

Autorenbeiträge: GSt konzipierte die Studie und entwarf die Experimente. SM, DH und GSt führten die Experimente aus. SM führte die Simulationen durch. Alle Autoren analysierten die Daten und erörterten die Ergebnisse. GSt verfasste mit Unterstützung von SM die Veröffentlichung. SM und GSt entwarfen die Diagramme.

Reprinted with permission from Springer © 2013.

3. Zusammenfassung

Am 11. März 2011 zerstörte ein Tsunami die Stromversorgung und die Notfallgeneratoren des Kernkraftwerks Fukushima Dai-ichi an der Ostküste Japans. Dadurch war die Abfuhr der Nachzerfallswärme der Reaktoren nicht mehr gewährleistet. In weiterer Folge kam es aufgrund des Temperaturanstiegs zur Bildung von Wasserstoff, welcher vermischt mit Luftsauerstoff explodierte. Dabei wurden große Mengen an leicht flüchtigen Radionukliden in Form von radioaktiven Gasen und Aerosole in die Umwelt freigesetzt, welche sich in den darauffolgenden Tagen weltweit verbreiteten.

Die Identifikation der Quelle einer Radionuklidfreisetzung kann als erste Aufgabe der nuklearen Forensik betrachtet werden. Anhand von Lebensmittelproben, welche einerseits von Privatpersonen dem Atominstitut übergeben und andererseits im Zuge der Lebensmittelüberwachung in Japan untersucht wurden, konnte die in anderen Umweltproben von anderen Gruppen identifizierte $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Signatur der Reaktoren von Fukushima Dai-ichi bestätigt werden (Merz et al. 2013 D1). Auf diese Weise wurden die Lebensmittelproben, deren Radionuklidkonzentration zum Schutz der japanischen Bevölkerung bestimmt wurde, in der vorliegenden Arbeit als geographisch gut lokalisierte und einfach zugängliche Umweltproben genutzt. Die durchgeführten Analysen zeigten außerdem, dass die Radionuklidfreisetzungen aus dem Abklingbecken des Reaktorgebäudes 4 nur in geringem Ausmaß zu der gesamten Freisetzung in die Umwelt beigetragen haben konnten (Merz et al. 2013 D1). Weitere wissenschaftliche Gruppen konnten dies zu einem späteren Zeitpunkt mit unabhängigen Methoden bestätigen. Annahmen wie weitere relevante Radionuklidfreisetzungen in Zusammenhang mit dem Auftreten erneuter Kritikalität bis in den Oktober 2011 konnten widerlegt werden (Merz et al. 2013 D1).

Die Bestimmung und die Kenntnis der Radionuklidkonzentration in Lebensmitteln sind nach einem Unfall wie jenem im Kernkraftwerk Fukushima Dai-ichi für den Schutz der Bevölkerung von großer Bedeutung. Für die im Zuge der Lebensmittelüberwachung in Japan analysierten Lebensmittelproben konnten jene Nahrungsmittel wie Pilze und Fleisch von Wildschweinen identifiziert werden, welche aus radioökologischer Sicht einen besonders sensiblen Organismus aufweisen (Merz et al. 2015 D2). Dabei offenbarten sich in Abhängigkeit der Art des Lebensmittels unterschiedliche zeitliche Verläufe für die gemessene Radionuklidkontamination und die damit in Zusammenhang stehenden Mechanismen bei der Radionuklidaufnahme (Merz et al. 2015 D2). Dazu gehören die typischen Akkumulationseigenschaften der Lebensmittel, die unterschiedlichen

Aufnahmepfade der Radionuklide und auch die Einflussmöglichkeiten des Menschen bei der Züchtung bzw. Herstellung sind dabei von großer Bedeutung (Merz et al. 2015 D2).

Bei der Beurteilung der gesundheitlichen Gefährdung durch kontaminierte Lebensmittel anhand der gesetzlich gültigen Verordnungen über die zulässige Radionuklidkonzentration stellt ^{90}Sr einen Spezialfall dar. Für ^{90}Sr wird dabei ein konstantes Aktivitätskonzentrationsverhältnis im Vergleich zu ^{137}Cs angenommen. Die Analyse von Lebensmittelproben, die vor dem Reaktorunfall von Fukushima gesammelt wurden, ergab, dass das gemessene $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis das im Zusammenhang mit den gesetzlichen Regulatorien angenommene Verhältnis übersteigt. Anhand von Weizen- und Reisproben konnte daneben ein stetig ansteigendes $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätsverhältnis dargestellt werden (Merz et al. 2015 D2). Im Zuge einer bisher noch nicht veröffentlichten Studie wurden die effektiven Halbwertszeiten von ^{137}Cs und ^{90}Sr in Weizen mit 3,5 bzw. 6,2 Jahren und für Reis mit 5,6 bzw. 6,7 Jahren bestimmt (Merz et al. in press D3). Die Ergebnisse der Messungen der ^{90}Sr - und der ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration in diesen Lebensmitteln stehen somit nicht im Einklang mit den Annahmen, die in Verbindung mit den gesetzlich gültigen Verordnungen getroffen wurden.

Um den Einfluss und die Ausbreitung der Radionuklidfreisetzungen aus Fukushima in Österreich abschätzen zu können, wurden verschiedene Umweltproben wie Luft-, Regen-, Boden-, Grasproben und Schilddrüsen von frei lebenden Wildtieren auf ihre Aktivität von ^{131}I untersucht (Steinhauser et al. 2012 D4, Steinhauser et al. 2013d D5). Eine detaillierte Aufarbeitung der Messungen von Radioiod in Luftproben aus Österreich bestätigte die internationalen Annahmen bezüglich des Ausbreitungsverhaltens der Luftmassen über Europa und ließ sich bezüglich der Höhe der Messwerte und dem Zeitpunkt des Auftretens der ^{131}I -Aktivitätskonzentrationen gut in Einklang bringen. Nach dem Eintreffen im Nordwesten Europas breiteten sich die Luftmassen in südöstlicher Richtung über Deutschland hinweg und nach einer Richtungsänderung über Österreich anschließend in Richtung Polen, Tschechien und Weißrussland aus. Um die erlangten Erkenntnisse bzw. Hypothesen mit einer unabhängigen Methode zu bestätigen, wurde das Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) Model der National Oceanic and Atmospheric Administration-Air Resources Laboratory (NOAA-ARL) benutzt. Die Messungen und Analysen von Regenwasserproben wiesen bezüglich der räumlichen Ausbreitung einen starken Gradienten der Aktivitätskonzentration von ^{131}I auf (Steinhauser et al. 2013d D5). Eine adäquate Erklärung lieferte auch hier die Änderung der Ausbreitungsrichtung der Luftmassen, wodurch sich eine der beiden Messpositionen deutlich weiter innerhalb des Ausbreitungskorridors der kontaminierten Luftmassen befand, während die andere im Randbereich des Korridors gelegen war (Steinhauser et al. 2013d D5). Auch diese These konnte mittels HYSPLIT-Modell getestet und bestätigt werden (Steinhauser et al. 2013d D5). Die Daten der österreichischen

Umweltproben zeigten außerdem deutlich, dass die aufgetretenen Aktivitätskonzentrationen keine Bedrohung für die Gesundheit der österreichischen bzw. europäischen Bevölkerung darstellten.

Mit der Probennahmen von Schilddrüsen von in Österreich frei lebenden Wildtieren wurde im Zuge dieser Arbeit die Möglichkeit wahrgenommen, die Leistungsfähigkeit von Schilddrüsen als alternativer Biomonitor zum Nachweis einer Radionuklidfreisetzung zu testen (Steinhauser et al. 2012 D4). Die Schilddrüse besitzt die Eigenschaft Iod und in diesem Sinne auch die radioaktiven Isotope wie ^{131}I verstärkt zu akkumulieren. ^{131}I ist gleichzeitig im Zusammenhang mit dem Nachweis von kerntechnischen Aktivitäten für die CTBTO eines der Schlüsselnuklide. Dadurch ergab sich die Möglichkeit eines Vergleichs mit der Probennahme von Luft, welche als international anerkannter und etablierter Umweltmonitor betrachtet werden kann. Für Pflanzenfresser ergab sich eine rasche Aufnahme und Akkumulation des Radioiods in den Schilddrüsen, während in den Schilddrüsen von Fleischfressern keine ^{131}I -Aktivitätskonzentration nachgewiesen werden konnte. Dies weist auf die Ingestion als vorrangig relevanten Aufnahmemechanismus hin (Steinhauser et al. 2012 D4). Während die ^{131}I -Aktivitätskonzentration in Luft neben dem physikalischen Zerfall auch Effekten wie dem Verdünnen in der Atmosphäre und dem Auswaschen aus den Luftmassen unterliegt, konnte aufgrund der kontinuierlichen Akkumulation eine effektive Erhöhung der Halbwertszeit der ^{131}I -Aktivitätskonzentration in den Schilddrüsen festgestellt werden. Durch diesen Unterschied der effektiven Halbwertszeiten ließ sich ^{131}I in den Schilddrüsen über drei Wochen länger nachweisen als in den Luftproben (Steinhauser et al. 2012 D4). Im Herbst 2011 ergab sich im Zuge von Radionuklidfreisetzungen in Ungarn erneut die Gelegenheit, in Österreich Schilddrüsen als Radioiodmonitor einzusetzen. Für die unabhängigen Freisetzungseignisse in Fukushima und in Ungarn ließ sich in beiden Fällen ein Korrelationsfaktor $A_{\max \text{ Schilddrüsen}} / A_{\max \text{ Luft}}$ in der Größenordnung von $10^6 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ zwischen der maximalen gemessenen ^{131}I -Aktivitätskonzentration in Schilddrüsen und in Luft bestimmen. Auch die Nachweisgrenzen waren über diesen Faktor korreliert. In diesem Sinne konnte der gesamte Bereich der Aktivitätskonzentration, der mit den Luftmessungen dargestellt wurde, auch mit den Schilddrüsen abgedeckt werden. Die tierischen Schilddrüsen erwiesen sich somit in Sinne der technischen Standards als adäquater Biomonitor und zeichnen sich zusätzlich durch hohe Verfügbarkeit, einfache Messbarkeit und geringe Kosten aus (Steinhauser et al. 2012 D4).

Die Beurteilung des Gefahrenpotentials der verschiedenen Umweltproben und vorrangig der in Japan gesammelten Lebensmittelproben orientiert sich an gesetzlich festgelegten Aktivitäts- bzw. Dosisgrenzwerten. Die Diskussion der gesetzlich festgelegten Grenzwerte für die Aktivitätskonzentration verschiedener Radionuklide in Nahrungsmitteln offenbarte

verschiedene Unstimmigkeiten. Dies betrifft die Annahme eines konstanten Aktivitätsverhältnisses zwischen ^{90}Sr und ^{137}Cs , welche im Zuge der vorliegenden Arbeit stark in Zweifel gezogen wurde, die auch für Österreich nicht angepasste Annahme eines Warenkorbs, dessen Nahrungsmittel zu 100 % aus Japan stammen und die geringe Chance der direkten Übertragbarkeit der für den Import von Lebensmittel aus Japan aktuell gültigen Grenzwerte auf ein zukünftiges Bedrohungsszenario (Merz et al. 2013 D1, Merz et al. 2015 D2). Eine zusätzlich erschwerte Nachvollziehbarkeit für die Bevölkerung ergibt sich dadurch, dass innerhalb der Europäischen Union für Lebensmittelimporte aus verschiedenen Ländern unterschiedliche Aktivitätsgrenzwerte gelten. Für Proben von Pilzen aus Litauen und Österreich ergab sich die Situation, dass der Import aus von Tschernobyl betroffenen Drittländern zulässig wäre, während beide Proben die höchstzulässigen Aktivitätsgrenzwerte für Lebensmittelimporte aus Japan überschritten. Um die gesetzlich festgelegten Grenzwerte für Nahrungsmittel und die in den Lebensmittelproben gemessenen Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide mit intuitiv besser verständlichen Größen greifbarer zu machen, wurde in der vorliegenden Arbeit das Konzept der jährlichen Tageskonsumation vorgestellt (Merz et al. 2013 D1). In den in Japan erworbenen Lebensmitteln, die von Privatpersonen für eine unabhängige Untersuchung an das Atominstitut übergeben wurden, konnte keine gesundheitsgefährdende Radionuklidkonzentration festgestellt werden (Merz et al. 2013 D1). Für jene Nahrungsmittel, die im Zuge der Lebensmittelüberwachung von den japanischen Behörden untersucht wurden, ergaben sich vor allem kurz nach dem Reaktorunfall zum Teil sehr niedrige Werte der erlaubten Tageskonsumation und in diesem Sinne ein hohes Gefährdungspotential.

Literaturnachweis

Arvela, H.; Markkanen, M.; Lemmela, H. Mobile Survey of environmental gamma radiation and fallout level in Finland after Chernobyl accident. *Radiat. Prot. Dosim.* **1990**, *32*, 177–184.

Baba, M. Fukushima accident: What happened?. *Radiat. Meas.* **2013**, *55*, 17–21.

Baklanov, A.; Sørensen, J.H. Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modeling. *Phys. Chem. Earth Pt. B* **2001**, *26* (10), 787–799.

BfS. Teil II - Dosiskoeffizienten bei innerer Strahlenexposition für Einzelpersonen der Bevölkerung. Bundesamt für Strahlenschutz **2001**, available: <http://www.bfs.de/de/bfs/recht/dosis.html>, online: Oktober 2014.

BGBI.II. 191.Verordnung des Bundesministers für Land- und Forstwirtschaft, Umwelt und Wasserwirtschaft, des Bundesministers für Wirtschaft und Arbeit, des Bundesministers für Verkehr, Innovation und Technologie, der Bundesministerin für Bildung, Wissenschaft und Kultur sowie der Bundesministerin für Gesundheit und Frauen über allgemeine Maßnahmen zum Schutz von Personen vor Schäden durch ionisierende Strahlung (Allgemeine Strahlenschutzverordnung – AllgStrSchV). Österreichisches Bundesgesetzblatt **2006a**, p. 9.

BGBI.II. Allgemeine Strahlenschutzverordnung. Österreichisches Bundesgesetzblatt **2006b**, Nr.191/2006, Anlage 1.

BGBI.II. Allgemeine Strahlenschutzverordnung. Österreichisches Bundesgesetzblatt **2006c**, Nr.191/2006, Anlage 12.

BGBI.II. Allgemeine Strahlenschutzverordnung. Österreichisches Bundesgesetzblatt **2006d**, Nr.191/2006, Anlage 6.

Bolsunovsky, A.; Dementyev, D. Evidence of the radioactive fallout in the center of Asia (Russia) following the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioactiv.* **2011**, *102*, 1062-1064.

Braun, M. The Fukushima Daiichi Incident. Vortrag gehalten für Areva, **2011**.

BMU. Entwicklung, Validierung und Bereitstellung eines atmosphärischen Ausbreitungsmodells für luftgetragene radioaktive Stoffe auf der Basis des Ausbreitungsmodells AUSTAL2000 der neuen TA Luft. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit **2007**, BMU - 2007 – 710.

Bromet, E.J. Mental health consequences of the Chernobyl disaster. *J. Radiol. Prot.* **2012**, 32 (1), N71–N75.

Bromet, E.J. Emotional consequences of nuclear power plant disasters. *Health Phys.* **2014**, 106 (2), 206-210.

Burns, P.C.; Ewing, R.C.; Navrotsky, A. Nuclear fuel in a reactor accident. *Science* **2012**, 335 (6073), 1184-1188.

Cambray, R. S.; Cawse, P. A.; Garland, J. A.; Gibson, J. A. B.; Johnson, P.; Lewis, G. N. J; Newton, D; Salmon, L; Wade, B. O. Observations on radioactivity from the Chernobyl accident. *Nucl. Energy* **1987**, 26 (2), 77–101.

Carbol, P.; Solatie, D.; Erdmann, N.; Nylén, T.; Betti, M. Deposition and distribution of Chernobyl fallout fission products and actinides in a Russian soil profile. *J. Environ. Radioactiv.* **2003**, 68 (1), 27–46.

Casacuberta, N.; Masqué, P.; Garcia-Orellana, J.; Garcia-Tenorio, R.; Buessler, K.O. ⁹⁰Sr and ⁸⁹Sr in seawater off Japan as a consequence of the Fukushima Dai-ichi nuclear accident. *Biogeosciences* **2013**, 10 (6), 3649–3659.

CEU. Council regulation (EC) No 733/2008 of 15 July 2008 on the conditions governing imports of agricultural products originating in third countries following the accident at the Chernobyl nuclear power station. The Council of the European Union **2008**.

Chamberlain, A. C. Aspects of the deposition of radioactive and other gases and particles. *Int. J. Air Pollut.* **1960**, 3, 63–88.

Chamberlain, A. C.; Chadwick, R. C. Transport of iodine from atmosphere to ground. *Tellus* **1966**, 18, 226–37.

CIB Fukushima-Katastrophe: Japan legt hohe Strahlengrenzwerte für Kinder fest. *Spiegel Online Wissenschaft* **2011**, available:

<http://www.spiegel.de/wissenschaft/mensch/fukushima-katastrophe-japan-legt-hohe-strahlengrenzwerte-fuer-kinder-fest-a-758410.html>, online: Oktober 2014.

Cornell, R. M. Adsorption of cesium on minerals: A review. *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **1993**, 171 (2), 483-500.

Cuellar, A. D.; Webber, M. E. Wasted food, wasted energy: the embedded energy in food waste in the United States. *Environ. Sci. Technol.* **2010**, 44, 6464–6469.

De Cort, M.; Dubois, G.; Fridman, S. D.; Germenchuk, M. G.; Izrael, Y. A.; Janssens, A.; Jones, A. R.; Kelly, G. N.; Kvasnikova, E. V.; Matveenکو, I. I.; Nazarov, I. M.; Pokumeiko, Y. M.; Sitak, V. A.; Stukin, E. D.; Tabachny, L. Y.; Tsaturov, Y. S.; Avdyushin, S. I., Atlas of cesium deposition on Europe after the Chernobyl accident; EUR Report Nr. 16733. Office for Official Publications of the European Communities **1998**, ECSC-EEC-EAEC: Brussels-Luxemburg.

Dauer, L.T.; Zanzonico, P.; Tuttle, R.M.; Quinn, D.M.; Strauss, H.W. The Japanese Tsunami and Resulting Nuclear Emergency at the Fukushima Daiichi Power Facility: Technical, radiologic, and response perspectives. *J. Nucl. Med.* **2011**, 52 (9), 1423–1432.

Ditto, M. Persönliche Kommunikation **2012**, Ministerialrat des österreichischen Bundesministerium für Gesundheit – Abteilung Strahlenschutz.

DOE Nuclear Physics and Reactor Theory. DOE Fundamentals Handbook **1993**, Volume 2 of 2.

Draxler, R.R.; Hess, G.D. An overview of the HYSPLIT_4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition. *Aust. Meteorol. Mag.* **1998**, 47 (4), 295–308.

Draxler R.R.; Rolph G.D. HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY. NOAA Air Resources Laboratory **2014**, available: <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>, online: September 2014.

EC. Commission Recommendation of 14 April 2003 on the protection and information of the public with regard to exposure resulting from the continued radioactive caesium contamination of certain wild food products as a consequence of the accident at the Chernobyl nuclear power station. The European Commission **2003**.

EC. Commission Implementing Regulation (EU) No 297/2011 imposing special conditions governing the import of feed and food originating in or consigned from Japan following the accident at the Fukushima nuclear power station. The European Commission **2011a**.

EC. Commission Implementing Regulation (EU) No 351/2011 amending Regulation (EU) No 297/2011 imposing special conditions governing the import of feed and food originating in or consigned from Japan following the accident at the Fukushima nuclear power station. The European Commission **2011b**.

EC. Commission Implementing Regulation (EU) No. 961/2011 imposing special conditions governing the import of feed and food originating in or consigned from Japan following the accident at the Fukushima nuclear power station and repealing Regulation (EU) No. 297/2011. The European Commission **2011c**.

EC. Commission implementing regulation (EU) No 284/2012 imposing special conditions governing the import of feed and food originating in or consigned from Japan following the accident at the Fukushima nuclear power station and repealing Implementing Regulation (EU) No 961/2011. The European Commission **2012**.

EC. Commission implementing regulation (EU) No 322/2014 of 28 March 2014 imposing special conditions governing the import of feed and food originating in or consigned from Japan following the accident at the Fukushima nuclear power station. The European Commission **2014**.

Fukushima Prefecture. Monitoring Info. Toward a new future of Fukushima **2014**, available: <http://www.new-fukushima.jp/monitoring/en/>, online: August 2014.

Gerrer F. Anatomie Physiologie Atemsystem. Medizin Kompakt **2014**, available: <http://www.medizin-kompakt.de/anatomie/atemsystem/atemgroessen/atemzeitvolumen>, online: Oktober 2014.

Glasstone S.; Dolan P.J. The Effects of Nuclear Weapons. United States Department of Defense & Energy Research and Development Administration **1977**, Third Edition, 605.

GPSies. Koordinaten finden. GPSies Tracks for vagabonds **2014**, available: <http://www.gpsies.com/coordinate.do>, online: September 2014.

Gulin, S.; Egorov, V.; Polikarpov, G.; Stokozov, N.; Mirzoyeva, N.; Tereschenko, N.; Osvath, I. General trends in radioactive contamination of the marine environment from the Black Sea to Antarctic Ocean – The Lessons of Chernobyl: 25 Years Later. Nova Science Publishers **2012**, 281-299.

Güntay, S.; Powers, D.A.; Devell, L. The Chernobyl reactor accident source term: Development of a consensus view. International Atomic Energy Agency **1997**, 183–193.

Demtröder W. Experimentalphysik 4: Kern-, Teilchen- und Astrophysik. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York **2004**, 2. Auflage, 228.

Giannakopoulou, F.; Haidouti, C.; Chronopoulou, A.; Gasparatos, D. Sorption behavior of cesium on various soils under different pH levels. *J. Hazard. Mater.* **2007**, 149, 553–556.

Grönholm, T.; Aalto, P.P.; Hiltunen, V.; Rannik, Ü.; Rinne, J.; Laakso, L.; Hyvönen, S.; Vesala, T.; Kulmala, M. Measurements of aerosol particle dry deposition velocity using the relaxed eddy accumulation technique. *Tellus B* **2007**, 59 (3), 381–386.

GRS. Informationen zur Lage in Japan: Stand 29.03.2011, 13:00 Uhr (MESZ). Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (mbH) **2011**, available: <http://www.grs.de/kommunikation-medien/japan-statusmeldung-stand-2903-2011-1300>, online: August 2014.

Hachiya, M.; Tominaga, T.; Tatsuzaki, H.; Akashi, M. Medical management of the consequences of the Fukushima nuclear power plant incident. *Drug Develop. Res.* **2014**, 75 (1), 3–9.

Hamada, N.; Ogino, H. Food safety regulations: what we learned from the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.* **2012**, 111, 83–99.

Hamada, N.; Ogino, H.; Fujimichi, Y. Safety regulations of food and water implemented in the first year following the Fukushima nuclear accident. *J. Radiat. Res.* **2012**, 53 (5), 641–71.

Handl, J.; Sachse, R.; Jakob, D.; Michel, R.; Evangelista, H.; Gonçalves, A.C.; de Freitas, A.C. Accumulation of ^{137}Cs in Brazilian soils and its transfer to plants under different climatic conditions. *J. Environ. Radioact.* **2008**, 99 (2), 271–287.

Hiernaut, J.-P.; Wiss, T.; Papaioannou, D.; Konings, R.J.M.; Rondinella, V.V. Volatile fission product behaviour during thermal annealing of irradiated UO_2 fuel oxidised up to U_3O_8 . *J. Nucl. Mater.* **2008**, 372 (2–3), 215–225.

Higuchi, H.; Fukatsu, H.; Hashimoto, T.; Nonaka, N.; Yoshimizu, K.; Omine, M.; Takano, N.; Abe, T., Radioactivity in surface air and precipitation in Japan after the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioact.* **1988**, 6, (2), 131–44.

Hirose, K. 2011 Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident: summary of regional radioactive deposition monitoring results. *J. Environ. Radioact.* **2012**, 111, 13–17.

IAEA. Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and their Remediation: Twenty Years of Experience. International Atomic Energy Agency, Wien **2006**, pp. 7, 9, 75, 80.

IAEA. Source of Iodine-131 in Europe Identified. International Atomic Energy Agency **2011**, available: <http://www.iaea.org/newscenter/pressreleases/2011/prn201127.html>, online: September 2014.

IAEA. Fukushima Daiichi Status Report. International Atomic Energy Agency **2012**, available: <http://www.iaea.org/newscenter/focus/fukushima/statusreport041111.pdf>, online: August 2014.

ICRP. Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP Publication 30. Ann. ICRP **1979**; 2, 1–116.

ICRP. Individual monitoring for intakes of radionuclides by workers: Design and interpretation. ICRP Publication 54 Ann. ICRP **1987**.

ICRP. Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients. ICRP Publication 72. Ann. ICRP **1995**, 26, 61.

ICRP. Annals of the ICRP – Radiological Protection against Radon Exposure. International Commission on Radiological Protection **2011**, available: <http://www.icrp.org/docs/Radiological%20Protection%20against%20Radon%20Exposure%20consultation.pdf>, online: Februar 2015.

INPO. Institute of Nuclear Power Operations Special Report on the Nuclear Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. Institute of Nuclear Power Operations **2011**, INPO 11–005, Atlanta, GA.

Ioannidou, A.; Manenti, S.; Gini, L.; Groppi, F. Fukushima fallout of ^{131}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs at Milano, Italy. Proceedings - 2011 7th International Conference on Natural Computation, ICNC **2011**, 4, Article number 6022595, 2082-2085.

Ioannidou, A.; Giannakaki, E.; Manolopoulou, M.; Stoulos, S.; Vagena, E.; Papastefanou, C.; Gini, L.; Manenti, S.; Groppi, F. An air-mass trajectory study of the transport of radioactivity from Fukushima to Thessaloniki, Greece and Milan, Italy. Atmos. Environ. **2013**, 75, 163–170.

JR. Grenzwerte für atomare Verstrahlung wurden erhöht – Japaner trauen ihren Nahrungsmitteln nicht mehr. Focus Online **2012**, available: http://www.focus.de/gesundheit/ernaehrung/lebensmittelsicherheit-in-japan-japaner-verlieren-vertrauen-in-eigene-produkte_aid_719669.html, online: Oktober 2014.

Kasuga, M.; Sasaki, S.; Shibata, K.; Tabata, I.; Nakamura, T.; Morita, A.; Yoshiike, N. Dietary reference intakes for Japanese 2010. *J. Nutr. Sci. Vitaminol.* **2013**, 59, S1–S109.

Kim, J.; Whang, J. Measuring the daily rate of radioactive iodine (^{131}I) uptake in the thyroid glands and excretion through the urine of Korean adult males. *J. Nucl. Sci. Technol.* **2009**, 46 (1), 12–17.

Kirchner, G.; Noack, C.C. Core history and nuclide inventory of the Chernobyl core at the time of accident. *Nucl. Safety* **1988**, 29 (1), 1–5.

Kirchner, G.; Bossew, P.; De Cort, M. Radioactivity from Fukushima Dai-ichi in air over Europe; part 2: what can it tell us about the accident? *J. Environ. Radioact.* **2012**, 114, 35–40.

Kobayashi, Y.; Hattori, M.; Wada, S.; Iwase, H.; Kadono, M.; Tatsumi, H.; Kuwahata, M.; Fukui, M.; Hasegawa, G.; Nakamura, N.; Kido, Y., Assessment of daily food and nutrient intake in Japanese type 2 diabetes mellitus patients using Dietary Reference Intakes. *Nutrients* **2013**, 5, 2276–2288.

Kodaira, K.; Radioactive contamination of rice in Japan with reference to Sr-90 and Cs-137 content in rice until 1962. *J. Radiat. Res.* **1964**, 39, 116–119.

Komamura, M.; Tsumura, A.; Kodaira, K. ^{90}Sr and ^{137}Cs contamination of polished rice in Japan. Survey and analysis during the years 1959-1995. *Radioisotopes* **2001**, 50 (3), 80–93 (auf Japanisch).

Komamura, M.; Tsumura, A.; Kihou, N.; Kodaira, K. ^{90}Sr and ^{137}Cs contamination of wheat produced in Japan. Survey and analysis during the years 1959 through 1995 including the Chernobyl accident. *Radioisotopes* **2002**, 51 (9), 345–363 (auf Japanisch).

Koo, Y.-H.; Yang, Y.-S.; Song, K.-W. Radioactivity release from the Fukushima accident and its consequences: A review. *Prog. Nucl. Energ.* **2014**, 74, 61–70.

Kramer, G.H.; Hauck, B.M.; Chamberlain, M.J. Biological half-life of iodine in adults with intact thyroid function and in athyreotic persons. *Radiat. Prot. Dosim.* **2002**, 102 (2), 129–135.

Kristo, M.J. Nuclear Forensics. In: L'Annunziata, M. (ed.) *Handbook of Radioactivity Analysis*. Elsevier, San Francisco **2013**, pp. 1281–1304.

Kritidis, P.; Florou, H.; Eleftheriadis, K.; Evangeliou, N.; Gini, M.; Sotiropoulou, M.; Diapouli, E.; Vratolis, S. Radioactive pollution in Athens, Greece due to the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioactiv.* **2012**, 114, 100–104.

Kruyts, N.; Titeux, H.; Delvaux, B. Mobility of radiocesium in three distinct forest floors. *Sci. Total Environ.* **2004**, 319, 241–252.

Kumamoto, Y.; Aoyama, M.; Hamajima, Y.; Murata, A.; Kawano, T. Impact of Fukushima-derived radiocesium in the western North Pacific Ocean about ten months after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *J. Environ. Radioactiv.* **2015**, 140, 114–122.

Leon, J.D.; Jaffe, D.A.; Kaspar, J.; Knecht, A.; Miller, M.L.; Robertson, R.G.H.; Schubert, A.G. Arrival time and magnitude of airborne fission products from the Fukushima, Japan, reactor incident as measured in Seattle, WA, USA. *J. Environ. Radioactiv.* **2011**, 102 (11), 1032–1038.

Lewis, B.J.; Dickon, R.; Iglesias, F.C. Overview of experimental programs on core melt progression and fission product release behavior. Canadian Nuclear Society - 29th Annual Conference of the Canadian Nuclear Society and 32nd CNS/CNA Student Conference **2008**, 1, 35–58.

Lipsy, P.Y.; Kushida, K.E.; Incerti, T. The Fukushima disaster and Japan's nuclear plant vulnerability in comparative perspective. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47 (12), 6082–6088.

Lujanienė, G.; Bycenkiene, S.; Povinec, P.P.; Gera, M. Radionuclides from the Fukushima accident in the air over Lithuania: measurements and modelling approaches. *J. Environ. Radioactiv.* **2012**, 114, 71–80.

Marston, H.R. The accumulation of radioactive iodine in the thyroids of grazing animals subsequent to atomic weapon tests. *Aust. J. Biol. Sci.* **1958**, 11, 382–398.

Marzo, G.A. Atmospheric transport and deposition of radionuclides released after the Fukushima Dai-chi accident and resulting effective dose. *Atmos. Environ.* **2014**, 94, 709–722.

Masson, O.; Baeza, A.; Bieringer, J.; Brudecki, K.; Bucci, S.; Cappai, M.; Carvalho, F.P.; Connan, O.; Cosma, C.; Dalheimer, A.; Didier, D.; Depuydt, G.; De Geer, L.E.; De Vismes, A.; Gini, L.; Groppi, F.; Gudnason, K.; Gurriaran, R.; Hainz, D.; Halldórsson, Ó.; Hammond, D.; Hanley, O.; Holeý, K.; Homoki, Z.; Ioannidou, A.; Isajenko, K.; Jankovic, M.; Katzlberger, C.; Kettunen, M.; Kierepko, R.; Kontro, R.; Kwakman, P.J.M.; Lecomte, M.; Leon Vintro, L.a; Leppänen, A.-P.; Lind, B.; Lujaniene, G.; Mc Ginnity, P.; Mahon, C.M.; Malá, H.; Manenti, S.; Manolopoulou, M.; Mattila, A.; Mairing, A.; Mietelski, J.W.; Møller, B.; Nielsen, S.P.; Nikolic, J.; Overwater, R.M.W.; Pálsson, S.E.; Papastefanou, C.; Penev, I.; Pham, M.K.; Povinec, P.P.; Ramebäck, H.; Reis, M.C.; Ringer, W.; Rodriguez, A.a; Rulík, P.; Saey, P.R.J.; Samsonov, V.; Schlosser, C.; Sgorbati, G.; Silobritiene, B.V.; Söderström, C.; Sogni, R.; Solier, L.; Sonck, M.; Steinhauer, G.; Steinkopff, T.; Steinmann, P.; Stoulos, S.; Sýkora, I.; Todorovic, D.; Tooloutalaie, N.; Tositti, L.; Tschiersch, J.; Ugron, A.; Vagena, E.; Vargas, A.; Wershofen, H.; Zhukova, O. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by European networks. *Environ. Sci. Technol.* **2011**, 45, 7670–7677.

Merz, S.; Djuricic, M.; Villa, M.; Böck, H.; Steinhauer, G. Neutron flux measurements at the TRIGA reactor in Vienna for the prediction of the activation of the biological shield. *Appl. Radiat. Isotopes* **2011**, 69 (11), 1621–1624.

Merz, S.; Steinhauer, G.; Hamada, N. Anthropogenic radionuclides in Japanese food: environmental and legal implications. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47 (3), 1248–56.

Merz, S.; Shozugawa, K.; Steinhauer, G. Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.* **2015**, 49 (5), 2875–2885.

Merz, S.; Shozugawa, K.; Steinhauer, G. Effective and ecological half-lives of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in wheat and rice in Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **in press**, DOI: 10.1007/s10967-015-4352-6.

MHLW. New standard limits for radionuclides in foods. Ministry of Health Labour and Welfare **2012**, available:

http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/dl/new_standard.pdf,

online:

September 2014.

MHLW. Levels of Radioactive Contaminants in Foods Tested in Respective Prefectures. Ministry of Health, Labour and Welfare **2014a**, available:

http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/index_food_radioactive.html, online: August 2014.

MHLW. Sum up of test result of food sampled until 31 March 2012. Ministry of Health, Labour and Welfare **2014b**, available:

http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/dl/01Apr2013_Sum_up_until_31Mar2012.pdf, online: August 2014.

MHLW. The Revision of the “Concepts of Inspection Planning and the Establishment and Cancellation of Items and Areas to which Restriction of Distribution and/or Consumption of Foods concerned Applies”. Ministry of Health, Labour and Welfare **2015a**, available:

<http://www.mhlw.go.jp/english/topics/2011eq/dl/food-140320.pdf>, online: März 2015.

MHLW. The proposal standard limits for radionuclides in foods (in Japanese). Ministry of Health, Labour and Welfare **2015b**, available:

<http://www.mhlw.go.jp/stf/shingi/2r9852000001yw1j-att/2r9852000001yw6t.pdf>, online: April 2015.

Michel, R., Voigt, G. Die Wege der Radionuklide. *Physik J.* **2006**, 5(4), 37–42.

Mietelski, J.W.; Kierepko, R.; Brudecki, K.; Janowski, P.; Kleszcz, K.; Tomankiewicz, E. Long-range transport of gaseous ^{131}I and other radionuclides from Fukushima accident to Southern Poland. *Atmos. Environ.* **2014**, 91, 137–145.

Mohrbach, L.; Linnemann, T.; Schäfer, G.; Vallana, G. Earthquake and tsunami in Japan on March 11, 2011 and consequences for Fukushima and other nuclear power plants. *VGB PowerTech* **2011**, available:

<http://www.vgb.org/vgbmultimedia/News/Fukushimav15VGB.pdf>, online: Januar 2015.

Montes, M.L.; Silva, L.M.S.; Sá, C.S.A.; Runco, J.; Taylor, M.A.; Desimoni, J. Inventories and concentration profiles of ^{137}Cs in undisturbed soils in the northeast of Buenos Aires Province, Argentina. *J. Environ. Radioactiv.* **2013**, 116, 133–140.

Morino, Y.; Ohara, T.; Nishisawa, M. Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011. *Geophys. Res. Lett.* **2011**, 38 (17), L00G11/1–7.

NEA. Primary system fission product release and transport: a State-of-the-Art Report. Nuclear Energy Agency **1994**, NUREG/CR-6193, ORNL/TM-12681.

NERHQ. Report of Japanese government to the IAEA Ministerial Conference on nuclear safety - the accident at TEPCO's Fukushima nuclear power stations. Nuclear Emergency Response Headquarters **2011a**, available: http://www.kantei.go.jp/foreign/kan/topics/201106/iaea_houkokusho_e.html, online: August 2014.

NERHQ. Report of Japanese government to the IAEA Ministerial Conference on nuclear safety - the accident at TEPCO's Fukushima nuclear power stations – VII. Situation regarding Radiation Exposure. Nuclear Emergency Response Headquarters **2011b**, available: http://japan.kantei.go.jp/kan/topics/201106/pdf/chapter_vii.pdf, online: Februar 2015.

NHK. "TEPCO: Unit No.4 blast due to hydrogen from Unit No.3". Nippon Hoso Kyokai **2011**, available: http://www3.nhk.or.jp/daily/english/16_02.html.

Nho-Kim, E.-Y.; Michou, M.; Peuch, V.-H. Parameterization of size-dependent particle dry deposition velocities for global modeling. *Atmos. Environ.* **2004**, 38 (13), 1933–1942.

Nikiforov, Y. E. Radiation-induced thyroid cancer: What we have learned from Chernobyl. *Endocr. Pathol.* **2006**, 17, 307–318.

NISA. Seismic Damage Information (the 26th Release). Nuclear and Industrial Safety Agency **2011**, available: <http://reliefweb.int/report/japan/japan-nuclear-and-industrial-safety-agency-seismic-damage-information-26th-release-1400>, online: Juli 2014.

Nishihara, K.; Iwamoto, H.; Suyama, K. Estimation of fuel compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant. *JAEA-Data/Code* **2012**, No. 2012-018 (auf Japanisch).

NRA. Environmental Radioactivity Survey Report. The Nuclear Regulation Authority, Japan **2004**, available: <http://www.nsr.go.jp/english/>, online: April 2015.

NRC. Cold Shutdown. United States Nuclear Regulatory Commission **2014**, available: <http://www.nrc.gov/reading-rm/basic-ref/glossary/cold-shutdown.html>, online: Juli 2014.

OECD, NEA. Chernobyl: Assessment of Radiological and Health Impacts 2002 Update of Chernobyl: Ten Years On. Organisation for Economic Co-operation and Development, Nuclear Energy Agency, Paris **2003**, pp. 14, 17, 34, 33–37, 35, 38, 39, 46, 53, 61, 62, 63, 91, 92, 94, 101, 103.

Parache, V.; Pourcelot, L.; Roussel-Debet, S.; Orjollet, D.; Leblanc, F.; Soria, C.; Gurriaran, R.; Renaud, Ph.; Masson, O. Transfer of ^{131}I from Fukushima to the vegetation and milk in France. *Environ. Sci. Technol.* **2011**, 45 (23), 9998–10003.

Paschoa, A.S. Potential environmental and regulatory implications of naturally occurring radioactive materials (NORM). *Appl. Radiat. Isotopes* **1998**, 49 (3), 189–196.

Pichl E.; Rabitsch H. Aktivitätskonzentrationen in Lebensmitteln und Abschätzung der Strahlenexposition. Alumni Talks 2006: 20 Jahre nach Tschernobyl: Was haben wir daraus gelernt? **2006**, available:

http://alumni.tugraz.at/tug2/alumnitalks/alumnitalks006_pichl_rabitsch.pdf, online: Oktober 2014.

Pittauerová, D.; Hettwig, B.; Fischer, H.W. Fukushima fallout in Northwest German environmental media. *J. Environ. Radioactiv.* **2011**, 102 (9), 877–880.

Povinec, P.P.; Hirose, K.; Aoyama, M. Radiostrontium in the western North Pacific: Characteristics, behavior, and the Fukushima impact. *Environ. Sci. Technol.* **2012**, 46 (18), 10356–10363.

REG. Verordnung (EWG) Nr. 1707/86 des Rates vom 30. Mai 1986 über die Einfuhrbedingungen für landwirtschaftliche Erzeugnisse mit Ursprung in Drittländern nach dem Unfall im Kernkraftwerk Tschernobyl. Der Rat der Europäischen Gemeinschaften **1986**.

REG. Verordnung (Euratom) Nr. 2218/89 des Rates vom 18. Juli 1989 zur Änderung der Verordnung (Euratom) Nr. 3954/87 zur Festlegung von Höchstwerten an Radioaktivität in Nahrungsmitteln und Futtermitteln im Falle eines nuklearen Unfalls oder einer anderen radiologischen Notstandssituation. Der Rat der Europäischen Gemeinschaften **1989**.

Rolph G.D. Real-time environmental applications and display system (READY). NOAA Air Resources Laboratory **2014**, available: <http://ready.arl.noaa.gov>, online: September 2014.

Rosner, G.; Hoetzel, H.; Winkler, R. Effect of dry deposition, washout and resuspension on radionuclide ratios after the Chernobyl accident. *Sci. Total Environ.* **1990**, 90, 1–12.

Rühm, W.; König, K.; Bayer, A. Long-term follow-up of the ^{137}Cs body burden of individuals after the Chernobyl accident — a means for the determination of biological half-lives. *Health Phys.* **1999**, 77 (4), 373–82.

Saey, P.R.J. Xenon. In: Atwood D.A. (ed.) *Radionuclides in the Environment*. Wiley, Chichester **2010**, pp. 179–191.

Schneider, S.; Walther, C.; Bister, S.; Schauer, V.; Christl, M.; Synal, H.-A.; Shozugawa, K.; Steinhauser, G. Plutonium release from Fukushima Daiichi fosters the need for more detailed investigations. *Sci. Rep.* **2013**, 3, 2988.

Schwantes, J. M.; Orton, C. R.; Clark, R. A. Analysis of a nuclear accident: Fission and activation product releases from the Fukushima Daiichi nuclear facility as remote indicators of source identification, extent of release, and state of damaged spent nuclear fuel. *Environ. Sci. Technol.* **2012**, 46 (16), 8621–8627.

Semioshkina, N.; Proehl, G.; Savinkov, A.; Voigt, G. The transfer of ^{137}Cs and ^{90}Sr from feed to rabbits. *J. Environ. Radioact.* **2007**, 98, 166–176.

Shiraki, Y.; Takeda, A.; Okamoto, P. Translocation of radioactive cesium in tea nursery stocks and its distribution in the branches and trunks of the matured tea bush. *Tea Res. J.* **2013**, 115, 11–19 (auf Japanisch).

Shozugawa, K.; Nogawa, N.; Matsuo, M. Deposition of fission and activation products after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. *Environ. Pollut.* **2012**, 163, 243–247.

Simsek, V.; Pozzoli, L.; Unal, A.; Kindap, T.; Karaca, M. Simulation of ^{137}Cs transport and deposition after the Chernobyl Nuclear Power Plant accident and radiological doses over the Anatolian Peninsula. *Sci. Total Environ.* **2014**, 499, 74–88.

Smolders, E.; Tsukada, H. The transfer of radiocesium from soil to plants: mechanisms, data, and perspectives for potential countermeasures in Japan. *Integr. Environ. Assess. Manage.* **2011**, 7 (3), 379–381.

Steinhauser, G.; Bichler, M. Adsorption of ions onto high silica volcanic glass. *Appl. Radiat. Isot.* **2008**, 66, 1–8.

Steinhauser, G.; Merz, S.; Kübber-Heiss, A.; Katzlberger, C. Using animal thyroids as ultra-sensitive biomonitors for environmental radioiodine. *Environ. Sci. Technol.* **2012**, 46 (23), 12890–12894.

Steinhauser, G.; Sterba, J.H.; Hammer, V.M.F. Nuclear forensics of a colored gemstone: Evidence of proton bombardment of a blue topaz. *Appl. Radiat. Isot.* **2013a**, 75, 18–21.

Steinhauser, G.; Lechermann, M.; Axelsson, A.; Böck, H.; Ringbom, A.; Saey, P.R.J.; Schlosser, C.; Villa, M. Research reactors as sources of atmospheric radioxenon. *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **2013b**, 296 (1), 169–174.

Steinhauser, G.; Schauer, V.; Shozugawa, K. Concentrations of strontium-90 at selected hot spots in Japan. *PLoS ONE* **2013c**, 8 (3), e57760.

Steinhauser, G.; Merz, S.; Hainz, D.; Sterba, J. H. Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Pollut. Res.* **2013d**, 20 (4), 2527–2534.

Steinhauser, G. Fukushimas forgotten radionuclides: A review of the understudied radioactive emissions. *Environ. Sci. Technol.* **2014**, 48 (9), 4649–4663.

Steinhauser, G.; Brandl, A.; Johnson, T.E. Comparison of the Chernobyl and Fukushima nuclear accidents: A review of the environmental impacts. *Sci. Total Environ.* **2014**, 470-471, 800–817.

Stöger, A. Anfragebeantwortung GZ: BMG-11001/0149-II/A/9/2011. Bundesministerium für Gesundheit **2011**, available:
http://www.parlament.gv.at/PAKT/VHG/XXIV/AB/AB_08042/fnameorig_221429.html,
online: Februar 2015.

Suga, S.; Ichikawa, R. On the revision of control index levels on the ingestion of food and water in the guidelines for radiological emergency preparedness and countermeasures in Japan. *Jpn. J. Health Phys.* **2000**, 35, 449–466 (auf Japanisch).

Ten Hoeve, J.E.; Jacobson, M.Z. Worldwide health effects of the Fukushima Daiichi nuclear accident. *Energy Environ. Sci.* **2012**, 5, 8743–57.

TEPCO. Fukushima Nuclear Accident Analysis Report. Technical Report. Tokyo Electric Power Company, Inc. **2012**.

Thakur, P.; Ballard, S.; Nelson, R. An overview of Fukushima radionuclides measured in the northern hemisphere. *Sci. Total Environ.* **2013**, 458–460, 577–613.

The Chernobyl Forum. Chernobyl's Legacy: Health, environmental and socio-economic impacts and recommendations to the governments of Belarus, the Russian Federation and Ukraine. IAEA, Wien **2005**.

Thielen, H. The Fukushima Daiichi nuclear accident – An overview. *Health Phys.* **2012**, 103 (2), 169–174.

Thome, Z. D.; Gomes, R. S.; da Silva, F. C.; Lopes Gomes, J.R. An attempt to confirm the origin of Xe-135 detected in the Fukushima Daiichi II Nuclear Power Plant in November 2011. *Nucl. Engin. Des.* **2012**, 247, 123–127.

Todreas, N.E.; Kazimi, M.S. *Nuclear Systems I - Thermal Hydraulic Fundamentals*, Hemisphere Publishing Corporation **1990**, 66.

Totz, S. EU-Kommission erhöht Strahlengrenzwerte für Lebensmittel aus Japan. Greenpeace **2011**, available: <https://www.greenpeace.de/themen/atomkraft/eu-kommission-erhoeht-strahlengrenzwerte-fuer-lebensmittel-aus-japan>, online: Oktober 2014.

Travnikova, I.G.; Bruk, G.J.; Shutov, V.N.; Bazjukin, A.B.; Balonov, M.I.; Rahola, T.; Tillander, M. Contribution of different foodstuffs to the internal exposure of rural inhabitants in Russia after the Chernobyl accident. *Radiat. Prot. Dosim.* **2001**, 93 (4), 331–339.

U. S. Embassy. American Citizen Services: Radiation, Health and Food Safety Information Post-Fukushima. Embassy of the United States Tokyo Japan **2014**, available: <http://japan2.usembassy.gov/e/acs/tacs-health.html>, online: August 2014.

Uematsu, M.; Merrill, J. T.; Patterson, T. L.; Duce, R. A.; Prospero, J. M. Aerosol residence times and iodine gas/particle conversion over the North Pacific as determined from Chernobyl radioactivity. *Geochem. J.* **1988**, 22, 157–163.

Ungar, K.; Zhang, W.; Aarnio, P.; Ala-Heikkila, J.; Toivonen, H.; Siiskonen, T.; Isolankila, A.; Kuusi, A.; Moring, M.; Nikkinen, M. Automation of analysis of airborne radionuclides observed in Canadian CTBT radiological monitoring networks using LINSSI. *J. Radioanal. Nucl. Ch.* **2007**, 272 (2), 285–291.

United Nations. Sources and effects of Ionising Radiation (Report to the General Assembly); Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR): New York, **2000**.

UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York **2008**, Volume II, Scientific Annexes C, D and E, pp. 57, 82, 103, 109, 115.

UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York **2013**, Volume I, Scientific Annex A, pp. 9, 10, 11, 40, 43, 77, 88, 248.

Van Middlesworth, L. Iodine-131 in sheep before and after a nuclear reactor accident. *Nature* **1958**, 181, 256.

Van Middlesworth, L. World-wide distribution of iodine-131 in animal thyroids following announcements of isolated nuclear weapons tests in North Africa. *Nature* **1960**, 188, 748–749.

Van Middlesworth, L. Factors Influencing the thyroid uptake of iodine isotopes from nuclear fission – A review. *Health Phys.* **1963**, 9, 1197–1211.

WHO. Health Effects of the Chernobyl Accident and Special Health Care Programs. World Health Organization, Geneva **2006**, p. 96.

WHO. Health risk assessment from the nuclear accident after the 2011 Great East Japan earthquake and tsunami, based on a preliminary dose estimation. World Health Organization, Geneva **2013**, pp. 84, 85, 90, 91, 92.

WNA. Fukushima Accident. World Nuclear Association **2014**, available: <http://www.world-nuclear.org/info/safety-and-security/safety-of-plants/fukushima-accident/>, online: Juli 2014.

Yasuda, T.; Kakinuma, T.; Tamada, T.; Tsujimoto, G. Field survey and numerical analysis of 2011 tohoku earthquake tsunami in the northern part of Miyagi, Japan. Proceedings of the Coastal Engineering Conference **2012**, ICCE 2012, Santander, Spain.

Ylipietti, J.; Rissanen, K.; Kostianen, E.; Salminen, R.; Tomilina, O.; Täht, K.; Gilucis, A.; Gregorauskiene, V. Chernobyl fallout in the uppermost (0–3 cm) humus layer of forest soil in Finland, North East Russia and the Baltic countries in 2000–2003. *Sci. Total Environ.* **2008**, 407, 315–323.

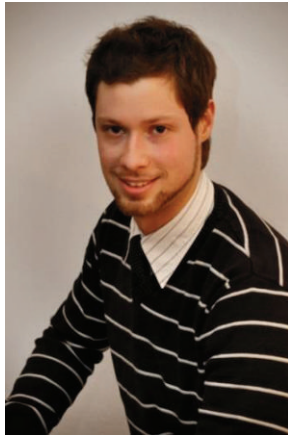
Zhdanova, N. N.; Zakharchenko, V. A.; Haselwandter, K. Radionuclides and fungal communities. In *The Fungal Community*, 3rd ed.; Dighton, J., White, J. F., Oudemans, P., Eds.; CRC Press: Boca Raton, **2005**, 759–768.

Zheng, J.; Tagami, K.; Watanabe, Y.; Uchida, S.; Aono, T.; Ishii, N.; Yoshida, S.; Kubota, Y.; Fuma, S.; Ihara, S. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident. *Sci. Rep.* **2012**, 2, 304.

Zheng, J.; Tagami, K.; Uchida, S. Release of plutonium isotopes into the environment from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident: What is known and what needs to be known. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47, 9584–9595.

Zheng, J.; Tagami, K.; Bu, W.; Uchida, S.; Watanabe, Y.; Kubota, Y.; Fuma, S.; Ihara, S. $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotopic ratio as a new tracer of radiocesium released from the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.* **2014**, 48 (10), 5433–5438.

Curriculum vitae – Stefan Merz



Particulars

Title	Dipl.-Ing.
Institution	Vienna University of Technology/Institute of Atomic & Subatomic Physics
Address	Stadionallee 2, 1020 Vienna, Austria
E-Mail	merz@ati.ac.at
Telephone	+43 660 8141786
Date/Place of Birth	May 17, 1984 in Vienna
Nationality	Austrian

Education

Since 03/2011

PhD student, Vienna University of Technology

03/2011

3rd diploma examination of “Technical Physics”, passed with distinction

06/2009

Invitation TUtheTOP 2009/2010 (High Potential Program Vienna University of Technology)

02/2009

2nd diploma examination of “Technical Physics”, passed with distinction

05/2005

1st diploma examination of “Technical Physics”, passed

2002

School leaving examination, Bundesrealgymnasium Wien 18, passed with distinction

Work experience

since 06/2014

MAGNA Powertrain AG & Co KG, full employment, Project Manager

03/2012 – 06/2014

MAGNA Powertrain AG & Co KG, full employment, System Test Engineer

09/2011 – 03/2012

Project collaborator at the Vienna University of Technology, Institute of Atomic & Subatomic Physics

05/2011

Collaborator in the RASE-Project (Replicative Assessment of Spectrometric Equipment) by the IAEA (International Atomic Energy Agency)

02/2010

Revision at the nuclear power plant Grohnde, Company Ing. Mühlegger Erwin GmbH

03/2008 – 03/2012

Logistikpark 19 GmbH, minor employment, consignment and logistics

Academic CV – Stefan Merz

Publications

Book contributions

2011 Co-Authorship: H. Böck, M. Gerstmayr, E. Radde, 2011. Kernfrage Atomkraft: Was passiert, wenn etwas passiert, Goldegg Verlag, Vienna.

Peer-reviewed journal publications

2015 S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser. Analysis of Japanese radionuclide monitoring data of food before and after the Fukushima nuclear accident. Environmental Science & Technology 49/2015, 2875–2885.

S. Merz, K. Shozugawa, G. Steinhauser. Effective and ecological half-lives of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in wheat and rice in Japan. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, in press, DOI: 10.1007/s10967-015-4352-6.

2013 G. Steinhauser, S. Merz, D. Hainz, J.H. Sterba. Artificial radioactivity in environmental media (air, rainwater, soil, vegetation) in Austria after the Fukushima nuclear accident. Environmental Science and Pollution Research 20/2013, 2527-2534.

G. Steinhauser, S. Merz, J.H. Sterba. Instrumental Neutron Absorption Activation Analysis. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 296/2013, 165-168.

S. Merz, G. Steinhauser, N. Hamada. Anthropogenic radionuclides in Japanese food: environmental and legal implications. Environmental Science & Technology 47/2013, 1248-1256.

2012 G. Steinhauser, S. Merz, A. Küber-Heiss, C. Katzlberger. Using animal thyroids as ultra-sensitive biomonitors for environmental radioiodine. Environmental Science & Technology 46/2012, 12890–12894.

G. Steinhauser, S. Merz, F. Stadlbauer, P. Kregsamer, C. Strel, M. Villa. Performance and comparison of gold-based neutron flux monitors. Gold Bulletin 45/2012, 17-22.

2011 S. Merz, M. Djuricic, M. Villa, H. Böck, G. Steinhauser, 2011. Neutron flux measurements at the TRIGA reactor in Vienna for the prediction of the activation of the biological shield. Applied Radiation and Isotopes 69/2011, 1621 – 1624.

Minor journal publications

- 2012 G. Steinhauser, M. Villa, N. Bernt, H. Böck, M. Chudy, M. Gerstmayr, J. Handsteiner, D. Hainz, M. Hajek, T. Kulenkampff, R. Langedegger, S. Merz, R. Mischitz, A. Musilek, E. Radde, H. Rauch, M. Salletmaier, J. Srajer, J.H. Sterba, C. Stettner, M. Veit, 2011. Information management of the Fukushima reactor accident in Austria by the Vienna University of Technology. *Disaster Advances* 5/ 2012, 61-63.
- 2011 S. Merz, N. Bernt, H. Böck, M. Chudy, M. Gerstmayr, D. Hainz, J. Handsteiner, T. Kulenkampff, A. Musilek, E. Radde, H. Rauch, M. Salletmaier, J. Schmiedmayer, J. Srajer, G. Steinhauser, J. H. Sterba, C. Stettner, M. Veit, M. Villa. Das Fukushima Infocenter am Atominstitut. *Strahlenschutz aktuell* 45(1)/2011, 45- 49.

Online Publications

- 11/2011 Online-Publication of the diploma thesis by the environmental protection department of Vienna – MA22;
<http://www.wien.gv.at/umweltschutz/nachhaltigkeit/preistraegerinnen.html>

Oral presentations

- 03/2012 S. Merz, G. Steinhauser, D. Hainz, 2012. Monitoring of the environmental pathways of radionuclides released after the Fukushima reactor accident in Austria. *Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry (MARC IX)*, Kona, Hawaii.
- 09/2010 S. Merz, M. Djuricic, G. Steinhauser, M. Villa, H. Böck, 2010. Rückbaurelevante Neutronenflussmessungen am TRIGA Mark II Reaktor der Atominstututs. 6th Workshop RCA & 23. Seminar Aktivierungsanalyse, Dresden-Rossendorf.

Awards

- 11/2011 Diploma thesis awarded with the „Wissenschaftlichen Förderpreis der Wiener Umweltschutzabteilung 2011“ by the environmental protection department of Vienna – MA22

Patents

- 2010 G. Steinhauser, S. Merz, M. Villa (2010) AT-patent 509490; Application no. A 706/2010: Neutronenflussmonitor

Public relations

- 03-04/2011 Voluntary collaboration in the Info-Center of the Institute of Atomic & Subatomic Physics of the Vienna University of Technology, replying to digital and telephonic requests of private individuals and public authorities concerning the nuclear power accident in Fukushima

