

## FISCH UND UMWELT

# Entweicht Radioaktivität aus den Abfallfässern im nordostatlantischen Versenkungsgebiet?

Günter Kanisch, Hans-Jürgen Kellermann, Alois Krüger, Michael Vobach,  
Institut für Fischereiökologie

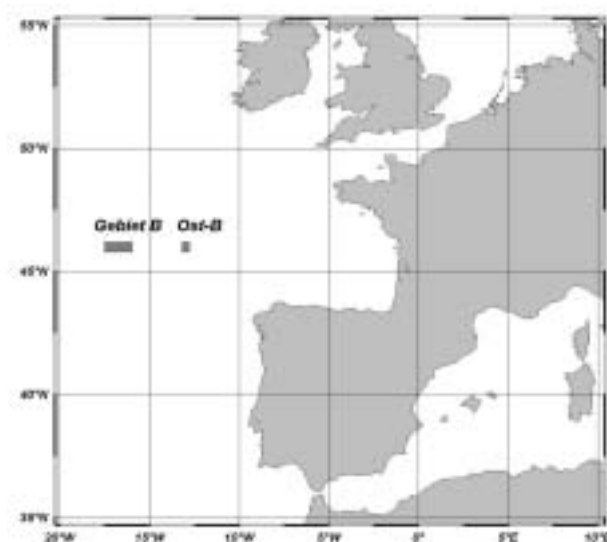
Das ehemalige nordostatlantische Versenkungsgebiet für schwach- und mittelradioaktive Stoffe liegt rund 700 km nordwestlich der spanischen Küste. Von 1971 bis 1982 ist dort Material mit insgesamt etwa 35 Peta-Bequerel ( $35 \times 10^{15}$  Bq) an Radioaktivität in rund 130 000 Fässern versenkt worden (IAEA 1999).

Die in Proben aus dem nordostatlantischen Versenkungsgebiet (NEA-(Northeast Atlantic)-Versenkungsgebiet gemessene Radioaktivität stammt nicht nur aus den versenkten Fässern. Ebenso wie überall auf der Erde, ist auch dort der „Fallout“ früherer Kernwaffentests zu finden. Radionuklide, die aus verschiedenen Quellen stammen können, verraten nichts über ihre Herkunft. Zum Abschätzen der Anteile aus verschiedenen Quellen können Aktivitätsverhältnisse von Radionukliden herangezogen werden. Es gibt unterschiedliche Aktivitätsverhältnisse für Reststoffe des „Fallouts“ und für die aus friedlicher Kerntechnik. Die Gegenüberstellung der Verhältnisse der Plutoniumisotope Pu-238 und der Summe aus Pu-239 und Pu-240 (Pu-238/Pu-238,240) in Benthos Proben aus dem Versenkungsgebiet und aus Referenzgebieten ohne getätigte Versenkungen gibt einen deutlichen Hinweis. Im Untersuchungszeitraum von 1980 bis 2000 wird diese Verhältnis ab 1986 für die Proben aus dem Versenkungsgebiet signifikant größer. Aus den versenkten Fässern freigesetzte Radioaktivität wird als Ursache dafür angesehen.

Seit 1979 hat das Institut für Fischereiökologie, anfangs jährlich, später dreijährlich, radioökologische Untersuchungen im NEA-Versenkungsgebiet (unser Arbeitsgebiet B, Abbildung 1) für schwach-radioaktiven Abfall sowie in Vergleichsgebieten durchgeführt. Ergebnisse dieser Arbeiten wurden bereits früher veröffentlicht (Feldt et al.1985; Feldt et al. 1989).

In den letzten 10 Jahren wurde das Untersuchungsprogramm weitgehend auf das aus großen Tiefen entnom-

mene Seewasser sowie die in unmittelbarer Sedimentnähe entnommenen Benthos-Organismen sowie die in Sedimentnähe gefangenen Fische und andere fischähnliche Organismen (bathypelagisches Nekton) reduziert.



Gebiet		Rechteck
Arbeitsgebiet	B	45°50' N / 17°30' W 46°10' N / 16°00' W
Referenzgebiet	Ost-B	45°50' N / 13°15' W 46°10' N / 12°45' W

Abbildung 1: Arbeitsgebiete in der Iberischen Tiefsee.  
*Study areas in the Iberian Deep Sea.*

Tabelle 1: In der Literatur dokumentierte Aktivitätsverhältnisse von Cäsium237/Strontium90 und Plutonium238/239/240 im Meerwasser.

Activity ratios of caesium237/strontium90 and plutonium238/239/240 in seawater, documented in literature.

Cs-137/Sr-90:	1,45 1,48 1,50	1972-1973 1990 2000	(OECD/NEA 1985, Annex I)  (Der Wert 1,5 wird auch von Livingston und Povinec (2000) angeführt.)
Pu-238/Pu-239,240:	0,036		Für das Jahr 1983; in 40–50° N, beinhaltet auch den SNAP-9A-Satellitenabsturz (Pentreath 1988)
Pu-240/Pu-239: Atomanzahlen-Verhältnis: Aktivitäts-Verhältnis:	0,180 ± 0,007 (1σ) 0,662 ± 0,026 (1σ)		Nördliche Hemisphäre (Kelley et al. 1999)
Pu-241/Pu-239,240:	12–16		Aktivitätsverhältnis, bezogen auf 1.1.1962 (Roos et al. 1994)

Tiefseeorganismen werden als sehr empfindliche Indikatoren für in der Tiefsee vorhandene Radionuklide betrachtet. So sind z. B. Seegurken (*Holothuroidea*) sehr gute Indikatoren für die in der oberen Sedimentschicht vorhandenen Radionuklide, da sie auf dem Sediment leben, die obere Sedimentschicht aufnehmen und später wieder ausscheiden. Seegurkenproben bestehen daher zum größeren Teil aus Sediment. Seeanemonen (*Actiniaria*) sind mit einem Fortsatz im Sediment verankert, entnehmen ihre Nahrung jedoch aus dem an ihrem Standort vorbeifließenden Wasser. Seesterne (*Asteroida*) leben ebenfalls auf dem Sediment. Prominente Vertreter des Bathypelagials sind vor allem die Grenadierfische (*Macrouridae*; es sind „Rundfische“), die eine Gesamtlänge von über 80 cm erreichen können, sowie die deutlich kleineren Tiefseeaale (*Synaphobranchidae*).

### Erstellen von Zeitreihen

Eine besondere Schwierigkeit bei der Erstellung der Zeitreihen ergab sich daraus, dass von 1984 bis 1990 bei der Probenahme mit dem Agassiz-Schlitten jeweils mindestens einmal eins von den im NEA-Versenkungsgebiet B versenkten Fässern mit radioaktivem Abfall an Bord des Schiffes geholt wurde. Dies führte leider zu Kontaminationen auch solcher Proben, die auf nachfolgenden Stationen an Bord geholt wurden. Bei der Aufarbeitung der Proben später im Labor traten auch Querkontaminationen auf. Da wir bei der vorliegenden Auswertung hauptsächlich daran interessiert sind, Unterschiede zwischen Versenkungsgebiet und Vergleichsgebieten zu erkennen, oder Abweichungen vom globalen Fallout, die auf eine Auswirkung der versenkten Radioaktivität schließen lassen würden, mussten alle derartige Kontaminationen von Proben oder auch nur bestimmter Radionuklide einer Probe gefunden und ausgeschlossen werden. Dies führte letztlich dazu, dass gerade aus den 80er Jahren oft nur noch wenige Proben oder Radionuklidwerte eines Jahres für die Auswertung übrig blieben.

Sehr oft wurden – wegen kleiner Einzelprobenmassen – Proben des gleichen Typs von mehreren Stationen eines Arbeitsgebietes zu einer Mischprobe zusammengefasst. In fast allen Fällen enthielt eine zu untersuchende Probe mehrere Individuen.

### Aktivitätsverhältnisse als Indikatoren

Besondere Beachtung bei dem Versuch, die Herkunft von Radionukliden in der marinen Umwelt festzustellen, finden die Aktivitätsverhältnisse von Radionukliden. Für die überaus dominierende Quelle von Radionukliden im Meer, den globalen Fallout, sind solche Verhältnisse genau bekannt. Bei Abweichungen von diesen kann der Einfluss einer weiteren Quelle vermutet werden. Für das Meerwasser (Nordatlantik) sind die Aktivitätsverhältnisse gut dokumentiert (Tabelle 1).

Durch biogeochemische Prozesse in der Wassersäule bedingt, können sich diese Aktivitätsverhältnisse im Meerwasser, abhängig auch von der Tiefe in der Wassersäule, ändern. Im Meerwasser gelöste Pu-Isotope,

#### Does radioactivity leak from waste barrels in the NEA-Dumping-Site?

Radioactivity measured in samples from the NEA-Dumping-Site not only emanated from dumped barrels. Just as everywhere on the world also fallout from former nuclear weapon tests can be found there. Radionuclides which can emanate from different sources do not tell anything about their origin. To assess the fractions from various sources activity ratios from radionuclides can be used. There are different activity ratios for fallout and for waste from peaceful nuclear power engineering. The comparison of the ratios of the plutonium isotopes Pu-238 and the sum of Pu-239 and Pu-240 (Pu-238/Pu-239,240) in benthic samples from the dumping site and from reference sites without waste dumping gives a clear hint. In the sampling period from 1980 to 2000 for samples from the dumping site this ratio increases significantly from 1986 on. Radioactivity emanating from the dumped barrels is regarded as causing this.

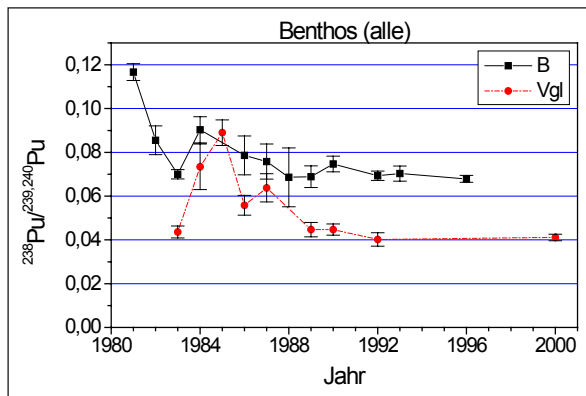


Abbildung 2: Zeitreihen der Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 in zu „Benthos (alle)“ zusammengefaßten Proben im NEA-Versenkungsgebiet B und den zu „Vgl“ zusammengefaßten Vergleichsgebieten.

*Time series of the activity ratios Pu-238/Pu-239,240 in to „Benthos (alle)“ pooled samples from the NEA-Dumping-Site B and in those to „Vgl“ pooled from reference areas.*

sowie noch stärker Am-241, lagern sich an Partikel an, die durch den vertikalen Transport, abhängig von der Teilchengröße, verschieden schnell in die Tiefe transportiert werden. Dabei ist davon auszugehen, dass von dem stärker an Partikeln haftenden Am-241 mehr Aktivität auf dem Sediment ankommt als von den Pu-Isotopen. Das Verhältnis Am-241/Pu-239,240 verschiebt sich dabei zu größeren Werten.

Die marinen Organismen nehmen die verschiedenen Radionuklide unterschiedlich stark auf. Da die Biota-Konzentrationsfaktoren in der Tiefsee nicht bekannt sind, sind, mit einer Ausnahme, für die Organismen der Tiefsee die auf den globalen Fallout zurückgehenden Aktivitätsverhältnisse nicht bekannt. Einzig das Akti-

vitätsverhältnis Pu-238/Pu-239,240 hat den unschätzbaren Vorteil, dass es weder durch biogeochemische Prozesse in der Wassersäule noch durch den Anreicherungsprozess in den Tiefsee-Biota verändert wird.

## Ergebnisse für Benthos Proben

Für das Verhältnis Pu-238/Pu-239,240 (Abbildung 2) ist in der ersten Hälfte der 80er Jahre kaum ein Unterschied zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet und den Vergleichsgebieten zu erkennen. Erst ab etwa Ende der 80er Jahre wird erkennbar, dass dieses Aktivitätsverhältnis im NEA-Versenkungsgebiet, mit einem Mittelwert bei etwa 0,07, größer ist als in den Vergleichsgebieten, wo es um 0,04 herum liegt. Die relativ kleinen in Abb. 2 dargestellten Messunsicherheiten werden nicht zusätzlich durch einen Beitrag der sogenannten „biologische Variabilität“ vergrößert, wie es sonst bei der Betrachtung von Messunsicherheiten bei Radionuklidaktivitäten zu beachten ist.

In Tabelle 2 sind sowohl für das NEA-Versenkungsgebiet B als auch für die Vergleichsgebiete die in Frage kommenden Jahresmittelwerte für Pu-238/Pu-239,240 dargestellt, die im Hinblick auf den radioaktiven Zerfall von Pu-238 einheitlich auf das Jahr 1990 bezogen wurden. Die durch Mittelung über die Jahre erhaltenen Mittelwerte (für Gebiet B und die Vergl.-Gebiete) wurden mit Hilfe der neueren, recht robusten Methode nach Cofino et al. (2000) berechnet, die ausdrücklich die Unsicherheiten der Jahresmittelwerte einzubeziehen gestattet.

Der Unterschied der Mittelwerte zwischen dem NEA-Versenkungsgebiet und den Vergleichsgebieten ist nach einem sehr einfachen „Chi-Quadrat-Test“ (vgl. Deber-

Tabelle 2: Auswertung der auf das Jahr 1990 bezogenen Aktivitätsverhältnisse Pu-238/Pu-239,240 in den zusammengefaßten Benthos-Proben („Benthos (alle)“) (N = Anzahl der Proben je Jahr; Mittelwert und dessen Standardabweichung mit der robusten Cofino-Statistik berechnet).

*Analysis of the activity ratios Pu-238/Pu-239,240 calculated for 1990 in the pooled Benthos samples („Benthos (alle)“). (N = number of samples per year; mean and standard error calculated with the robust Cofino-Statistic).*

NEA-Versenkungsgebiet B				Vergleichsgebiet Ost-B			
Jahr	N	Pu-238/ Pu-239,240	rel. Std.abw. (%)	Jahr	N	Pu-238/ Pu-239,240	rel. Std.abw. (%)
1987	10	0,0740	10,6	1987	6	0,0623	10,1
1988	5	0,0675	19,6	1989	5	0,0443	7,3
1989	8	0,0684	5,9	1990	12	0,0447	5,7
1990	5	0,0753	4,8	1992	12	0,0408	7,6
1992	12	0,0704	3,1	2000	6	0,0445	3,7
1993	17	0,0720	4,9				
1996	13	0,0712	2,3				
Mittelwert:		0,0715		Mittelwert:		0,0439	
Std.abw. d. Mittelw.:		± 0,0018		Std.abw. d. Mittelw.:		± 0,0013	

tin and Helmer, 1988) als signifikant zu betrachten. Der für die Vergleichsgebiete zu entnehmende mittlere Wert von etwa 0,044 weicht zwar mit rund 29% von dem auf das Jahr 1990 bezogene Literaturwert von 0,034 ab, liegt aber bedeutend näher am Literaturwert als der mittlere Wert von 0,072 aus dem Versenkungsgebiet „B“.

Daher bleibt als einzige Folgerung diejenige, dass Freisetzungen aus den im NEA-Versenkungsgebiet B versenkten Fässern mit radioaktivem Abfall die Ursache für das dort höhere Pu-238/Pu-239,240-Aktivitätsverhältnis sein müssen.

### Zitierte Literatur

- Cofino, W. P.; van Stokkum, I. H. M.; Wells, D. E.; Ariese, F.; Wegener, J.-W. M.; Peerboom, R. A. L., 2000: A new model for the inference of population characteristics from experimental data using uncertainties. Application to interlaboratory studies. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 53: 37–55.
- Debertin, K.; Helmer, R. G., 1988. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North-Holland, Amsterdam, 399 pp.
- Feldt, W.; Kanisch, G.; Kanisch, M.; Vobach, M., 1985: Radiocological studies of sites in the Northeast Atlantic used for dumping of low-level radioactive wastes - Results of the research cruises of FRV „Walther Herwig“ 1980-1984. *Arch. FischWiss.* 35(3): 91–195.
- Feldt, W.; Kanisch, G.; Vobach, M., 1989: Deep-sea biota of the Northeast Atlantic and their radioactivity. In: Nyffeler, F.; Simmons, W. (eds.): *Interim oceanographic description of the North-East Atlantic site for the disposal of low-level radioactive waste*. Vol. 3. Paris: Nuclear Energy Agency, p. 178–204.
- IAEA (International Atomic Energy Agency), 1999: *Inventory of radioactive waste disposals at sea*. IAEA TEC DOC 1105. Wien. ISSN 1011- 4289.
- Kelley, J. M.; Bond, L. A.; Beasley, T. M., 1999: Global distribution of Pu isotopes and <sup>237</sup>Np. *Sci. Total Environ.* 237/238: 483–500.
- Livingston, H. D.; Povinec, P. P., 2000: Anthropogenic marine radioactivity. *Ocean Coastal Manag.* 43: 689–712.
- OECD/NEA, 1985: *Review of the continued suitability of the dumping site for radioactive waste in the North-East Atlantic*. Paris: Nuclear Energy Agency, 448 pp.
- Pentreath, R. J., 1988: Sources of artificial radionuclides in the marine environment. In: J. C. Guary; P. Guegueniat; Pentreath, R. J. (eds.): *Radionuclides: A tool for oceanography*. London: Elsevier Appl. Sci., p. 12–34.