



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz  
und Reaktorsicherheit

# SCHRIFTENREIHE REAKTORSICHERHEIT UND STRAHLENSCHUTZ

## ABLEITUNG VON RADIOÖKOLOGISCHEN PARAMETERN AUS DEM LANGFRISTIGEN EINTRAG VON IOD-129

BMU - 2004-650



WIR STEuern UM AUF ERNEUERBARE ENERGIEN.

**BMU – 2004-650**

**„Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem  
langfristigen Eintrag von IOD-129“**

R. Michel <sup>a</sup>, K.Klipsch <sup>a</sup>, Th. Ernst <sup>a</sup>, M. Gorny <sup>a</sup>, D. Jakob <sup>a</sup>,  
J. Vahlbruch <sup>a</sup>, H.-A. Synal <sup>b</sup>, C. Schnabel <sup>c,d,e</sup>

<sup>a</sup> Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR)  
Universität Hannover, Herrenhäuser-Str. 2, 30419 Hannover

<sup>b</sup> Paul Scherrer Institut (PSI),c/o Institut für Teilchenphysik,  
ETH Hönggerberg, CH-8093 Zürich, Schweiz

<sup>c</sup> Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, CH Zürich, Schweiz

<sup>d</sup> Labor für Radio- und Umweltchemie, Universität Bern, Schweiz

<sup>e</sup> Scottish Universities Environmental Research Centre, Scottish Enterprise Technology Park,  
East Kilbride G 75 0QF, UK

## **IMPRESSUM**

Dieser Band enthält einen Abschlussbericht über ein vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) gefördertes Vorhaben. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BMU übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der Auftragnehmer wieder und muss nicht mit der des BMU übereinstimmen.

### **Herausgeber:**

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Arbeitsgruppe RS I 1  
Postfach 12 06 29  
53048 Bonn

ISSN 1612-6386

Erscheinungsjahr: 2004

# Abschlussbericht Vorhaben StSch 4285

## Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129

R. Michel<sup>a,\*</sup>, K. Klipsch<sup>a</sup>, Th. Ernst<sup>a</sup>, M. Gorny<sup>a</sup>, D. Jakob<sup>a</sup>, J. Vahlbruch<sup>a</sup>,  
H.-A. Synal<sup>b</sup>, C. Schnabel<sup>c,d,e</sup>

<sup>a</sup> Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR),  
Universität Hannover, Herrenhäuser Str. 2, D-30419 Hannover, Germany

<sup>b</sup> Paul Scherrer Institut (PSI), c/o Institut für Teilchenphysik,  
ETH Hönggerberg, CH-8093 Zürich, Schweiz

<sup>c</sup> Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, CH-8093 Zürich, Schweiz

<sup>d</sup> Labor für Radio- und Umweltchemie, Universität Bern, Schweiz

<sup>e</sup> Scottish Universities Environmental Research Centre,  
Scottish Enterprise Technology Park, East Kilbride G75 0QF, UK

Hannover, August 2004

"Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) übereinstimmen."

## Abstract

In this project, the distribution and behaviour of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in the environment and its pathways through the environment to man were comprehensively investigated in order to provide a basis for estimating the radiation exposure to man due to releases of  $^{129}\text{I}$ . To this end, the actual situation in Lower Saxony, Germany, was studied for exemplary regions near to and far from the coast of the North Sea. Accelerator mass spectrometry, radiochemical neutron activation analysis, ion chromatography, and ICP-MS were applied to measure the iodine isotopes,  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$ , in sea-water, air, precipitation, surface and ground waters, soils, plants, animals, foodstuffs, total diet, and human and animal thyroid glands. For air-borne iodine, the speciation as well as the particle size distribution of aerosols was determined. Soil depth profiles were investigated down to depths of 2.5 m in order to study the iodine migration as well as individual surface soil samples to allow for the determination of transfer factors of the iodine isotopes into plants. From the analytical results radioecological parameters for the long-term behaviour of  $^{129}\text{I}$  in the pedo- and biosphere were derived.

The iodine isotopes are in severe disequilibrium in the different environmental compartments. The pre-nuclear equilibrium  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio in the biosphere was determined to be  $2.0 \times 10^{-13}$  with a geometric standard deviation of 1.39. Today, the environmental isotopic ratios in Northern Germany range from  $10^{-6}$  to  $10^{-10}$ . The highest ratios are found in North Sea water, the lowest in deep soil samples and ground water. The North Sea appears as the dominant source of air-borne iodine in Northern Germany due to the emissions of European reprocessing plants. The results are discussed with respect to their radiological relevance and in view of the general protection of the environment, i.e. air, water, soil and the biosphere.

In diesem Vorhaben wurde das Verhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in der Umwelt und seine Wege durch die Umwelt zum Menschen umfassend untersucht, um eine Grundlage für eine zuverlässige Bestimmung der Strahlenexposition bei  $^{129}\text{I}$ -Freisetzungen zu schaffen. Dazu wurden für die aktuelle Situation in Niedersachsen exemplarische küstennahe und –ferne Standorte betrachtet. Es wurden  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Meerwasser, Luft (Iod-Speziation und Teilchengrößenverteilung), Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Boden, pflanzlichen Nahrungs- und Futtermitteln, tierischen Nahrungsmitteln, pflanzlichen Produkten und tierische Nahrungsmittel von Waldstandorten, Gesamtnahrung sowie menschliche und tierische Schilddrüsen mittels radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse, Beschleunigermassenspektrometrie, Ionenchromatographie und ICP/MS untersucht. An Bodenprofile wurde die Migration bis zu einer Tiefe von 2,5 m studiert. Die gleichzeitige Analyse von Oberböden zu Pflanzen erlaubte die Bestimmung von Transferfaktoren. Aus den Analyseergebnissen wurden radioökologische Parameter für das langfristige Verhalten von  $^{129}\text{I}$  in der Pedo- und Biosphäre abgeleitet.

Die Ergebnisse zeigen, dass sich die Iod-Isotope,  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ , in den verschiedenen Umweltkompartimenten in extremem Ungleichgewicht befinden. Das natürliche prä-nukleare Gleichgewichts-isotopenverhältnis in der terrestrischen Biosphäre liegt bei  $2 \cdot 10^{-13}$ . In Umweltproben aus Norddeutschland liegen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Bereich von  $10^{-6}$  bis  $10^{-10}$ . Die höchsten Verhältnisse werden in Nordseewasser, die niedrigsten in tieferen Bodenhorizonten und in Grundwasser beobachtet. Als Folge der Emissionen aus Europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen erscheint die Nordsee derzeit als dominierende Quelle des  $^{129}\text{I}$ -Eintrags in Norddeutschland. Die Ergebnisse werden in Bezug auf ihre radiologische Relevanz und auf einen umfassenden Schutz der Umwelt, d.h. Luft, Wasser, Boden und Biosphäre, diskutiert.

# Inhaltsverzeichnis

## Zusammenfassung

- 1 Einleitung
  - 1.1 Natürliche und künstliche Iod-Isotope
  - 1.2 Iod-129: Vorkommen und Relevanz
  - 1.3 Iod-131 in der Umwelt
- 2 Aufgabenstellung
- 3 Radioökologie radioaktiver Iod-Isotope
  - 3.1 Radioökologische Modelle und Parameter
  - 3.2 Szenarien für Iod-129
  - 3.3 Design der Untersuchung
- 4 Experimentelles
  - 4.1 Probennahme
    - 4.1.1 Generelle Überlegungen
    - 4.1.2 Nordseewasser
    - 4.1.3 Luft
    - 4.1.4 Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser
    - 4.1.5 Boden
    - 4.1.6 Futtermittel
    - 4.1.7 Getreide
    - 4.1.8 Gemüse
    - 4.1.9 Fleisch
    - 4.1.10 Milch
    - 4.1.11 Gesamtnahrung
  - 4.2 Analytik
    - 4.2.1 Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse
    - 4.2.2 Beschleunigermassenspektrometrie
    - 4.2.3 Ionenchromatographie
    - 4.2.4 ICP-MS
    - 4.2.5 Probenaufbereitung
  - 4.3 Auswertung und Qualitätskontrolle
    - 4.3.1 Messunsicherheiten und charakteristische Grenzen
    - 4.3.2 Blindwerte

#### 4.3.3 Analyse von Referenzmaterialien

### 5 Iod-129 in der Umwelt

#### 5.1 Natürliche und anthropogene Quellen von Iod-129

#### 5.2 Die prä-nuklearen Iod-Isotopenverhältnisse

#### 5.3 Emissionen von anthropogenem Iod-129

#### 5.4 Iod-129 und Iod-127 in Umweltproben aus den Jahren 1999 bis 2004

##### 5.4.1 Nordsee

##### 5.4.2 Luft

##### 5.4.3 Niederschlag

##### 5.4.4 Oberflächen- und Grundwasser

##### 5.4.5 Boden

##### 5.4.6 Pflanzliche Nahrungsmittel und Futtermittel

##### 5.4.7 Tierische Nahrungsmittel

##### 5.4.8 Gesamtnahrung

##### 5.4.9 Pflanzliche Produkte von Waldstandorten

##### 5.4.10 Iod-129 in menschlichen und tierischen Schilddrüsen

### 6 Radioökologische Parameter

#### 6.1 Transfer von Iod-129 und Iod-127 durch die Nahrungskette

#### 6.2 Strahlenexposition durch anthropogenes Iod-129

### 7 Schlussfolgerung und Ausblick

#### Danksagung

#### Anhang

##### I Übersicht über die Probenahme

##### II Zusammensetzung der Gesamtnahrungsproben

##### III Zusammenfassung der Analysenergebnisse

#### Literaturnachweis

## Zusammenfassung

Iod-129 ( $T_{1/2} = 15,7$  Ma) ist das Radionuklid, dessen natürliche Vorkommen durch den Menschen weltweit am stärksten und nachhaltigsten verändert wurden. Obwohl es derzeit radiologisch nicht relevant ist, ist auch im Hinblick auf andauernde Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen eine umfassende Untersuchung seiner Radioökologie wünschenswert.  $^{129}\text{I}$  ist auch eines der kritischen Radionuklide bei Langzeitbetrachtungen von Endlagern. Bei Freisetzungen ist mit einem langsamen und kontinuierlichen Eintrag von  $^{129}\text{I}$  in die Biosphäre zu rechnen. Die bisherigen radioökologischen Parameter für radioaktives Iod wurden eher aus dem Verhalten des kurzlebigen  $^{131}\text{I}$  abgeleitet. Langfristige Transportprozesse konnten wegen der kurzen Halbwertszeit dieses Isotops nur unzureichend untersucht werden. In den vergangenen Jahren wurde gezeigt, dass der  $^{129}\text{I}$ -Pegel in der Umwelt durch Ableitungen insbesondere aus Wiederaufarbeitungsanlagen kontinuierlich ansteigt.

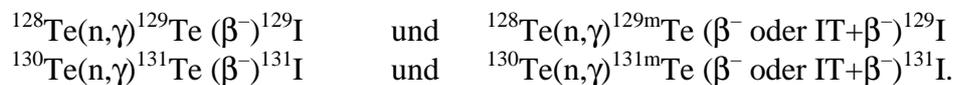
In diesem Vorhaben wurde das Verhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in der Umwelt und seine Wege durch die Umwelt zum Menschen umfassend untersucht, um eine Grundlage für eine zuverlässige Bestimmung der Strahlenexposition bei  $^{129}\text{I}$ -Freisetzungen zu schaffen. Dazu wurden für die aktuelle Situation in Niedersachsen exemplarische küstennahe und –ferne Standorte betrachtet. Es wurden  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Meerwasser, Luft, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Boden, pflanzlichen Nahrungs- und Futtermitteln, tierischen Nahrungsmitteln, pflanzlichen Produkten und tierischen Nahrungsmitteln von Waldstandorten, Gesamtnahrung sowie menschlichen und tierischen Schilddrüsen mittels radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse, Beschleunigermassenspektrometrie, Ionenchromatographie und ICP/MS untersucht.

Die Ergebnisse zeigen, dass sich die Iod-Isotope,  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ , in den verschiedenen Umweltkompartimenten in extremem Ungleichgewicht befinden. Das natürliche prä-nukleare Gleichgewichts-isotopenverhältnis in der terrestrischen Biosphäre liegt bei  $2 \cdot 10^{-13}$ . In Umweltproben aus Norddeutschland liegen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Bereich von  $10^{-6}$  bis  $10^{-10}$ . Die höchsten Verhältnisse wurden in Nordseewasser, die niedrigsten in tieferen Bodenhorizonten und in Grundwasser beobachtet. Die Nordsee zeigt sich als die dominierende  $^{129}\text{I}$ -Quelle für luftgetragenes Iod in Norddeutschland. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse unterscheiden sich in den verschiedenen atmosphärischen Spezies um etwa einen Faktor 10 und belegen die Komplexität des Iod-Transfers vom Meer in die Atmosphäre. Zeitreihen für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag zeigen einen jahrzehntelangen Anstieg der Isotopenverhältnisse bis in die 1990er Jahre und einen andauernden, in etwa konstanten Fallout von  $^{129}\text{I}$  von  $\sim 15 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  mit signifikanten Anteilen nasser und trockener Deposition. In Oberflächenwässern beobachtet man eine Verringerung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse durch Verdünnung mit dem Anteil des in Böden nur schwach gebundenen stabilen Iods. Transport mit Oberflächenwasser sowie durch Evaporation und Transpiration sind wesentliche Prozesse, die bei einer Bilanzierung des Iod-Kreislaufs zu berücksichtigen sind. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Bodenprofilen und Grundwässern belegen einerseits die hohe Mobilität von Iod und den Transport ins Grundwasser, zeigen aber andererseits auch, dass es zu Iod-Akkumulation in der ungesättigten Bodenzone kommt. Eine entscheidende Rolle beim Transfer der Iod-Isotope durch die Nahrungskette zu Mensch und Tier kommt den Böden zu, in denen eine Antikorrelation der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den Gehalten an stabilem Iod beobachtet wurde. Der Transfer von  $^{129}\text{I}$  durch die Nahrungsketten kann nur unter Berücksichtigung der Interaktion mit stabilem Iod verstanden werden. Dies zeigt sich auch in den Unterschieden der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen menschlichen und tierischen Schilddrüsen, die für Menschen in Norddeutschland derzeit mit einem Bereich von  $3 \cdot 10^{-8}$  bis  $5 \cdot 10^{-9}$  aufgrund längerer und komplexerer ökologischer Pfade um ca. eine Zehnerpotenz niedriger liegen als die von Pflanzen fressenden Tieren. Aus den Analyseergebnissen wurden radioökologische Parameter für das langfristige Verhalten von  $^{129}\text{I}$  in der Podo- und Biosphäre abgeleitet. Die Ergebnisse werden in Bezug auf ihre radiologische Relevanz und auf einen umfassenden Schutz der Umwelt, d.h. Luft, Wasser, Boden und Biosphäre, diskutiert.

# 1 Einleitung

## 1.1 Natürliche und künstliche Iod-Isotope

Für das Halogen Iod ( $Z = 53$ ) sind Isotope mit Massenzahlen zwischen 108 und 144 bekannt. Iod besitzt nur ein stabiles Isotop mit der Massenzahl 127. Von den protonenreichen Isotopen sind  $^{123}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 13,2 \text{ h}$ ) und  $^{125}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 59,41 \text{ d}$ ) für die medizinische Diagnostik und andere Markierungszwecke von Bedeutung. Sie werden durch Kernreaktionen geladener Teilchen an Beschleunigern erzeugt. Von den neutronenreichen Iod-Isotopen sind  $^{128}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 25 \text{ min}$ ),  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 15,7 \cdot 10^6 \text{ a}$ ) und  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 8,02 \text{ d}$ ) für die Spuren- und Tracer-Analytik und für die Medizin von Bedeutung. Die schwereren Iod-Isotope  $^{132}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 2,3 \text{ h}$ ),  $^{133}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 20,8 \text{ h}$ ) und  $^{135}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 6,61 \text{ h}$ ) sind lediglich im Hinblick auf potenzielle Strahlenexpositionen kurz nach einem nuklearen Unfall von Interesse. Durch Bestrahlung von stabilem Iod mit Neutronen entsteht das leichteste der neutronenreichen Iod-Isotope  $^{128}\text{I}$ . Die neutronenreichen Iod-Isotope  $^{129}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}$  können durch Bestrahlung von Tellur mit Neutronen über folgende Reaktionen erzeugt werden:



Die wichtigsten Produktionswege für neutronenreiche Iod-Isotope sind die spontane und die induzierte Spaltung von Aktinoiden. Außer  $^{128}\text{I}$  und  $^{130}\text{I}$ , die durch die stabilen Isotope  $^{128}\text{Te}$  bzw.  $^{130}\text{Te}$  gegenüber der Produktion durch Spaltung abgeschirmt sind, werden alle neutronenreichen Iod-Isotope und das stabile  $^{127}\text{I}$  bei der Spaltung erzeugt. Für die Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen liegen die Isobarenausbeuten zwischen 0,1233 % ( $A = 127$ ) und 6,751 % ( $A = 138$ ) (Abb. 1-1).  $^{131}\text{I}$  wird mit einer Spaltausbeute von 2,368 %,  $^{129}\text{I}$  mit einer Ausbeute von 0,74 % erzeugt. Für durch induzierte Spaltung von  $^{235}\text{U}$  erzeugtes Iod liegt das Isotopenverhältnis  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  liegt bei 6,06, das Isotopenverhältnis  $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$  bei 3,82. Bei der Spaltung von  $^{239}\text{Pu}$  wird  $^{129}\text{I}$  mit einer Spaltausbeute von 1,6 % erzeugt (England und Rieder, 1994).

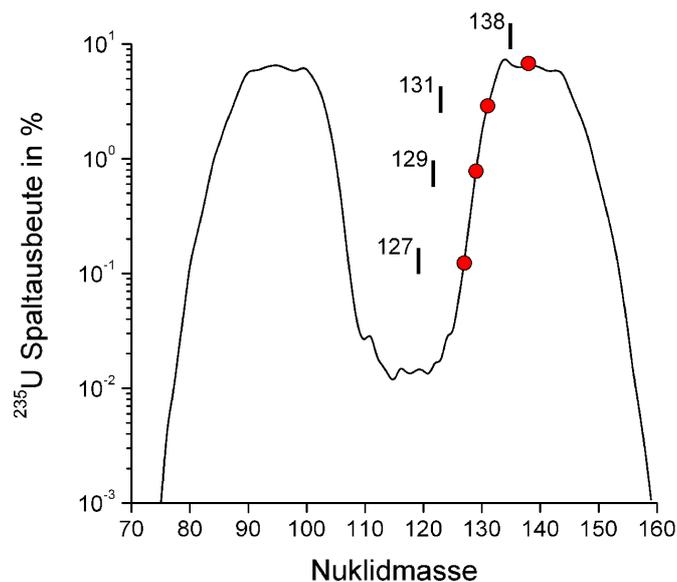


Abb. 1-1: Isobarenausbeute für die Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen

Schließlich können alle instabilen Iod-Isotope über Kernreaktionen geladener Teilchen mit schwereren Targetelementen erzeugt werden. So wird  $^{129}\text{I}$  z. B. in der Atmosphäre durch Wechselwirkung von Teilchen der galaktischen kosmischen Strahlung mit Xenon produziert.

Durch Spontanspaltung werden radioaktive Iod-Isotope auch in der Natur erzeugt. Dabei ist jedoch nur das langlebige  $^{129}\text{I}$  von Bedeutung. Wie andere langlebige Radionuklide kann es als natürlicher Tracer für Umweltprozesse wissenschaftlich genutzt werden; siehe hierzu die Übersichtsartikel von Finkel und Suter (1993) und von Michel (1999).

## 1.2 Iod-129: Vorkommen und Relevanz

Das langlebige Radionuklid  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 15,7 \text{ Ma}$ ) zerfällt über  $\beta^-$ -Zerfall mit einer  $\beta$ -Maximalenergie von 0,2 MeV unter Emission niederenergetischer  $\gamma$ -Strahlung mit einer  $\gamma$ -Energie von 39,58 keV bei einer Emissionswahrscheinlichkeit von 7,52 %.  $^{129}\text{I}$  entsteht in der Natur durch Spontanspaltung von Uran und durch Wechselwirkung der galaktischen kosmischen Strahlung mit Xenon-Kernen der Erdatmosphäre. Wie in Schmidt et al. (1998) ausführlich dargestellt, wird das gesamte  $^{129}\text{I}$ -Inventar der Erde auf etwa 50 000 kg (326,8 TBq) geschätzt. Dabei ist der größte Teil in der Lithosphäre gebunden und nur 263 kg (1,7 TBq) sind als „freies“ Inventar in Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre verfügbar. Die Hauptquellen für freies  $^{129}\text{I}$  sind mit jeweils etwa 45 % die Freisetzung aus Vulkanen und die Produktion durch die kosmische Strahlung. Die Verwitterung von Gesteinen trägt mit weniger als 10 % zum freien Inventar bei.  $^{129}\text{I}$  vermischt sich in der Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre mit stabilem  $^{127}\text{I}$ . Mehr als 99 % des freien  $^{127}\text{I}$ , etwa  $8 \cdot 10^{14} \text{ kg}$ , befindet sich in den Ozeanen und in jungen ozeanischen Sedimenten. Die meisten Autoren sind der Ansicht, dass das  $^{127}\text{I}$  der Atmosphäre und Biosphäre hauptsächlich aus diesen Quellen stammt (Miyake und Tsunogai, 1963; Kocher, 1981; Whitehead, 1984).

Das natürliche Gleichgewichtsisotopenverhältnis von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  wurde nach Modellrechnungen zu  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = (0,04\text{--}3,0) \cdot 10^{-12}$  abgeschätzt (Edwards, 1962; Edwards und Rey, 1968; Kohman und Edwards, 1966). In einem detaillierten Gleichgewichtsmodell schätzte Fabryka-Martin (1984) ein Verhältnis von  $5,5 \cdot 10^{-13}$  für die marine Hydrosphäre und für Böden und die terrestrische Biosphäre geringfügig höhere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $6,5 \cdot 10^{-13}$ . Messungen an rezenten ozeanischen Sedimenten ergaben Werte von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = \sim 1,5 \cdot 10^{-12}$  (Schink et al., 1995b; Moran et al., 1998); siehe hierzu Kapitel 5.2.

Die anthropogene Produktion von  $^{129}\text{I}$  begann mit der militärischen und zivilen Nutzung der Kernspaltung.  $^{129}\text{I}$  wurde durch oberirdische Kernwaffenexplosionen freigesetzt. Dadurch wurde das natürliche freie Inventar an  $^{129}\text{I}$  nach unterschiedlichen Schätzungen um zwischen 43 kg (0,28 TBq) und 150 kg (0,98 TBq) erhöht (Carter und Moghissi, 1977; UNSCEAR, 1982; Chamberlain, 1991; Eisenbud und Gesell, 1997). Die Unsicherheit dieser Schätzung beruht auf Widersprüchen in den Angaben der Gesamtsprengkraft der oberirdischen Kernwaffenexplosionen. Die größten Anteile an anthropogenem  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt stammen jedoch aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen.

Bis zum Jahr 2000 emittierten die europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen etwa 3 200 kg (23 TBq)  $^{129}\text{I}$  (Raisbeck und Yiou, 1995; Gray et al., 1995; Parker, 2001; Webmaster Cogema, 2001; BNFL, 1999; Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999), wobei ca. 70 % der Gesamtemission auf die französische Wiederaufarbeitungsanlage La Hague entfielen. Die Emissionen beider Anlagen erfolgten überwiegend über das Abwasser: ca. 85 % in Sellafield und ca. 97 % des  $^{129}\text{I}$  in La Hague. Große Mengen an anthropogenem  $^{129}\text{I}$  befinden sich noch in abgebrannten Brennelementen: 1990 wurde dieser Anteil auf etwa 5 660 kg (37 TBq) geschätzt (Finkel und Suter, 1993). Bisher liegen

weder Informationen über die Geschichte der Emissionen aus westlichen militärischen Wiederaufarbeitungsanlagen noch allgemein über Wiederaufarbeitungsanlagen der ehemaligen UdSSR oder anderer östlicher Staaten vor. Es existieren allerdings Berichte zu den Immissionen von  $^{129}\text{I}$  für die Umgebung von Hanford und für das West Valley [Moran et al., 1999].

Wie von Schmidt et al. (1998) ausführlich diskutiert, ist unsere Kenntnis der Vorkommen natürlichen und anthropogenen  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt noch sehr unvollständig. Bis heute hat sich diese Situation noch nicht wesentlich verändert. Dies ist in erster Linie darauf zurückzuführen, dass mit der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) seit 1962 für lange Jahre nur ein einziges Analysenverfahren zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben zur Verfügung stand. Untersuchungen beschränkten sich weitgehend auf die Umgebungen von Emittenten und beschrieben bestenfalls  $^{129}\text{I}$  in sog. Hintergrundgebieten, die nach heutiger Kenntnis allerdings bereits massiv vom Menschen beeinflusst waren. Das Problem bestand darin, dass die RNAA nicht empfindlich genug ist,  $^{129}\text{I}$  in seinem natürlichen Vorkommen zu bestimmen. Die Nachweisgrenze der RNAA liegt bei  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnissen von etwa  $10^{-10}$ , ca. zwei bis drei Zehnerpotenzen höher als das natürliche Isotopenverhältnis. Erst durch die Einführung der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS = accelerator mass spectrometry) wurde es möglich, die natürlichen  $^{129}\text{I}$  Vorkommen quantitativ zu erfassen. Blindwerte der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von  $< 10^{-14}$  wurden bei der AMS-Messung von AgI erreicht. Die Mehrzahl der AMS-Untersuchungen beschränkte sich jedoch auf die Ausnutzung von  $^{129}\text{I}$  als Tracer für Umweltprozesse und systematische Untersuchungen zur Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  fehlen weitgehend. Außerdem waren die Untersuchungen von gering kontaminierten Umweltproben mittels AMS meist auf die Analyse von Wasser und marinen Materialien beschränkt.

$^{129}\text{I}$  hat nach dem Reaktorunfall von Chernobyl eine besondere Bedeutung erlangt. Obwohl nur ca. 2 kg  $^{129}\text{I}$  bei dem Unfall emittiert wurden, ermöglicht die Untersuchung von  $^{129}\text{I}$  in Böden in hoch kontaminierten Bereichen der Ukraine, Weißrusslands und der Russischen Föderation Aussagen über die Depositionsdichte des kurzlebigen  $^{131}\text{I}$ , lange nachdem dieses zerfallen ist, und bietet damit eine Chance zur retrospektiven Dosimetrie der Schilddrüsenexposition nach dem Unfall (Straume et al., 1996; Pietrzak-Flis et al., 2003; Michel et al. 2003b).

$^{129}\text{I}$  ist im Hinblick auf Emissionen in die Umwelt und die daraus resultierende potenzielle Strahlenexposition eines der kritischen Radionuklide bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente und der Konditionierung radioaktiver Abfälle. Auch bei der Modellierung der Endlagerung radioaktiver Abfälle in geologischen Formationen hat sich  $^{129}\text{I}$  wegen seiner hohen Mobilität als eines der dosisrelevantesten Radionuklide für die Langzeitbetrachtungen erwiesen (NEA, 1999).

Die meisten derzeitigen Untersuchungen von  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt beschränken sich auf Beschreibungen aktueller oder vergangener Zustände. Bisher gibt es nur wenige experimentelle Arbeiten, die sich mit der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  beschäftigen:

- Schüttelkopf und Mitarbeiter (Schüttelkopf, 1975; 1980; Haisch und Schüttelkopf, 1993; Pel, 1993),
- Aumann und Mitarbeiter (Aumann, 1983; Aumann et al., 1981, 1985, 1987; Bittner, 1992; Deitmann et al., 1989; Grüner et al., 1994; Hausschild et al., 1985; Hauschild und Aumann, 1989; Krupp und Aumann, 1999; Robens und Aumann, 1988; Robens, 1986; Robens et al; 1988a, 1988b; Robens-Palavinskas et al., 1989; Schmitz und Aumann, 1995; Wershofen und Aumann, 1989),
- Handl und Mitarbeiter (Handl und Pfau, 1986; 1988; 1989; Handl et al., 1984, 1990, 1993; Handl, 1996);
- Muramatsu et al. (1984, 1985, 1986, 1988, 1989b, 1990a, 1990b, 1991a, 1991b, 1993, 1995a, 1995c, 1996a, 1996b, 1996c, 1999) und
- Hou et al. (1999, 2000a, 2000b, 2001, 2002, 2003a, 2003b).

Die meisten radioökologischen Parameter der heute für  $^{129}\text{I}$  benutzten Modelle wurden aus Untersuchungen des  $^{131}\text{I}$  in der Umwelt abgeleitet.

### 1.3 Iod-131 in der Umwelt

Radioaktives Iod ist besonders im Hinblick auf die von ihm verursachte Strahlenexposition und die dadurch bedingte Erhöhung des Risikos für Schilddrüsenkrebs von Bedeutung. In diesem Zusammenhang ist  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 8,02$  d) das dosisrelevante Nuklid. Wie in Kapitel 1.1 erwähnt, sind die kurzlebigeren Iod-Isotope  $^{132}\text{I}$ , das mit einer Halbwertszeit von 76,3 h aus dem Spaltprodukt  $^{132}\text{Te}$  nachgebildet wird, sowie  $^{133}\text{I}$  und  $^{135}\text{I}$  nur kurz nach einer Emission frischer Spaltprodukte dosisrelevant.

Mit der Entwicklung von Kernwaffen im Manhattan Projekt, der sich anschließenden nuklearen Aufrüstung und der damit verbundenen Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe, z. B. in Hanford und Oak Ridge, kam es zu routinemäßigen und störfallbedingten Emissionen, die noch heute Gegenstand retrospektiver dosimetrischer Untersuchungen sind; z. B. Soldat (1963), BIO-MASS (1999), Linsley (2002), IAEA (2003), Alexander et al. (1999).

Mit den oberirdischen Kernwaffenversuchen wurden frische Spaltproduktgemische in großem Umfang in die Umwelt emittiert; siehe z. B. UNSCEAR (1982). Eisenbud (1987) schätzte die gesamte Freisetzung von  $^{131}\text{I}$  durch oberirdische Kernwaffenexplosionen mit  $14 \cdot 10^9$  Ci ( $5,2 \cdot 10^{20}$  Bq) ab. Die dadurch verursachte großräumige Strahlenexposition der Bevölkerung ist z. B. in den USA bis heute Gegenstand der Diskussion, retrospektiver Dosimetrie und Risikoabschätzung; siehe z. B. Hoffman et al. (2002) und dort aufgeführte Literaturstellen. UNSCEAR (2000) beziffert den weltweiten Mittelwert der durch  $^{131}\text{I}$  aus den Kernwaffenversuchen verursachten Strahlenexposition durch Ingestion mit ca. 20  $\mu\text{Sv}$ . Nach Abschluss des Atomwaffensperrvertrages reduzierten sich die  $^{131}\text{I}$  Immissionen aus dem Kernwaffenfallout auf Einzelereignisse. Die weltweite Exposition durch  $^{131}\text{I}$  war nach 1980 vernachlässigbar.

Weitere Quellen für  $^{131}\text{I}$  in der Umwelt waren Reaktorunfälle und die Emissionen kerntechnischer Anlagen im Normalbetrieb. Im Jahr 1957 wurden bei einem Brand eines graphitmoderierten, luftgekühlten Brutreaktors in Windscale, UK etwa  $7 \cdot 10^{14}$  Bq  $^{131}\text{I}$  freigesetzt, die große Teile Nord-Cumbriens kontaminierten und ihren Weg in die Nahrungskette fanden; siehe Eisenbud (1978) und dort angegebene Literaturstellen. Die höchste, damals in Milch gemessene  $^{131}\text{I}$  Aktivitätskonzentration lag bei 46 kBq  $\text{L}^{-1}$ . Untersuchungen an Schilddrüsen von Schafen ergaben Aktivitätskonzentrationen von ca. 550 Bq  $\text{g}^{-1}$  im Vergleich zu 37 Bq  $\text{g}^{-1}$  vor dem Unfall. Bei dieser Angabe ist bemerkenswert, dass bereits vor dem Unfall aus dem Normalbetrieb der Anlage oder aus dem Kernwaffenfallout  $^{131}\text{I}$  in den Schilddrüsen nachweisbar war. Die Schilddrüsenexposition von Menschen in der Umgebung des Reaktors wurde zu 5 mSv bis 20 mSv für Erwachsene und 360 mSv für Kinder abgeschätzt. Als Kollektivdosis infolge des Reaktorunfalls werden 1 200 Personen-Sievert angegeben.

Im Jahr 1978 wurde beim Wiedereintritt des reaktorgetriebenen sowjetischen Satelliten „Cosmos 954“ dessen  $^{131}\text{I}$ -Inventar in Höhe von 181 TBq in der Atmosphäre freigesetzt. Es verblieben aber 75 % des Inventars in der oberen Atmosphäre und eine Kontamination von Luft, Wasser und Nahrungsmitteln konnte nicht nachgewiesen werden.

Im Jahr 1979 ereignete sich im Kernkraftwerk Three Mile Island, USA, eine nahezu vollständige Kernschmelze, bei der jedoch wegen des intakt gebliebenen Containments nur wenig Aktivität in

die Umwelt freigesetzt wurde. Über Primärkühlmittel, das vor gasdichtem Abschluss des Containments in ein Hilfsanlagegebäude gepumpt worden war, gelangten u. a. bis zu 1,1 TBq  $^{131}\text{I}$  in die Umwelt. Erhöhte, unfallbedingte  $^{131}\text{I}$  Aktivitätskonzentrationen konnten durch Immissionsmessungen in Luft, Wasser, sowie in Kuh- und Ziegenmilch nachgewiesen werden. Maximale Schilddrüsenexpositionen wurden nach dem Unfall von Three Miles Island mit 0,05 mSv abgeschätzt.

Am 26. April 1986 explodierte im Kernkraftwerk Chernobyl der Block 4 der Anlage. Zum Zeitpunkt des Unfalls hatte der Brennstoff dieses Blocks einen Abbrand von  $10,9 \text{ GW d t}^{-1}$ . Durch die einleitenden Explosionen, die nachfolgenden Brände und Emissionen des schmelzenden Reaktorkerns kam es zur Freisetzung von Radionukliden mit einer Aktivität von insgesamt 5 300 PBq, darunter 1 760 PBq  $^{131}\text{I}$ , 33 PBq  $^{137}\text{Cs}$ , 5 PBq  $^{90}\text{Sr}$  und 10 PBq verschiedener Plutonium-Isotope (UNSCEAR 2000). Vom insgesamt enthaltenen  $^{131}\text{I}$ -Inventar wurden ~55 % emittiert. UNSCEAR (2000) korrigierte damit die 1986 angegebene Einschätzung der Freisetzungen (IAEA, 1986; UNSCEAR, 1988) nach unten. Es wird jedoch darauf hingewiesen, dass die unterschiedlichen Daten über die emittierte Aktivität im Wesentlichen auf unterschiedlichen Bezugsdaten für die Angabe kurzlebiger Radionuklide beruht. Der zeitliche Verlauf der Gesamtemissionen war charakterisiert durch ca. 24 % Freisetzung am ersten Tag, durch ein anschließendes Absinken, eine Zunahme am 7. Tag aufgrund der ansteigenden Erhitzung des Reaktorkerns und eine abrupte Abnahme der Freisetzungen am 6. Mai.

Sowohl im Anteil an der Gesamtaktivität als auch im zeitlichen Verlauf der Freisetzungen zeigt sich eine ausgeprägte Differenzierung der verschiedenen Radionuklide aufgrund der physikalischen und chemischen Eigenschaften ihrer Elemente. So nimmt man eine 100-prozentige Emission der Edelgase an. Andere Radionuklide zeigen starke Differenzierung nach ihrer Flüchtigkeit. Von den flüchtigen Elementen, zu denen Tellur, Iod und Cäsium zu rechnen sind, wurden 30 % bis 50 % freigesetzt, mittelflüchtige Elemente, darunter Strontium und Ruthenium, zu ca. 5 % und schwerflüchtige, wie Molybdän, Zirkonium und einige Aktinoide, nur zu ca. 3 % des Inventars. Diese physikalisch-chemische Differenzierung der Freisetzungen setzte sich weiterhin im atmosphärischen Transport und in Fallout fort.

Von besonderer Bedeutung für die Strahlenbelastung der Bevölkerung waren die Freisetzungen radioaktiver Iod-Isotope. Insgesamt wurden etwa 1 760 PBq  $^{131}\text{I}$  freigesetzt, zusätzlich dazu die kurzlebigen Iod-Isotope  $^{132,133,135}\text{I}$  und Iod-Vorläufer wie  $^{132}\text{Te}$ . Die Isotopenzusammensetzung des Radioiods veränderte sich aufgrund des radioaktiven Zerfalls während der ersten 10 Tage um mehr als zwei Größenordnungen. Für  $^{131}\text{I}$  ist wegen der relativ kurzen Halbwertszeit von 8,04 d die Ausprägung des zweiten Maximums der Freisetzungen am 3. Mai deutlich geringer als in den Gesamtemissionen.

In den ersten Monaten nach dem Unfall war wegen der hohen  $^{131}\text{I}$  Freisetzungen die Schilddrüse das höchstexponierte Gewebe. Wegen der anfänglich sehr hohen und später geringeren  $^{131}\text{I}$  Freisetzungen wurden besonders Gegenden betroffen, in denen die radioaktiven Luftmassen relativ früh durchzogen bzw. es früh zu Niederschlägen kam. Der Hauptexpositions-pfad war der Ingestionspfad zusätzlich zu einer weniger bedeutenden Komponente durch Inhalation. Etwa 350 000 Messungen von  $^{131}\text{I}$  in Schilddrüsen wurden in der damaligen UdSSR mit sehr unterschiedlicher Qualität durchgeführt.

In Weißrussland muss man davon ausgehen, dass 466 600 Personen eine mittlere Schilddrüsendosis von 0,3 Gy erhielten. Dabei lag die mittlere Schilddrüsendosis von Kindern unter 18 Jahren deutlich höher. 46 700 Kinder erhielten Dosen von im Mittel 0,7 Gy.

Von besonderer Bedeutung ist die Altersabhängigkeit der Schilddrüsenexposition. Die Strahlenexposition der Schilddrüse ist für Kinder um Faktoren zwischen 2 und 10 höher als für Erwachsene. In allen Altersklassen liegen die individuellen Schilddrüsendosen in einem weiten Bereich von  $< 0,02$  Gy bis  $> 2$  Gy. Dies gilt nicht nur für die Bevölkerungen verschiedener Orte sondern auch für die Dosisverteilungen in einzelnen Orten. Sowohl für Kinder unter 7 Jahren als auch für die Gesamtbevölkerung lagen die Schilddrüsenbelastungen in ländlichen Gegenden um einen Faktor zwei höher als im städtischen Umfeld. Maximale Schilddrüsendosen werden in UNSCEAR (2000) zwar nicht direkt angegeben, überstiegen aber für mehr als 99 % der erwachsenen Bevölkerung wohl nicht 10 Gy.

Schätzungen der Schilddrüsendosis in hoch kontaminierten Gebieten der Russischen Föderation zeigten die höchsten mittleren Expositionen für die Region Bryansk, wo 60 000 Menschen mittlere Schilddrüsendosen von 0,04 Gy erhielten. Maximaldosen für Kinder im ersten Jahr werden mit 4 Gy angegeben (UNSCEAR, 2000).

Auch die Bevölkerung der Distrikte Narodici und Ovruch in den Regionen Zhitomir, Pripjat und Poleskoje in der nördlichen Ukraine erhielt ähnlich hohe Strahlenexpositionen durch  $^{131}\text{I}$  wie in Gomel, Mogilev und in Bryansk. Die höchsten mittleren Schilddrüsendosen werden für Kinder mit 1,7 Gy bis 2,7 Gy angegeben. Vergleiche der geschätzten mittleren Schilddrüsendosen mit den Ergebnissen individueller Messungen des  $^{131}\text{I}$ -Gehaltes von Schilddrüsen in diesen Gegenden zeigten wie in Weißrussland und in der Russischen Föderation eine hohe Variabilität der Individualdosen. Maximaldosen lagen auch in der Ukraine meist unter 10 Gy. Schilddrüsendosen von mehr als 2 Gy wurden lediglich bei Kindern unter 4 Jahren ermittelt (Likhtarev et al., 1996). Mittlere Schilddrüsendosen für die gesamte Bevölkerung der Ukraine von 12 450 000 Personen lagen bei 0,03 Gy. 1 725 000 Personen erhielten Schilddrüsendosen oberhalb 0,05 Gy, die mittlere Dosis lag bei dieser Bevölkerungsgruppe bei 0,15 Gy (UNSCEAR, 2000).

Nur begrenzte Informationen sind für die *in utero*  $^{131}\text{I}$  Exposition von Kindern verfügbar. Diese reichte bis 4,3 Gy, wobei für 135 Kinder weniger als 0,3 Gy, für 95 Kinder 0,3 Gy bis 1,0 Gy und für 20 Kinder Dosen von mehr als 1,0 Gy angegeben werden (UNSCEAR, 2000). Für die Unsicherheiten dieser Dosis-schätzungen werden geometrische Standardabweichungen von 1,7 bis 1,8 angeführt.

Etwa 4 Jahre nach dem Unfall wurde in Weißrussland ein signifikanter Anstieg von Schilddrüsenkrebs beobachtet, der vor allem bei Kindern auftrat, die zum Zeitpunkt des Unfalls unter 15 Jahren waren (Kazakov et al., 1992). Dieser mit den Schilddrüsendosen konsistente Anstieg wurde in unterschiedlichem Maße in Belarus, der Russischen Föderation und der Ukraine beobachtet. In Belarus stieg die Häufigkeit kindlichen Schilddrüsenkrebses von ca. 5 Fällen pro Jahr vor dem Unfall im ersten Jahrzehnt danach auf bis nahezu 90 Fällen pro Jahr im Jahr 1993. Die Anzahl aller Fälle kindlichen Schilddrüsenkrebses belief sich von 1986 bis 1998 auf 1036 Fälle (UNSCEAR, 2000).

Neben dem Fallout oberirdischer Kernwaffenexplosionen und unfallbedingten Freisetzungen sind folgende Quellen für  $^{131}\text{I}$  in der Umwelt zu nennen: Ableitungen von  $^{131}\text{I}$  mit Fortluft und Abwasser aus kerntechnischen Anlagen, Forschungslaboratorien und medizinischen Einrichtungen sowie Patienten, die nach diagnostischen oder therapeutischen Maßnahmen radioaktive Iod-Isotope ausscheiden.

Nach den Jahresberichten des BMU über die Radioaktivität in der Umwelt und die Strahlenexposition der Bevölkerung in der Bundesrepublik Deutschland, z. B. (BMU, 2002), kann folgende Einschätzung der  $^{131}\text{I}$  Emissionen gegeben werden. Kernreaktoren haben z. B. im Jahre 2001 zwischen 100 kBq und 0,4 GBq Spalt- und Aktivierungsprodukte außer Tritium pro Jahr mit dem Abwasser emittiert. Die Jahresgrenzwerte für diese Ableitungen liegen zwischen 30 und 200 GBq pro Jahr.

Das darin enthaltene  $^{131}\text{I}$  wird auf diesem Emissionspfad nicht näher spezifiziert. Über die Abluft wurden zwischen 40 kBq und 0,2 GBq pro Jahr von den deutschen Kernkraftwerken emittiert. Typische Jahresgrenzwerte für diese Ableitungen liegen bei 10 GBq.

Eine weitere Quelle von  $^{131}\text{I}$  in der Umwelt hat die medizinische Anwendung von  $^{131}\text{I}$  in Diagnostik und Therapie als Ursache. Die SSK hat für das Jahr 2000 die  $^{131}\text{I}$  Emissionen mit dem Abwasser aus nuklearmedizinischen Einrichtungen mit 2 GBq abgeschätzt. Die  $^{131}\text{I}$  Ausscheidungen von entlassenen und ambulanten Patienten der Nuklearmedizin betragen nach dieser Abschätzung im Jahr 2000 insgesamt 4 280 GBq, wobei 101 GBq auf Patienten nach diagnostischen Maßnahmen und 4 179 GBq auf therapierte Patienten nach Entlassung aus dem Krankenhaus entfallen. In diesen Daten sind nicht die  $^{131}\text{I}$  Ausscheidungen von Patienten berücksichtigt, die sich im Ausland einer ambulanten Iod-Therapie, die in Deutschland nicht durchgeführt wird, unterziehen.

Die realen und potenziellen Strahlenexpositionen durch  $^{131}\text{I}$  und die damit verbundenen radiologischen Risiken haben diesem Nuklid einen hohen Stellenwert in der Radioökologie sowie dem gesetzlichen und dem untergeordneten Regelwerk gegeben. Umfangreiche Untersuchungen zur Radioökologie des Radioiods wurden durchgeführt und die aktuellen radioökologischen Parameter für Radioiod wurden aus dem Verhalten des kurzlebigen  $^{131}\text{I}$  abgeleitet; vgl. Kap. 3.1.

Für die durch  $^{131}\text{I}$  verursachten Strahlenexpositionen dominiert wegen der relativ kurzen Halbwertszeit die direkte Kontamination von Weidebewuchs und pflanzlichen Nahrungsmitteln, vor allem von Blattgemüse. Die  $^{131}\text{I}$ -Expositionen als Folge von Ableitungen mit dem Abwasser und generell über den Wasserpfad sind unter realistischen Annahmen meist von untergeordneter Bedeutung. Dies ist auf das langlebige  $^{129}\text{I}$  nicht übertragbar.

Die Szenarien für Strahlenexpositionen durch  $^{129}\text{I}$  unterscheiden sich grundsätzlich von denen des  $^{131}\text{I}$ . Die für  $^{131}\text{I}$  wesentlichen Expositionspfade sind für  $^{129}\text{I}$  nur in akuten Emissionssituationen und in der näheren Umgebung von Emittenten relevant. Ansonsten erfolgt die Aufnahme von  $^{129}\text{I}$  durch Pflanzen, Tiere und Menschen über das in Boden, Oberflächen- und Grundwasser vorhandene  $^{129}\text{I}$ .

Aufgrund seiner langen Halbwertszeit wird  $^{129}\text{I}$  mit dem natürlichen Iod-Kreislauf transportiert und kann somit auch Gebiete fernab von Emittenten kontaminieren. Zudem ist  $^{129}\text{I}$  eines der kritischen, wenn nicht das kritischste Radionuklid bei Langzeitbetrachtungen von Endlagern. Wenn auch die lange Halbwertszeit radiologisch relevante Strahlenexpositionen nur bei extremen Umweltkontaminationen in der nächsten Umgebung von Emittenten zulässt (vgl. Kap. 6), sollten diese dennoch nicht außer Acht gelassen werden. In Bezug auf die Bewertung der Kernenergienutzung ist  $^{129}\text{I}$  eines der relevanten Indikatornuklide zur Beurteilung nachhaltiger Entwicklung (Michel et al., 2003c, 2004).

Unter diesen Gesichtspunkten erscheint es notwendig, die bisher für Radioiod abgeleiteten radioökologischen Parameter im Hinblick auf ihre Eignung zur Beschreibung der Wege von  $^{129}\text{I}$  durch die Umwelt zu untersuchen und die langfristigen Austausch- und Transportprozesse des  $^{129}\text{I}$  in der Atmosphäre, der marinen und terrestrischen Hydrosphäre, der Pedosphäre und der Biosphäre aufzuklären. Derartige Untersuchungen bieten gleichzeitig die außergewöhnliche Chance,  $^{129}\text{I}$  als anthropogenen Tracer zu nutzen, um den nur unvollständig bekannten Iod-Kreislauf in der Umwelt besser zu verstehen.

## 2 Aufgabenstellung

Es war das Ziel dieses Vorhabens, das Verhalten des langlebigen  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt und seine Wege durch die Umwelt zum Menschen umfassend zu untersuchen und damit eine Grundlage für eine zuverlässige Bestimmung der Strahlenexposition bei  $^{129}\text{I}$  Freisetzungen zu schaffen. Dazu sollten experimentelle Untersuchungen am Beispiel der aktuellen Situation in Niedersachsen für küstennahe und –ferne Standorte durchgeführt werden.

Langfristige Transportprozesse in der terrestrischen Biosphäre waren von besonderem Interesse, da sie bisher wegen der kurzen Halbwertszeit des  $^{131}\text{I}$  nur unzureichend aufgeklärt werden konnten. Im Hinblick auf langfristige Umweltprozesse kann das Verhalten des  $^{129}\text{I}$  nicht unabhängig von dem des stabilen  $^{127}\text{I}$  betrachtet werden. Daher waren diese beiden Iod-Isotope in die Studie einzubeziehen und mit geeigneten Analyseverfahren in den verschiedenen Umweltmatrices zu bestimmen. Für  $^{129}\text{I}$  können derartige Analysen mit der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) und – weit empfindlicher – mit der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS = accelerator mass-spectrometry) durchgeführt werden, für das stabile  $^{127}\text{I}$  können neben der RNAA, die Ionenchromatographie und die ICP-MS (inductively-coupled-plasma mass-spectrometry) eingesetzt werden. Alle diese Verfahren erfordern eine chemische Spuren-Matrix-Trennung, um aus Umweltproben Iod in geeignete Messproben zu extrahieren. Für die Vielzahl unterschiedlicher Umweltmatrices mussten bestehende Trennungsgänge modifiziert bzw. neu entwickelt werden.

Um zu einer vollständigen Beschreibung der Wege von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  durch die verschiedenen Umweltmedien zum Menschen zu gelangen, mussten der Eintrag über Luft und Niederschläge in die Böden, der Austausch mit Oberflächen- und Grundwasser und der Transfer durch die gesamte Nahrungskette untersucht werden. Dies konnte im Rahmen der geplanten Laufzeit des Projektes nur an exemplarischen Standorten und bei Konzentration auf die wesentlichen Expositionspfade erfolgen.

Da die Situation in Norddeutschland dadurch gekennzeichnet ist, dass anthropogenes  $^{129}\text{I}$  während der letzten 50 Jahre über die Atmosphäre eingetragen wurde und auch heute (als Folge der Emissionen aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen) noch eingetragen wird, waren folgende Umweltmedien in die Studie einzubeziehen:

- Meerwasser,
- Luft,
- Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser,
- Boden (Acker-, Grünland- und Waldboden),
- pflanzliche Nahrungs- und Futtermittel aus landwirtschaftlicher Erzeugung,
- tierische Nahrungsmittel aus landwirtschaftlicher Erzeugung,
- pflanzliche Produkte von Waldstandorten und
- tierische Nahrungsmittel von Waldstandorten.

Dabei sollte der gegenwärtige Zustand und der aktuelle Eintrag von  $^{129}\text{I}$  in die terrestrische Biosphäre quantifiziert werden. Es war zu beachten, dass für das langlebige  $^{129}\text{I}$  die Frage der Akkumulation in den verschiedenen Umweltmedien in Konkurrenz zum stabilen Iod und der Transfer beider Iod-Isotope in die Pflanzen wesentlich sind. Bei tierischen Nahrungsmitteln sollte insbesondere der Frage nachgegangen werden, ob der Transfer lang- und kurzlebiger Iod-Isotope in der Nahrungskette ab der Futteraufnahme identisch ist und wo ggf. Unterschiede vorliegen. Die Endpunkte des  $^{129}\text{I}$  Eintrags sollten schließlich durch die Analyse von Gesamtnahrung und von menschlichen und tierischen Schilddrüsen untersucht werden. Durch Untersuchung der gesamten Nahrungskette sollte so der Response der Biosphäre auf die anthropogenen Veränderungen quantifiziert und, wenn möglich, Umweltmedien identifiziert werden, die als empfindliche Indikatoren für den Eintrag von  $^{129}\text{I}$  geeignet sind.

## **3 Die Radioökologie radioaktiver Iod-Isotope**

### **3.1 Radioökologische Modelle und Parameter**

Wegen ihrer radiologischen Bedeutung wurden die kurzlebigen Iod-Isotope in radioökologischen Modellen und in gesetzlichen und untergesetzlichen Regelwerken ausführlich behandelt. Im Rahmen dieses Vorhabens wurden die entsprechenden Modelle in einer Literaturstudie gesichtet, um speziell solche Expositionspfade zu erkennen, bei denen die Möglichkeit besteht, dass das Verhalten des langlebigen  $^{129}\text{I}$  nicht angemessen durch die Modelle, die für die kurzlebigen Iod-Isotope entwickelt wurden, beschrieben wird. Daher soll hier ein kurzer Überblick über die radioökologischen Modelle und die darin für Iod-Isotope benutzten Parameter gegeben werden.

Es existiert eine Vielzahl von radioökologischen Modellen, um die Wege von Radionukliden von ihren Quellen durch die Umwelt zum Menschen und die dadurch verursachte Strahlenexposition zu beschreiben. Bei aller Vielfalt der Modelle sind jedoch die grundsätzlichen Expositionsszenarien sehr einheitlich. Die Modelle berücksichtigen die externe Exposition durch Aktivität in der Luft oder durch am Boden abgelagerte Aktivität sowie die interne Exposition durch Inhalation und Ingestion.

Von der Methodik her sind Gleichgewichtsmodelle und dynamische Modelle zu unterscheiden, je nachdem ob die langzeitigen Auswirkungen von Emissionen oder einmalige, kurzzeitige Freisetzen modelliert werden sollen. Eine wesentliche Unterscheidung der Modelle besteht noch darin, ob sie die Strahlenexposition mittels deterministischer Modelle als Punktschätzung ermitteln, oder ob sie die Exposition als Zufallsgröße behandeln und mittels stochastischer Modelle die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Exposition ermitteln. In dieser Arbeit werden im Wesentlichen nur deterministische Modelle behandelt, auf stochastische Modelle und Parameterunsicherheiten wird nur am Rande eingegangen.

Die Modelle unterscheiden sich im Grad der Konservativität der Abschätzungen der Strahlenexposition oder dem angestrebten Realismus, abhängig von der Zielsetzung der Modellierung; vgl. Michel (2003). Dabei werden Konservatismen im Allgemeinen nicht über die Modellierung der Expositionspfade oder die benutzten radioökologischen Parameter, sondern über die Festlegung der menschlichen Gewohnheiten bestimmt. Daher macht es Sinn, die radioökologischen Parameter unabhängig von der Art der Modelle zu diskutieren.

In dieser Arbeit wird daher von der Modellstruktur und den radioökologischen Parametern der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu §47 StrlSchV (AVV) (BMU, 2001) zur Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen ausgegangen, um anschließend die Parameter anderer Modelle zu betrachten.

Nach der AVV sind bei der Berechnung der Strahlenexposition grundsätzlich Expositionen durch Emissionen mit der Fortluft (Luftpfad) und dem Abwasser (Wasserpfad) mit den nachstehenden Expositionspfaden zu berücksichtigen.

Luftpfad:

- äußere Strahlenexposition
  - Betasubmersion
  - Gammasubmersion
  - Bodenstrahlung

- innere Strahlenexposition
  - Inhalation
  - Ingestion auf den Pfaden Luft – Pflanze, Luft – Futterpflanze – Kuh – Milch, Luft – Futterpflanze – Tier – Fleisch, Luft – Muttermilch und Luft – Nahrung – Muttermilch

Wasserpfad:

- äußere Strahlenexposition
  - durch Aufenthalt auf Sediment
- innere Strahlenexposition
  - durch Ingestion auf den Pfaden Trinkwasser, Wasser – Fisch, Viehtränke – Kuh – Milch, Viehtränke – Tier – Fleisch, Beregnung – Futterpflanze – Kuh – Milch, Beregnung – Futterpflanze – Tier – Fleisch, Beregnung – Pflanze und Muttermilch infolge der Aufnahme radioaktiver Stoffe durch die Mutter über die oben genannten Ingestionspfade
  - landwirtschaftliche Nutzung von Überschwemmungsgebieten
  - landwirtschaftliche Nutzung von Fluss- und Klärschlamm.

Das oben dargestellte Schema der AVV ist international ebenfalls akzeptiert und wird, wenn auch bisweilen mit unterschiedlichem Detaillierungsgrad, in anderen Modellen angewandt. Die AVV ist eine konservative Berechnungsvorschrift, die für Referenzpersonen Abschätzungen der potenziellen Strahlenexposition für Planungszwecke erlauben soll. Dies wird aber weder durch das zugrunde liegende radioökologische Modell noch durch radioökologische Parameter erreicht, sondern durch andere Modellannahmen, z. B. der Eigenschaften der Referenzpersonen, die hier nicht näher diskutiert werden sollen. Das radioökologische Modell der AVV ist daher durchaus für eine wissenschaftliche Diskussion in Bezug auf die Modellierung der Wege der Iod-Isotope zum Menschen geeignet.

Für die Strahlenexposition durch kurzlebige Iod-Isotope ist nach der AVV die Ingestion über den Luftpfad dominierend. Betrachtet man z. B. Berechnungen der potenziellen Strahlenexposition der Schilddrüse eines Kleinkindes durch <sup>131</sup>I Emissionen aus kerntechnischen Anlagen, dann kommt die Strahlenexposition über den Luftpfad zu nahezu 90 % durch Ingestion kontaminierter Nahrungsmittel und zu etwa 10 % durch Inhalation zustande. Die äußere Strahlenexposition ist gegenüber der internen Strahlenexposition vernachlässigbar. Die größten Anteile der Dosis über den Ingestionspfad verursachen der Verzehr von Milch (ca. 80 %) und Blattgemüse (ca. 20 %). Andere pflanzliche Produkte und Fleisch tragen nur in geringem Maße zur Ingestionsdosis bei.

Da Fallout und direkte Kontamination von Pflanzen der für die Strahlenexposition durch <sup>131</sup>I bedeutsamste Mechanismus ist, sind die Parameter, die Fallout und Washout beschreiben wesentlich. Für die Deposition von Iod-Isotopen berücksichtigt die AVV die chemischen Formen, in denen das Iod transportiert wird, und gibt speziationsabhängige Parameter an. Diese sind der Vollständigkeit halber in Tab. 3-1 aufgeführt. Sie werden aber in diesem Vorhaben nicht weiter betrachtet, da es zum einen nicht die Aufgabe war, eine vollständige Modellrechnung für die radioökologische Situation des <sup>129</sup>I in Norddeutschland durchzuführen, und zum anderen weder Speziation noch die Anteile der aktuellen Immissionen, die auf Emissionen über den Luft- und den Wasserpfad zurückzuführen sind, bekannt sind.

Tabelle 3-1 Proportionalitätsfaktoren für Fallout  $v_g$ , für Washout  $c$  sowie Washoutkoeffizienten  $L_0$  nach der AVV.

Emittierte Substanz	$v_g$ in $\text{m s}^{-1}$	$c$ in $\text{a mm}^{-1} \text{s}^{-1}$	$L_0$ in $\text{s}^{-1}$
elementares Iod	$1 \cdot 10^{-2}$	$6 \cdot 10^{-9}$	$7 \cdot 10^{-5}$
organisch gebundenes Iod	$1 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-11}$	$7 \cdot 10^{-7}$
Aerosole	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$6 \cdot 10^{-9}$	$7 \cdot 10^{-5}$

Nach der AVV berechnet man die Ingestionsdosis, die in einem Gewebe  $T$  durch ein Radionuklid  $r$  verursacht wird, nach Gl. 1.

$$H_{T,g,r} = (U^{\text{Pf}} \cdot C_r^{\text{Pf}} + U^{\text{Bl}} \cdot C_r^{\text{Bl}} + U^{\text{Mi}} \cdot C_r^{\text{Mi}} + U^{\text{Fl}} \cdot C_r^{\text{Fl}}) \cdot g_{g,r,T} \quad \text{Gl. 1}$$

mit

$H_{T,g,r}$  Jahresdosis im Organ oder Gewebe  $T$  durch Ingestion des Radionuklids  $r$  in Sievert

$U^n$  Jährliche Verzehrsmengen des Nahrungsmittels  $n$

$C_r^n$  Spezifische Aktivitäten;  $n = \text{Pf}$  (pflanzliche Produkte),  $\text{Bl}$  (Blattgemüse),  $\text{Mi}$  (Milch),  $\text{Fl}$  (Fleisch)

$g_{g,r,T}$  Ingestionsdosiskoeffizient für  $T$  und  $r$  in  $\text{Sv Bq}^{-1}$

Die spezifischen Aktivitäten berechnet man nach Gl. 2.

$$C_r^n = a_p \cdot A_r \cdot \left[ (\bar{F}_r^{\text{S}} + f_w \cdot \bar{W}_r^{\text{S}}) \cdot \frac{1 - \exp(-I_{\text{eff},r}^{\text{Pf}} \cdot t_e^n)}{Y^n \cdot I_{\text{eff},r}^{\text{Pf}}} + (\bar{F}_r^{\text{G}} + \bar{W}_r^{\text{G}}) \cdot \frac{T_r^n \cdot (1 - \exp(-I_{\text{eff},r}^{\text{Bo}} \cdot t_b))}{p^m \cdot I_{\text{eff},r}^{\text{Bo}}} \right] \cdot \exp(-I_r \cdot t_v^n)$$

Gl. 2

Darin bedeuten:

$a_p$  Umrechnungsfaktor:  $1/(3,15 \cdot 10^7 \text{ s}) = 3,2 \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$

$A_r$  Jährliche Ableitungsmenge des Radionuklids  $r$  in  $\text{Bq}$

$\bar{F}_r^{\text{S}}$  Langzeitfalloutfaktor für das Sommerhalbjahr in  $\text{m}^{-2}$

$\bar{W}_r^{\text{S}}$  Langzeitwashoutfaktor für das Sommerhalbjahr in  $\text{m}^{-2}$

$f_w$  Anteil der durch Niederschlag oder Beregnung auf der Pflanze abgelagerten Aktivität

$I_{\text{eff},r}^{\text{Pf}}$  Effektive Verweilkonstante in  $\text{s}^{-1}$  aus Verweil- und physikalischer Zerfallskonstante

$t_e^n$  Kontaminationszeit während der Wachstumsperiode in  $\text{s}$

$Y^n$  Ertrag bzw. Bewuchsdichte in  $\text{kg m}^{-2}$

$\bar{F}_r^{\text{G}}$  Langzeitfalloutfaktor für das gesamte Jahr in  $\text{m}^{-2}$

$\bar{W}_r^{\text{G}}$  Langzeitwashoutfaktor für das gesamte Jahr in  $\text{m}^{-2}$

$T_r^n$  Transferfaktor Boden-Pflanze

$I_{\text{eff},r}^{\text{Bo}}$  effektive Verweilkonstante für das Verbleiben des Radionuklids  $r$  im Wurzelbereich der Pflanzen in  $\text{s}^{-1}$ ;  $I_{\text{eff},r}^{\text{Bo}} = I_{M,r} + \lambda_r$

- $I_{M,r}$  Verweilkonstante der Radionuklide aufgrund des Transports in tiefere Bodenschichten.  
 $t_b$  Zeit, in der sich das Radionuklid auf dem Boden ablagert und anreichert in s  
 $p^m$  Flächentrockenmasse des Bodens in  $\text{kg m}^{-2}$   
 $t_v^n$  Zeit zwischen Ernte und Verbrauch in s

Die für den Weg der Iod-Isotope zum Menschen wesentlichen Parameter sind hier die Transferfaktoren für den Transfer Boden-Weidegras, Boden-Pflanze, Futter-Kuhmilch und Futter-Rindfleisch, sowie die Verweilkonstanten der Radionuklide aufgrund des Transports in tiefere Bodenschichten (Tab. 3-2). Die AVV beschränkt sich in der Festlegung der Transferfaktoren auf die wesentlichen Expositionspfade für nur vier Klassen von Nahrungsmitteln. Inwiefern diese Beschränkung auch für das langlebige  $^{129}\text{I}$  hinreichend ist, wird, später zu betrachten sein.

Die Verweilkonstanten können auch als Halbwertszeiten für das Verbleiben der Radionuklide im Wurzelbereich der Pflanzen  $T_{1/2,M,r}$  über  $I_{M,r} = \ln(2)/T_{1/2,M,r}$  angegeben werden. Für Acker- und Weideland legt die AVV diese Verweilkonstanten für Sr, Ru, I gemeinsam fest;  $I_{M,r}$  für Iod in Ackerboden  $10^{-9} \text{ s}^{-1}$  und in Weideboden  $2,0 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ . Auch für die Verweilkonstanten wird die Frage zu beantworten sein, ob diese Klassifizierung für die Modellierung der Exposition durch das langlebige  $^{129}\text{I}$  hinreichend ist und ob das Transportmodell, das lediglich die Migration in tiefere Bodenschichten berücksichtigt, die langfristigen Bedingungen der Wege der Iod-Isotope durch die Pedosphäre angemessen beschreibt.

Tabelle 3-2: Iod Transferfaktoren für den Transfer Boden-Weidegras  $T_r^{\text{Wd}}$ , Boden-Pflanze  $T_r^{\text{Pf}}$ , Futter-Kuhmilch  $T_r^{\text{Mi}}$  und Futter-Rindfleisch  $T_r^{\text{Fl}}$ , sowie Halbwertszeiten für das Verbleiben des Radionuklids r im Wurzelbereich der Pflanzen  $T_{1/2,M,r}$  für Acker- und Weideland aus der AVV.

Faktor	$T_{\text{Iod}}^{\text{Wd}}$	$T_{\text{Iod}}^{\text{Pf}}$	$T_{\text{Iod}}^{\text{Mi}}$	$T_{\text{Iod}}^{\text{Fl}}$	$T_{1/2,M,\text{Iod}}$ (Acker)	$T_{1/2,M,\text{Iod}}$ (Weide)
Einheit	$\frac{\text{Bq kg}^{-1} \text{ FM}}{\text{Bq kg}^{-1} \text{ TM}}$	$\frac{\text{Bq kg}^{-1} \text{ FM}}{\text{Bq kg}^{-1} \text{ TM}}$	$\text{d kg}^{-1}$	$\text{d kg}^{-1}$	a	a
Für Iod	$1 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$	22	11

FM = Frischmasse, TM = Trockenmasse

Weitere für die Berechnung des Transfers durch die Nahrungskette wesentliche Parameter sind:

- $\dot{M}_{Fu}$  tägliche Aufnahme von Weidefutter für Rindvieh (Feuchtmasse):  $65 \text{ kg d}^{-1}$ .  
 $p_m$  Flächentrockenmasse des Bodens  
 $m = A$  für Ackerboden (Pflugschartiefe 20 cm):  $p_A = 280 \text{ kg m}^{-2}$   
 $m = Wd$  für Weideboden (10 cm Tiefe):  $p_{Wd} = 120 \text{ kg m}^{-2}$ .

Wenn auch dieses Projekt nicht das Ziel hat die notwendigen Parameter für die AVV für  $^{129}\text{I}$  zu entwickeln, so kann dieses Schema doch herangezogen werden, um die Bedeutung der verschiedenen Expositionspfade klar zu machen. Da dieses Vorhaben sich jedoch mit der Ableitung radioökologischer Parameter aus dem langfristigen Eintrag von  $^{129}\text{I}$  befasst, das während der letzten 50 Jahre in Norddeutschland durch atmosphärische  $^{129}\text{I}$ -Aktivität eingetragen wurde, wird hier lediglich der Luftpfad und die dadurch bedingte innere Strahlenexposition betrachtet. Dabei ist es unerheblich, dass mehrere Quellen (Fallout oberirdischer Kernwaffenversuche, luftgetragene und wässrige Emissionen aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen und Transfer aus dem Meer über die

Atmosphäre) zu diesem Eintrag beigetragen haben. Der Eintrag erfolgte in jedem Fall über die Atmosphäre.

Die radioökologischen Parameter der AVV und anderer Modelle sind „expert-guess“ oder beste Parameter für den Transport von Radionukliden durch die Nahrungskette, die aus einer Vielzahl von experimentellen Untersuchungen extrahiert wurden. Die experimentellen Untersuchungen radioökologischer Parameter werden allerdings deutlich durch die Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  dominiert. Beim Transfer von Radioiod dominieren Arbeiten, die  $^{131}\text{I}$  oder  $^{125}\text{I}$  betreffen. Die geringste Anzahl von Arbeiten sind für  $^{129}\text{I}$  oder das stabile  $^{127}\text{I}$  durchgeführt worden.

Die Literatur ist umfangreich und die Daten sind häufig schlecht vergleichbar; die Bedingungen, unter denen die Daten gewonnen wurden, variieren stark. Zudem sind die Angaben, ob sich Parameter wie Transferfaktoren auf die Frisch- oder Trockenmasse beziehen, bisweilen unvollständig. Daher wurden vielfach Zusammenstellungen erarbeitet mit dem Ziel, „beste“, „empfohlene“ oder „generische“ radioökologische Modellparameter abzuleiten. In mehreren älteren und auch neueren Zusammenstellungen wurden die verschiedenen Originalarbeiten zusammengefasst und ausgewertet (IAEA, 1982, 1994, 2001; Green und Woodman, 2003; Coughtrey et al., 1983; Staven et al., 2003; Cierjacks und Albers, 2004). Die umfänglichste Zusammenstellung von Transferfaktoren ist die von Robertson et al. (2003) ; vgl. in diesem Zusammenhang auch die Darstellung von Thorne (2003).

Im Folgenden sollen diese radioökologischen Parameter für Iod kurz zusammengestellt werden. Die originalen Literaturstellen, auf denen die Angaben aus den zusammenfassenden Publikationen beruhen, werden nicht einzeln spezifiziert. Es wird auf die dort angegebenen Literaturstellen verwiesen. Nur in einigen speziellen,  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  betreffenden Fällen wird auf die Originalarbeiten verwiesen.

Bereits 1982 hat die IAEA generische Modelle und Parameter für den Transfer von Radionukliden aus dem Betrieb kerntechnischer Anlagen im Normalbetrieb beschrieben. Die für Iod dort angegebenen Parameter sind in Tab. 3-3 dargestellt. Weitere radioökologische Parameter und die Bereiche, die in der Originalliteratur gefunden werden, wurden von der IAEA in der Evaluation von 1994 gegeben. Sie sind für Iod in Tab. 3-4 zusammengestellt. Der Bericht der IAEA (1994) enthält insbesondere Information über den Verlust von Iod aus Nahrungsmitteln bei der haushaltsüblichen Zubereitung und belegt, dass die durch die Zubereitung erfolgenden Veränderungen nicht zu vernachlässigen sind.

Tab. 3-3: Radioökologische Parameter<sup>1</sup> für die Modellierung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (IAEA, 1982).

Größe	Wert
Concentration factors for sediments $K_d$ marine in $\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$	100
Concentration factors for sediments $K_d$ fresh water in $\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$	200
Default values of $B_{v2}$ concentration factors in food crops in $\text{Bq g}^{-1}$ fresh food per $\text{Bq g}^{-1}$ dry soil	0,02
Default values of $F_m$ , the transfer coefficient to milk in $\text{d ltr}^{-1}$	0,01
Default value of $F_f$ transfer coefficient to beef in $\text{d kg}^{-1}$ (fresh meat)	0,01
Default values of $B_p$ , in aquatic foods in $\text{liter kg}^{-1}$ Fresh water fish	40
Default values of $B_p$ , in aquatic foods in $\text{liter kg}^{-1}$ Fresh water invertebrates	40
Default values of $B_p$ , in aquatic foods in $\text{liter kg}^{-1}$ marine fish	10
Default values of $B_p$ , in aquatic foods in $\text{liter kg}^{-1}$ marine crustacean	100
Default values of $B_p$ , in aquatic foods in $\text{liter kg}^{-1}$ marine mollusks	100
Default values of $B_p$ , in aquatic foods in $\text{liter kg}^{-1}$ marine seaweed	1000

<sup>1</sup> Symbole einzelner Parameter werden in den Tabellen 3-3 bis 3-6 ohne nähere Erläuterungen aufgeführt. Bzgl. der jeweiligen Definitionen siehe die Originalarbeiten.

Tab. 3-4: Radioökologische Parameter für die Modellierung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (IAEA, 1994).

Größe	Wert
Soil to plant transfer factors in Bq per dry weight grass/Bq per dry weight soil	0,0034 (0,00034–0,034)
Soil to plant transfer factors in Bq per dry weight crop/Bq per dry weight	0,02
Partition coefficient $K_D$ in soils in liter $kg^{-1}$ sand	1 (0,013–85)
Partition coefficient $K_D$ in soils in liter $kg^{-1}$ loam	4,5 (0,082–240)
Partition coefficient $K_D$ in soils in liter $kg^{-1}$ clay	180 (0,082–33)
Partition coefficient $K_D$ in soils in liter $kg^{-1}$ organic	27 (0,5–1500)
Transfer coefficient for cow milk in $d\ ltr^{-1}$	0,01 (0,001–0,035)
Transfer coefficient for sheep milk in $d\ ltr^{-1}$	0,49 (0,08–0,94)
Transfer coefficient for goat milk in $d\ ltr^{-1}$	0,43 (0,06–0,65)
Transfer coefficient for beef in $d\ kg^{-1}$	0,04 (0,007–0,05)
Transfer coefficient for sheep meat in $d\ kg^{-1}$	0,03
Transfer coefficient for goat meat in $d\ kg^{-1}$	no data
Transfer coefficient for pork in $d\ kg^{-1}$	0,0033 (0,00018–0,0033)
Transfer coefficient for poultry in $d\ kg^{-1}$	0,01
Transfer coefficient for egg contents in $d\ kg^{-1}$	3 (2–4)
Concentration factors for edible portions of freshwater fish in $l\ kg^{-1}$	40 (20–600)
<b>Food processing retention factors <math>F_r</math></b>	
$F_r$ for dairy products cream	0,06–0,19
$F_r$ for dairy products skim milk	0,81–0,94
$F_r$ for dairy products butter	0,035–0,01
$F_r$ for dairy products buttermilk	0,05–0,13
$F_r$ for dairy products butterfat	0,02
$F_r$ for dairy products milk powder	1,0
$F_r$ for dairy products goat cheese	0,08–0,14
$F_r$ for dairy products cow rennet cheese	0,11–0,53
$F_r$ for dairy products cow acid cheese	0,22–0,27
$F_r$ for dairy products Whey rennet	0,47–0,89
$F_r$ for dairy products Whey acid	0,60–0,73
$F_r$ for dairy products casein rennet	0,02–0,12
$F_r$ for dairy products casein rennet	0,03–0,04
$F_r$ for dairy products casein whey rennet	0,69–0,82
$F_r$ for dairy products casein whey acid	0,78–0,80
$F_r$ for meat of cow, pig, sheep, deer, rabbit; boiling meat	0,6
$F_r$ for meat of cow, pig, sheep, deer, rabbit; boiling bones	0,98
$F_r$ for vegetables and fruits, spinach, washing	0,07–0,8
$F_r$ for vegetables and fruits, spinach, washing and blanching	0,6–0,7
$F_r$ for vegetables and fruits, spinach, cooking and rinsing	0,4
$F_r$ for vegetables and fruits, lettuce, washing	0,1–0,5
$F_r$ for vegetables and fruits, lettuce, removing inedible parts	0,1–0,4
$F_r$ for vegetables and fruits, cabbage, removing inedible parts	0,5
$F_r$ for vegetables and fruits, cabbage, washing	0,4
$F_r$ for vegetables and fruits, cabbage, cooking and rinsing	0,2–0,5
$F_r$ for vegetables and fruits, cauliflower, peeling	0,03
$F_r$ for vegetables and fruits, beans, washing	0,7
$F_r$ for vegetables and fruits, beans, blanching	0,2
$F_r$ for vegetables and fruits, tomatoes, washing	0,5
$F_r$ for vegetables and fruits, tomatoes, boiling	0,2
$F_r$ for vegetables and fruits, onions, removing inedible parts	0,2
$F_r$ for vegetables and fruits, onions, washing	0,2
$F_r$ for vegetables and fruits, berries, boiling	0,2
$F_r$ for drinks, conventional treatment of surface water to tap water	0,8

Im Jahr 2001 hat die IAEA erneut radioökologische Parameter für die generische Modellierung des Transports von Radionukliden durch die Nahrungskette publiziert. Neben den in Tab. 3-5 dargestellten Parametern werden noch eine Vielzahl anderer Größen angegeben (z. B. die zu erwartende Dosis pro emittierter Aktivität), die aber extrem modellabhängig sind und hier nicht näher betrachtet werden sollen.

Tab. 3-5: Radioökologische Parameter für die Modellierung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (IAEA, 2001).

Größe	Wert
Recommended screening values for $k_d$ in litre $\text{kg}^{-1}$ in fresh water	10
Recommended screening values for $k_d$ in litre $\text{kg}^{-1}$ in salt water	20
Loss rate constant value in $\text{d}^{-1}$ describing the reduction of concentration of material deposited in the root zone of soils owing to processes other than radioactive decay	0,0014
Transfer factor for terrestrial foods, forage in dry weight	0,1
Transfer factor for terrestrial foods, crops in fresh weight	0,02
Transfer factor for terrestrial foods, cattle milk in $\text{d l}^{-1}$	0,01
Transfer factor for terrestrial foods, meat in $\text{d kg}^{-1}$	0,05
Bioaccumulation factors, freshwater fish, in $\text{Bq kg}^{-1}$ per $\text{Bq l}^{-1}$	40
Bioaccumulation factors, marine fish, in $\text{Bq kg}^{-1}$ per $\text{Bq l}^{-1}$	10
Bioaccumulation factors, marine shellfish, in $\text{Bq kg}^{-1}$ per $\text{Bq l}^{-1}$	10

In Deutschland hat Bonka wesentliche Beiträge zur Etablierung radioökologischer Parameter für künstliche Radionuklide, speziell auch für Iod-Isotope, geleistet (Bonka, 1982). Die von ihm für Iod angegebenen Modellvorstellungen werden in Kap. 5.1 näher dargestellt. 1999 hat er dazu eine Zusammenstellung der aktuellen radioökologischen Parameter für Iod-Isotope gegeben (Tab. 3-6).

Tab. 3-6: Radioökologische Parameter für die Modellierung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (Bonka, 1998).

Größe	Wert
Transferfaktor Futter Milch in $\text{d kg}^{-1}$	0,1
Transferfaktor Futter Rindfleisch in $\text{d kg}^{-1}$	0,001
$K_d$ Werte für Meeressedimente in $\text{L kg}^{-1}$	0,01
Konzentrationsfaktoren für Fischfleisch in $\text{L kg}^{-1}$ FM	100
Konzentrationsfaktoren für Meerestiere in $\text{L kg}^{-1}$ FM für Fische	50
Konzentrationsfaktoren für Meerestiere in $\text{L kg}^{-1}$ FM für Krebstiere	10
Konzentrationsfaktoren für Meerestiere in $\text{L kg}^{-1}$ FM für Weichtiere	10 (5–100)

In verschiedenen Modellen zur Berechnung der Strahlenexposition nach Emission künstlicher Radionuklide sind Parameter für Iod-Isotope fest implementiert; z. B. ECOSYS (Müller und Pröhl, 1993), FARMLAND (Brown und Simmonds, 1995), CLRP (Krajewski, 1996), PATHWAY (Whicker und Kirchner, 1987). In den Tabellen 3-7 und 3-8 sind die in den Modellen ECOSYS (Müller und Pröhl, 1993) und FARMLAND (Brown und Simmonds, 1995) benutzten Parameter zusammengestellt. Die im polnischen Modell CLRP benutzten Parameter konnten der zugänglichen Literatur nicht entnommen werden.

Tab. 3-7: Radioökologische Parameter des Modells ECOSYS zur Beschreibung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (Müller und Pröhl, 1993).

Größe	Wert
Transferfaktoren für Boden zu Pflanzen: Gras, Mais Silage, Maiskolben, Kartoffeln, rote Beete, rote Beete Blätter, Getreide, Blattgemüse, Wurzelgemüse, Fruchtgemüse, Früchte, Beeren in $\text{Bq kg}^{-1}$ Pflanze Frischmasse pro $\text{Bq kg}^{-1}$ Boden Trockenmasse	0,1
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Kuhmilch, Kalbfleisch, Schwein in $\text{d kg}^{-1}$	0,003
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Schafs- und Ziegenmilch in $\text{d l}^{-1}$	0,5
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Rindfleisch in $\text{d kg}^{-1}$	0,001
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Lamm, Roedeer in $\text{d kg}^{-1}$	0,01
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Eier in $\text{d kg}^{-1}$	2,8
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Geflügel in $\text{d kg}^{-1}$	0,1
Auswaschkonstante in $\text{a}^{-1}$ Ackerboden	0,0034
Auswaschkonstante in $\text{a}^{-1}$ Weideboden	0,0085
Verteilungskoeffizient in $\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$	375
Food processing factor: Weizenmehl	0,5
Food processing factor: Bier (Gerste)	0,1
Food processing factor: Kartoffel	0,8
Food processing factor: Gemüse	0,8
Food processing factor: Butter	0,5
Food processing factor: Sahne	0,7
Food processing factor: Hartkäse	0,6
Food processing factor: Quark	1,4
Food processing factor: Kondensmilch	2,7

Tab. 3-8: Radioökologische Parameter des Modells FARMLAND zur Beschreibung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (Brown und Simmonds, 1995).

Größe	Wert
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil green vegetables	0,02
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil grain	0,02
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil Root vegetables	0,02
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil potatoes	0,02
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil pasture	0,02
transfer factors for cattle milk fraction of the daily intake by ingestion transferred to one liter milk	0,005
transfer factors for cattle meat fraction of the daily intake by ingestion transferred to one kg meat	0,005
transfer factors for cattle liver fraction of the daily intake by ingestion transferred to one kg liver	0,002
transfer factors for sheep meat fraction of the daily intake by ingestion transferred to one kg meat	0,05
transfer factors for sheep liver fraction of the daily intake by ingestion transferred to one kg liver	0,05

Auch im Modell PATHWAY (Whicker und Kirchner, 1987) wird wie im Modell FARMLAND als Parameter der Transferfaktor für den Übergang von Iod-Isotopen vom Boden in die Pflanzen als (soil/plant concentration ratio) mit dem Wert 0,02 angegeben. Für diesen Parameter führen die Autoren aus: „*Sensitivity analyses indicate that root uptake contributes little to the human dose under the circumstances to which PATHWAY applies, so uncertainty in the CR values is not consequential*“. In Anbetracht des langfristigen Eintrags von anthropogenem  $^{129}\text{I}$  in die Ökosphäre stellt sich damit die Frage, welche Modelle überhaupt vom Ansatz geeignet sind, den Transfer von  $^{129}\text{I}$  zu Mensch und Tier angemessen zu beschreiben.

Simpkins und Hamby (2003) diskutierten die Unsicherheiten radioökologischer Parameter am Beispiel der retrospektiven Dosimetrie nach  $^{131}\text{I}$  Emissionen aus den kerntechnischen Anlagen am Savannah River. Sie benutzten probabilistische Methoden, um die Exposition zu bestimmen, bei denen den Parametern Verteilungen zugeordnet wurden (Tab. 3-9). Siehe hierzu auch Hoffman et al. (2004) und Simpkins und Hamby (2004).

Tab. 3-9: Radioökologische Parameter für die Modellierung des Transports von Iod-Isotopen durch die Nahrungskette (Simpkins und Hamby, 2003).

Größe	Verteilung	Mittelwert	Standardabweichung oder Bereich
Fraction of nuclide remaining on plant surface	uniform		0,09–0,9
Weathering rate in a <sup>-1</sup>	log-normal	18,07	1,4
Soil plant uptake ratio dimensionless	uniform		0,02–0,2
Feed transfer coefficients for milk cows in d l <sup>-1</sup>	log-normal	0,012	2,0
Feed transfer coefficients for beef cows in d kg <sup>-1</sup>	log-normal	0,0029	2,2

Green und Woodman (2003) publizierten eine aktuelle Zusammenstellung empfohlener Transferfaktoren künstlicher Radionuklide vom Futter zu Tierprodukten. Diese Autoren bearbeiteten 292 Literaturstellen mit insgesamt 991 Einzelangaben, von denen sie 77 nach kritischer Durchsicht für ihre Arbeit verwarfen. Von den verbleibenden 914 Angaben betrafen etwa 60 % den Transfer in Kuhmilch, wobei die Information über die Radioisotope der Elemente Cäsium, Strontium und Iod im Verhältnis 4:1:1 verteilt waren. Transferfaktoren für Schaf- und Lamm-Produkte betragen 16 %, für Rind- und Ziegen-Produkte je 5 %. Die Autoren beklagen, dass für viele Parameter nur wenige Daten existieren und weiterer Forschungsbedarf existiert. Sie stellen fest, dass die Ergebnisse ihrer Arbeit generell in relativ guter Übereinstimmung mit den im FARMLAND-Modell verwendeten Parametern sind.

Für den Transfer von Radioiod in Kuhmilch sind die Ergebnisse der Untersuchung von Green und Woodman (2003) in Tab. 3-10 zusammengestellt.

Tab. 3-10: Transferfaktoren in d l<sup>-1</sup> für den Transfer von Radioiod in Kuhmilch (Green und Woodman, 2003).

Art der Daten	Mittelwert	Standardabweichung	Median	Minimum	Maximum	Anzahl der Daten
Alle	0,0067	0,0051	0,005	0,00024	0,022	85
Alle <sup>129</sup> I	0,0021	0,0026	0,0013	0,00024	0,012	21
Alle <sup>131</sup> I	0,0084	0,0048	0,0078	0,0015	0,022	62
Futter, orale Gabe	0,0099	0,0048	0,0092	0,00	0,022	28
Futter, Chernobyl Fallout	0,0014	0,0004	0,0013	0,00088	0,002	8
Futter, kontinuierlicher Fallout	0,0046	0,0023	0,0035	0,0015	0,0081	11
Feld, kontinuierlicher Fallout	0,0062	0,0053	0,0043	0,00024	0,019	32
Feld, kontinuierlicher Fallout <sup>129</sup> I	0,0025	0,0031	0,0018	0,00024	0,012	14
Feld, kontinuierlicher Fallout <sup>131</sup> I	0,0090	0,0049	0,0081	0,0028	0,019	18
Feld, Chernobyl Fallout	0,0056	0,0035	0,0044	0,002	0,012	6

Für den Transfer in Schafsmilch fanden diese Autoren nur eine Literaturstelle (Monte, 1990) basierend auf <sup>131</sup>I: 0,04 d l<sup>-1</sup>. Für Ziegenmilch liegen insgesamt 6 Daten auf der Grundlage von <sup>125</sup>I und <sup>131</sup>I vor (Johnson et al., 1988; Ennis et al., 1988a). Diese Daten zeigen einen Mittelwert des Transferfaktors von 0,23 d l<sup>-1</sup> mit einer Standardabweichung von 0,17 d l<sup>-1</sup> und einem Bereich von 0,06 d l<sup>-1</sup> bis 0,467 d l<sup>-1</sup>.

Für den Transfer von Radioiod vom Futter in Rindfleisch zitieren Green und Woodman (2003) lediglich eine Literaturstelle (Hausschild und Aumann, 1989) von 0,011 d kg<sup>-1</sup> basierend auf der Untersuchung der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK). Diese Gruppe be-

stimmte auch Transferfaktoren für Schweinefleisch und -innereien (Robens et al., 1988a). Sie beobachteten Transferfaktoren von  $0,015 \text{ d kg}^{-1} \pm 0,007 \text{ d kg}^{-1}$  basierend auf  $^{129}\text{I}$  und von  $0,066 \text{ d kg}^{-1} \pm 0,01 \text{ d kg}^{-1}$  für stabiles Iod.

Für den Übergang von Radioiod vom Futter in Hühnerfleisch und Eier gibt es widersprüchliche Angaben. Ennis et al. (1988b) benutzten orale Gaben mit markierten Futter-Pellets und fanden Transferfaktoren für  $^{131}\text{I}$  von  $0,11 \text{ d kg}^{-1}$  für Hühnerfleisch und  $3,2 \text{ d kg}^{-1} \pm 0,3 \text{ d kg}^{-1}$  für Hühnereier. Robens et al. (1988b) fanden für Hühnereier Transferfaktoren von  $4,2 \text{ d kg}^{-1} \pm 1,3 \text{ d kg}^{-1}$  mittels  $^{127}\text{I}$  und von  $12,8 \text{ d kg}^{-1} \pm 5,0 \text{ d kg}^{-1}$  mittels  $^{129}\text{I}$  in der Umgebung der WAK.

Die umfangreichste der neueren Zusammenstellungen radioökologischer Parameter ist die von Robertson et al. (2003). Auf sie im Einzelnen einzugehen würde den Rahmen dieses Berichtes sprengen. Daher wird hier nur kurz auf das daraus entstandene Kompendium von Staven et al. (2003) eingegangen, das Transferfaktoren für landwirtschaftliche Produkte und Tierprodukte im Auftrag des Department of Energy (DOE) zusammenfasst. Diese Autoren legen besonderen Wert darauf, die Bezüge der Transferfaktoren bzgl. Frisch- und Trockenmasse klar zu machen. Alle Transferfaktoren für Pflanzen werden relativ zur Trockenmasse von Pflanze und Boden, für Fleisch, Milch und Wasserpflanzen relativ zu Frischmasse oder Frischvolumen (Milch) angegeben. Die empfohlenen Werte für den Transfer von Iod sind in Tabelle 3-11 zusammengestellt.

Die von Staven et al. (2003) angegebenen Konversionsfaktoren in (kg TM) pro (kg FM) für die Umrechnung von Trocken- zu Frischmasse sind ebenfalls in Tab. 3-11 angegeben. Zusätzlich wurden von Staven et al. (2003) Konversionsfaktoren für Futter (Weidebewuchs) und gelagertes Heu mit 0,22 und für gelagertes Korn (Futtergetreide) mit 0,91 angegeben. Zum Vergleich: Die Messanleitungen (BMU, 2000) geben Bereiche von Konversionsfaktoren für Futter (Weidebewuchs) von 0,12–0,24 und für gelagertes Korn (Futtergetreide) von 0,87–0,88 an. In dieser Arbeit wurde für Futter (Weidebewuchs) ein Konversionsfaktor von  $0,20 \pm 0,03$  ermittelt. Der Vergleich dieser Konversionsfaktoren und ihrer Wertebereiche zeigt, dass die in der Literatur beobachtete hohe Variabilität von Transferfaktoren ihre Ursache nicht in den Unsicherheiten dieser Konversionsfaktoren hat.

Tab. 3-11: Empfohlene Transferfaktoren für Iod nach Staven et al. (2003).

Art des Transferfaktors	Konversionsfaktoren in (kg TM) pro (kg FM)	Empfohlener Wert	Einheit	Primäre Quelle
Blattgemüse	0,20	0,04	1 <sup>a</sup>	Snyder et al. (1994)
Früchte	0,18	0,04	1 <sup>a</sup>	Snyder et al. (1994)
Wurzelgemüse	0,25	0,04	1 <sup>a</sup>	Snyder et al. (1994)
Getreidekorn	0,91	0,04	1 <sup>a</sup>	Snyder et al. (1994)
Rindfleisch		0,04	d kg <sup>-1</sup>	Bishop et al. (1989)
Geflügelfleisch		0,05	d kg <sup>-1</sup>	Snyder et al. (1994)
Milch		0,009	d kg <sup>-1</sup>	Snyder et al. (1994)
Eier		4,4	d kg <sup>-1</sup>	Snyder et al. (1994)
Süßwasserfisch		40	L kg <sup>-1</sup>	IAEA (1982)
Seefisch		10	L kg <sup>-1</sup>	Napier et al. (1988)
Süßwasserkrustaceen		100	L kg <sup>-1</sup>	Napier et al. (1988)
Salzwasserkrustaceen		50	L kg <sup>-1</sup>	Napier et al. (1988)
Mollusken		50	L kg <sup>-1</sup>	Napier et al. (1988)
Wasserpflanzen (Süßwasser)		300	L kg <sup>-1</sup>	Napier et al. (1988)
Wasserpflanzen (Salzwasser)		1500	L kg <sup>-1</sup>	Napier et al. (1988)

<sup>a</sup> bezogen auf TM Pflanze und TM Boden

Für den Transfer von Iod in Getreidekorn liegen nur wenige Arbeiten vor. Der von Staven et al. (2003) empfohlene Transferfaktor von  $0,04 \text{ (Bq (kg TM)}^{-1} \text{ pro Bq (kg TM)}^{-1})$  für Getreidekorn weicht deutlich vom dem durch Shinonaga et al. (2001) für diesen Transferfaktor angegebenen Erwartungswert von  $0,001 \text{ (Bq (kg TM)}^{-1} \text{ pro Bq (kg TM)}^{-1})$  ab. Shinonaga et al. (2001) gaben einen 95 %-Vertrauensbereich von  $0,0005 \text{ (Bq (kg TM)}^{-1} \text{ pro Bq (kg TM)}^{-1})$  bis  $0,008 \text{ (Bq (kg TM)}^{-1} \text{ pro Bq (kg TM)}^{-1})$  an, der insgesamt niedriger als der von Staven et al. (2003) empfohlene Wert liegt.

In einer neuen deutschen Untersuchung wurden ebenfalls radioökologische Messdaten zum Transfer Boden/Pflanze ausgewertet (Cierjacks und Albers, 2004). Für  $^{129}\text{I}$  wurden von diesen Autoren 344 Datensätze gefunden, von denen 330 aus den Publikationen von Haisch und Schüttelkopf (1993) und Pel (1993) stammen. Es handelt sich um Ergebnisse von Lysimeterversuchen mit sehr hohen  $^{129}\text{I}$ -Gaben. Cierjacks und Albers (2004) werteten 320 dieser Datensätze aus, von denen 310 sich auf den Transfer in Gras bezogen. Für die Transferfaktoren Boden/Pflanze geben Cierjacks und Albers (2004) einen geometrischen Mittelwert von  $0,014 \text{ (Bq (kg TM)}^{-1} \text{ pro Bq (kg TM)}^{-1})$  (Bereich  $0,001 - 1,86$ ) an.

Bisher wurden in Deutschland drei speziell auf den Transfer von  $^{129}\text{I}$  (und  $^{127}\text{I}$ ) ausgerichtete Forschungsvorhaben durchgeführt. Diese Vorhaben standen im Zusammenhang mit der Errichtung einer Wiederaufbereitungsanlage für abgebrannten Kernbrennstoff bzw. mit der Beurteilung der Emissionen und Immissionen der WAK in Karlsruhe.

1. Wegen der Bedeutung der Emissionen von  $^{129}\text{I}$  bei der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Kernbrennstoffen wurden im Hinblick auf die geplante Wiederaufbereitungsanlage in Wackersdorf umfangreiche Lysimeterexperimente unter Treibhaus- und unter Freilandbedingungen zum Transfer Boden/Bewuchs (Gras) durchgeführt (Haisch und Schüttelkopf, 1993; Pel, 1993).
2. In der Umgebung der WAK wurde der Transfer von  $^{129}\text{I}$  (und  $^{127}\text{I}$ ) durch die Gruppe um Aumann untersucht (Hauschild und Aumann, 1985, 1989, Robens und Aumann, 1988; Robens et al., 1988, 1989; Deitmanns et al., 1989; Robens-Palavinskas et al., 1989).
3. In Lysimeter- und Freilandexperimenten wurden am Niedersächsischen Institut für Radioökologie (NIR) der Transfer von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Boden in Pflanzen und Tiere untersucht (Handl und Pfau, 1986, 1989)

Die in den unter 1) und 2) genannten Arbeiten ermittelten Transferfaktoren haben ihren Weg in die internationalen Sammlungen gefunden und sollen hier nicht in den Ergebnissen im Einzelnen aufgeführt werden. Es ist jedoch noch anzumerken, dass in beiden Untersuchungen Unterschiede im Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  auftraten, deren Ursachen letztlich nicht geklärt werden konnten und die von den Autoren auf unterschiedliche Speziation oder Verfügbarkeit der Iod-Isotope zurückgeführt wurden.

Die früheren Analysen des NIR sollen in dieser Arbeit nicht näher diskutiert werden (Handl und Pfau, 1986, 1989). Die damals erhaltenen Ergebnisse werden derzeit am Nachfolgeinstitut, dem ZSR, erneut kritisch durchgesehen. Die seinerzeit teilweise nicht interpretierbaren Ergebnisse erscheinen nach den jüngsten Untersuchungen zur Migration von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Böden (Ernst, 2003; Ernst et al., 2002, 2003) in einem neuen Licht und müssen neu bewertet werden. Eine detaillierte Diskussion würde aber den Rahmen dieses Abschlussberichtes sprengen und muss daher zukünftigen Publikationen vorbehalten bleiben.

Mit der Aufgabe der Pläne zur Errichtung einer Wiederaufbereitungsanlage in Wackersdorf, nahm das Interesse an der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  ab. Da  $^{129}\text{I}$  bisher radiologisch nicht von Bedeutung ist, wurde die Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  vernachlässigt. Inwieweit Modelle für kurzlebige Iod-Isotope auf

$^{129}\text{I}$  übertragbar sind, sodass plausible Aussagen über die Wege des langlebigen Iods in der Umwelt und zum Menschen gemacht werden können, ist weitgehend unklar. Daraus ergab sich die Motivation dieser Untersuchung.

### 3.2 Szenarien für Iod-129

Um zu untersuchen, welche der radioökologischen Parameter sich für die kurzlebigen Iod-Isotope von denen für  $^{129}\text{I}$  unterscheiden könnten, ist es erforderlich, die relevanten Emissions- und Immissions-szenarien zu betrachten. Dabei beschränkt sich diese Arbeit auf die Situation in Deutschland. Es werden im Wesentlichen die Szenarien der AVV betrachtet.

Relevante Emissionsszenarien sind die oberirdischen Kernwaffenversuche, Ableitungen über die Fortluft und das Abwasser aus Wiederaufarbeitungsanlagen sowie ganz allgemein der Transfer aus der anthropogen beeinflussten Mischungsschicht der Ozeane. Emissionen aus Kernkraftwerken im bestimmungsgemäßen Betrieb können vernachlässigt werden, da sie zum einen extrem gering, zum anderen gegenüber der Vorbelastung aus den oberirdischen Kernwaffenexplosionen und den Immissionen aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen nicht nachweisbar sind.

Potenzielle Emittenten sind in Deutschland Brennelementzwischenlager, Konditionierungsanlagen und Endlager. Für Brennelementzwischenlager und Konditionierungsanlagen gelten die klassischen Emissionspfade über Ableitungen mit der Fortluft und dem Abwasser. Für Endlager kommen in der Betriebsphase potenzielle Emissionen in das Grundwasser in Frage; in der Nachbetriebsphase fallen die Emissionsmöglichkeiten über Fortluft und Abwasser weg und das langlebige  $^{129}\text{I}$  muss seinen Weg durch die technischen und geologischen Barrieren ins Grundwasser und von dort in die Biosphäre nehmen. In Modellrechnungen zu den potenziellen Strahlenexpositionen durch Endlager erscheint  $^{129}\text{I}$  als besonders wichtiges Radionuklid, das in einigen Endlagerszenarien als Erstes den Weg in die Biosphäre findet und den größten Dosisanteil liefert (NEA, 1999). Die Frage, inwiefern die in derartige Rechnungen eingehenden radioökologischen Parameter vernünftig sind, geht über die Fragestellung dieser Arbeit hinaus. Zweifel daran erscheinen aufgrund der hohen beobachteten Mobilität von  $^{129}\text{I}$  in bestimmten Umweltkompartimenten als angebracht, vgl. Alvarado-Quiroz et al. (2002).

Die derzeitige Situation in Deutschland stellt sich dergestalt dar, dass sich die Emittenten, die europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield, nicht auf deutschem Staatsgebiet befinden. Die andauernden Immissionen erreichen Deutschland über den Luftpfad und über den Pfad Meer-Atmosphäre-Fallout. Damit sind die wesentlichen Transportprozesse atmosphärischer Transport, trockene und nasse Deposition. Hinzukommen kommen Transportprozesse, die  $^{129}\text{I}$  aus den Einzugsgebieten der Oberflächenwässer (Flüsse, Seen) wieder den Meeren zuleiten und die  $^{129}\text{I}$  aus den Böden in das Grundwasser überführen. Im Licht der Befunde in Kapitel 5.4.4 sind aufgrund von Evaporation und Transpiration der Pedosphäre (Evapo-Transpiration) weitere Transportprozesse wie die Akkumulation in der wasserungesättigten Bodenzone und der Austausch zwischen Biosphäre und Atmosphäre zu betrachten.

Derzeit sind die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in den verschiedenen Umweltkompartimenten im Ungleichgewicht und es kann nicht davon ausgegangen werden, dass das Migrationsverhalten von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Böden identisch ist. Während  $^{127}\text{I}$  während der Entstehungsgeschichte der Böden eingetragen wurde, stammt der überwiegende Eintrag des  $^{129}\text{I}$  aus den letzten Jahrzehnten. Gleiches Sorptions- und Migrationsverhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  ist daher nur bei reversiblen Sorptionsprozessen zu erwarten, während irreversibel gebundenes Iod nicht für den Transfer in die Biosphäre zur Verfügung steht. Daraus folgt, dass nicht nur der Transfer von  $^{129}\text{I}$  zwischen den verschiedenen Kompar-

timenten sondern auch die Veränderungen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse – soweit analytisch erfassbar – zu bestimmen sind.

Das rezente  $^{129}\text{I}$  ist daher ein Tracer für die derzeitige Migration des „frisch eingetragenen“ Iods. Diese derzeitige Migration des stabilen Iods kann nicht anhand von  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationsänderungen verfolgt werden, da ein Teil des sorbierten  $^{127}\text{I}$  langsam austauscht.

Die Immissionen betreffen also die trockene und nasse Deposition, die Infiltration von Grundwasser und den Übergang von  $^{129}\text{I}$  aus Boden, Bodenwasser und Oberflächenwasser in Pflanzen und Tiere und allgemein in die menschliche Nahrungskette und den Menschen. Die direkte Ableitung in Flüsse ist in Deutschland nicht, wohl aber in den USA, Frankreich und wahrscheinlich in der ehemaligen UdSSR von Bedeutung.

Die angesprochenen Fragestellungen können in dieser Arbeit nur zum Teil bearbeitet werden. Diese Arbeit beschränkt sich auftragsgemäß mit dem Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  in Nordseewasser, der Atmosphäre, dem Niederschlag, dem Oberflächenwasser, in Boden und Bewuchs, in Nahrungsmitteln und im Menschen. Es werden damit Szenarien abgedeckt, die im Sinne der AVV den Luftpfad beschreiben. Für diesen in Deutschland derzeit relevanten Immissionspfad sollen die radioökologischen Parameter erarbeitet werden, die es erlauben, die am Menschen beobachteten anthropogenen Veränderungen zu verifizieren und eine Abschätzung der Exposition vorzunehmen.

Dabei sollen speziell die Unterschiede herausgearbeitet werden, die sich für  $^{129}\text{I}$  im Vergleich zum kurzlebigen  $^{131}\text{I}$  ergeben. In allen Situationen, in denen kurzlebige Iod-Isotope relevant waren, dominierte der Fallout auf Pflanzen mit nachfolgendem Transfer zum Tier und zum Menschen. Wegen der kurzen Halbwertszeit war der Boden-Pflanze-Pfad stets unbedeutend. Die Modellierung für langlebiges Iod beruhte auf Daten, die für das stabile  $^{127}\text{I}$  ermittelt wurden. Damit ging man praktisch von einem spezifischen Aktivitätsmodell aus, in dem gleiches Verhalten von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt nach Vermischung vorausgesetzt wird. Es ist eine wesentliche Aufgabe dieses Vorhabens herauszufinden, ob oder unter welchen Bedingungen diese Annahme gerechtfertigt ist, die durch die gleichzeitige Bestimmung von Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  bearbeitet werden kann.

Nicht behandelt wird der Transport von  $^{129}\text{I}$  in Meeren und Flüssen, der Übergang vom Wasser zu Wasserpflanzen und Wassertieren. Auch der Übergang stabilen und radioaktiven Iods vom Meer zur Atmosphäre wird nicht abschließend geklärt werden. Die Bandbreite des Transportes von  $^{129}\text{I}$  ins Grundwasser wird nur exemplarisch dargestellt.

### **3.3 Design der Untersuchung**

Die vorliegende Untersuchung wurde auf der Grundlage der in früheren Jahren am ZSR durchgeführten Untersuchungen zur Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  geplant. Sie soll alle bisherigen Kenntnisse zur Ökologie des  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  zusammenführen und für Norddeutschland eine vollständige Beschreibung der Wege der Iod-Isotope von der Quelle zum Menschen darstellen.

Um zu einer vollständigen Beschreibung der Wege von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  durch die verschiedenen Umweltmedien zum Menschen zu gelangen, müssen der Eintrag über Luft und Niederschläge in die Böden, der Austausch mit Oberflächen- und Grundwasser und der Transfer durch die gesamte Nahrungskette untersucht werden. Dies konnte im Rahmen der geplanten Laufzeit des Projektes nur mit exemplarischen Standorten und bei Konzentration auf die wesentlichen Expositionspfade erfolgen. Wegen der Bedeutung des Meeres als Quelle für natürliche und anthropogene Iod-Isotope sollten innerhalb der Untersuchung küstennahe und küstenferne Standorte einbezogen werden, da der Ein-

fluss der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen auf die Deutsche Bucht einen höheren Eintrag an  $^{129}\text{I}$  an der Küste erwarten lässt.

Die Probennahme wurde sehr umfangreich ausgelegt und es wurden weitaus mehr Proben genommen als in diesem Projekt analysiert werden konnten. Es sollte damit die Möglichkeit offen gehalten werden, bei überraschenden oder unerwarteten Ergebnissen Probenmaterial für weiterführende Untersuchungen zur Verfügung zu haben. Die untersuchten Umweltmedien umfassten Meerwasser, Luft Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser. Bei der Untersuchung des luftgetragenen Iods sollte sowohl die chemische Form als auch die Größenverteilung der Partikel untersucht werden. Für den Eintrag von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  aus der Atmosphäre waren in den letzten Jahren bereits Untersuchungen durch das ZSR für vier Standorte in Niedersachsen durchgeführt worden. Die daraus bereits vorhandenen Zeitreihen sollten im Rahmen dieses Projektes fortgeführt werden, um auch den aktuellen Eintrag zu erfassen.

Da für das langlebige  $^{129}\text{I}$  die Frage der Akkumulation in den verschiedenen Umweltmedien wesentlich ist, mussten die  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen in Ackerboden, Grünlandboden und Waldboden mit dem organischen und dem obersten mineralischen Auflagehorizont untersucht werden. Um den Transfer von Iod in die Nahrungskette zu verfolgen sollten repräsentative pflanzliche Produkte aus landwirtschaftlicher Produktion und von Waldstandorten untersucht werden. Besonderes Gewicht sollte auf die Untersuchung des Transfers Boden-Pflanze, Pflanze-Milch bzw. Boden-Milch sowie Futtermittel-Fleisch bzw. Boden-Fleisch gelegt werden.

Von pflanzlichen Nahrungsmitteln (Getreide, Blattgemüse, Kartoffeln etc.), pflanzliche Futtermittel (Grünlandbewuchs und Feldfrüchte) werden solche ausgewählt, die Hauptnahrungsmittel oder besondere Iod-Lieferanten in der menschlichen Nahrung darstellen oder die besonders lange Wachstums- und Entwicklungszeiten aufweisen.

Aber auch pflanzliche und tierische Nahrungsmittel von Waldstandorten (Hirsch, Reh, Wildschwein etc.) sollten in die Untersuchung einbezogen werden. Die Endpunkte des  $^{129}\text{I}$  Eintrags sollen schließlich durch die Analyse von Gesamtnahrung und von menschlichen und tierischen Schilddrüsen untersucht werden. Durch Untersuchung der gesamten Nahrungskette sollte so der Response der Biosphäre auf die anthropogenen Veränderungen quantifiziert werden. Dabei sollten möglichst Umweltmedien identifiziert werden, die als empfindliche Indikatoren für den Eintrag von  $^{129}\text{I}$  geeignet sind.

Die Probenahme sollten nach den Vorschriften der Messanleitungen bzw. des Programms zur Überwachung der Umweltradioaktivität erfolgen. Darüber hinaus wurde außerhalb dieses Projektes die im Rahmen des Projektes auf Iod-Isotope zu untersuchenden Medien auch auf sonstige natürliche und anthropogene Radionuklide hin zu untersucht (Vahlbruch, 2004).

Durch Kombination von RNAA, AMS, IC und ICP-MS als analytische Verfahren zum Nachweis von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ , sollten sowohl das radioaktive Iod als auch das stabile Iod erfasst werden. So sollte es möglich sein, zu untersuchen, inwieweit unterschiedliche Verfügbarkeiten der beiden Iod-Isotope den Transfer durch die Umwelt und die Nahrungskette beeinflussen.

## 4 Experimentelles

### 4.1 Probennahme

#### 4.1.1 Generelle Überlegungen

Dieser Abschlussbericht wird die Ergebnisse dieses Forschungsvorhabens im Kontext aller bereits früher am ZSR durchgeführten Untersuchungen zur Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  diskutieren. Daher ist es notwendig, die verschiedenen Phasen der damit zusammenhängenden Probennahme und ihre geographische Zuordnung darzustellen.

In früheren Untersuchungen wurden  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in natürlichen Wässern (Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser) aus Niedersachsen – aufgeteilt in vier Regionen – in langjährigen Messreihen bestimmt (Abb. 4-1):

- eine küstennahe Region I, überwiegend in Ostfriesland,
- eine Region II im Weser-Ems Gebiet,
- eine Region III im Harzvorland und
- eine Region IV im Elbetal und Wendland.



Abb. 4-1: Probenahmeorte für Niederschlag, Grund-, Oberflächen- und Meerwasser

Diese Bezeichnung der Regionen wird hier beibehalten, wobei in die Region III auch das Umland von Hannover eingeordnet wurde. Weitere Probenahmen von Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, sowie die entsprechenden Analysen wurden im Rahmen dieses Forschungsvorhabens durchgeführt.

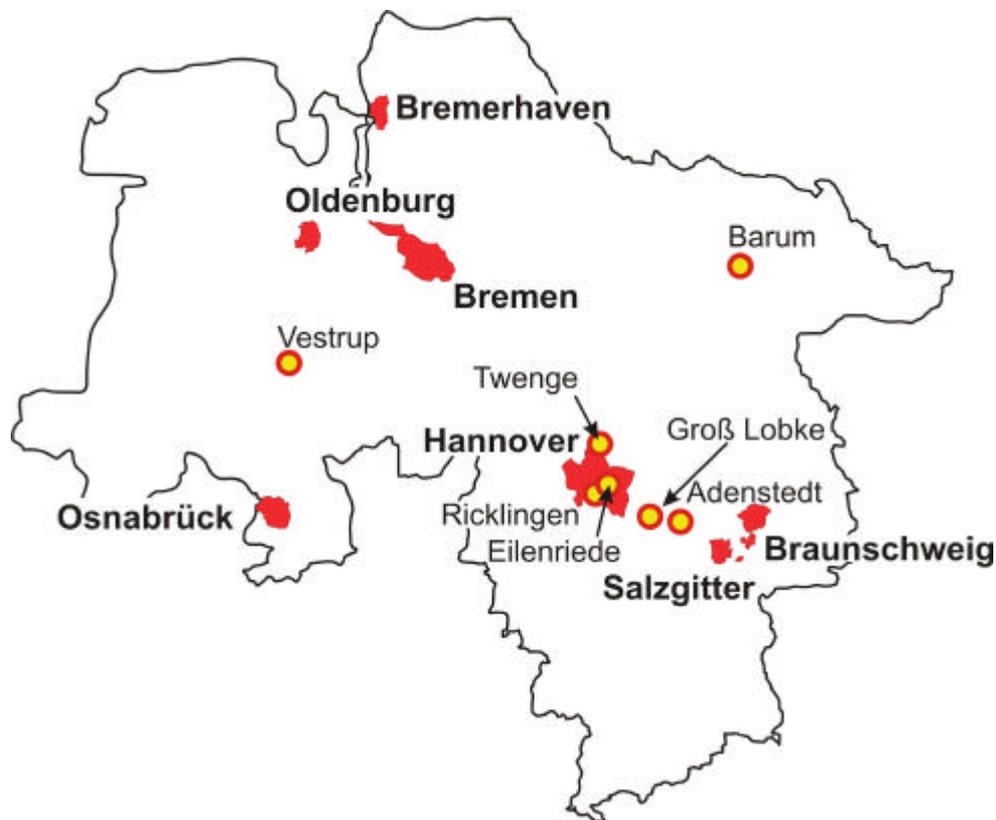


Abb. 4-2: Probenahmeorte für Bodenprofile (Ernst et al., 2003)

In einer umfangreichen Untersuchung natürlicher und anthropogener Radionuklide in Böden wurden am ZSR sieben vollständig bodenkundlich charakterisierte Bodenprofile auf  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  analysiert (Ernst, 2003; Ernst et al., 2002, 2003; Harb, 2004). Die Probenahmepunkte (Abb. 4-2) lagen bis auf Vestrup (Region II) und Barum (Region IV) in Region III.

Um im vorliegenden Forschungsvorhaben ein küstennahes und ein küstenfernes Gebiet zu erfassen, wurden die in Abb. 4-3 dargestellten Probenahmepunkte in Region I und III zur Untersuchung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Boden, Bewuchs, pflanzlichen und tierischen Nahrungsmitteln gewählt. Diese Probenahme wird hier als spezielle Probenahme bezeichnet und im Folgenden näher beschrieben. Zusätzlich werden noch die Ergebnisse früherer Untersuchungen von Boden, Bewuchs und Milch aus Region IV diskutiert.

Eine Zusammenstellung der Probenahmeorte, ihrer Zuordnung zu den vier Regionen und die Klassifizierung als küstennah und -fern ist in Tab. I.1 im Anhang gegeben. Der Zeitraum der speziellen Probenahme für dieses Vorhaben erstreckte sich vom Mai 2001 bis Mai 2003. Dabei wurden an insgesamt 11 verschiedenen Standorten in Niedersachsen Proben gesammelt und in das ZSR zur weiteren Verarbeitung verbracht. Der Abbildung kann man die wichtigsten Probenahmeorte entnehmen, detaillierte Angaben befinden sich in der Tab. I.2 im Anhang. Die Auswahl der an den Probenahmen beteiligten landwirtschaftlichen Betriebe versucht, die unterschiedlichen Regionen in Niedersachsen repräsentativ zu vertreten. Durch die Betriebe „Neßmerpolder“ und „Gründeich“

standen zwei küstennahe Standorte, durch die Höfe „Schessinghausen“, „Gestorf“, „Hermannsdorfer Landwerkstätten“ (HLW) und „Jeinsen“ Standorte um Hannover und mit Schlewecke ein Betrieb im Harzvorland als Probenahmeorte zur Verfügung (Tab. I.2 im Anhang). Himbeeren und Brombeeren sowie Ziegenmilch und –fleisch konnten nur in Region III von den Betrieben Gleidingen bzw. Buntenbock bezogen werden.

Eine grobe bodenkundliche Einschätzung der Standorte, die anhand von Benzler et al. (1997) und der dazu gehörigen digitalen bodenkundlichen Übersichtskarte vorgenommen wurde, ist ebenfalls in Tab. I.2 im Anhang zu finden. Insgesamt wurden in den zwei Jahren 298 Proben entnommen und ans ZSR verbracht. Damit wurden weitaus mehr Proben genommen als für das aktuelle Projekt vereinbart war. Dies geschah, um zu einem späteren Zeitpunkt bei sich erst im Laufe des Vorhabens ergebenden Fragen hinreichende Mengen an Proben für weiterführende Untersuchungen zur Verfügung zu haben.

Alle Proben wurden außer auf  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  auch gamma-spektrometrisch auf natürliche und künstliche Radionuklide hin untersucht (Vahlbruch, 2004; Harb, 2004). Diese Ergebnisse werden hier aber nicht näher diskutiert.

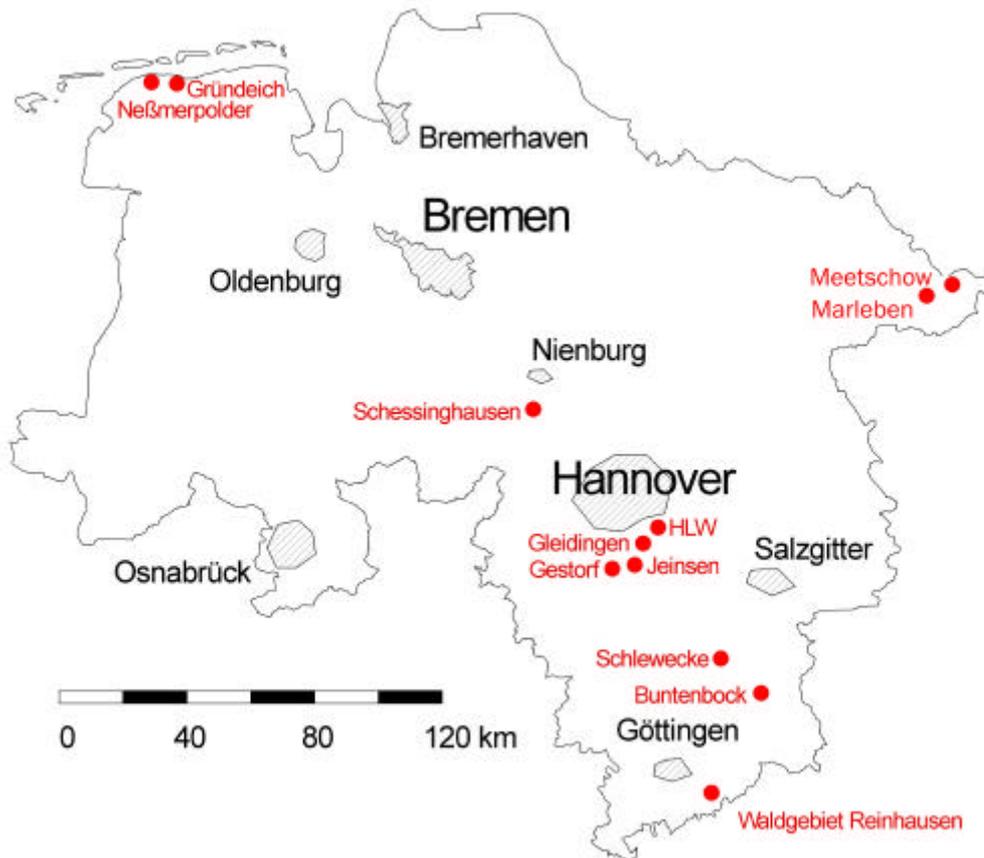


Abb. 4-3: Probenahmeorte für Boden, Bewuchs sowie tierische und pflanzliche Produkte

Auch die Untersuchung menschlicher und tierischer Schilddrüsen hat im ZSR eine lange Tradition, vergleiche Handl (1996) und dort angegebene Literaturstellen. Im Rahmen dieses Vorhabens wurde weitere menschliche Schilddrüsen aus den Regionen I (Hamburg) und III (Hannover) gesammelt und analysiert. Tierische Schilddrüsen konnten ausschließlich aus Region III beschafft werden.

In der Kette der Arbeitsabläufe von den Probenahmen bis hin zum Messergebnis kommt den Probenahmen zweifelsohne eine besondere Bedeutung zu. Unterlaufen nämlich bei der Probenahme Fehler oder werden wichtige Informationen nicht oder nur unzureichend dokumentiert, so ist das später erhaltene Messergebnis wertlos. Aus diesem Grund weist z. B. die Staatliche Landwirtschaftliche Untersuchungs- und Forschungsanstalt (LUFÄ) in Münster darauf hin, dass nach Möglichkeit die Probenahme „geschulten Probenehmern“ überlassen werden sollte. Da dies im Rahmen dieses Projektes nicht möglich war, wurde versucht, die in den „Messanleitungen“ (BMU, 2000) beschriebene Vorgehensweise umzusetzen. Prinzipiell orientierten sich die Probenahme und der damit einhergehende Aufwand immer am eigentlichen Zweck der Untersuchung und an der im Anschluss zu treffenden Aussage. Zur vollständigen Dokumentation wurde eine Datenbank im Access-Format angelegt, in der alle relevanten Parameter wie z. B. die Art der Probenbehandlung, Frischmasse (FM), Trockenmasse (TM), Aschgewicht (AG) oder der Ort der Lagerung festgehalten wurden; bzgl. Details siehe Tab. I.3a und Tab. I.3b im Anhang.

#### **4.1.2 Nordseewasser**

Die ersten Untersuchungen an Nordseewasser wurden von Yiou et al. (1994) nach Probenahme in den Jahren 1984–1992 durchgeführt. Weitere Probennahmen und Untersuchungen fanden in den Jahren 1980–1995 vor der norwegischen Küste (Yiou et al., 2002) und in den Jahren 1995–1999 aus dem Kattegat und der Ostsee statt (Hou et al., 2002). Lopez-Gutierrez et al. (2004) untersuchten ein Sedimentprofil aus dem Kattegat. Alfimov et al. (2002) analysierten 13 Proben aus dem Jahr 1999 von Oberflächenwasser aus dem Atlantik und der Ostsee auf einer Linie, die sich auf der Höhe des 60. Breitengrades von 30° W (im Nordatlantischen Strom) bis in die Ostsee erstreckte. In der Nordsee und im Kattegat nahmen sie je zwei Proben (vgl. Kap. 5.4.1).

Vom ZSR wurden zwischen Juni 1999 und April 2002 insgesamt 8 Proben von Nordseewasser bei Spieka, auf Amrum und in Neßmersiel genommen. Zusätzlich wurde je eine Probe von der dänischen Nordseeküste bei Vejers (N: 55° 37' 60"; O: 8° 7' 60") und aus dem Golf von Biskaya bei La Gurr (N: 45° 24' 26"; W: 1° 9' 16") genommen.

Die untersuchten Meerwasserproben aus der Nordsee wurden nach den Probenahmen ohne weitere Konservierung maximal zwei Wochen bis zur Probenaufarbeitung gelagert. Bzgl. weiterer Details siehe Szidat (2000).

#### **4.1.3 Luft**

1976 konzipierte Rahn et. al. (1976) einen Aerosolsammler zur Erfassung von partikelgebundenen und gasförmigen Halogenen. Partikel größer als 0,4 µm wurden klassisch über Membranfilter abgetrennt. Gasförmige Halogene sollten darüber hinaus selektiv nach anorganisch und organisch getrennt werden. Diese Selektion erfolgte über imprägnierte Filter. Dazu wurden herkömmliche Cellulosefilter mit Lithiumhydroxid/Glycerol imprägniert, um anorganisches Iod zurückzuhalten. Das größere, gasförmige organische Iod sollte die behandelten Filter passieren, um anschließend in Aktivkohle fixiert zu werden. Der wesentliche Teil des Aerosolsammlers war somit die selektiv wirkende Lithiumhydroxid-Filtereinheit.

Am ZSR wurde das Filtersystem soweit modifiziert, dass es mit einem BERNER Impaktor als Membranfilterersatz betrieben werden konnte. Erfahrungen aus Arbeiten von Wershofen (1988),

Yoshida und Muramatsu (1995) und Birch et. al. (1994) flossen in das modifizierte Filterkonzept von Ernst (2003) mit ein.

Die jetzt eingesetzte Filterapparatur besteht aus einem Impaktor mit kritischer Düse, BERNER Impaktor (Bernier und Lürzer, 1980; Lodge und Chan, 1986), an die eine Filtereinheit mit anorganisch/organisch selektiven Filtern und einer Sorptionseinheit mit imprägnierter Aktivkohle angeschlossen ist (Abb. 4-4 und 4-5).

### Der anorganisch/organisch selektive Filter

Der selektive Lithiumhydroxid-Filter darf nicht nach Größe selektieren, sondern nach chemischen Eigenschaften. Der stark alkalische Filter sollte durch Absenkung des Reduktionspotenzials verhindern, dass durch Oxidation zum  $I_2$  ein anorganischer Iod-Verlust eintritt. Substitutionsreaktionen von Iod-organischen Verbindungen sollten nicht im Lithiumhydroxid-Filter auftreten. Iod-organische Verbindungen können in Gegenwart von Chlorid und Bromid Iodid freisetzen. Damit ist die Selektivität der Lithiumhydroxid-Filter eingeschränkt. Rahn et al. (1976) ermittelten folgerichtig unterschiedliche analytische Messunsicherheiten der Einzelmessung für anorganisches und organisches Chlor (10 %), Brom (15 %) und Iod (20 %).

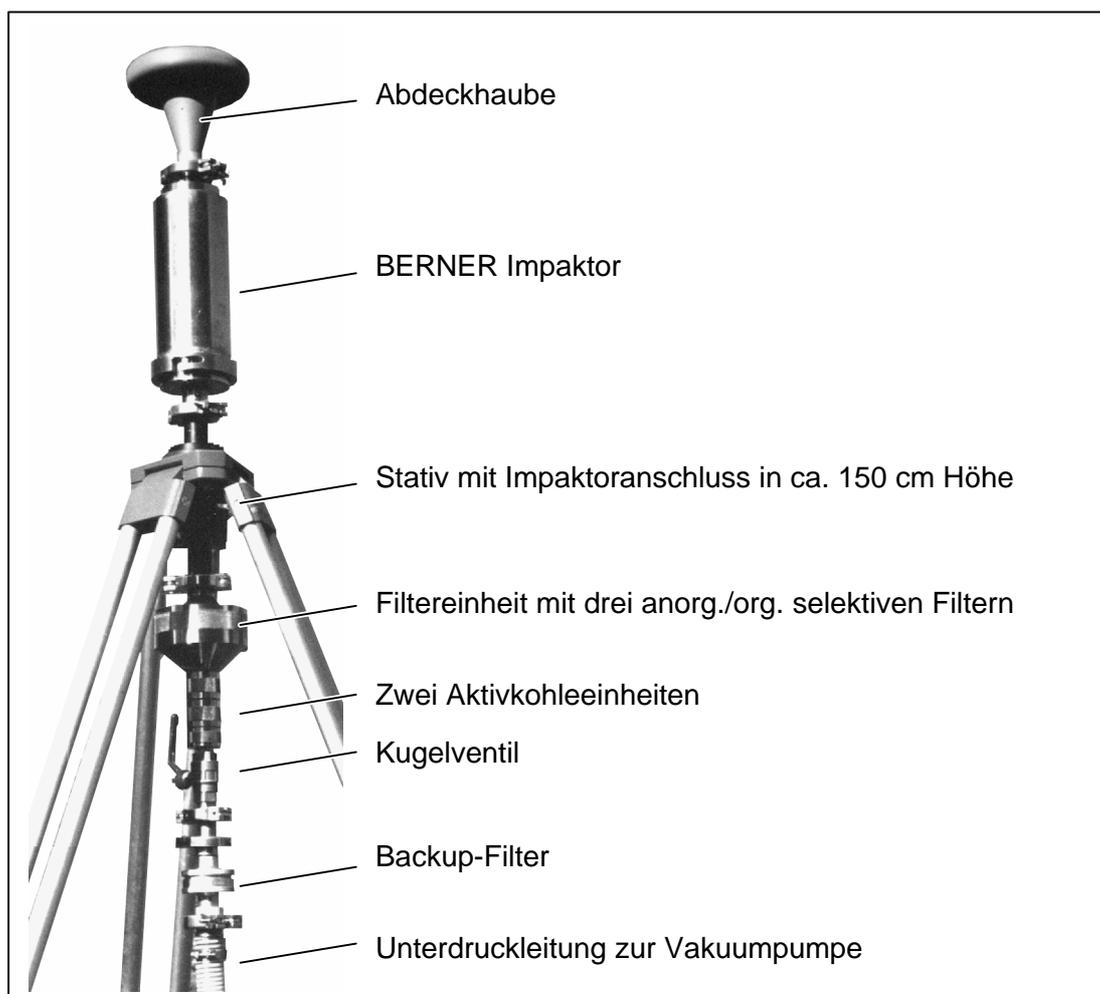


Abb. 4-4: Aufbau des Aerosolsammelsystems

In erster Linie werden in dieser Arbeit  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zur Auswertung herangezogen. Somit ist der analytische Fehler nur dann relevant, wenn er für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  abweicht. Das ist der Fall, wenn  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in unterschiedlichen chemischen Iod-Spezies auftreten. Dieses nachzuweisen ist ein Ziel der Messung und kann u. a. durch abweichendes Penetrationsverhalten innerhalb der Lithiumhydroxid-Filter erkannt werden. Die Verwendung von mehr als zwei Filtern lässt ein abweichendes Penetrationsverhalten anhand der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse quantifizieren und korrigieren, sodass der analytische Fehler verringert werden kann. Aus diesem Grund ist der Filterhalter modular ausgelegt, um bis zu fünf Lithiumhydroxid-Filter äquidistant aufnehmen zu können.

Inwieweit die Selektivität der Lithiumhydroxid-Filter auf chemisches Verhalten zurückzuführen ist, lässt sich nicht eindeutig feststellen. Der Grund ist, dass eine Überlagerung von chemischer Selektion und Selektion nach Größe vorliegt. Dies ist insbesondere dann nicht auszuschließen, wenn das imprägnierte Filter durch zunehmende Beladung oder durch Änderung der kapillaren Haftkräfte seine Partikelhaftwahrscheinlichkeit verringert. Vor allem eine Wassersättigung der Faserfilter durch die Luftfeuchtigkeit (maritime Luftfeuchtigkeit im Jahresmittel: 98 %) verändert die Selektivität der Filter nach der Größe der Aerosole. Die Folge ist ein Anstieg des Druckverlusts am Filter um mehr als eine Größenordnung. Obwohl der Druckverlust zunimmt, verringert sich die Abscheidungsrate von Aerosolen zugunsten der Penetration durch die Faserfilter. Der Grund liegt im Zusammenrücken und Aufquellen der Filterfasern durch Kapillarkräfte, sodass die Porengröße zunimmt (Faserfusion) (Baraket, 1992). Eine Belastung der Faserfilter mit Feuchtigkeit verringert somit die Größenklassifizierung, während Aussagen über die Änderung der chemischen Selektivität nicht getroffen werden können. Einerseits ist die Wirksamkeit der Imprägnierung an Feuchtigkeit gebunden, andererseits kann dadurch die Verweilzeit der Gase und Partikel innerhalb des Filters abnehmen.

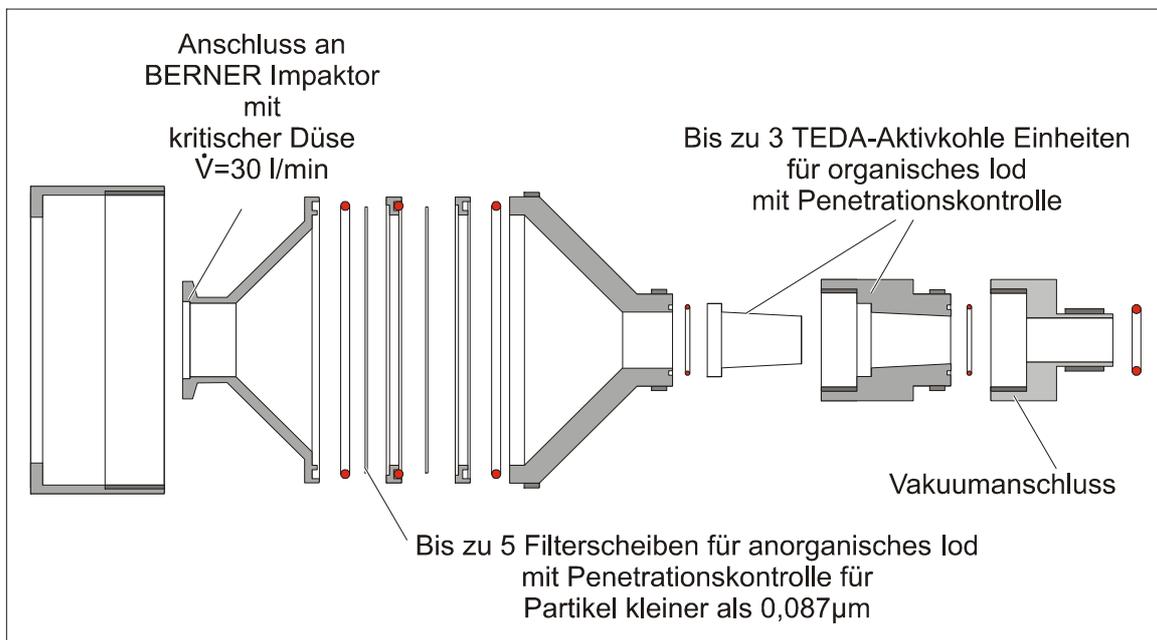


Abb. 4-5: Modulare Aerosolsammeleinheit ohne BERNER Impaktor

Eine Verbesserung der Abscheidungscharakteristik durch die Wahl besserer Filtermaterialien ist nicht möglich. Für die Sammlung von Aerosolen sind Glasmikrofaser-Tiefbett-Filter am besten geeignet. Sie haben im Vergleich zu Cellulose-Filterpapieren einen geringeren Luftströmungswiderstand und eine höhere Ladungskapazität. Sie besitzen jedoch die Nachteile, dass die Imprägnie-

rung schlechter aufgenommen wird und es während der Iod-Matrixtrennung mittels Trockenveraschung zu einem Analytverlust durch Zusammenbacken kommt.

Aufgrund der schlechteren Abscheidecharakteristik der Cellulosefilterpapiere muss das Filtersystem mit möglichst geringer Belegung der Filter betrieben werden. Eine Verringerung der Belegung durch Erhöhung der Filterflächen ist nicht möglich. Mit zunehmender Vergrößerung der Filterflächen erhöht sich der Blindwert für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ . Dies kann nur über eine Erhöhung der Sammelmen gen kompensiert werden, was wiederum die Belegung der Filter und die Messzeiten erhöht. Die Wahl der kleinsten möglichen Filtergröße ist anhand der zu erwartenden mechanischen Belastung nach einer Faserfusion festzulegen.

Die Selektion des Filtersystems ist laut Wershofen (1988) „etwas besser“, wenn man den Filter statt mit Lithiumhydroxid mit Tetrabutylammoniumhydroxid (TBAH) imprägniert. Hierauf wurde aus folgenden Gründen verzichtet:

- Lithiumhydroxid führt zu einer Quellung der Cellulose, sodass die Imprägnierung auch in der Tiefe des Filters wirksam wird und eine spätere Veränderung des Filters durch Faserfusion geringer ausfällt. Die Verteilung des hydrophilen Imprägnierungsmittels Lithiumhydroxid in Glycerol ist besser als die Verteilung von TBAH, sodass im Zweifelsfall homogener imprägnierte Filter entstehen.
- Während Lithiumhydroxid ein reduzierendes Milieu schaffen und so anorganisches Iod als Iodid immobilisieren soll, bildet TBAH Ammoniumverbindungen. Diese werden auch von Chlorid und Bromid gebildet. Da über Seaspray mehr Chlorid und Bromid als Iod in den Filter eingetragen wird, nimmt im Verlauf der Sammlung die Abscheidewahrscheinlichkeit für Iod ab, sodass vermeintlich höhere Anteile an organischem Iod gemessen werden. Der Verbrauch von Lithiumhydroxid ist nicht an dem Eintrag von Chlorid und Bromid gebunden. Es ist zu vermuten, dass den Eintrag von Säurebildnern und basischen Stäuben zu einem geringeren Verbrauch von Lithiumhydroxid führt als der Verbrauch von TBAH durch Komplexbildung.

## **Der Impaktor**

Die Abtrennung aller Aerosole oberhalb  $1\ \mu\text{m}$  ist eine notwendig Bedingung zur Aufrechterhaltung der Selektivität des Filtersystems, weil sie die Belegung der Filtereinheiten verringert. In den Systemen von Rahn et. al. (1976), Yoshida und Muramatsu (1995) und Wershofen (1988) erfolgte die Abtrennung über sehr glatte Polycarbonat-Membranfilter, die mittels Kernspurverfahren hergestellte exakte Porengrößen von  $0,4 \pm 0,04\ \mu\text{m}$  aufweisen (Nuclepore-Filter). Membranfilter unterliegen nicht der Faserfusion. Ein weiterer Vorteil ist die geringe Sorption von gasförmigen Iod-Verbindungen und die gute Rückhaltung von Aerosolen, die größer als  $0,4\ \mu\text{m}$  sind.

Dennoch ist der Einsatz dieser Membranen zur Bestimmung der Aerosolmengen größer als  $0,4\ \mu\text{m}$  nicht geeignet. So konnte Wershofen (1988) die Mengen an Partikeln größer als  $0,4\ \mu\text{m}$  je nach Sammelbedingungen nicht nachvollziehen. Dies ist die Folge der sehr glatten Oberfläche der Polycarbonat-Membran.

Membranfilter sind nicht in der Lage, Substanzen unter Freilandbedingungen soweit zu immobilisieren, dass es nicht zu Aerosolverlusten durch elastische Stöße oder Erosion kommt. Spätestens bei der Auswage ist mit Verlust an Sammelgut zu rechnen. Das erklärt, warum sowohl Rahn et al. (1976) als auch Yoshida und Muramatsu (1995) einen Anteil von 70 % bis 80 % organisch gebundenen Iods gefunden haben, während Wershofen (1988) Werte zwischen 19 % und 74 % ermittelt

hat, die mit den Gehalten an Partikeln größer als  $0,4 \mu\text{m}$  (9 % bis 60 %) korrelieren (Wershofen, 1988). Das Ergebnis von Wershofen (1988) ist nicht plausibel, da Rahn et al. (1976) und Yoshida und Muramatsu (1995) unter Einfluss von Seaspray gemessen haben. Aufgrund der hohen Seaspray-Gehalte hätte es bei ihnen einen wesentlich höheren Anteil an Iod-Partikeln im Vergleich zu Wershofen (1988) und Birch et al. (1994) geben müssen. Birch et al. (1994) erhielten zwar auch um 80 % gasförmiges organisches Iod, benutzten aber einen klassischen Glasmikrofaser-Tiefenfilter geringer Abscheideleistung (Whatman GF/A), um Partikel vor dem selektiv wirksamen Filtern abzutrennen. Bei einem typischen Sammelvolumen von  $2000 \text{ m}^3$  mit einer Durchflussrate von  $45 \text{ L min}^{-1}$  bis  $55 \text{ L min}^{-1}$ , ist bei Glasmikrofaser-Tiefenfilter mit Penetrationen zu rechnen. Da sich die Abscheidewahrscheinlichkeit über einen Sammelzeitraum von mehreren Tagen, bei unterschiedlichen Wetterverhältnissen stark ändert (Baraket, 1992), ist sowohl das zurückgehaltene als auch das penetrierte Aerosol nicht ausreichend charakterisiert. Aufgrund der unterschiedlichen Sammelbedingungen und -mengen der Arbeitsgruppen wurde in dieser Arbeit die Abtrennung der Aerosole größer als  $1 \mu\text{m}$  durch einen neunstufigen BERNER Impaktor vorgenommen.

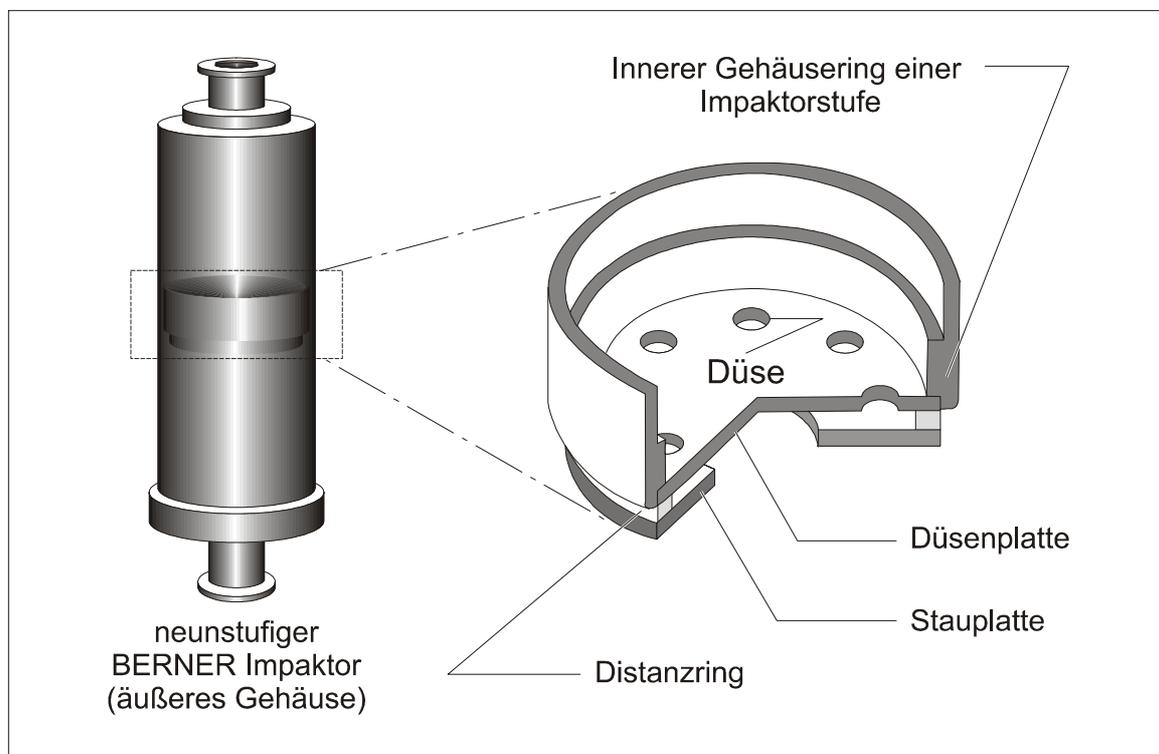


Abb. 4-6: Schnittbild einer Impaktorstufe eines neunstufigen BERNER Impaktors

Erfasste Partikel werden in einem Impaktor (Abb. 4-6) nach Größe und Masse selektiert und außerhalb des Volumenstromes deponiert, sodass sie nicht mehr zur Beladung des Filter-Systems beitragen können. Die Geschwindigkeit des Volumenstromes durch die Stufen des Impaktors wird durch Düsen bestimmt, die jeweils oberhalb einer Filterscheibe angeordnet sind. Diese weisen in der Mitte ein Loch großen Querschnitts auf. Durch die Wahl von Größe und Anzahl der Düsen können nur Partikel unterhalb einer bestimmten Größe und Schwere dem Volumenstrom folgen. Alle anderen Partikel werden auf einer Filterscheibe deponiert. Zur Vermeidung von Überladung und zur besseren Immobilisierung abgeschiedener Partikel und Feuchtigkeit wurden die Filterscheiben mit Cellulose-Filtern belegt. Durch gravimetrische Bestimmung der Sammelmengen in den Cellulose-Filtern ergibt sich eine Größenverteilung der abgeschiedenen Aerosole über alle Impaktorstufen. Aus den ermittelten Größenverteilungen lassen sich Aussagen sowohl über abgeschiedene Aerosole im Im-

paktor als auch in die nächste Filtereinheit eintretende Aerosole machen, soweit die Größenverteilung Aerosoltypen zugeordnet werden kann. Die Wahl des Impaktors und der Betrieb müssen wohl durchdacht werden, da bei einem Impaktor auch Sammelverluste auftreten. Ein weiterer Vorteil eines BERNER Impaktors ist der konstante Volumenstrom. Dieser wird durch eine so genannte kritische Düse am unteren Ende des Impaktors realisiert. Die Düse ist so ausgelegt, dass sie die durchströmende Luft auf Schallgeschwindigkeit beschleunigt. Eine höhere Geschwindigkeit ist nicht zu erreichen, sodass bei einer maximalen Saugleistung der Vakuumpumpe, auch Veränderungen im Druckabfall der nachgeschalteten Filter keine Auswirkungen auf dem Volumenstrom haben.

### **Die Aktivkohleeinheit**

Die letzte Stufe des Aerosolsammlers besteht aus Aktivkohleeinheiten. Die Aktivkohle soll das noch nicht aus dem Volumenstrom heraus gefilterte organische Iod vollständig adsorbieren. Aktivkohlen besitzen hervorragende Sorptionseigenschaften, die abhängig vom Angebot an Adsorptiv und Co-Adsorptiven zu mehr oder weniger vollständigen Sorptionen des Analyten führen. Der Grund liegt darin, dass für jedes Adsorptiv unterschiedliche Gleichgewichtsbedingungen zwischen Adsorption und Desorption bestehen, die eine Konzentrationsabhängigkeit von allen beteiligten Sorptionspartnern zeigen. Die Akkumulation von Feuchtigkeit in der Aktivkohle ändert die Sorptionseigenschaften. Das hat zur Folge, dass es zu Verlusten an adsorbiertem Iod kommt. Um dies zu verhindern, muss die Aktivkohle in die Lage versetzt werden, Iod-Adsorbate einzugehen, die nicht mehr durch das Co-Adsorptiv Feuchtigkeit beeinflusst werden. Imprägniert man Aktivkohle mit Triethylendiamin (TEDA), so wird Iod in einem TED-Charge-Transfer-Komplex chemisch gebunden, während das TEDA an der Aktivkohle sorbiert bleibt. Eine Desorption von TEDA durch Wasser ist aufgrund der hydrophoben Eigenschaften und der schlechten Wasserlöslichkeit von TEDA unwahrscheinlich.

Ein weiteres Problem stellt der Gehalt von Iod innerhalb der Aktivkohle dar. Aktivkohle wird in der Regel aus Pflanzen gewonnen. Das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von Aktivkohlen entspricht dem anthropogenen  $^{129}\text{I}$ -Eintrag in die Pflanzen. Zu den gering iodbelasteten Aktivkohlen zählen Kohlen aus Kokosnussschalen. Kokosnüsse können nur begrenzt  $^{129}\text{I}$  akkumulieren, da die Wachstumsperiode begrenzt ist. Dennoch ist der Iodgehalt in der Aktivkohle so hoch, dass er limitierend für die notwendigen Sammelmengen werden kann. Die Menge an eingesetzter Aktivkohle muss deshalb so gering wie möglich gehalten werden. Das erreicht man durch modulare Einheiten mit geringer Aktivkohlefüllung. Blindwerte der Aktivkohleeinheiten, in denen keine nennenswerten Iodmengen gesammelt wurden, brauchen nicht mehr berücksichtigt zu werden. Auch bei der Berechnung der penetrierten Iodmengen braucht der Blindwert der nur gering beladenen Aktivkohleeinheiten nicht mehr berücksichtigt werden.

Eine erste Testmessung mit 25 m<sup>3</sup> Sammelvolumen wurde am ZSR durchgeführt. Sie diente der Überprüfung und Optimierung der Filterapparatur und stellte keine kontinuierliche Messung dar. Dennoch wurde eine Auswertung durchgeführt, um Aussagen über Mindestsammelmengen und Penetrationsverhalten machen zu können. Die zweite Messung mit 348 m<sup>3</sup> Sammelvolumen auf der Nordseeinsel Föhr war Teil dieses Vorhabens. Die Durchführung der Messung, die Analytik und Auswertung sind ausführlich bei Ernst (2003) beschrieben. Die Sammelmengen der einzelnen Messungen zeigen deutliche Unterschiede im Gehalt und Penetrationsverhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ .

#### **4.1.4 Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser**

Den in Rahmen dieses Vorhabens durchgeführten Untersuchungen an Böden, Aerosolen, Niederschlägen, Oberflächenwässern, Grundwässern, Milch und Bewuchsproben sind langjährige Mess-

reihen zur Untersuchung der Entwicklung der  $^{129}\text{I}$ -Kontamination in Niedersachsen vorausgegangen.

Die Probennahme Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser erfolgte ausschließlich durch das Niedersächsische Landesamt für Ökologie (NLÖ). Parallel zur Bodenentnahme in den ersten 10 cm wurde Bewuchs in Form von Weidegrasschnitt im Frühsommer beprobt. Die Probennahmen durch das NLÖ erfolgten in der niedersächsischen Region Wendland im Wassereinzugsgebiet der Elbe. Aus dieser Region wurden auch Milchproben vom NLÖ zur Untersuchung bereitgestellt. Das Verfahren der Probennahme, die Lagerung und Aufbereitung sind bereits bei Schmidt (1998) und Szidat (2000) beschrieben und haben sich seitdem nicht wesentlich verändert. Das Gleiche gilt für die Entnahme und Behandlung natürlicher Wässer.

#### **4.1.5 Boden**

Neben den von Ernst et al. (2002, 2003) untersuchten sieben Tiefenprofilen aus Niedersachsen wurden alle übrigen Bodenproben, die am ZSR untersucht wurden, nach den nachstehenden Verfahren genommen, wie sie zur repräsentativen Entnahme von Boden z. B. in den Messanleitungen (BMU, 2000) und von Breder (1994) beschrieben wurden. Dabei wird das zu beprobende Gelände in einem Zickzackkurs möglichst gleichmäßig abgeschritten und mithilfe einer Kernrammsonde (Bohrstock) an verschiedenen Stellen aus den oberen 30 cm eine Bodenprobe entnommen. Diese unterschiedlichen Einzelproben werden anschließend gründlich vermischt und homogenisiert, um somit eine für das zu beprobende Gelände repräsentative *Bodenmischprobe* zu erhalten. Dabei ist darauf zu achten, dass die Gesamtzahl der zu nehmenden Einzelproben 20 nicht unterschreiten darf. Dies entspricht im Wesentlichen einem von Gilbert (1987) unter der Bezeichnung „simple random sampling“ vorgestellten Verfahren. Grenzbereiche zu Straßen, Wegen und Gräben wurden von der Probenahme ausgeschlossen. Alternativ zum oben beschriebenen Verfahren wurde an den Probenahmeorten, an denen der Bewuchs einem Standort exakt zugeordnet werden konnte, eine so genannte *Bodeneinzelprobe* entnommen. Dabei wird unter der Berücksichtigung der Wurzeltiefe des Bewuchses, in aller Regel allerdings nicht tiefer als 30 cm, an der zu beprobenden Stelle mithilfe einer Handschaufel sorgfältig Boden entnommen. Dieses Verfahren bietet sich z. B. bei der Beprobung von solchen Böden an, auf denen Gemüse angebaut wird. Prinzipiell wurden Bodenproben zusammen mit weiteren Proben wie z. B. Bewuchs, Gemüse oder Getreide genommen, um die Berechnung eines Transfer- oder Konzentrationsfaktors zu ermöglichen.

#### **4.1.6 Futtermittel**

Zu Futtermittel zählen allgemein Weide- und Wiesenbewuchs, also Klee, Gras oder Luzerne, aber auch Heu- und Maissilage. Sowohl der Hof „Neßmerpolder“ als auch die „Hermannsdorfer Landwerkstätten (HLW)“ bauten Futtermittel an und wurden folglich auch diesbezüglich beprobt. Vom Hof „Schessinghausen“ wurde Maissilage beprobt. Bei der Beprobung von Weide- und Wiesenbewuchs wurde zum Zeitpunkt des 1. Schnittes (Neßmerpolder 2001 und 2002, HLW nur 2002) und des 2. Schnittes (Neßmerpolder und HLW 2001 und 2002) mithilfe einer Sense, analog zur Probenahme einer Bodenmischprobe, Bewuchsproben entnommen und eine Mischprobe angefertigt. Anschließend wurden diese Proben ans ZSR verbracht, dort luftgetrocknet und der weiteren Analytik zugeführt. Zusätzlich wurden Futtermittel von Schweinen (Hermannsdorfer Landwerkstätten), Puten und (Schessinghausen) und Ziegen (Buntenbock) beprobt.

#### **4.1.7 Getreide**

Getreide wurde hauptsächlich von den Höfen „Schlewecke“, „Schessinghausen“ und „Neßmerpolder“ jeweils zur Reifezeit bezogen. Somit konnten Hafer, Gerste, Weizen, Triticale, Roggen und Raps an einem oder mehreren Standorten beprobt werden. Dabei lässt sich Getreide prinzipiell in Korn und Stroh unterscheiden, wobei natürlich dem Getreidekorn als Teil der Nahrungskette größere Bedeutung zukommt. Trotzdem wurde dort, wo es möglich war, neben einer Kornmischprobe auch eine Strohprobemischung entnommen. Bezüglich des Kornes wurden analog zu dem in den Messanleitungen (BMU, 2000) beschriebenen Vorgehen direkt beim Landwirt Teilproben des Kornes vom Mährescher oder Anhänger genommen und zu einer Mischprobe vereinigt. Das Stroh, das vom selben abgeernteten Feld oder Bereich eines Feldes stammen musste, wurde bei der Anfertigung der dazugehörigen Bodenmischprobe (s. o.) statistisch aufgelesen und zu einer für diesen Bereich repräsentativen Mischprobe vereinigt. Sowohl das Korn als auch das Stroh wurden dann ans ZSR verbracht und dann weiter bearbeitet.

#### **4.1.8 Gemüse**

Gemüse wurde im Wesentlichen von den Betrieben „Jeinsen“ und „Gründeich“ bezogen. Beide Höfe haben sich auf Gemüsebau spezialisiert und bieten ein umfangreiches Angebot an. Folgende Gemüsesorten wurden dabei, teilweise auf beiden Höfen, beprobt: Kopfsalat, Kohlrabi, Knollenpetersilie, Petersilie, Einlegegurken, Lauch, Rote Bete, Blumenkohl, Mangold, Wirsingkohl, Weißkohl, Brokkoli, Rosenkohl und Kartoffeln. Dabei lag der Zeitpunkt der Probenahme in der Regel kurz vor der Erntereife. Bei der Aufbereitung der Proben wurde überwiegend nach den Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in Lebensmitteln (BMU, 2000) vorgegangen, wo genauere Details nachgeschlagen werden können. Im Wesentlichen wurde der zum Verzehr bestimmte Anteil des Gemüses normiert gewaschen und gewogen und bis zur weiteren Verarbeitung eingefroren. Vom Betrieb „Gleidungen“ konnten Himbeeren und Brombeeren von Plantagen bezogen werden. Das Präparieren dieser Proben entsprach der Vorgehensweise bei Gemüse. In den Messanleitungen (BMU, 2000) ist allerdings lediglich die Probenvorbereitung für zum Verzehr geeignete Pflanzenbestandteile beschrieben. In der vorliegenden Arbeit wurden zusätzlich auch nicht zum Verzehr bestimmte Pflanzenteile präpariert, wenn eine wissenschaftlich interessante Fragestellung zu beachten war. Die Vorbereitung dieser Pflanzenteile erfolgte im Wesentlichen so wie die der zum Verzehr geeigneten Teile. So wurden z. B. Deckblätter von Pflanzen (Kohl), die nicht verzehrt werden, im Probenaufbereitungsprozess behandelt wie innen liegende Pflanzenblätter, die sehr wohl Teil der Nahrung sein können.

#### **4.1.9 Fleisch**

Es wurde im Rahmen dieser Arbeit Fleisch vom Rind, Schwein, Schaf, Wildschwein, Reh, Ziege und Pute von verschiedenen Standorten bezogen. Rindfleisch wurde von den Rindern der „Hermannsdorfer Landwerkstätten“ und des Betriebes „Neßmerpolder“ untersucht. Der Hof „Neßmerpolder“ war außerdem in der Lage, Innereien eines frisch geschlachteten Rindes zur Verfügung zu stellen. Des Weiteren konnte Schafs – und Schweinefleisch von den „Hermannsdorfer Landwerkstätten“ bezogen werden. Zum Verzehr geeignetes Fleisch von Pute und Wildschwein wurde vom Hof „Schessinghausen“ zur Verfügung gestellt. Das Institut für Wildbiologie und Jagdkunde in Göttingen erlegte im Winter 2001/02 Rehe und stellten diese dem ZSR zu Untersuchungen zur Verfügung. Ziegenfleisch konnte von einer Ziegenbäuerin in Buntenbock (Harzvorland) bezogen werden.

## 4.1.10 Milch

Von einem küstennahen und einem küstenfernen Milchkühe haltenden Hof („Neßmerpolder“ bzw. „Hermannsdorfer Landwerkstätten“) konnten Milchproben genommen werden. So wurden von Mai 2001 („Neßmerpolder“) bzw. September 2001 (HLW) bis Oktober 2002 („Neßmerpolder“) bzw. Juli 2002 (HLW) monatlich Milchproben bezogen. Dabei wurden nach den Messanleitungen (BMU, 2000) jeweils Milchproben (1 Liter) direkt aus dem Sammel-tank des jeweiligen Betriebs entnommen. Zusätzlich konnte vom Hof „Buntenbock“ ein Liter Ziegenmilch bezogen werden.

## 4.1.11 Gesamtnahrung

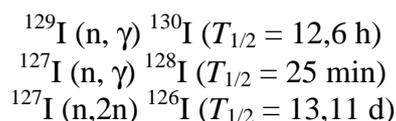
Im Frühjahr, Sommer und Herbst 2002 wurde für je eine Woche das Mittagessen der Hauptmensa der Universität Hannover beprobt. Dabei wurden vier der fünf angebotenen Gerichte (Eintopf, Bio-Linie-Menü, Hauptmenü vegetarisch, Hauptmenü nicht vegetarisch) zu einer Tagesprobe zusammengefügt und mithilfe eines Fleischwolfs (Typ Kompaktwolf R 70, Fa. Krefft Küchenmaschinen) homogenisiert. Die Zusammensetzung und Einwaagen der untersuchten Mensaeessen können Tab. II.1 im Anhang entnommen werden. Da somit lediglich das Mittagessen abgedeckt war, wurden mithilfe des Ernährungsberichts 2000 (Deutsche Gesellschaft für Ernährung, 2000) und der Angaben der Centralen Marketing-Gesellschaft der Deutschen Agrarwirtschaft mbH (1999) ein für die deutsche Bevölkerung möglichst repräsentatives Frühstück und Abendessen zusammengestellt. Die Zusammensetzung des Frühstücks und Abendessens kann Tab. II.2 im Anhang entnommen werden.

## 4.2 Analytik

Zur Analyse von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  wurden die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA), die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS = Accelerator Mass Spectrometry), die Ionenchromatographie und die ICP-MS herangezogen. Im Folgenden sollen diese Analysenverfahren kurz dargestellt werden.

### 4.2.1 Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse

Die RNAA (Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse) ist derzeit die einzige Methode,  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben gleichzeitig nachzuweisen. Sie nutzt die Radioaktivität zur Bestimmung der Iod-Nuklide. Durch Kernreaktionen lassen sich aus stabilen oder langlebigen Nukliden kurzlebige Produkte herstellen, die sich aufgrund ihrer hohen spezifischen Aktivitäten z. B.  $\gamma$ -spektrometrisch messen lassen. Zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sind folgende Kernreaktionen zu berücksichtigen:



Der Aufwand für die Probenaufarbeitung ist jedoch aus zwei Gründen sehr hoch. Erstens ist eine aufwendige Iod-Matrixtrennung unumgänglich, um die Menge an entstehenden Störnukliden und damit die entstehende Aktivität der Probe – nicht zuletzt aus Strahlenschutzgründen – so gering wie möglich zu halten. Iod muss dazu matrixfrei vorliegen. Zweitens muss die Probe nach der Bestrahlung erneut aufbereitet werden, um eine Überlagerung der  $\gamma$ -Linien von Störnukliden mit den zum

Nachweis genutzten  $\gamma$ -Linien zu reduzieren. Entscheidend für die zu erreichende Nachweisgrenze ist vor allem die Abtrennung von  $^{82}\text{Br}$ .

Der Vorteil der RNAA ist die simultane  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Bestimmung. Limitierend sind die Verfügbarkeit von Neutronen, die einen Kernreaktor notwendig macht, und die Aufwendungen für den Strahlenschutz. Dennoch war die RNAA über zwanzig Jahre die einzig brauchbare Methode, um  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $2 \cdot 10^{-10}$  noch messen zu können; vgl. Schmidt et al. (1998). Die RNAA ist damit nicht geeignet, um den  $^{129}\text{I}$ -Gehalt prä-nuklearer oder gering belasteter Umweltkompartimente zu erfassen.

#### 4.2.2 Beschleunigermassenspektrometrie

Zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  in nicht oder gering belasteten Umweltproben ist es notwendig, das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis nach dem Analysenprinzip der AMS zu ermitteln. Dieses Verfahren nutzt sowohl besondere Formen der Ionisierung, als auch der Unterdrückung von Molekülinterferenzen und des Nachweises der entstehenden schweren Ionen. Der technische Aufwand ist jedoch enorm, da ein Teilchen-Beschleuniger großer Leistung benötigt wird. Die Trennung der Analyten aus der Probe erfolgt über fünf physikalische Filter, die jeweils störende Ionen abtrennen oder detektieren. Die Trennleistung geht über jede chemische Matrixseparation hinaus, setzt diese aber voraus.

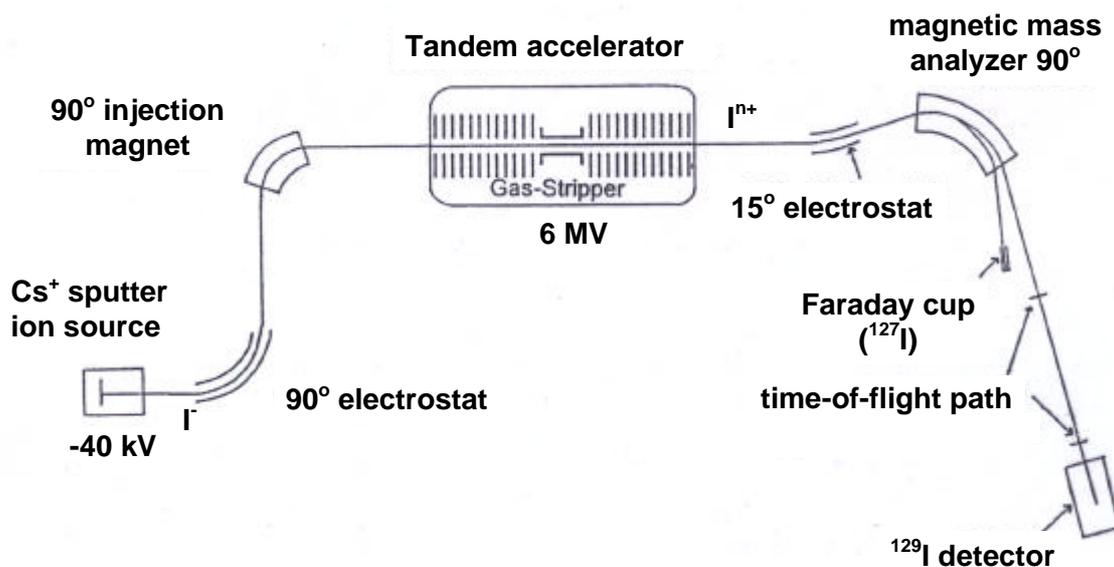


Abb. 4-7: Aufbau der PSI-ETH-Tandem-AMS-Anlage an der ETH Höggerberg in Zürich.

In Abb. 4-7 ist die PSI-ETH-Tandem-AMS-Anlage an der ETH Höggerberg in Zürich dargestellt, an der die Vorteile der AMS kurz diskutiert werden sollen. Es handelt sich um einen Tandem-Beschleuniger mit einer maximalen Terminalsapannung von 6 MV. Die Messproben aus AgI werden vermischt mit Silberpulver zur Erhöhung der Leitfähigkeit in einen Cäsium-Sputterionenquelle eingebracht, in der  $\text{I}^-$ -Ionen erzeugt, extrahiert, vorbeschleunigt und bei einer Terminalsapannung von 4,7 MV in den Beschleuniger eingeschossen werden. Im Beschleuniger werden die negativen Ionen zum Terminal hin beschleunigt.

Am Terminal wird ein Gas-Stripptarget durchschossen, in dem die  $\Gamma$ -Ionen in positive Iod-Ionen umgeladen werden und eventuell mit in den Beschleuniger eingeschossene Molekül-Ionen zerstört werden. Die positiven Iod-Ionen werden im zweiten Teil des Tandem-Beschleunigers zum Erddpotenzial hin erneut beschleunigt. Durch die folgenden strahlführenden Komponenten werden Iod-Ionen einer spezifizierten Ladung ( $I^{5+}$ ) selektiert und die Iod-Isotope in einem magnetischen Massenanalysator weiter in ihren Bahnen aufgespalten. Der Nachweis des  $^{129}I$  erfolgt als Strom mit einem Faraday-Cup. Zur weiteren Unterdrückung von isobaren Interferenzen werden die  $^{129}I$ -Ionen mittels einer time-of-flight Analyse und eines  $\Delta E$ - $E$ -Detektors  $Z$ - und  $A$ -spezifisch nachgewiesen. Abb. 4-8 zeigt zwei eindimensionale Spektren im kritischen Bereich der  $^{129}I$ - und  $^{129}Te$ -Zählereignisfelder bei unterschiedlichen  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnissen. Beide Spektren demonstrieren die hervorragende Trennung des  $^{129}I$  von isobarem Tellur.  $^{129}I$  ist nur eines der langlebigen Radionuklide, bei denen sich die AMS Zerfallsmessungen und anderen massenspektrometrischen Verfahren gegenüber als überlegen erwiesen haben.

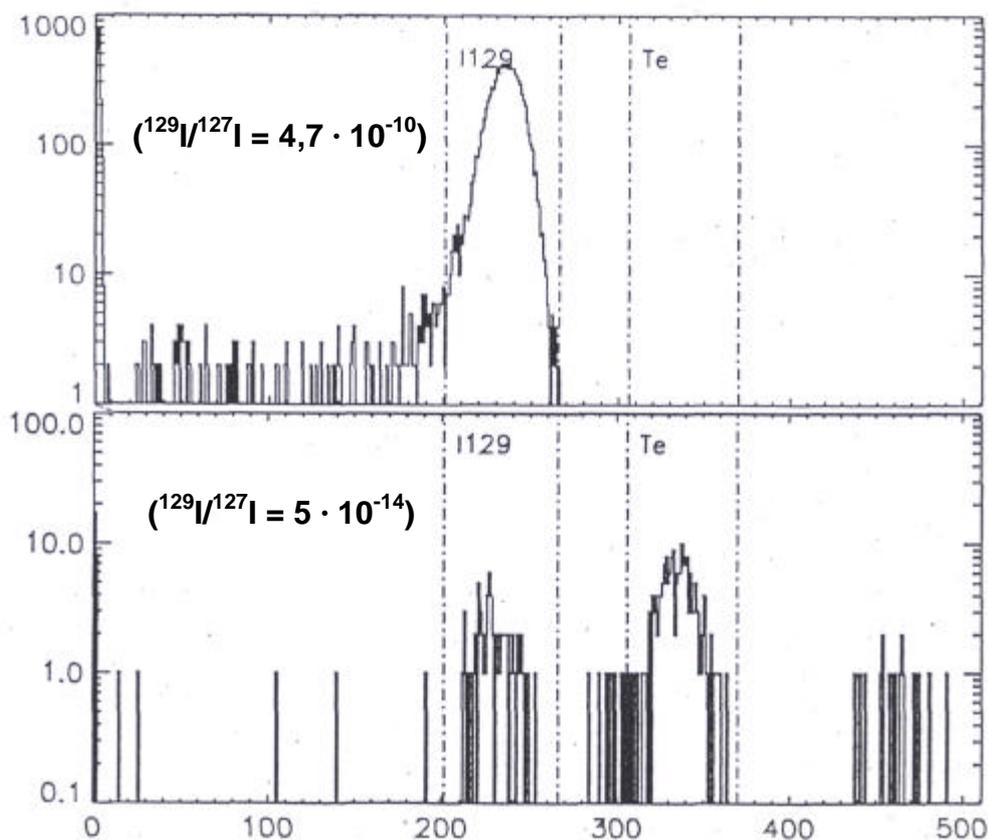


Abb. 4-8: AMS-Spektrum von  $^{129}I$ . Trennung von  $^{129}I$  und isobarem Tellur. Wagner et al. (1996)

Die Überlagerung einer Vielzahl von strahlführenden Komponenten, die über elektrische und magnetische Ablenkung als Massenspektrometer wirken, in Kombination mit der Vermeidung von Molekülinterferenzen und die Unterdrückung von isobaren und isotopen Interferenzen als Folge selektiver Messverfahren für Ionen hoher Energien, hat die AMS zu einem überlegenen Messverfahren beim Nachweis langlebiger Radionuklide gemacht. Tab. 4-1 gibt eine Übersicht über die an der PSI-ETH-Tandem-AMS-Anlage an der ETH Höngrgerberg in Zürich erzielten Ergebnisse beim Nachweis langlebiger Radionuklide. Dabei kann die Leistungsfähigkeit der AMS für die benutzten Hochspannungen und Stripper, die gewählten Ladungszustände nach Durchgang durch den Stripper, die Endenergie der Ionen und die jeweilige Separationstechnik durch die erreichten Ionenströ-

me und die Transmissionen durch die Anlage sowie durch die Höhe des isobaren Untergrundes charakterisiert werden.

Ein detaillierter Überblick über die Beschleunigermassenspektrometrie und ihre vielfältigen Anwendungen in den Erd- und Umweltwissenschaften wurde von Finkel und Suter (1993) gegeben.

Tab. 4-1: Leistungsfähigkeit der PSI-ETH-Tandem-AMS-Anlage an der ETH Höggerberg in Zürich.

Nuclide / Ion	Ion Current [μA]	Terminal Voltage [MV]	Charge State	Stripper	Transmission [%]	Ion Energy [MeV]	Isobar Background	Separation Technique
<sup>10</sup> Be BeO	0.5-2.0	5.8	3+	Ar-Gas	20	20	<10 <sup>-14</sup>	Absorber/GIC
<sup>14</sup> C C	15-25	5.2	4+	Ar-Gas	45	26	<10 <sup>-15</sup>	NIF/GIC
<sup>26</sup> Al Al	0.1-0.2	4.7	5+	Ar-Gas	20	28	<10 <sup>-14</sup>	NIF/GIC
<sup>32</sup> Si Si	5-10	6.0	7+	C-Foil	10	48	<10 <sup>-15</sup>	GFM/GIC
<sup>36</sup> Cl Cl	10-15	6.0	7+	C-Foil	10	48	<10 <sup>-15</sup>	GIC
<sup>41</sup> Ca CaH <sub>3</sub>	0.3-0.8	6.0	5+	Ar-Gas	7	36	10 <sup>-13</sup>	NIF/GIC
<sup>59</sup> Ni Ni	0.15-0.3	6.0	11+	C-Foil	1	72	<10 <sup>-9</sup>	GIC
<sup>60</sup> Fe FeH	0.02-0.03	6.0	9+	C-Foil	5	60	10 <sup>-11</sup>	NIF/GIC
<sup>126</sup> Sn Sn	0.02-0.05	5.0	5+	Ar-Gas	3	30	10 <sup>-7</sup>	PXD
<sup>129</sup> I I	5-10	4.7	5+	Ar-Gas	5	28	5x10 <sup>-14</sup>	NIF/GIC

NIF: negative ion formation      GFM: gas-filled magnet  
 GIC: gas ionisation detector      PXD: projectile X-ray detection

radionuclides measured in routine operation

### 4.2.3 Ionenchromatographie

Unter dem Begriff Ionenchromatographie (IC) sind eine Reihe von analytischen Verfahren zusammengefasst, die eine schnelle Analyse von Ionen in flüssigen Proben bis in den sub-ppm-Bereich (parts per million: Nachweis eines Teiles unter  $1 \cdot 10^6$  Teilen;  $\mu\text{g g}^{-1}$ ) ermöglichen (Weiß, 1991). Das hier genutzte analytische Prinzip ist der Ionenaustausch-Prozess zwischen der mobilen Phase (Elutionsmittel; kurz Eluent) und der am Trägermaterial (Füllung der analytischen Säule) gebundenen Austauschgruppen. Durch Verschieben der mobilen Phase, relativ zur stationären Phase, ergibt sich eine aktuelle Analyt-Konzentration an jedem Ort in der Säule, die nicht mehr der Gleichgewichtskonzentration der stationären Fest-Flüssig-Verteilung zwischen Trägermaterial und Eluent entspricht. In Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten beider Phasen und der Fließgeschwindigkeit des Eluenten, ist sowohl eine Aufkonzentrierung als auch eine Elution von Analytionen in oder aus der chromatografischen Säule möglich. Durch Variation der mobilen Phase (Proben- und Eluentzusammensetzung) ist eine weitgehende Ionen-Trennung in den Eluat (Eluat: durch Elution herausgelöster Stoff) möglich.

Je geringer die ionischen Adsorptionsprozesse des Analyten mit dem Trägermaterial sind, umso geringer ist die Verbreiterung der Substanzzone des Analyten beim Weg durch die Trennsäule. Die Substanzonen einzelner Analyten im zeitlichen Verlauf der Elution ergeben am Ausgang der

Trennsäule durch Aufzeichnen von Analyteigenschaften das Chromatogramm. Es resultieren in erster Näherung Gauß-Kurven zwischen der Retentionszeit und den Analyteigenschaften, deren Flächen-Integration zur Qualifizierung herangezogen wird.

Das Detektorsystem basiert auf einer Durchflussleitfähigkeitsmessung unter Einsatz eines automatischen Suppressorsystem. Dieses Autosuppressorsystem überträgt Protonen aus dem gemessenen Eluat auf das Eluat vor der Messzelle, sodass Hydrogencarbonat ( $\text{HCO}_3^-$ ) und Carbonat ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) als Kohlenstoffdioxid vor der Messung entfernt werden. Damit ist die mobile Phase – der Eluent – weitestgehend in der Zusammensetzung festgelegt. Zur Unterdrückung der nicht-ionischen Wechselwirkungen wurde dem Natriumhydrogencarbonat/Natriumcarbonat-Eluat 4-Hydroxybenzonnitril zugesetzt. Damit werden die auch die ionischen Wechselwirkungen verringert, sodass sich die Retentionszeiten verkürzen. Daraus resultiert eine schlechtere Trennung zusammenliegender Peaks, sodass eine iterative Optimierung der 4-Hydroxybenzonnitril-Zugabe notwendig ist. Diese Anpassung des Verfahrens wurde bereits von Schmidt (1998) durchgeführt.

Das eingesetzte chromatographische System DX-100 (Dionex, Sunnyvale, USA) (Abb. 4-9) bestand aus Autosampler, IonPac AG5-Vorsäule und IonPac AS5-Säule oder IonPac AG4-Vorsäule und IonPac AS4-Säule, Autosuppressor ASRS II und Leitfähigkeitsdetektor 10-32 mit Thernal Stabilizer TS-2. Als Injektionseinheit wurde ausschließlich eine 98- $\mu\text{L}$ -Probenschleife gewählt. Als Eluent diente eine wässrige Lösung von  $\text{NaHCO}_3$  (3,4  $\text{mmol L}^{-1}$ ),  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  (4,3  $\text{mmol L}^{-1}$ ) und 4-Hydroxybenzonnitril (10  $\text{mg kg}^{-1}$ ) bei Verwendung der AS5-Säule bzw. 4-Hydroxybenzonnitril (100  $\text{mg kg}^{-1}$ ) bei Verwendung der AS4-Säule. Die Flussrate betrug 2  $\text{mL min}^{-1}$ .

In der Abb. 4-9 ist der Aufbau des IC-Gerätes schematisch wiedergegeben.

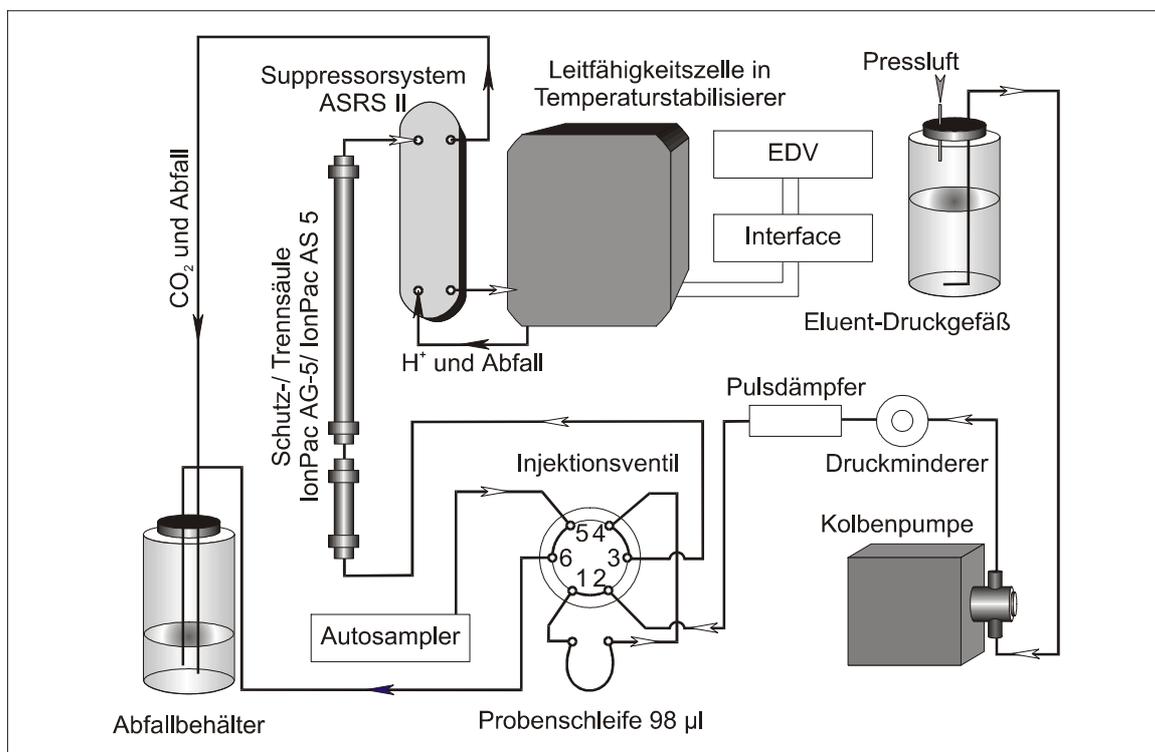


Abb. 4-9: Aufbau IC-System DX-100 Dionex, Sunnyvale, USA

#### 4.2.4 ICP-MS

In der Massenspektrometrie (MS) nutzt man das Verhalten geladener Teilchen in elektrischen und magnetischen Feldern zur Trennung nach ihrem Masse-Ladungs-Verhältnis aus. Die getrennten Teilchen werden detektiert und man zieht zur Auswertung das Massenspektrum, die Auftragung der Häufigkeit eines detektierten Teilchens gegen sein Masse-Ladungs-Verhältnis heran. Mit der MS lassen sich mehrerer Analyten parallel bis in den ppt-Bereich (parts per trillion,  $\text{pg g}^{-1}$ ) bestimmen. Für die Probenzufuhr und die nötige Ionisierung stehen verschiedene Methoden zur Verfügung. Hier soll allerdings nur auf die von uns verwendete Technik, die ICP-MS näher eingegangen werden.

Das induktiv gekoppelte Plasma (ICP) erlaubt es, nahezu alle Moleküle zu atomisieren und entsprechend der Besetzungszahlen der Anregungszustände zu ionisieren, so dass ein statistisches Gleichgewicht zwischen den Analyt-Ionen und den Elektronen im Plasma entsteht, die zu einem Strom von Analyt-Ionen führt. Für Iod liegt der Anteil der Ionisierung bei 29 %, was die Empfindlichkeit der ICP-MS im Vergleich zu Metall-Ionen um über 40 % einschränkt (Houk, 1986).

Die zur Ionisierung der Analyten benötigte Energie wird über ein Plasma gewonnen. Mit steigender Temperatur gehen alle Stoffe in den gasförmigen Zustand über. Wird die Temperatur eines Gases noch weiter erhöht, entsteht ein so genanntes Plasma. Das aus Ionen, Elektronen und Atomen bestehende Plasma ist ein nach außen elektrisch neutrales, aber elektrisch leitendes Gas. Die notwendige Temperaturerhöhung zur Bildung eines Plasmas wird über die Verdichtung des Gases erreicht. Durch Anlegen einer Hochfrequenz-Wechselspannung an das Gas (27,12 MHz und 2 000 W Leistung) wird dieses erst ionisiert und dann im elektromagnetischen Wechselfeld verdichtet. Dabei wird das so entstandene Plasma über einen Schwingkreis an den Hochfrequenz-Wechselspannungsgenerator induktiv gekoppelt. Der Schwingkreis besteht aus einem elektronisch regelbaren Kondensator, einer Induktionsspule und der Kopplung an den Generator. Hierdurch entsteht ein flammenähnliches Gebilde, welches durch eine magnetisch eingeleitete Entladung (Teslafunke) gezündet werden kann. Dabei rekombinieren Ionen und Elektronen und das Plasma beginnt zu leuchten (brennen). Die Plasmafakel „brennt“ berührungsfrei mit Temperaturen bis über 10 000 K, wobei die Ionisierungstemperatur typischerweise 6 000 K nicht überschreitet (Wollenweber, 2000; Engel, 2000). Herkömmliche Acetylen/Sauerstoff-Flammen erreichen maximal 3 200 K (Engel, 2000). In das Plasma wird die Probe über einen Daniel'schen-Hahn, z. B. über ein Kapillarrohr, das mit dem Plasma- und Kühlgas umspült wird, in Form eines Aerosols eingebracht. Es resultiert eine von Matrixeffekten annähernd freie Ionisation, die jedoch durch spezielle Oxide, doppelt geladene Ionen, polyatomare und isobare Interferenzen überlagert wird. Eine effektive detektorseitige Unterdrückung von Interferenzen ist aufgrund der geringen Beschleunigung der Analyt-Ionen nicht möglich. Limitierend ist die Auslegung des Interface. Das Interface koppelt den Hochvakuumteil des Quadrupolmassenspektrometers mit dem bei Normaldruck arbeitenden ICP-System über drei Lochblenden.

#### **Störungen durch Matrix-Effekte und Memory-Effekte**

Obwohl die Ionisierung weitgehend ohne Matrixeffekte erfolgt, ist die ICP-MS nicht frei von diesen Effekten. Der Grund liegt in der Probeninjektion. Das Injektionssystem bestimmt den Anteil der Probe, die in das Plasma getragen wird. Unproblematisch sind in der Regel Systeme, welche die Probe direkt in das Plasma injizieren. Der Nachteil dieser Systeme ist ein Ansteigen der Verstopfungsanfälligkeit und eine erhöhte Anforderung an die Konstanz der Probenzufuhr.

Üblich sind Systeme, die den Analyten dem Plasma über ein Aerosol zuführen. Über eine handelsübliche HPLC-Pumpe (high pressure liquid chromatography) wird die flüssige Probe einem Zerstäuber zugeführt, der die Probe in eine Zerstäuberkammer (auch Sprühkammer genannt) zerstäubt.

Die Zerstäuberkeramik ist notwendig, damit nur Aerosoltröpfchen im Bereich weniger Mikrometer in das Plasma gelangen. Nur diese kleinen Tröpfchen können bei der kurzen Aufenthaltsdauer im Plasma verdampfen, ohne das Plasma instabil werden zu lassen. Das gebildete Aerosol wird aus der Zerstäuberkeramik über ein Kapillarrohr innerhalb der Torch (Abb. 4-10) bis an das Plasma herangeführt.

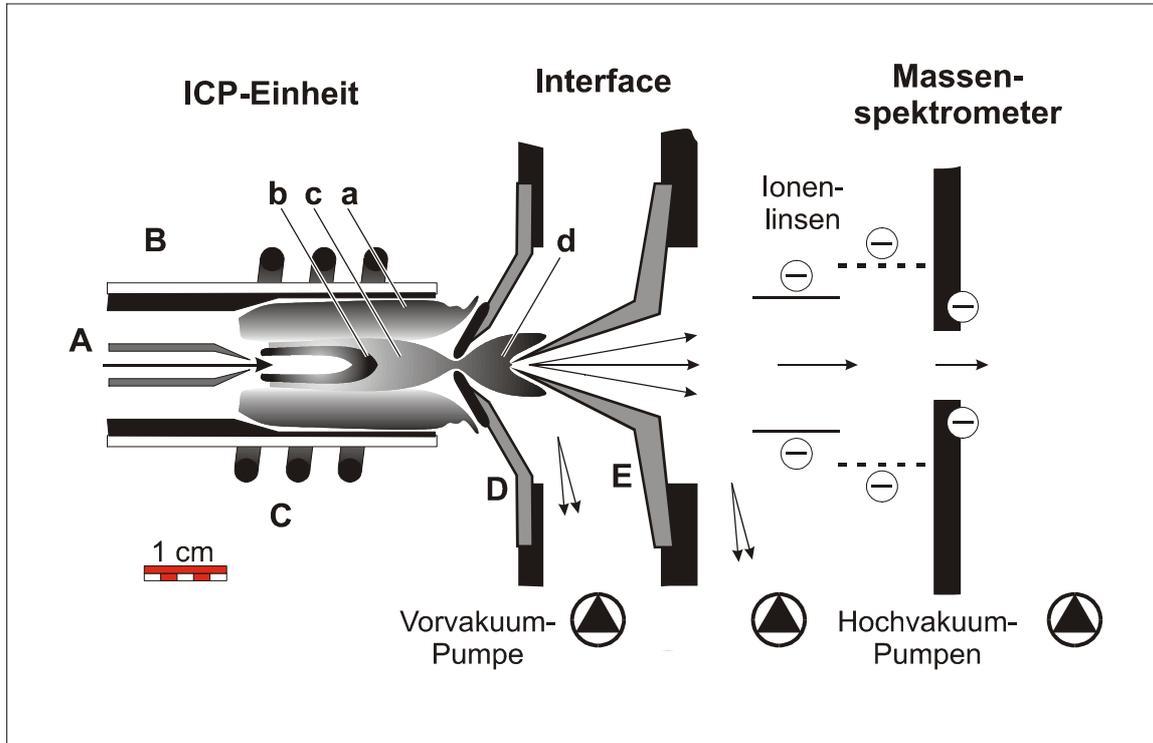


Abb. 4-10: Kopplung des ICP-Systems mit dem Massenspektrometer. A: Zuführung des Zerstäubergases mit Proben-aerosol; B: Torch: Kühlgas-, Gas- und Probenzuführungsgehäuse; C: Induktionspule im Hochfrequenz-Wechselstrom-Schwingkreis; D: Sampler: erste Lochblende; E: Skimmer: zweite Lochblende; a: äußerer Plasmazone  $T$  bis 10 000 K; b: Plasmazone der Atomisierung; c: Plasmazone der Ionisierung  $T \approx 6\,000$  K; d: Plasma Überschallbereich.

Entscheidend für das Auftreten von Matrix- und Memory-Effekten ist u. a. die Aerosol-Ausbeute. Sie ergibt sich aus der Differenz zwischen der dem Zerstäuber zugeführten und der in der Zerstäuberkeramik wieder abgeschiedenen Probenmenge. Da die Aerosol-ausbeuten weniger als 20 % betragen, läuft der größte Teil der Probe in Form größerer Aerosol-tropfen und eines Flüssigkeits-films durch die Zerstäuberkeramik. Die Dicke des Flüssigkeitsfilms hängt von der Temperatur der Zerstäuberkeramik und der Oberflächenspannung der Probe ab. So sollte mit zunehmendem pH-Wert (zunehmende Oberflächenspannung) der Flüssigkeitsfilm in der Zerstäuberkeramik zu und die Aerosol-ausbeute abnehmen.

Ist die Löslichkeit des Analyten in der flüssigen Phase begrenzt oder erfolgt eine Umsetzung des Analyten zu einem Gas, so wird mehr Analyt in das Plasma gelangen, als es dem Gehalt der Probe entspricht. Im Extremfall ist ein über längere Zeit zu beobachtendes Ansteigen des Detektorsignals zu beobachten, das ein Vielfaches der Konzentration in der Probe darstellt. Besonders anfällig hierfür ist Iodid. Zum einen kann es an den Glaswandungen der Zerstäuberkeramik adsorptiv gebunden werden und bei Änderung der chemischen Umgebung, z. B. durch einen Probenwechsel, wieder in das Aerosol gelangen. Zum anderen kann es aufgrund der unterschiedlichen physikalischen und chemischen Eigenschaften zwischen Aerosol und Flüssigkeit zum gasförmigen  $I_2$  oxidiert werden.

Beide Möglichkeiten ergeben zu hohe Analysenergebnisse. Die Existenz dieser Effekte wurde durch eigene Messungen mit Iodat bestätigt (Ernst, 2003). Hier traten keine erkennbaren Memory-Effekte auf.

Vermieden werden können diese Memory-Effekte durch Reduzierung des Oxidationspotenzials innerhalb der Proben und dem Konstanthalten der chemischen Umgebung innerhalb der Zerstäuberkammer. Hierzu müssen sowohl die Proben als auch die externen Standards matrixangepasst werden. Darüber hinaus muss zwischen jeder Probe abwechselnd mit oxidierender Säure und Reinstwasser gespült werden, bis kein nennenswertes Detektor-Signal zu beobachten ist. Anschließend wird mit Natronlauge gespült, die auch den Proben als Matrix zugegeben wurde, um das Oxidationspotenzial zu senken und somit das Entweichen von Iod über den Gasraum zu verhindern. Hierdurch wird außerdem die chemische Umgebung in der Zerstäuberkammer den Proben-Messbedingungen angepasst und der Blindwert für die folgende Probe ermittelt.

Unabhängig vom Memory-Effekt sind Matrixeffekte auch durch Analyt-Proben-Wechselwirkungen gegeben, die Einfluss auf die Zusammensetzung des Aerosols haben. Da die ICP-MS eine sehr empfindliche Analysenmethode darstellt, war es in den meisten Fällen möglich, die Matrixeffekte durch Probenverdünnung zu minimieren. Dieses Verfahren erlaubt es, die zu erwartenden Konzentrationen durch Verdünnen der Proben dem Gehalt des externen Standards anzupassen, woraus sich eine zusätzliche Sicherheit der Analytik ergibt.

## 4.2.5 Probenaufbereitung

### - Aufarbeitung fester Umweltproben

Für die Iod-Matrixtrennung von festen Proben sind nur wenige Aufschlussverfahren geeignet, da mit vielen dieser Verfahren eine saure Aufarbeitung verbunden ist, die zu einem Analyt-Verlust führen kann (Jopke et al., 1997). Darüber hinaus sind nur die Iod-Gehalte für die Beurteilung der <sup>129</sup>I-Verteilung in der Umwelt von Interesse, die einem chemischen Austausch innerhalb der Umweltkompartimente zugänglich sind. Die Iod-Matrixtrennung sollte nicht dazu führen, dass Iod aus Matrixsystemen herausgelöst wird, die keinen Austausch mit der Umwelt zulassen. Iod-organische Bindungssysteme unterliegen in der Umwelt einen ständigen Wandel und lassen einen Iod-Austausch zu. Die wesentliche Matrix für Iod in festen Umweltproben stellen somit organische Verbindungen dar. Sie müssen deshalb vollständig aufgeschlossen werden. Im Gegensatz dazu sollte Iod aus Gesteinen nur soweit freigesetzt werden, wie es reversibel gebunden vorliegt.

Zur Iod-Matrixtrennung wurde eine Trockenveraschung unter Sauerstoffüberschuss und Auswaschung der Verbrennungsgase in alkalischer Hydrogensulfidlösung oder Adsorption an Aktivkohle eingesetzt (Schmidt, 1998); siehe Abb. 4-11 und 4-12. Dazu werden zwei ineinander verschiebbare Quarzrohre mit Zuleitungen für Sauerstoff und Stickstoff verwendet. Im Innenrohr erfolgt eine Vorverbrennung durch Schwelbrand unter Begrenzung der Verbrennungsgase. Dazu wird die Verbrennung durch Erwärmen und/oder Erhitzen der Probenmatrix mittels eines Bunsenbrenners gesteuert. Die Nutzung von Stickstoff zur Regelung des Abbrandes ist ebenfalls möglich, wenn dabei der Gasdurchfluss im Innenrohr nicht zu hoch wird, so dass im Verbrennungsofen kein Sauerstoffüberschuss mehr für die weitere Verbrennung besteht. Der Sauerstoffüberschuss für die Nachverbrennung der Schwelgase wird über das äußere Rohr bereitgestellt. Hierzu befindet sich ein Teil dieses Rohres in einen Röhrenofen (1 120 °C). Zur Erhöhung der Aufenthaltszeit der Verbrennungsgase wurde Quarzwolle im Ofeninnern und am äußersten Ende des inneren Verbrennungsrohres benutzt. Ablagerungen von Verbrennungsprodukten an der Glaswolle konnten durch Erhitzen an der Grenze zum äußeren Rohr entfernt werden. Mit diesem Verfahren kann verhindert werden, dass

unverbrannte Kohlenwasserstoffe direkt in die Waschflasche gelangen können. Die Nachverbrennung der Probe wird durch Hineinschieben des Innenrohres in den Röhrenofen realisiert

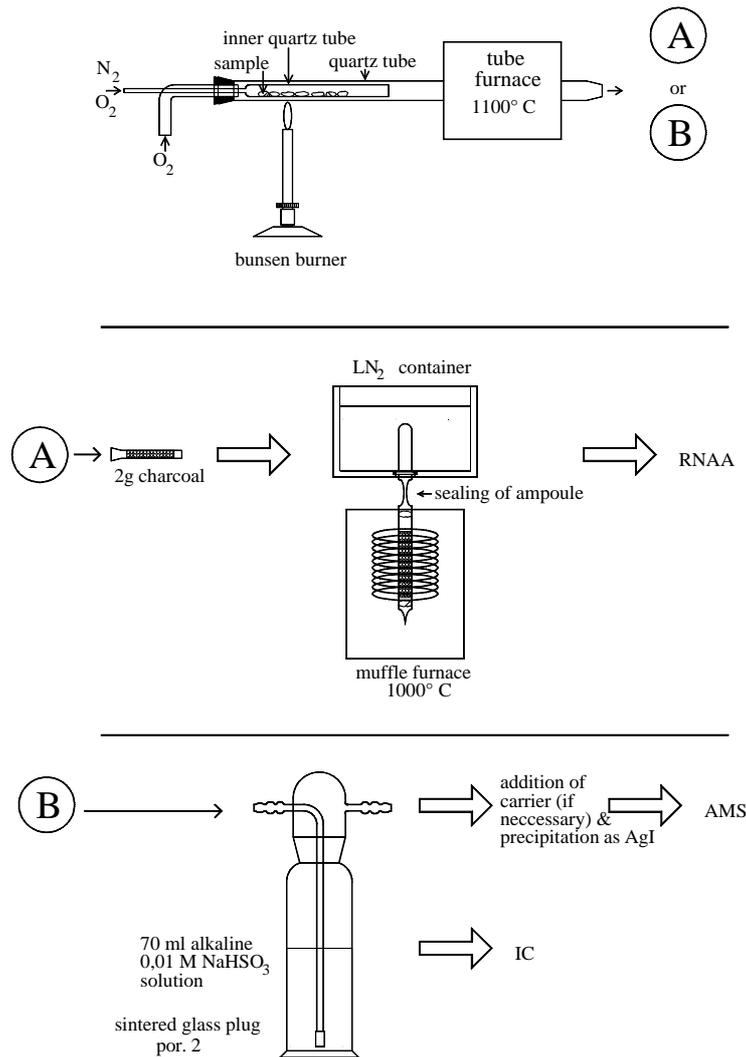
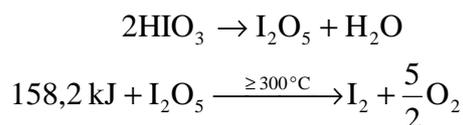


Abb. 4-11: Schema der Iod-Extraktion mit anschließender Sammlung des Iods an Aktivkohle oder in alkalischer Natriumsulfitlösung.

Das Prinzip dieses Verfahrens beruht auf dem Iod-Transport auf dem Wege über die Gasphase in die Absorptionslösung. Dies wird dadurch möglich, dass Iod nur einige instabile Oxide bildet, die beim Erwärmen zerfallen. Diiodpentaoxid ist darunter die stabilste Verbindung. Sie wird aus Iodat gebildet und zerfällt bereits ab 300 °C:



Die Verbrennungstemperatur von 1120 °C wurde gewählt, um organisches Material vollständig zu Kohlendioxid zu oxidieren. Höhere Temperaturen sind aufgrund des eingesetzten Quarzglas nicht möglich. Die während der Verbrennung erreichten Temperaturen können zu einem Analyt-Verlust durch Verglasung des Probenmaterials führen. Dies ist besonders bei Grasproben zu beobachten, da diese gelöste und ungelöste Silikat-Verbindungen enthalten, die vollständig mineralisieren. Darüber hinaus ist die Iod-Absorption in der Absorptionslösung vom Gasdurchsatz abhängig und somit nicht

vollständig. Selbst bei größtmöglicher Reduzierung des Gasdurchsatzes treten veränderte Druckverhältnisse in der Waschflasche auf, so dass keine konstante Ausbeuterate zu erzielen ist. Die Überwachung der Ausbeute mittels Tracer wird somit für eine sinnvolle Quantifizierung der Iod-Gehalte zwingend notwendig. Das  $^{127}\text{I}$  wird aus einem Aliquot der Absorptionslösung bestimmt. Zur  $^{129}\text{I}$ -Analyse wird ein weiteres Aliquot mit so genanntem Woodward-Iod<sup>2</sup> als Träger versetzt. Diese Zugabe ist notwendig, um beim nun folgenden Ausfällen des Iods als Silberiodid handhabbare Mengen von mindestens 1 mg zu erhalten. Das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis des Woodward-Iods liegt mit  $\sim 1 \cdot 10^{-14}$  (Boaretto et. al., 1994) um mehrere Zehnerpotenzen unter dem der rezenten Umweltproben. Für die weitere Berechnung der  $^{129}\text{I}$ -Gehalte aus den Ergebnissen der AMS-Messung und der IC- bzw. ICP-MS-Messung kann man den Träger Woodward-Iod daher als  $^{129}\text{I}$ -frei betrachten.

Die Trockenveraschung wurde bei Böden, Cellulosenitratfiltern, Aktivkohlen, Pflanzen, Fischmehl und Tiefseesedimenten angewandt.

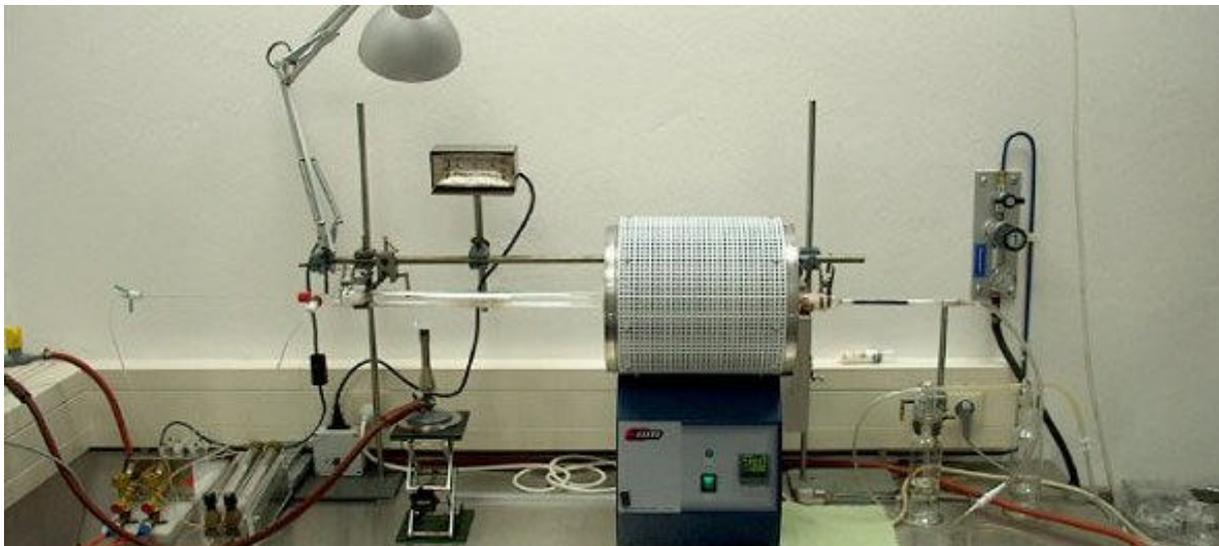


Abb. 4-12: Verbrennungsapparatur

#### - Einsatz von $^{125}\text{I}$ als Ausbeutetracer bei festen Umweltproben

Die Verteilung von radioaktivem  $^{125}\text{I}$  in der Umweltprobe muss der natürlichen Iod-Verteilung in der Probenmatrix weitgehend entsprechen. Wird keine ausreichende Äquilibrierung mit  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in der Probe erreicht, resultieren zu hohe Ausbeuten, wenn die Iod-Matrixtrennung nicht vollständig erfolgen konnte.

Nach Ernst (2003) wird für die Äquilibrierung der Restgehalt an Feuchtigkeit, der in der fein verteilten Probe enthalten ist, genutzt. Das Probenmaterial wird mit gelöstem  $^{125}\text{I}$ -Iodid-Tracer versetzt und gegen die Strömungsrichtung der Verbrennungsgase langsam kurzzeitig erwärmt. Hieraus resultiert das Entweichen und anschließende Kondensieren der Restfeuchtigkeit auf der fein verteilten Probenmatrix. Beim Wiederholen des Vorganges mit einer höheren Brenntemperatur wird die Probe vorsichtig getrocknet, sodass eine  $^{125}\text{I}$ -Sorptions oberhalb der Bindungsstärke des austretenden Wassers ermöglicht wird. Mit diesem Verfahren wird erreicht, dass zumindest physisorbiertes Iod vollständig mit dem Tracer äquilibriert vorliegt.

<sup>2</sup> Woodward-Iod ist ein aus einer 300 Ma alten Sole gewonnenes Iod mit besonders niedrigen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen (Boaretto et al., 1990).

Typische Ausbeuten für Bodenproben lagen bei 90 % bis 95 %, bei Bewuchs, Gemüse und Gesamtnahrung lagen die chemischen Ausbeuten zwischen 50 % und 90 %.

#### - **Aufbereitung von Aerosol-Glasfaserfiltern**

Die Iod-Matrixtrennung von auf Borosilikatglasfaserfilter gesammelten Aerosolen kann aus zwei Gründen nicht mit der oben beschriebenen Trockenveraschung durchgeführt werden. Zum einen ist mit einem Analyt-Verlust durch Einschmelzen zu rechnen, da die Temperaturbeständigkeit der reinen Filter bei 900 °C liegt. Zum anderen ist eine Äquilibrierung des Ausbeutetracers aufgrund der unterschiedlichen schlechten Benetzungseigenschaften inhomogen belegter Borosilikatglasfaserfilter nicht möglich.

In diesem Fall wurden die Aerosolfilter alkalisch unter Anwesenheit des Ausbeutetracers nasschemisch ausgelaugt. Die entstandene Lösung wurde filtriert und das Iod durch Flüssig-Flüssigverteilung unter oxidierenden und reduzierenden Bedingungen von der neuen Matrix getrennt. Diese Art der Aufbereitung wurde in Anlehnung an ein Verfahren von Gäbler und Heumann (Gäbler und Heumann, 1993a, 1993b) zur <sup>127</sup>I-Spurenanalyse für die hier zu berücksichtigten Verhältnisse von Szidat angepasst und evaluiert (Szidat, 2000).

#### - **Aufarbeitung flüssiger Umweltproben**

Die Iod-Matrixtrennung flüssiger Umweltproben erfolgt in zwei Stufen. In der ersten Stufe wurde das gesamte Iod in Iodid überführt und dabei – bei geringen Iod-Gehalten – mit Woodward-Iod als Träger versetzt. Dazu werden zunächst alle Iod-Spezies mit Calciumhypochlorid (Ca(ClO)<sub>2</sub>) bis zum Iodat oxidiert um dann anschließend mit Hydroxylaminhydrochlorid ((NH<sub>2</sub>OH)HCl) und Natriumhydrogensulfit (NaHSO<sub>3</sub>) eine Reduktion zum Iodid durchzuführen. In der zweiten Stufe erfolgt die Iod-Abtrennung und Aufkonzentrierung mittels Festphasen-Extraktion.

Die Festphasen-Extraktion arbeitet nach dem Prinzip der Ionenaustausch-Chromatographie. Zum Unterschied zur Ionenchromatographie ist die präparative und möglichst quantitative Abtrennung des Analyten das Ziel des Verfahrens. Die Austauschersäule besitzt deshalb eine wesentlich höhere Ionenaustauschkapazität und wird für jede Probe neu aufgeschlemmt. Als Trennmateriale wird ein stark basischer Anionenaustauscher benutzt (DOWEX<sup>®</sup> 1X8 analytical grade der Firma DOW Chemical). Die Austauschergruppen bestehen aus Trimethylammonium-Substrat-Verbindungen und binden folgende Anionen mit abnehmender Bindungsstärke:

Iodid > Nitrat > Bromid > Chlorid > Acetat > Hydroxid > Fluorid.

Um die Selektivität des Austauschers für Iodid zu erhöhen, werden die funktionellen Gruppen der Trennsäule mit Nitrat belegt, sodass Nitrat am Trennmateriale nur gegen Iodid ausgetauscht werden kann. Alle anderen Ionen werden mit dem Probenvolumen weitestgehend durch die Säule gespült. Dieser Prozess wird anschließend durch Elution mit Reinstwasser und verdünnter Kaliumnitratlösung (0,5 mol L<sup>-1</sup>) vervollständigt. Mit einem Eluenten aus konzentrierter Kaliumnitratlösung (2,25 mol L<sup>-1</sup>) wird anschließend das Iodid von der Trennsäule in das Eluat gespült. Das Eluat wird in Fraktionen aufgefangen, aus denen mit Silbernitrat das Iodid gefällt wird. Anhand der Färbung des Niederschlages kann auf Verunreinigungen geschlossen werden. Tritt nach 10 Minuten eine bräunliche Verfärbung des gelben Niederschlages auf, liegt eine Verunreinigung mit Schwefelverbindungen vor, die das homologe Tellur beinhalten kann. Diese Fraktionen sind zu verwerfen, wenn ausreichend Niederschlag nach dem Trocknen aus den restlichen Fraktionen gewonnen werden konnte. Eine quantitative Erfassung des Iodids ist nicht notwendig, da das per AMS zu messende <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Isotopenverhältnis bei der Zugabe und Äquilibrierung des Woodward-Iods festgelegt wurde. Bei Proben mit hohen Iodgehalten, wie z. B. Milchproben, kann auf die Zugabe von Woodward-

Iod vor der Festphasen-Extraktion verzichtet werden. In diesem Fall wurde der Ausbeutetracer  $^{125}\text{I}$  der Probe zugesetzt. Die Festphasen-Extraktion wurde bei allen natürlichen Wässern und Milchproben angewandt.

Zur Ermittlung des intrinsischen  $^{127}\text{I}$ -Gehaltes bedarf es keiner weiteren Iod-Matrixtrennung. Einzig eine Matrixanpassung für die ICP-MS-Messung ist notwendig. Liegt Iod auch in Form von Iodat und organischen Iodverbindungen in der wässrigen Probe vor, so führt das zu keinen nennenswerten Abweichungen bei der ICP-MS-Messung. Der Grund ist in der Matrixanpassung zu sehen, die zum einen auf Verdünnung beruht und zum anderen durch Zugabe von Natriumhydroxid zur Hydrolyse von organischen Iodverbindungen und zur Absenkung des Redoxpotenzials führt. Die Stabilität von Iodid in der Probe nimmt damit gegenüber  $\text{I}_2$  und Iodat zu. Darüber hinaus sind die Probenbeiträge von Iodid und Iodat in der ICP-MS nicht signifikant verschieden.

### 4.3 Auswertung und Qualitätskontrolle

#### 4.3.1 Messunsicherheiten und charakteristische Grenzen

Die Messunsicherheiten wurden als vollständige Standardmessunsicherheiten nach dem „ISO Guide for the Expression of Uncertainty in Measurement“ (ISO, 1995) bzw. nach DIN 1319 bestimmt. Angegeben sind zu den Ergebnissen die Standardmessunsicherheiten (Erweiterungsfaktor  $k = 1$ ).

Die charakteristischen Grenzen, im Einzelnen Erkennungs- und Nachweisgrenzen sowie die Grenzen des Vertrauensbereichs wurden nach DIN 25482-10 bzw. ISO-FDIS 11929-7 bestimmt. Die Fehler erster und zweiter Art wurden für die Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen gleich  $\alpha = \beta = 0,05$  gewählt. Soweit Vertrauensbereiche zu berechnen waren, wurde das Vertrauensniveau  $\gamma = 0,05$  gewählt. Ausführliche Darstellungen hierzu sind bei Schmidt (1998), Szidat (2000) und Ernst (2003) zu finden.

Tabelle 4-2: Nachweisgrenzen für die  $^{129}\text{I}$ -Bestimmung in einzelnen Probenmatrices auf der Grundlage von DIN 25 482 Teil 10 als Anhaltswerte (Szidat, 2000), basierend auf maximalen Probeneinwaagen und typischen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen dieser Materialien. Einwaage und Konzentrationen bei Aerosolfiltern beziehen sich auf  $\text{m}^3$ . Zu den Unterschieden bei der einfachen und mehrfachen trockenen Veraschung siehe Szidat (2000).

Probenmaterial	$M_{\text{Einw}}$ in kg	$^{129}\text{I}_{\text{intr}}$ in fg $\text{kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}_{\text{intr}}$ in nBq $\text{kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}_{\text{intr}}$ in $10^8 \text{ kg}^{-1}$	$^{127}\text{I}_{\text{intr}}$ in mg $\text{kg}^{-1}$	$(^{129}\text{I}/^{127}\text{I})_{\text{intr}}$ in $10^{-10}$
Boden (einfach)	0,08	50	300	2,5	0,5–10	0,05–1
Boden (mehrfach)	0,56	7	50	0,4	0,5–10	0,008–0,15
Sediment	0,08	50	300	2,5	5–80	0,006–0,1
Pflanze	0,01	400	2500	20	0,1–150	0,03–40
Schilddrüsengewebe	0,004	900	6000	40	20–2000	0,004–0,4
Natürliches Wasser	10	0,3	2	0,015	$(0,5–50) \cdot 10^{-3}$	0,05–5
Milch	0,3	15	100	0,7	0,015–0,1	1,5–10
Aerosolfilter	1,5	4	25	0,2	$(0,5–8) \cdot 10^{-3}$	5–70

### 4.3.2 Blindwerte

Am ZSR, bzw. einem seiner Vorgängerinstitute, dem Niedersächsischen Institut für Radioökologie, wurden seit ca. 20 Jahren Analysen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Umweltproben mittels RNAA durchgeführt (Handl et al., 1996, und dort angegebene Literaturstellen). Seit 1995 wurden  $^{129}\text{I}$  Analysen in Zusammenarbeit mit dem PSI/ETH Tandem AMS Laboratorium an der ETH Höggerberg in Zürich auch mittels AMS durchgeführt (Schmidt, 1998; Schmidt et al., 1998). Nachdem mithilfe der AMS-Messungen die Nachweisempfindlichkeit für  $^{129}\text{I}$  um mehrere Größenordnungen gesteigert werden konnte, musste festgestellt werden, dass in dem bisher am Standort „Herrenhausen“ des ZSR benutzten Labors durch die langjährigen Arbeiten eine  $^{129}\text{I}$ -Kontamination vorlag, die Blindwerte der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von ca.  $10^{-10}$  erzeugte und die mittels RNAA nicht nachweisbar war. Es wurde daraufhin am ZSR-Standort „Am Kleinen Felde“ ein neues Labor ohne „Iod-Vergangenheit“ aufgebaut, in dem es möglich war, die bisher niedrigsten pränuklearen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Umweltproben zu messen (Szidat, 2000; Szidat et al., 2000a, 2000b, 2000c, 2000d; Ernst, 2003). Nach vollständiger Renovierung des Isotopenlabors „Herrenhausen“ ist das Blindwertproblem weitgehend gelöst, jedoch bleiben signifikante Unterschiede zwischen den beiden Laboratorien.

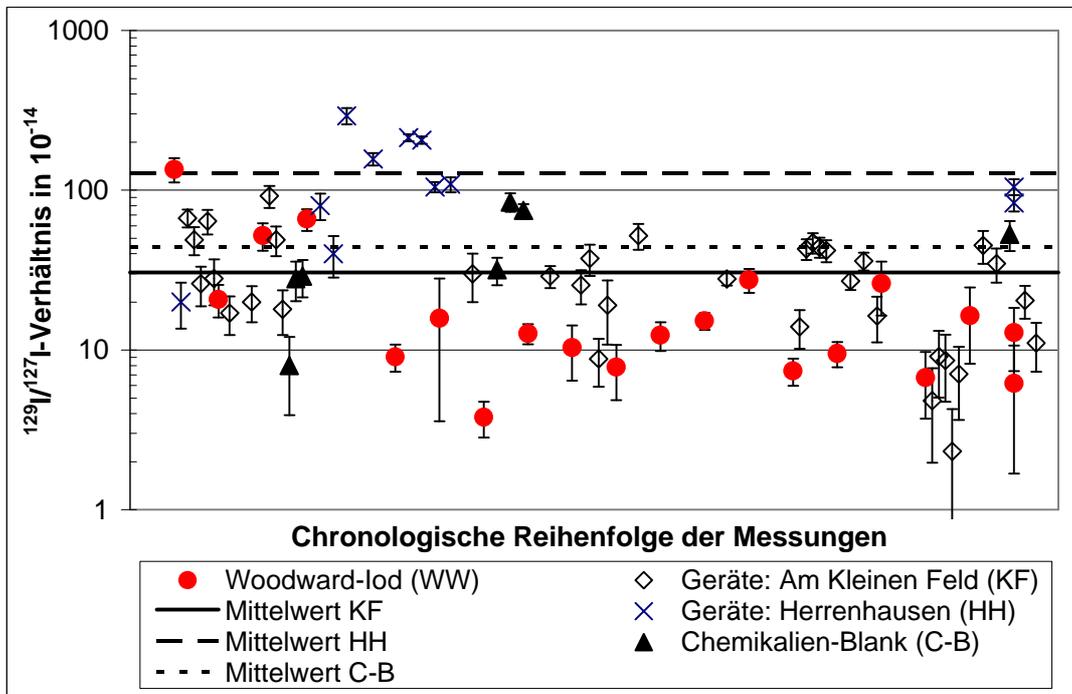


Abb. 4-13: Vergleich der Geräte-Blanks der Laboratorien „Am Kleinen Felde“ (KF) und „Herrenhausen“ (HH) am ZSR Universität Hannover über sechs Messreihen zwischen 2/2000 und 5/2002 (Ernst, 2003).

Für die Richtigkeit der Messung geringer  $^{129}\text{I}$ -Gehalte stellt die Kontamination der Proben in den Laboratorien eine wesentliche Gefahr dar. Die Gegenüberstellung der Geräte-Blanks aus den Laboratorien des ZSR Universität Hannover in „Herrenhausen“ und „Am Kleinem Felde“ zeigen auch heute noch signifikant erhöhte  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse am Standort „Herrenhausen“. Im Messzeitraum 2/2002 waren die Geräte-Blanks der trockenen Veraschung um Faktor zwei bis drei erhöht, was einen  $^{129}\text{I}$ -Gehaltsunterschied von 1,8 fg (12 nBq) bis 2,4 fg (16 nBq)  $^{129}\text{I}$  pro Blank ausmacht. In den folgenden Messzeiträumen erhöhte sich der Unterschied der Blanks auf Faktor 4, was einem durchschnittlichen zusätzlichen Gehalt von etwa 3 fg (20 nBq) pro Verbrennung entspricht.

Die zeitliche Entwicklung der Blindwerte verschiedener Gesamtanalysen ist in Tab. III.1.b im Anhang zu finden. Eine Übersicht über die Blindwertanalysen gibt Abb. 4-13.

### 4.3.3 Analyse von Referenzmaterialien

Die Richtigkeit der eingesetzten Analysemethoden wurde mithilfe von wiederholten Messungen von Referenzmaterialien und durch einige vergleichende Analysen mit anderen Laboratorien (*inter-laboratory comparisons*) unterstrichen. Da für die  $^{127}\text{I}$ -Bestimmung mit ICP-MS weder geeignete Referenzmaterialien, noch die Möglichkeit zu einer Vergleichsanalyse zur Verfügung standen, wurde durch die wiederholte Messung einzelner Proben (*in-house standards*) die Langzeitstabilität des Messgerätes überprüft.

Die Analysen des einzigen zurzeit für  $^{129}\text{I}$  verfügbaren Referenzmaterials IAEA soil-375 (Tab. 4-3) zeigen keine signifikanten Unterschiede zum Referenzwert, wobei allerdings die Unsicherheiten sowohl bei den Untersuchungen am ZSR als auch im Zertifikat recht hoch sind.

In den Ergebnissen der Untersuchungen des Standardreferenzmaterials 2709, San Joaquin soil, (Tab. 4-4) erkennt man eine sehr gute Übereinstimmung mit den Vergleichsdaten für die  $^{127}\text{I}$ -Bestimmung, die für diese Probe mittels Ionenchromatographie erfolgte. Die Reproduzierbarkeit bei der  $^{129}\text{I}$ -Analyse ist für dieses Material jedoch nicht zufrieden stellend. Problematisch ist hier vor allem der geringe  $^{129}\text{I}$ -Gehalt des Bodens.

Die Untersuchungen des Referenzmaterials BCR-279 sea lettuce (Tab. 4-5) demonstrieren einerseits die Richtigkeit der Bestimmung von  $^{127}\text{I}$  mittels Ionenchromatographie und andererseits das Potenzial der trägerfreien Probenaufarbeitung. Die beiden zu bestimmenden Ergebnisgrößen  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  lassen sich mit AMS und IC oder durch zwei AMS-Messungen ermitteln, wobei das zweite Verfahren einige Einschränkungen hat. Aus der Kombination von Aufarbeitung mit und ohne Trägerzugabe mit einer zusätzlichen, unabhängigen Bestimmung resultiert, wie hier, eine Möglichkeit zur Richtigkeitskontrolle.

Bei dem Vergleich der beiden Analysen des Standardreferenzmaterials 1648 urban particulate matter (Tab. 4-6), fällt auf, dass sich die im ersten Ansatz gemessene  $^{127}\text{I}$ -Konzentration gut mit den Vergleichsdaten deckt, was die Qualität der eingesetzten ICP-MS unterstreicht. Allerdings liegt das Ergebnis für den zweiten Ansatz zu tief, wobei die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse aus beiden Analysen übereinstimmen, was einen Fehler bei der Ausbeutebestimmung der Probenvorbereitung nahe legt. Da bei der alkalischen Suspensionsmethode die Ausbeuten mit lediglich 30 % bis 50 % niedrig sind, kann eine Fraktionierung während der Aufarbeitung nicht ausgeschlossen werden. Nur weitere qualitätssichernde Untersuchungen, z. B. an diesem Referenzmaterial, könnten zeigen, ob das gewählte Verfahren für die Analyse von Aerosolproben geeignet ist.

Tabelle 4-3:  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) in IAEA soil-375. Nach: Szidat (2000).

Prozedur bzw. Datenquelle	$n$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
		in $\text{pg kg}^{-1}$	in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	in $\text{mg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$
Tracerverbrennung (AMS/IC)	6	$299 \pm 40$	$1950 \pm 260$	$1,70 \pm 0,04$	$1820 \pm 40$
Trägerverbrennung (AMS)	5	$308 \pm 11$	$2010 \pm 70$	-	-
Alkalischer Aufschluss (AMS)	1	324	2110	-	-
Tracerverbrennung (RNAA)	4	$250 \pm 70$	$1600 \pm 500$	$1,68 \pm 0,09$	$1500 \pm 500$
IAEA Referenzwert (IAEA, 1991; Strachnov et al., 1993)	10	$262 \pm 29$	$1710 \pm 190$	(2)	$\sim 1300$

Tab. 4-4:  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) mit Standardabweichungen der Mittelwerte und Anzahl der Analysen im NIST Standardreferenzmaterial SRM 2709 (San Joaquin soil). Nach: Szidat (2000).

Datenquelle	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
	in $\text{pg kg}^{-1}$	in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	in $\text{mg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$
Diese Arbeit	$1,2 \pm 0,4$ ( $n = 2$ )	$7,8 \pm 2,6$ ( $n = 2$ )	$4,7 \pm 0,5$ ( $n = 3$ )	$2,8 \pm 1,1$ ( $n = 2$ )
NIST Referenzwert (Gills, 1993)	-	-	5	-
Marchetti et al. (1997)	$4,67 \pm 0,32$ ( $n = 5$ )	-	-	-

Tab. 4-5:  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) mit Standardmessunsicherheiten im BCR Referenzmaterial 279, sea lettuce (*Ulva Lactuca*). Nach: Szidat (2000).

Prozedur bzw. Datenquelle	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
	in $\text{ng kg}^{-1}$	in $\text{mBq kg}^{-1}$	in $\text{mg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$
mit Trägerzugabe	$3,38 \pm 0,13$	$22,1 \pm 0,8$	$151 \pm 7$	$(220 \pm 13)$
ohne Trägerzugabe	$(3,36 \pm 0,33)$	$(21,9 \pm 2,2)$	$(143 \pm 8)$	$231 \pm 17$
mit Trägerzugabe	$3,74 \pm 0,14$	$24,4 \pm 0,9$	$153 \pm 10$	$(241 \pm 17)$
ohne Trägerzugabe	$(3,75 \pm 0,15)$	$(24,5 \pm 1,0)$	$(160 \pm 5)$	$231 \pm 6$
BCR Referenzwerte (CEC, 1987)	-	-	$149 \pm 7$ $158 \pm 4$	-

Tab. 4-6:  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) mit Standardmessunsicherheiten im NIST Standardreferenzmaterial SRM 1648, urban particulate matter; nach Szidat (2000).

Quelle	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
	in $\text{ng kg}^{-1}$	in $\text{mBq kg}^{-1}$	in $\text{mg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$
Szidat (2000)	$0,58 \pm 0,05$	$3,8 \pm 0,3$	$18,9 \pm 2,3$	$300 \pm 50$
Szidat (2000)	$0,41 \pm 0,04$	$2,7 \pm 0,3$	$14,5 \pm 1,7$	$280 \pm 40$
NIST Referenzwert (Gills, 1998)	-	-	20	-
Greenberg et al. (1984)	-	-	$20 \pm 3$	-

In den Jahren 1995 bis 1997 organisierte die AMS-Gruppe am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) einen Ringversuch über die  $^{129}\text{I}$ -Bestimmung in Standards und Umweltproben mit niedrigem Analytgehalt (Roberts et al., 1997; Roberts und Caffee, 2000), an dem auch das ZSR teilnahm (Schmidt, 1998).

Während in der ersten Runde des Ringversuchs (Roberts et al., 1997) die Laboratorien eine gute Übereinstimmung bei Standards aus Silberiodid erzielten, differierten die Ergebnisse bei von den einzelnen Teilnehmern aufbereiteten Umweltmaterialien, wie Boden, Laub oder Seetang, um bis zu zwei Größenordnungen. Als in einer zweiten Phase des Ringversuchs (Roberts und Caffee, 2000) Boden- und Ahornblätterproben zentral von drei Laboratorien behandelt und von allen Gruppen das hergestellte Silberiodid gemessen wurde, resultierte eine geringere Streuung zwischen den Einzelergebnissen, die aber doch bei den Ahornblättern noch bis zu einem Faktor 10 zwischen Maximalwerten annahm (Roberts et al., 1997). Der Verlauf dieses Ringversuchs wurde von Schmidt (1998) dahingehend gedeutet, dass im Wesentlichen Kontaminationen bei der chemischen Aufbereitung der Proben die Ergebnisse der ersten Phase beeinflussen. In Abb. 4-14 sind die Ergebnisse der 2. Phase der Round Robin Exercise für IAEA soil 375 und in Abb. 4-15 die „Maple Leaves“ dargestellt. Die hohe Streuung der reinen Messwerte für die Ahornblätter aus der zweiten Phase allerdings kann so nicht erklärt werden. Da in den Standards in der ersten Phase eine sehr kleine Variabilität zwischen den Teilnehmern vorlag, könnte hier eine unterschiedlich gute Abtrennung der einzelnen Messanlagen von aus der Probe stammenden Störsubstanzen, wie z. B.  $^{128}\text{Te}$ , zugrunde liegen (Szidat, 2000).

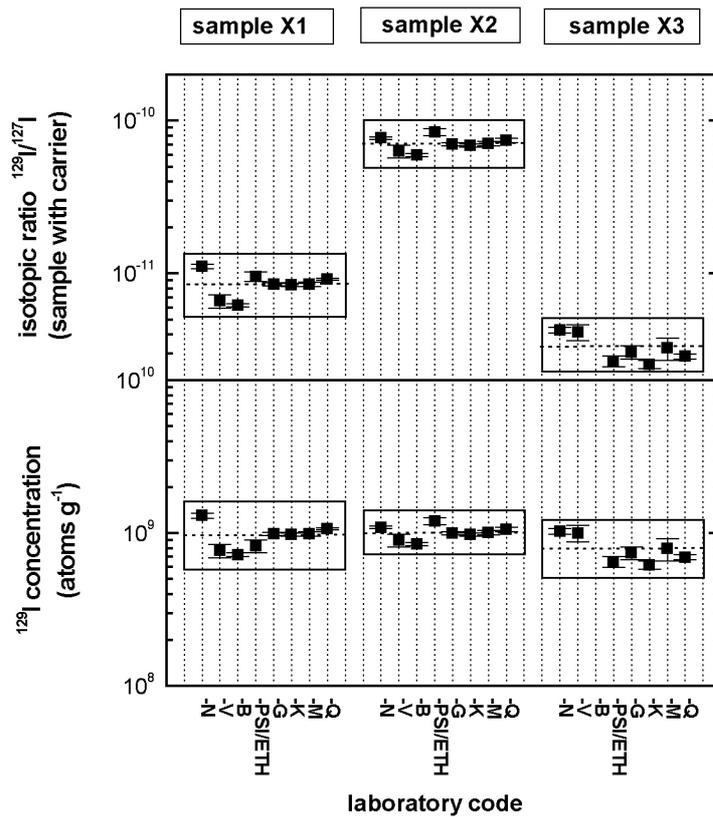


Abb. 4-14: Round Robin Exercise II (Roberts und Caffee, 2000):  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Isotopenverhältnisse in IAEA soil-375.

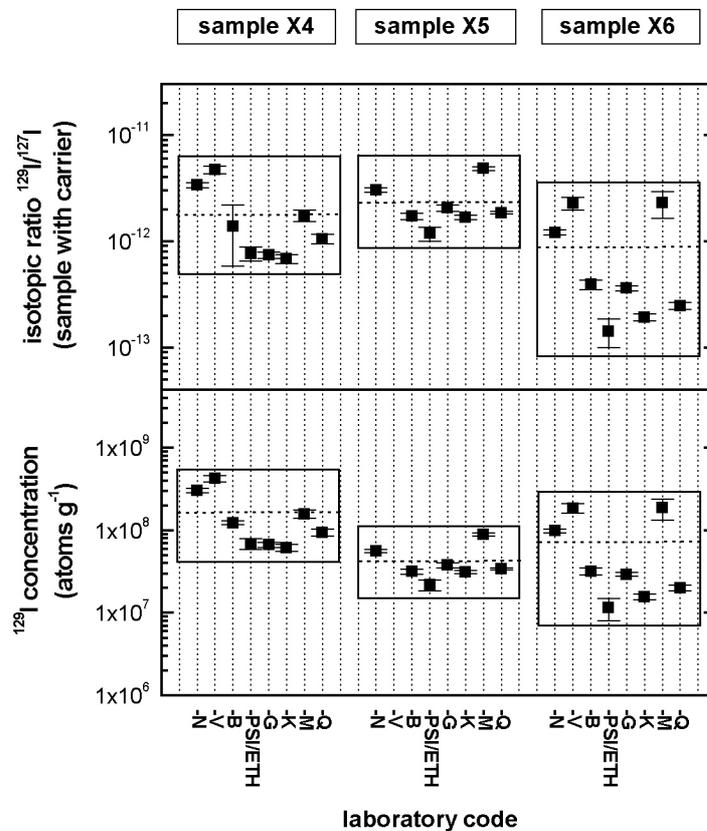


Abb. 4-15: Round Robin Exercise II (Roberts und Caffee, 2000):  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Isotopenverhältnisse in „Maple Leaves“.

## 5 Iod-129 in der Umwelt

### 5.1 Natürliche und anthropogene Quellen von Iod-127 und Iod-129

Vor einer Darstellung der aktuellen Untersuchungsergebnisse ist es sinnvoll, einen Überblick über den Iod-Kreislauf der Umwelt zu geben. Bonka (1982) hat in einer Veröffentlichung den damaligen Wissensstand zusammengefasst und Darstellungen des globalen Iod-Kreislaufs (Abb. 5-1), eines Kompartiment-Modell für den Austausch von Iod-Isotopen im Ozean (Abb. 5-2) und Parameter des Austauschs von Iod zwischen Atmosphäre, Pedosphäre und Bewuchs (Abb. 5-3) gegeben.

Danach befindet sich nur ein geringer Teil des terrestrischen Iods in den „freien“ Kompartimenten der Hydrosphäre, Atmosphäre, Pedosphäre und Biosphäre (Abb. 5-4). In die Kompartimente Atmosphäre und Hydrosphäre gelangt das Iod durch die vulkanische Exhalationen, die Verwitterung von Gesteinen und die Verbrennung fossiler Brennstoffe. Durch Niederschläge und Verdampfung tauschen Atmosphäre und Hydrosphäre Iod aus. Aus der Hydrosphäre wird über die Bildung von Sedimenten Iod aus den freien Kompartimenten entfernt. Durch Austausch mit der Hydrosphäre (und Pedosphäre<sup>3</sup>) gelangt Iod in die Biosphäre. Durch Evapo-Transpiration wird Iod aus der Biosphäre an die Atmosphäre abgegeben und durch Ausscheidungen, Tod und Zerfall von Organismen an Hydrosphäre (und Pedosphäre) zurückgegeben.

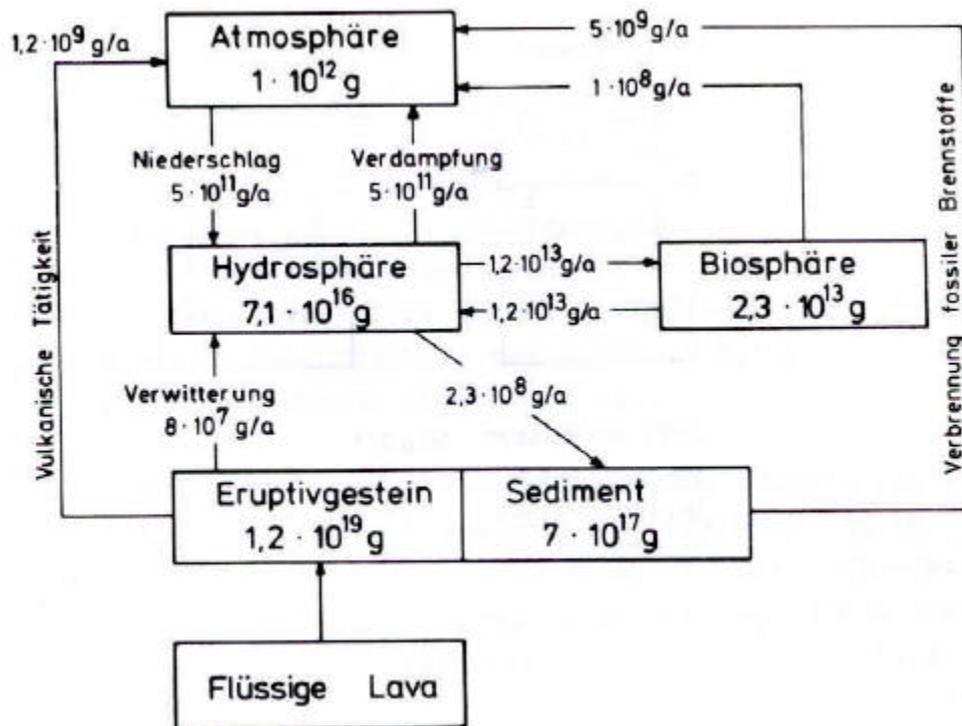


Abb. 5-1: Kompartiment-Modell für den Austausch von stabilem <sup>127</sup>I zwischen Geosphäre, Hydrosphäre und Atmosphäre nach Bonka (1982)

<sup>3</sup> Bonka (1982) berücksichtigt in seinem Modell die Pedosphäre nicht. Die hier hinzugefügte Ergänzung ist im Hinblick auf die spätere Diskussion wesentlich.

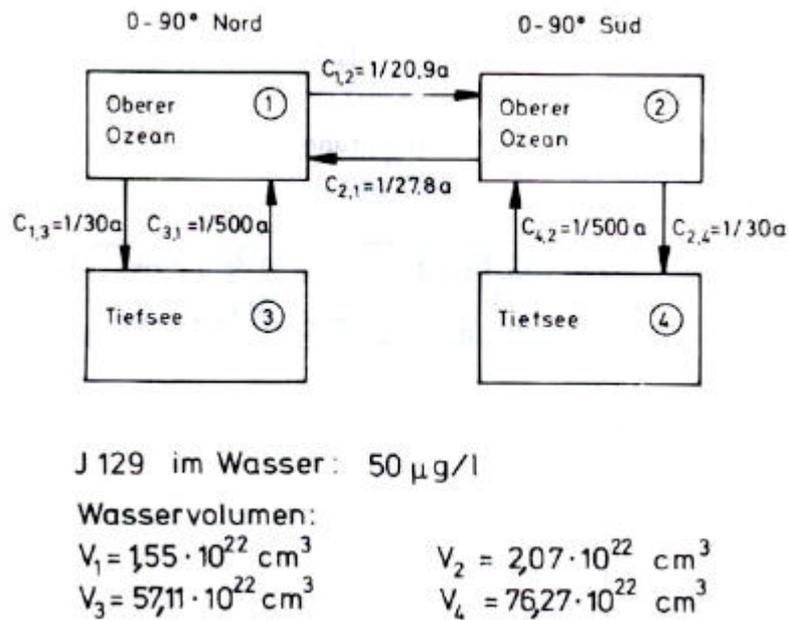


Abb. 5-2: Kompartiment-Modell für den Austausch von Iod-Isotopen im Ozean nach Bonka (1982).

Für die Verteilung von Iod in den Ozeanen benutzt Bonka (1982) ein einfaches 4-Kompartiment-Modell (Abb. 5-2), in dem lediglich die beiden Hemisphären und jeweils der obere Ozean und die Tiefsee unterschieden werden. Für den Austausch von Iod zwischen Atmosphäre, Pedosphäre und Bewuchs gibt er Parameter an (Abb. 5-3).

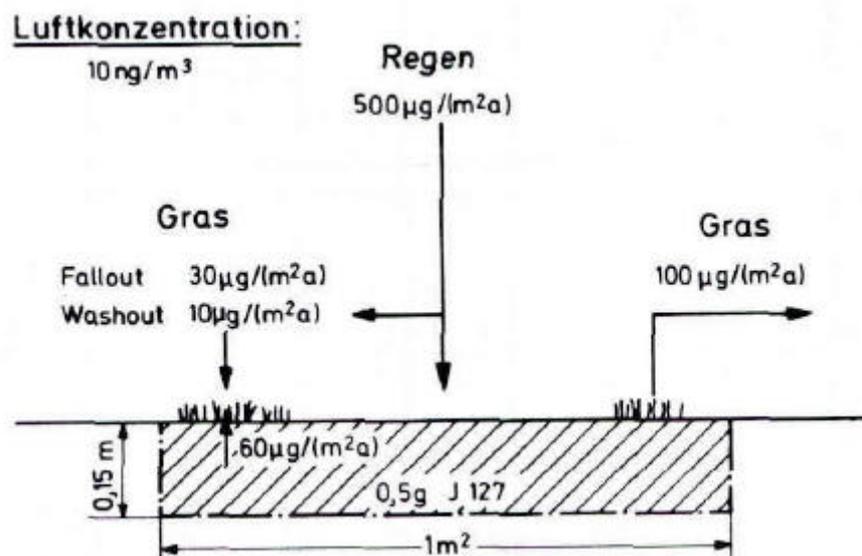


Abb. 5-3: Parameter des Austauschs von Iod zwischen Atmosphäre, Pedosphäre und Bewuchs nach Bonka (1982)

In den letzten 25 Jahren wurden vielfältige Untersuchungen zu den verschiedensten Aspekten des Iod-Kreislaufs durchgeführt. Dennoch sind noch nicht alle Fragen beantwortet. Fabryka-Martin hat 1984 ein detaillierteres Kompartiment-Modell des Iod-Kreislaufs vorgestellt (Abb. 5-4). Sie unterscheidet die ozeanische Atmosphäre und die Atmosphäre über Land, berücksichtigt die Pedosphäre und unterscheidet an Land oberflächliches und tiefes Grundwasser.

Die Kompartiment-Modelle nach Bonka (1982) und Fabryka-Martin (1984) sind in allgemeiner Übereinstimmung. Unterschiede im Detail sind nicht Gegenstand dieser Untersuchung und sollen hier nicht weiter diskutiert werden. Wesentlich für dieses Vorhaben sind das generelle Schema und die Komplexität der Wege der Iod-Isotope durch die verschiedenen Umweltkompartimente.

Aufgrund der relativ geringen Iod-Gehalte von Gesteinen können die in der Pedosphäre beobachteten Iod-Gehalte nicht durch die Verwitterung des Grundgesteins erklärt werden. Auch die in der Literatur noch häufig anzufindende Argumentation, dass das Iod in Böden seit der Eiszeit ausgewaschen worden wäre, lässt sich im Blick auf die Ergebnisse dieses Forschungsvorhabens und früherer Untersuchungen (Ernst et al., 2002, 2003; Ernst, 2003) nicht halten. Es wird sich zeigen, dass das stabile Iod in Böden das Ergebnis jahrtausendelangen Eintrags aus den Ozeanen über die Atmosphäre zum Boden ist.

Bei Betrachtung der Iod-Isotope  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  wird es im Hinblick auf den Iod-Kreislauf in der Umwelt meist als sinnvoll erachtet, die Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  in Form der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zu diskutieren. Die Literatur über  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt macht überwiegend Gebrauch von diesem Ansatz. Danach würde sich sofort die Frage nach einem spezifischen Aktivitätsmodell für  $^{129}\text{I}$  stellen. Dies würde jedoch ein Gleichgewicht zwischen  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt voraussetzen, wie man es für  $^{12}\text{C}$  und  $^{14}\text{C}$  in den freien Kohlenstoff-Kompartimenten beobachtet. Diese Frage wird später (Kap. 6.2) zu diskutieren sein.

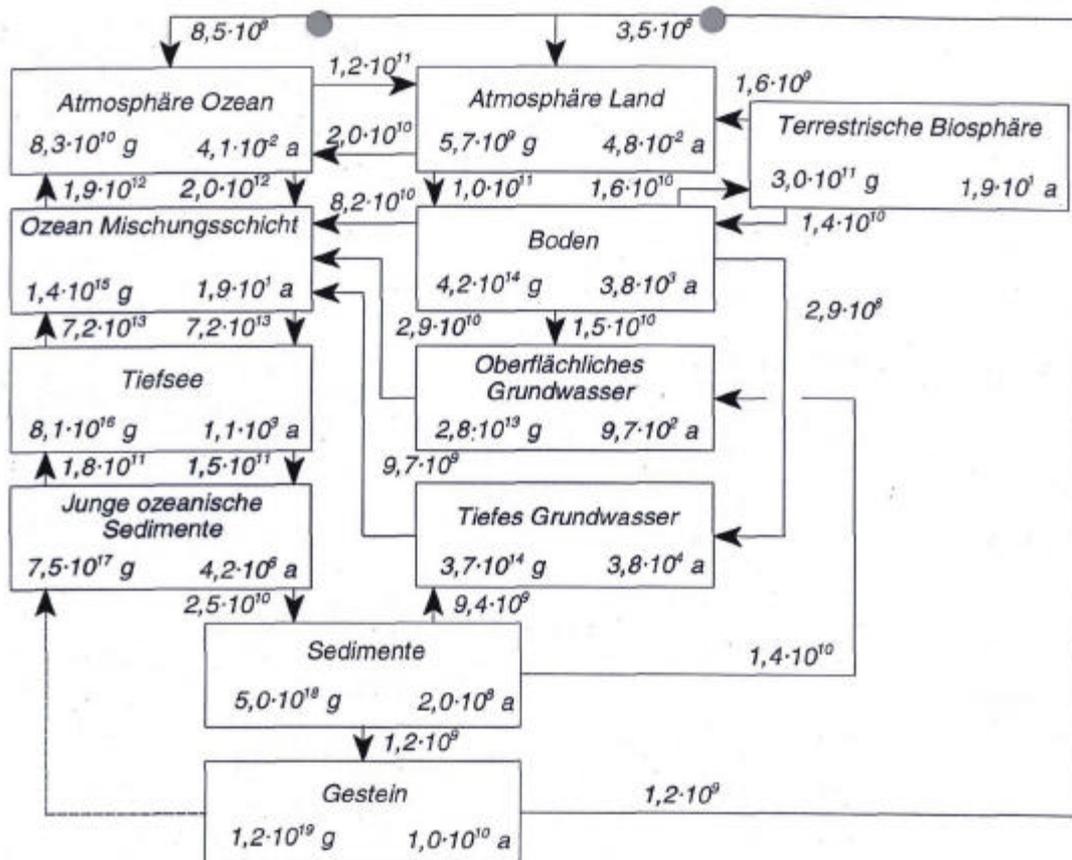


Abb. 5-4: Globales Kompartiment-Modell für stabiles Iod: Inventare und mittlere Verweilzeiten in den Boxen, Flüsse in  $\text{g a}^{-1}$  an den Pfeilen. Aus: Schmidt (1998) modifiziert nach Fabryka-Martin (1984).

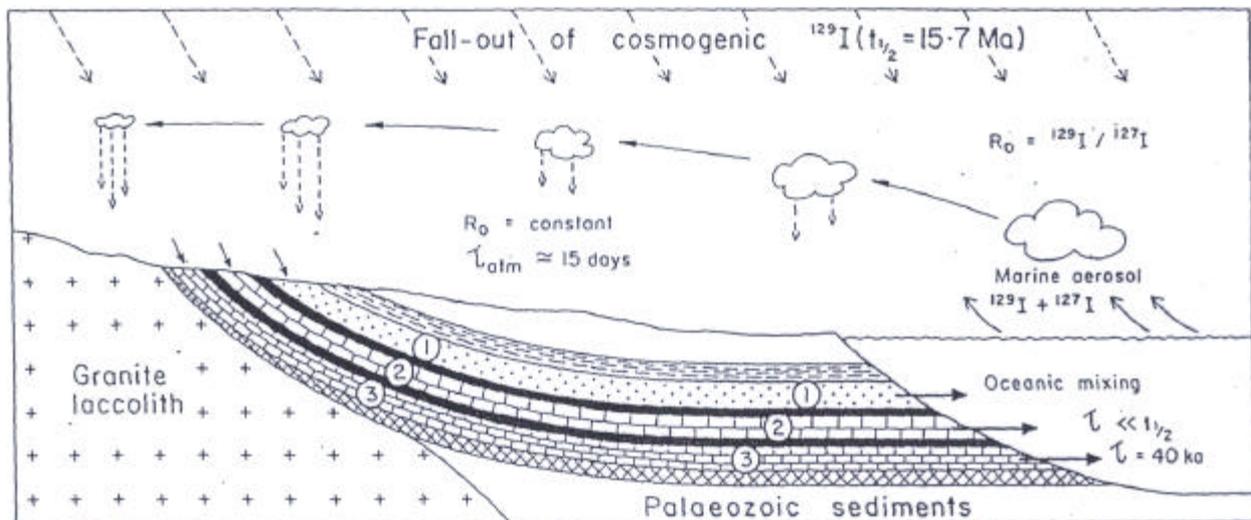


Abb. 5-5: Wege der Iod-Isotope vom Meer durch die Atmosphäre zum Land. Aus: Fontes und Andrews (1994).

Mit der ozeanischen Mischungsschicht als Hauptquelle des Iods in der Atmosphäre, der kontinentalen Hydrosphäre, der Pedo- und terrestrischen Biosphäre ergibt sich die Frage nach dem Verhalten der Iod-Isotope beim Übergang zwischen Meerwasser und Atmosphäre und beim Transport zur und Eintrag in die Pedosphäre. Fontes und Andrews haben 1994 diese Frage für die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - und die  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Isotopenverhältnisse diskutiert. Ohne hier die von diesen Autoren geforderten Unterschiede im Verhalten der Iod- und Chlor-Isotope zu diskutieren, sei lediglich das von ihnen für die Iod-Isotope vorgeschlagene Modell dargestellt (Abb. 5-5).

Fontes und Andrews (1994) nehmen eine charakteristische Mischungszeit von 40 ka für die Ozeane an. Da diese Mischungszeit sehr viel kleiner ist als die Halbwertszeit des  $^{129}\text{I}$  gehen sie in Betrachtung nicht von Menschen beeinflusster Situationen davon aus, dass das pränukleare  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis wohl definiert ist. Aus der ozeanischen Mischungsschicht sollen dann die Iod-Isotope mit konstantem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis über marine Aerosole in die Atmosphäre transportiert werden. Für die Aerosole nehmen die Autoren eine mittlere Lebensdauer von 15 d an. Sie werden dann mit den Luftmassen über Land transportiert und mit eben diesem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in die Pedosphäre eingetragen.

Inwiefern dieses einfache Modell imstande ist den Transport der Iod-Isotope vom Meer zum Land zu beschreiben sei dahingestellt. Die Rolle der Iod-Speziation beim Übergang vom Meer in die Atmosphäre wird nicht näher betrachtet und eine Differenzierung von anorganischen und organischen gasförmigen Spezies und Aerosolen wird ebenfalls nicht vorgenommen. Eine Vielzahl von Untersuchungen belegt allerdings, dass die Stoffkreisläufe zwischen Hydrosphäre, Atmosphäre, Pedosphäre und Biosphäre und speziell der Iod-Kreislauf wesentlich komplizierter sind. Das Modell von Fontes und Andrews (1994) stellt lediglich eine erste Näherung dar. Vergleiche hierzu Ernst (2003).

Ohne Berücksichtigung des nicht vernachlässigbaren Einflusses organischer Substanzen und Mikroorganismen auf die Speziation von Iod in Hydrosphäre, Atmosphäre und Pedosphäre kann, auf der Grundlage der Eh- und pH-Werte, die Speziation des Iods abgeschätzt werden. Rucklidge et al. (1994) gehen dabei davon aus, dass Iod unter natürlichen Umweltbedingungen im Wesentlichen als  $\text{I}_2$  oder  $\Gamma^-$  vorliegen (Abb. 5-6).

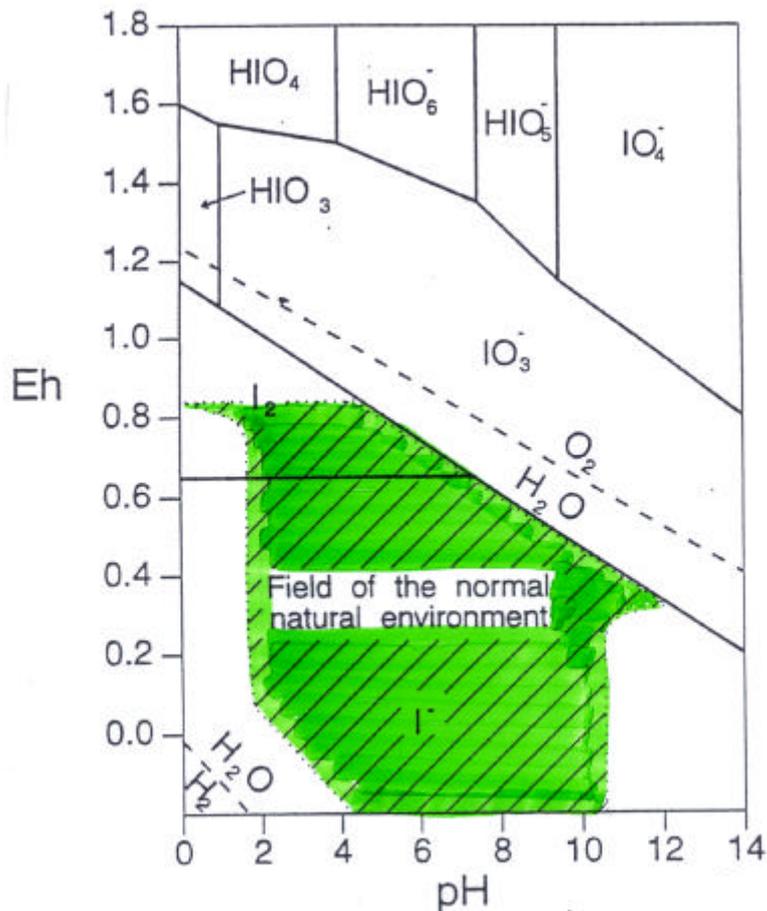


Abb. 5-6: Eh-pH-Diagramm für Iod nach Vinogradov und Lapp (1971) aus Rucklidge et al. (1994).

Man muss betonen, dass alle Transportprozesse der Iod-Isotope von der Speziation abhängen und ohne Berücksichtigung organischer Iod-Spezies nicht beschrieben werden können. Iod ist biophil und geht in den verschiedensten Umweltkompartimenten auch organische Iodverbindungen ein. Es liegt als  $\text{I}^-$ ,  $\text{IO}_3^-$  und organische Iodverbindungen vor; siehe hierzu Santschi und Schwer (2004) und dort aufgeführte Literaturstellen. Speziell die Rolle organischer Iod-Spezies beim Übergang vom Meer in die Atmosphäre ist hier zu erwähnen (Heumann et al., 1990). Gleiches gilt für den Austausch zwischen Hydrosphäre und Pedosphäre und Migration und Akkumulation von Iod in Böden; vgl. Kapitel 6 der Dissertation von Ernst (2003).

Buraglio (2000) hat den Kenntnisstand über Vorkommen und Speziation von Iod in der Umwelt zusammengefasst. Für Meerwasser als Hauptreservoir des „freien“ Iods gibt sie einen Konzentrationsbereich von  $40 \mu\text{g L}^{-1}$  bis  $65 \mu\text{g L}^{-1}$  an. Iod liegt in maritimem Oberflächenwasser überwiegend als Iodid und Iodat vor; z.B. Wong, 1991; Hou et al., 1999. Der Anteil des Iodids (ca. 50 % an der Oberfläche) nimmt mit der Tiefe ab; z. B. Takaianagi und Wong, 1986; Wong, 1991; Hou et al., 1999. Im Tiefenwasser überwiegt Iodat. Dieser Effekt kann durch die Aktivität mariner Bakterien erklärt werden, die an der Oberfläche bei der Reduktion von Nitrat auch Iodat zu Iodid reduzieren (Tsunogai und Sase, 1969; Wong, 1991). Unter stark anoxischen Bedingungen, wie z. B. in der Ostsee und dem Schwarzen Meer liegt Iod überwiegend als Iodid vor (Wong, 1991; Hou et al., 1999).

Man nimmt an, dass der Übergang des Iods vom Meer in die Atmosphäre hauptsächlich via Methyljodid ( $\text{CH}_3\text{I}$ ) vonstatten geht (Whitehead, 1984).  $\text{CH}_3\text{I}$  wird in großem Umfang von Algen und Phytoplankton produziert und beim Absterben freigesetzt (Chameides und Davis, 1980). Andere mögli-

che Wege des Übergangs vom Meer zur Atmosphäre sind die Transformation von  $\Gamma$  in  $I_2$  durch photochemische Reaktionen (Miyake und Tsunogai, 1963) oder durch Reaktion mit atmosphärischem Ozon (Whitehead, 1984). Ernst (2003) hat die Rolle der „volatile organic compounds“ (VOC) beim Übergang vom Meer in die Atmosphäre und die Spezifikation und Transportprozesse in der Atmosphäre (vgl. auch Kapitel 5.4.1) aber auch bei Evaporation und Transpiration aus der Pedosphäre ausführlich diskutiert.

Die Iod-Konzentrationen der Atmosphäre reicht von einigen  $ng\ m^{-3}$  bis zu einigen  $100\ ng\ m^{-3}$ , siehe z. B. bei Whitehead (1984). Aus der Atmosphäre wird Iod durch nasse und trockene Deposition entfernt. Iod-Konzentrationen im Niederschlag liegen im Bereich von  $1\ ng\ g^{-1}$  bis  $5\ ng\ g^{-1}$ , wobei die Konzentrationen mit dem Abstand zum Meer sinken (Whitehead, 1984, Moran et al., 1999).

In kristallinen Gesteinen liegt Iod recht gleichmäßig mit geringen Konzentrationen von ca.  $0,24\ \mu g\ g^{-1}$  vor; in rezenten Sedimenten, Schiefer, Sandstein und Kalkstein reichen die Konzentrationen von einigen  $\mu g\ g^{-1}$  bis zu  $200\ \mu g\ g^{-1}$  (Fuge und Johnson, 1986). Für Böden geben diese Autoren einen Mittelwert der Iod-Konzentration von  $5\ \mu g\ g^{-1}$  an, wobei sie auch darauf hinweisen, dass das Iod in Böden mit hohen Anteilen von Ton, Aluminium- und Eisenoxiden und organischen Bestandteilen angereichert ist. Der pH-Wert des Bodens beeinflusst die Speziation des Iods; siehe z.B. bei Fuge und Johnson (1986) sowie bei Fuge (1996). In sauren Böden mit entsprechendem Redoxpotential wird  $\Gamma$  in  $I_2$  umgewandelt, das leicht in die Atmosphäre entweicht, in basischen Böden liegt es als Iodat in nicht-flüchtiger Form vor.

Die Iod-Konzentrationen in Oberflächenwasser (Seen und Flüsse) ist niedriger als in Meerwasser. Buraglio (2000) berichtet von Iod-Konzentrationen im Bereich von  $2\ ng\ g^{-1}$  bis  $42\ ng\ g^{-1}$ , wobei das Iod im Wesentlichen als Iodid vorliegt; (Whitehead, 1984; Rao und Fehn, 1999).

Im Grundwasser liegt Iod hauptsächlich als Iodid, im Allgemeinen in Konzentrationen von weniger als  $5\ ng\ g^{-1}$  vor. In Grundwässern mit hoher Salinität können Iod-Konzentrationen von  $50\ ng\ g^{-1}$  bis  $100\ ng\ g^{-1}$  beobachtet werden (Whitehead, 1984).

Für dosimetrische Modelle der  $^{129}I$ -Exposition und auch im Hinblick auf den Iodkreislauf in der Umwelt wird es vielfach als sinnvoll angesehen, die Vorkommen von  $^{129}I$  in Form der  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse zu beschreiben. Zumindest für die prä nukleare Situation sollte dies nach den oben gemachten Ausführungen zutreffen. Daher wird hier zunächst das prä nukleare  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnis diskutiert.

## 5.2 Die prä nuklearen Iod-Isotopenverhältnisse

Das prä nukleare  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnis stellt die entscheidende Größe zur Beurteilung anthropogener Veränderungen dar. Frühe Schätzungen des Isotopenverhältnisses im natürlichen Gleichgewicht ergaben für die marine Hydrosphäre  $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnisse zwischen  $4 \cdot 10^{-14}$  und  $3 \cdot 10^{-12}$  (Edwards, 1962; Kohman und Edwards, 1966; Edwards und Rey, 1968). In einem detaillierten Gleichgewichtsmodell schätzte Fabryka-Martin (1984) ein Verhältnis von  $5,5 \cdot 10^{-13}$  für die marine Hydrosphäre, während sie für die kontinentale Atmosphäre, für Böden und die terrestrische Biosphäre geringfügig höhere  $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnisse von etwa  $6,5 \cdot 10^{-13}$  voraussagte. Erst mittels AMS Messungen gelang es, die natürlichen Vorkommen an prä nuklearen marinen Sedimenten und ozeanischen Tiefenwasser experimentell zu verifizieren. Es ergaben sich  $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnisse von  $(1,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-12}$  (Fehn et al., 1986) und  $(1,4 \pm 0,9) \cdot 10^{-12}$  (Schink et al., 1995b).

Für die Atmosphäre, die terrestrische Biosphäre und die Pedosphäre konnten bisher die prä nuklearen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse nicht experimentell verifiziert werden, hauptsächlich wegen Kontaminationsproblemen mit allgegenwärtigem, anthropogenem  $^{129}\text{I}$ . Die niedrigsten Isotopenverhältnisse, die bisher in nicht marinen, prä nuklearen Materialien gefunden wurden, wurden am ZSR gemessen (Schmidt, 1998; Szidat, 2000; Ernst, 2003). Tab. 5-1 gibt eine Übersicht über die Ergebnisse.

Schilddrüsen von Schweinen und Pferden zeigten in den USA bereits im Jahr 1947  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse, die 40- bis 1 000-mal höher als das prä nukleare marine Gleichgewichts isotopenverhältnis waren, wahrscheinlich als Folge von  $^{129}\text{I}$ -Freisetzungen während des Manhattan-Projektes. Das bisher niedrigste  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in der Biosphäre wurde in einem Schilddrüsen-Pulver gemessen, das die Firma Parke-Davis & Co./USA 1943 als Referenzmaterial für die chemische Iod-Analytik herstellte. Doch auch dieses Material zeigt ein Isotopenverhältnis, das ca. 5-mal höher als das marine Gleichgewichts isotopenverhältnis liegen. Zudem wurde für dieses Material noch eine Variabilität der Isotopenzusammensetzung bei der Analyse verschiedener Aliquots festgestellt. In den Pferdeschilddrüsen aus dem Jahr 1947 sind die Isotopenverhältnisse jedoch so hoch, dass Kontamination alleine durch Lagerung unwahrscheinlich erscheint und zusätzlicher Eintrag aus dem Manhattan-Projekt nahe liegt.

Tab. 5-1:  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) und intrinsische  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in prä nuklearen Boden- und Schilddrüsenproben; (Schmidt, 1998; Szidat, 2000; Ernst, 2003).

Material	$^{129}\text{I}$ in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	$^{127}\text{I}$ in $\text{mg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Boden Moskau (Russland), 1910	$0,87 \pm 0,07$	$0,79 \pm 0,02$	$1,68 \pm 0,15$
Boden Bogoroditsk (Russland), 1909	$0,85 \pm 0,07$	$5,4 \pm 0,3$	$0,25 \pm 0,03$
Boden Lutovinovo (Russland), 1939	$0,15 \pm 0,03$	$3,87 \pm 0,14$	$0,057 \pm 0,011$
Tierisches Schilddrüsen-Pulver (USA), 1943	140	$3\ 000^{\text{a}}$	$0,070 \pm 0,015$
	$91 \pm 8$	$2\ 980 \pm 90$	$0,046 \pm 0,005$
Schweine-Schilddrüsen-Pulver (USA), 1947	nicht bestimmt	nicht bestimmt	$0,58 \pm 0,20$
Pferde-Schilddrüsen-Pulver (USA), 1947	27 400	$3\ 380^{\text{a}}$	$12,3 \pm 1,5$
	34 300	$3\ 380^{\text{a}}$	$15,4 \pm 1,8$
Chemikalien <sup>b</sup>	nicht bestimmt	nicht bestimmt	$0,002 \cdot 1,4^{\pm 1}$

<sup>a</sup> Angaben des Herstellers: Parke, Davis & Co., USA. zu viele Linien in der Tab.

<sup>b</sup> siehe hierzu die Ergebnisse der einzelnen Analysen in Tab. 5-2.

In prä nuklearen Bodenproben fanden wir  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die 4- bis 100-mal höher waren als das Gleichgewichts isotopenverhältnis (Tab. 5-1). Wir interpretieren diese Ergebnisse, so, dass alle diese alten Bodenproben während der Lagerung mit anthropogenem  $^{129}\text{I}$  kontaminiert wurden. Kontaminationen während der Analytik können angesichts von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von  $(5-20) \cdot 10^{-14}$  in Blindmaterialien, die das vollständige Analysenverfahren durchliefen, ausgeschlossen werden. Die Bodenprobe von Lutovinovo/Russland zeigt das bisher niedrigste in Böden gemessene Isotopenverhältnis und kann daher unter der Annahme, dass die mittleren prä nuklearen  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in der Probe ein Gleichgewicht zwischen natürlichem atmosphärischem Eintrag und der Migration in tiefere Bodenschichten darstellen, zur

Berechnung einer oberen Grenze der prä nuklearen integralen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichte herangezogen werden.

Tabelle 5-2: Mittlere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Einzelmessungen und das geometrische Gesamtmittel aller untersuchten prä nuklearen Proben zu viele Linien in der Tab.

$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in $10^{-13}$	
Iodid/Iodat-Sublimat 1918 a+b	$2,23 \pm 0,22$
Iodtinktur 1918 a	$2,38 \pm 0,19$
Iodtinktur 1918 b	$1,28 \pm 0,31$
Diiodtryosin 1935	$2,09 \pm 0,75$
geometrisches Mittel <sup>4</sup>	$2,0 \cdot 1,4^{\pm 1}$

Die niedrigsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in prä nuklearen Proben aus der terrestrischen Biosphäre wurden von Ernst (2000) gemessen. Er untersuchte medizinische Präparate aus den Jahren 1918 und 1935 und fand  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $2,0 \cdot 10^{-13}$  (Tab. 5-1 und 5-2). Einzig ein im Begleitwasser der Erdölförderung gefundenes Iod (Moran et al., 1995) und das aus einer 300 Ma alten Sole gewonnene Iod (Woodward-Iod) (Boaretto et al., 1990) zeigen tiefere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die aber aufgrund des fehlendes Iod-Austausches mit anderen Umweltkompartimenten (und hoher Einschlussalter nicht für die Bestimmung des prä-nuklearen Isotopenverhältnis in den uns zugänglichen Umweltkompartimenten herangezogen werden können; vgl. (Ernst, 2003).

Die in den Umweltkompartimenten derzeit vorliegenden  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, abseits vom Einfluss direkter Emittenten, zeigen Erhöhungen gegenüber dem prä nuklearen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von ein bis zu sieben Größenordnungen auf, auf die im Folgenden eingegangen werden soll.

### 5.3 Emissionen von anthropogenem Iod-129

Die anthropogene Produktion von  $^{129}\text{I}$  begann mit der militärischen und zivilen Nutzung der Kernspaltung.  $^{129}\text{I}$  entsteht bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ .  $^{129}\text{I}$  wurde durch oberirdische Kernwaffenexplosionen freigesetzt. Dadurch wurde das natürliche freie Inventar an  $^{129}\text{I}$  nach unterschiedlichen Schätzungen um zwischen 43 kg und 150 kg (0,28 TBq - 0,98 TBq) erhöht (Chamberlain, 1991; Eisenbud und Gesell, 1997; Carter und Moghissi, 1977; UNSCEAR, 1982). Die Unsicherheit dieser Schätzung beruht auf den Widersprüchen in den Angaben der Gesamtsprengkraft der oberirdischen Kernwaffenexplosionen. Die größten Anteile an anthropogenem  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt stammen jedoch aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. In Abb. 5-8 sind die verschiedenen bekannten anthropogenen  $^{129}\text{I}$  Emissionen mit dem natürlichen „freien“  $^{129}\text{I}$ -Inventar verglichen.

<sup>4</sup> Wir benutzen in dieser Arbeit zu Darstellung eines geometrischen Mittelwertes  $m$  und der zugehörigen geometrischen Standardabweichung  $s$  die Schreibweise  $m \cdot s^{\pm 1}$  in Analogie zur häufig benutzten Schreibweise  $m \pm s$  für arithmetische Mittelwerte und Standardabweichungen. Für logarithmisch normalverteilte Daten erhält man das Intervall, in dem ca. 66 % der Daten liegen, durch Multiplikation bzw. Division des geometrischen Mittelwertes mit bzw. durch die geometrische Standardabweichung.

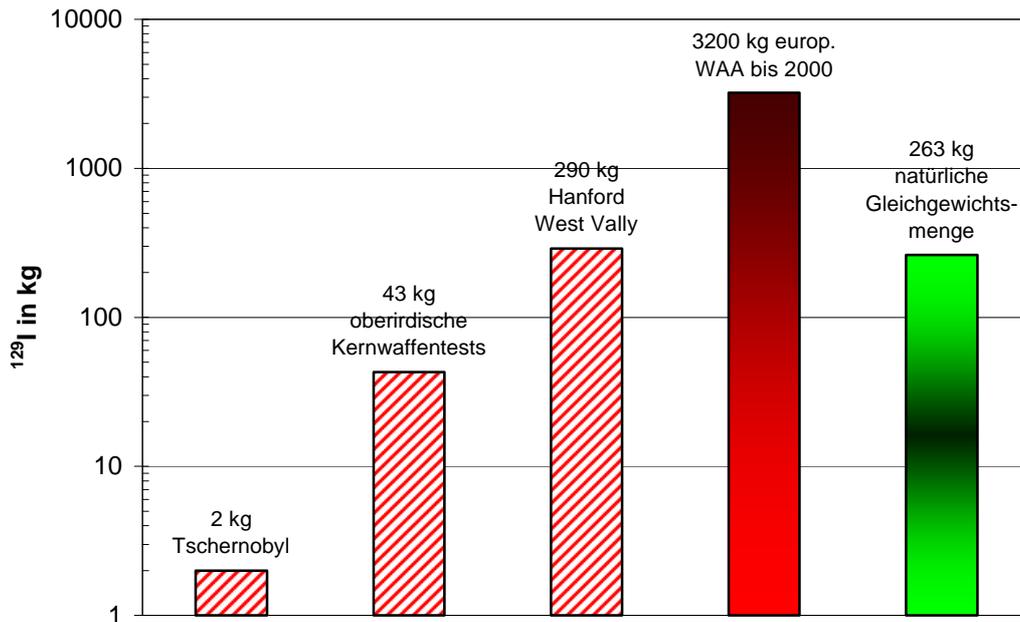


Abb. 5-8: Vergleich der bekannten anthropogenen Quellen von  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt mit dem natürlichen freien Gleichgewichtsinventar in Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre.

In Tabelle 5-3 sind verfügbare Daten über die luftgetragenen und flüssigen Emissionen von  $^{129}\text{I}$  für die Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague zusammengestellt. Bis zum Jahr 2000 emittierten die europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen etwa 3 200 kg (21 TBq)  $^{129}\text{I}$  (Raisbeck et al., 1995; Gray et al., 1995; Parker, 2001; Webmaster Cogema, 2001; BNFL, 1999; Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999), wobei ca. 70 % der Gesamtemission auf die französische Wiederaufarbeitungsanlage La Hague entfiel. Die Emissionen beider Anlagen erfolgten überwiegend über das Abwasser: ca. 85 % in Sellafield und ca. 97 % des  $^{129}\text{I}$  in La Hague (Abb. 5-9 und 5-10). Die zeitlichen Verläufe der flüssigen und luftgetragenen Ableitungen unterscheiden sich stark. Die Summe der luftgetragenen Emissionen beider Wiederaufarbeitungsanlagen war bis 1978 relativ konstant bei etwa 20 GBq  $^{129}\text{I}$  pro Jahr. Dann stieg sie auf bis zu 60 GBq  $^{129}\text{I}$  pro Jahr, allerdings mit starken zeitlichen Schwankungen. Seit 1996 wurden die luftgetragenen Emissionen in La Hague deutlich gesenkt. Sie lagen im Zeitraum von 1999 bis 2001 jeweils unter 10 GBq  $^{129}\text{I}$  pro Jahr. Auch die luftgetragenen  $^{129}\text{I}$  Emissionen aus Sellafield haben sich seit 1996 verringert. Sie lagen zwischen 1999 und 2001 unter 33 GBq  $^{129}\text{I}$  pro Jahr. Für die Summe der luftgetragenen Ableitungen bedeutet dies, dass seit 1996 eine kontinuierliche Abnahme zu verzeichnen ist. Ganz anders die flüssigen Emissionen: Nach kontinuierlichem, aber leichtem Anstieg von 0,02 TBq  $^{129}\text{I}$  im Jahr 1966 auf 0,55 TBq  $^{129}\text{I}$  im Jahr 1992 stieg die Summe der flüssigen Emissionen bis auf 2,1 TBq  $^{129}\text{I}$  im Jahr 1996. Seitdem sind sie relativ konstant. Bei den flüssigen Emissionen stammen derzeit etwa 80 % aus La Hague.

Große Mengen an anthropogenem  $^{129}\text{I}$  befinden sich noch in abgebrannten Brennelementen: 1990 wurde dieser Anteil auf etwa 5 660 kg (37 TBq) geschätzt (Finkel und Suter, 1993), neuere Schätzungen existieren nicht. Bisher liegen nur begrenzte Informationen über die Geschichte der Emissionen aus westlichen militärischen Wiederaufarbeitungsanlagen vor. Für Hanford werden die  $^{129}\text{I}$ -Emissionen mit insgesamt 290 kg angegeben (Moran et al., 1999). Für die Wiederaufarbeitungsanlagen der ehemaligen UdSSR oder anderer östlicher Staaten liegen keine Daten vor. Abb. 5-11 veranschaulicht die Verhältnisse der natürlichen und anthropogenen  $^{129}\text{I}$ -Inventare.

Tabelle 5-3: Entwicklung der gasförmigen und flüssigen Emissionen der westeuropäischen Wiederaufbereitungsanlagen

	gasförmige <sup>129</sup> I-Emissionen				flüssige <sup>129</sup> I-Emissionen						<sup>129</sup> I-Emissionen
	gesamt gasförmig		Sellafield	La Hague	gesamt flüssig		Sellafield	La Hague		gesamt	
Jahr	kg a <sup>-1</sup>	GBq a <sup>-1</sup>	GBq a <sup>-1</sup>	GBq a <sup>-1</sup>	kg a <sup>-1</sup>	TBq a <sup>-1</sup>	TBq a <sup>-1</sup>	kg a <sup>-1</sup>	TBq a <sup>-1</sup>	kg a <sup>-1</sup>	kg a <sup>-1</sup>
1952-1965	3,38	22,01									47,13
1966	3,38	22,09			3,29	0,02	0,02	3,20	0,001	0,09	6,67
1967	3,40	22,24			6,97	0,05	0,04	6,70	0,002	0,27	10,37
1968	3,48	22,78			11,11	0,07	0,07	10,20	0,006	0,91	14,59
1969	3,49	22,79			27,82	0,18	0,18	26,90	0,006	0,92	31,30
1970	3,44	22,52			17,20	0,11	0,11	16,60	0,004	0,60	20,65
1971	3,58	23,42			19,52	0,13	0,12	17,90	0,011	1,62	23,10
1972	3,67	24,02			25,64	0,17	0,15	23,30	0,015	2,34	29,31
1973	3,66	23,92			11,00	0,07	0,06	8,80	0,014	2,20	14,66
1974	4,21	27,52			29,23	0,19	0,15	22,80	0,042	6,42	33,43
1975	4,15	27,12			18,05	0,12	0,08	12,10	0,039	5,95	22,20
1976	4,15	27,12			27,68	0,18	0,16	24,04	0,024	3,64	31,83
1977	3,09	20,21			23,69	0,15	0,11	16,84	0,045	6,85	26,79
1978	2,72	17,81			21,60	0,14	0,07	11,34	0,067	10,26	24,32
1979	3,73	24,42			29,48	0,19	0,12	18,38	0,073	11,10	33,21
1980	9,49	62,04			35,05	0,23	0,14	21,44	0,089	13,61	44,53
1981	5,63	36,82			44,70	0,29	0,19	29,10	0,102	15,60	50,33
1982	7,34	48,03			33,67	0,22	0,10	15,32	0,12	18,35	41,01
1983	7,34	48,03			55,56	0,36	0,20	30,64	0,16	24,92	62,90
1984	8,72	57,04			43,16	0,28	0,10	15,33	0,18	27,83	51,88
1985	6,43	42,03			61,21	0,40	0,10	15,34	0,30	45,87	67,64
1986	6,27	41,03			54,02	0,35	0,12	18,39	0,23	35,63	60,29
1987	5,05	33,02			64,42	0,42	0,10	15,34	0,32	49,08	69,47
1988	6,89	45,03			50,50	0,33	0,13	19,61	0,20	30,89	57,39
1989	7,80	51,03			65,81	0,43	0,17	25,75	0,26	40,06	73,61
1990	4,59	30,02			67,33	0,44	0,11	17,33	0,33	50,00	71,92
1991	5,36	35,02			94,88	0,62	0,17	25,31	0,46	69,57	100,24
1992	4,59	30,02			84,16	0,55	0,07	10,92	0,48	73,24	88,75
1993					123,95	0,81	0,16	25,18	0,65	98,78	123,95
1994	7,04	46,03	25	21,03	192,79	1,26	0,16	24,46	1,12	171,25	199,83
1995	7,96	52,03	20	32,03	267,76	1,75	0,25	38,23	1,53	233,94	275,72
1996	9,64	63,04	25	38,04	322,84	2,11	0,41	62,69	1,69	258,41	332,48
1997	6,31	41,27	25	16,27	328,20	2,15	0,52	79,51	1,63	248,69	334,51
1998	6,42	41,97	27	14,97	356,96	2,33	0,55	84,10	1,78	272,86	363,37
1999	4,97	32,51	25,3	7,21	353,46	2,31	0,49	74,16	1,83	279,30	358,43
2000	4,86	31,80	25	6,80			0,47	71,87			4,86
2001	3,62	23,66	20	3,66			0,63	96,33			3,62
2002				6,47							
Summe	kg	TBq			kg	TBq					kg
	234	1,53			2972	19,4					3206

Quellen:

Sellafield gasförmige und flüssige Emissionen 1952 bis 1992 (Gray et al., 1995)

Sellafield gasförmige und flüssige Emissionen seit 1994 bis 2000 (BNFL, 1999 bis 2001)

La Hague gasförmige und flüssige Emissionen bis 1996 (Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999)

La Hague gasförmige und flüssige Emissionen 1997 bis 1998 (Schnabel, 2000)

La Hague gasförmige Emissionen 1999 bis 2002 (Cogema, 2003)

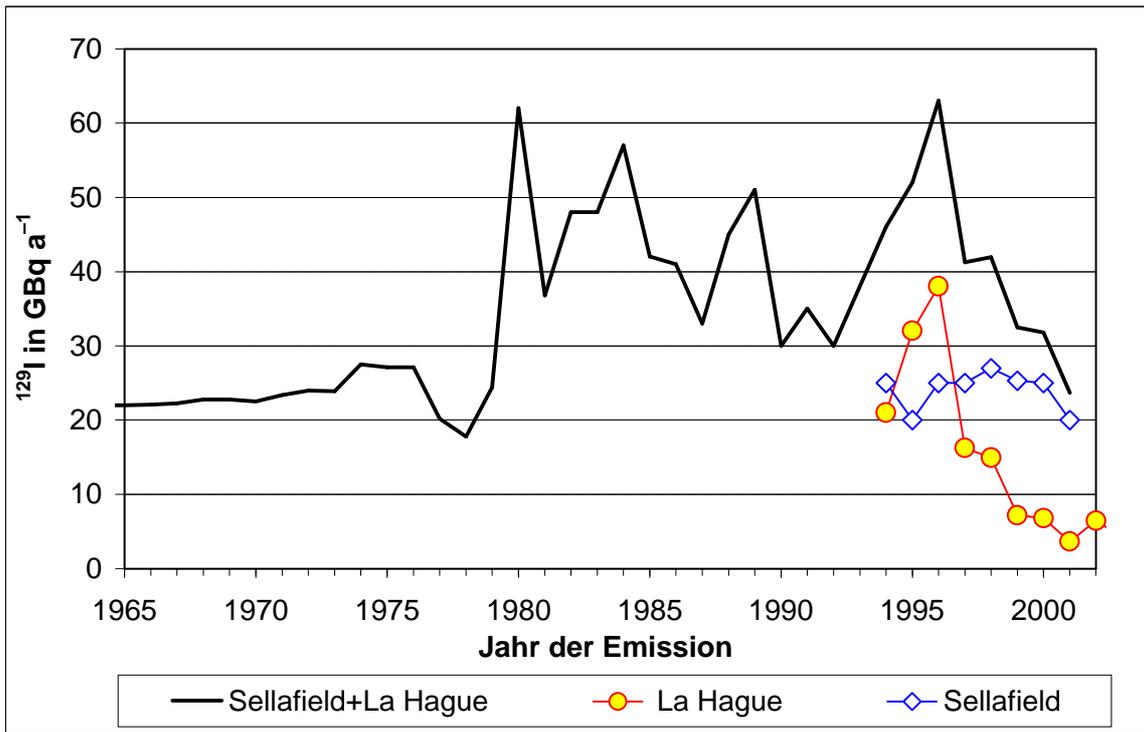


Abb. 5-9: Entwicklung der gasförmigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen der westeuropäischen Wiederaufbereitungsanlagen: bis 1994 rekonstruiert (Raisbeck et al., 1995); ab 1994 gemessen (Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999; Cogema, 2003) nach Ernst (2003).

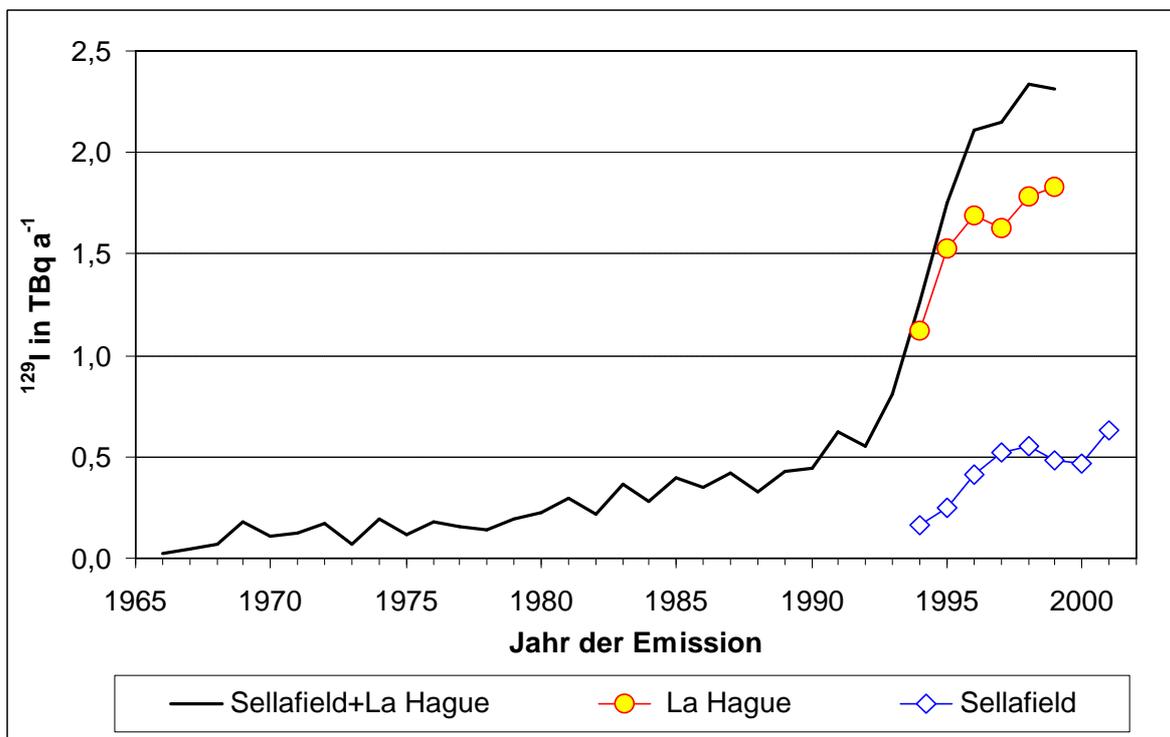


Abb. 5-10: Entwicklung der flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen der westeuropäischen Wiederaufbereitungsanlagen: bis 1994 rekonstruiert (Raisbeck et al., 1995); ab 1994 gemessen (Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999; Cogema, 2003) nach Ernst (2003).

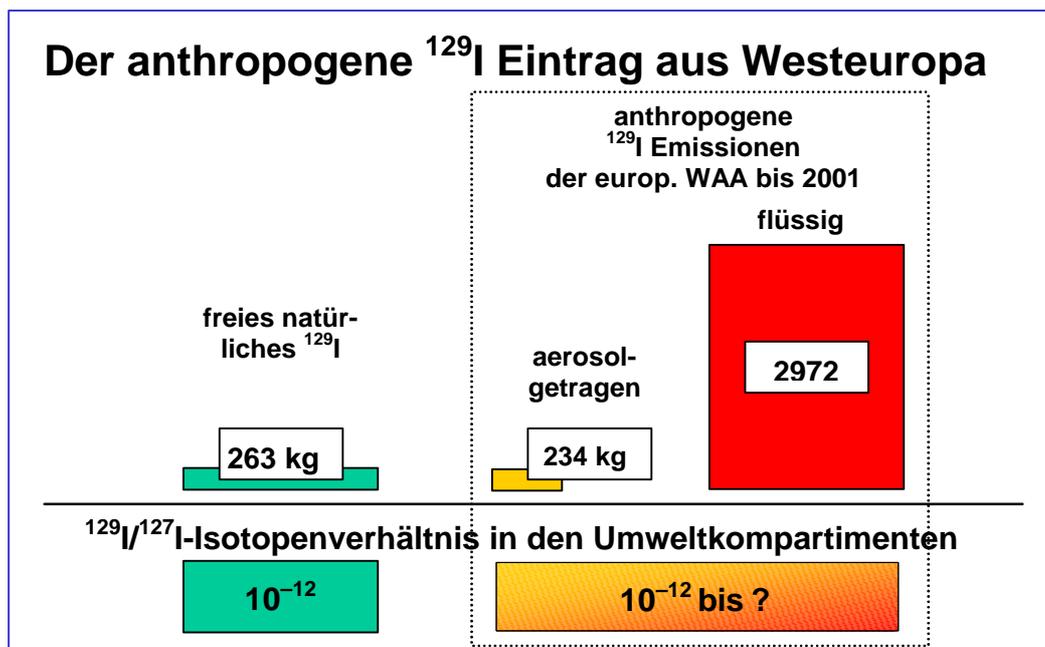


Abb. 5-11: Flüssige und gasförmigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen aus La Hague und Sellafield bis 2001 im Vergleich zum freien natürlichen  $^{129}\text{I}$  nach Ernst (2003).

## 5.4 Iod-129 und Iod-127 in Umweltproben aus den Jahren 1999 bis 2004

Natürliches und anthropogenes Iod folgen dem Iodkreislauf. Das Iod der Pedosphäre und der terrestrischen Biosphäre stammt überwiegend aus dem Meer. Von dort gelangt es über die Atmosphäre durch trockene und nasse Deposition in die Pedosphäre und in die terrestrische Biosphäre. Diesem Pfad soll hier in der Darstellung der Ergebnisse dieser Untersuchung gefolgt werden.

### 5.4.1 Nordsee

Die flüssigen Emissionen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen gelangen in die irische See und den Ärmelkanal und von dort in die Nordsee und den Nordostatlantik. Yiou et al. (1994) und Raisbeck et al. (1995) haben dort zwischen 1984 und 1992 Seewasser und Seetang untersucht. Sie fanden maximale  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $7\,600 \cdot 10^{-10}$  und  $37\,000 \cdot 10^{-10}$  vor der Küste des Nord-Cotentin und zwischen  $5\,100 \cdot 10^{-10}$  und  $8\,900 \cdot 10^{-10}$  vor Sellafield in der irischen See. Für die Nordsee gaben sie ein Isotopenverhältnis von  $460 \cdot 10^{-10}$  an. Das mit  $^{129}\text{I}$  kontaminierte Meerwasser wird entlang der norwegischen Küste ins Nordmeer transportiert, wo Raisbeck und Yiou Isotopenverhältnisse von  $110 \cdot 10^{-10}$  gemessen haben. Bei den Färöer-Inseln fanden sie Isotopenverhältnisse von  $32 \cdot 10^{-10}$  bis  $37 \cdot 10^{-10}$ . Bei Island, dessen Umgebung von den Emissionen weitgehend unberührt bleibt, lagen die Isotopenverhältnisse zwischen  $2,4 \cdot 10^{-10}$  und  $2,9 \cdot 10^{-10}$ . Dies ist mit anderen Beobachtungen in Übereinstimmung, die an der kalifornischen Küste fernab des Columbia Rivers Isotopenverhältnisse zwischen  $0,86 \cdot 10^{-10}$  und  $1,5 \cdot 10^{-10}$  (Kilius et al., 1994) und im Golf von Mexiko an rezenten Sedimenten Werte von ca.  $0,7 \cdot 10^{-10}$  (Schink et al., 1995b) liefern.

Im Berichtszeitraum wurden neun Meerwasserproben von der deutschen und dänischen Nordseeküste sowie eine Probe aus dem Golf von Biskaya untersucht (Tab. III.2 im Anhang). Im Nordseewasser wurden Isotopenverhältnisse zwischen  $9\,200 \cdot 10^{-10}$  und  $27\,100 \cdot 10^{-10}$  gefunden (Abb. 5-

12). Die Wasserprobe aus der Biskaya zeigte ein deutlich niedrigeres Isotopenverhältnis von  $7,8 \cdot 10^{-10}$ . Ob der Golf von Biskaya als fernab von Emittenten bezeichnet werden kann oder ob er durch Einleitungen in die Gironde beeinflusst ist, ist unbekannt. Tab. 5-4 vergleicht die Daten aus der Biskaya mit den Mittelwerten der von uns in der Nordsee gefundenen  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen.

Alle Isotopenverhältnisse, die in dieser Arbeit für die Nordsee gemessen wurden, lagen um mehr als den Faktor 20 höher als das von Yiou et al. (1994) und Raisbeck et al. (1995) für die Nordsee Anfang der 1990er Jahre angegebene Isotopenverhältnis von  $460 \cdot 10^{-10}$ . Dass dieser Unterschied tatsächlich auf eine Zunahme der Isotopenverhältnisse während des letzten Jahrzehnts zurückzuführen ist, belegen Zeitreihen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die von verschiedenen Autoren an Seetang und Algen an der dänischen und vor allem an der norwegischen Küste gemessen wurden (Hou et al., 1999, 2000, 2002). In Tabelle 5-5 und Abb. 5-13 sind diese Zeitreihen mit der Entwicklung der flüssigen Emissionen verglichen. Zwischen 1980 und 2000 haben diese biosphärischen Isotopenverhältnisse um mehr als eine Zehnerpotenz als Folge der erhöhten Emissionen zugenommen.

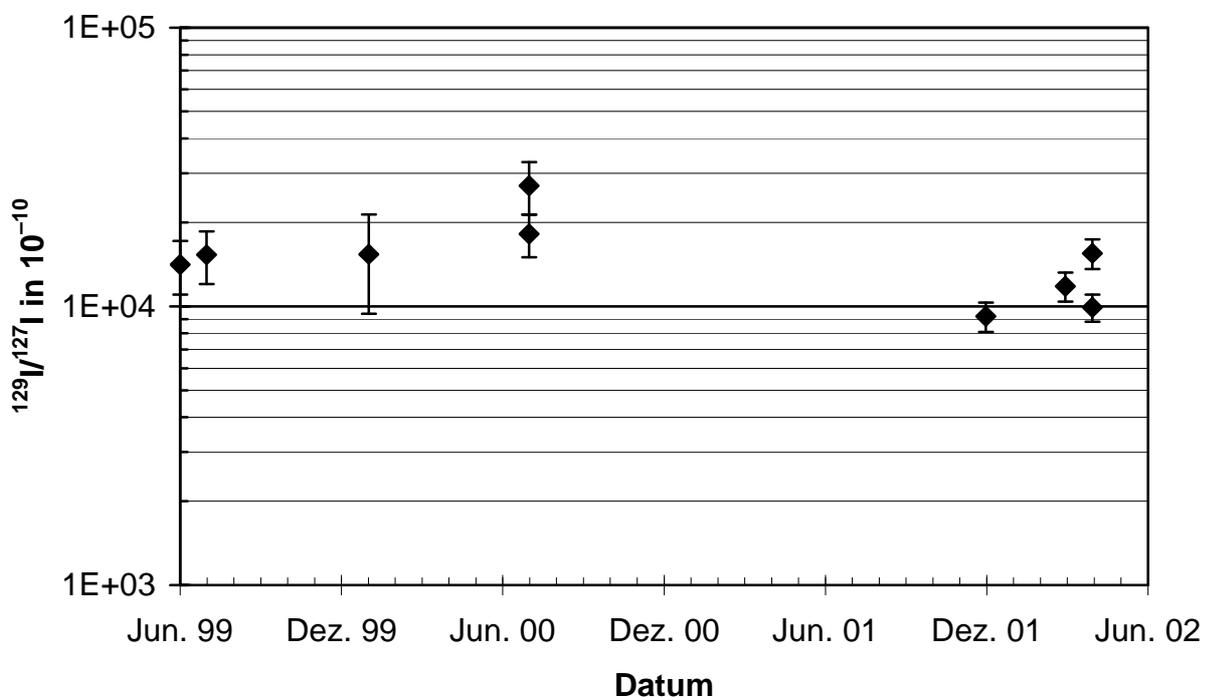


Abb. 5-12:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Proben von küstennahem Nordseewasser.

Alfimov et al. (2002) analysierten  $^{129}\text{I}$  in oberflächennahem Seewasser entlang eines Transekts aus dem Nordatlantik über den Skagerrak in die Ostsee. Die Probennahme erfolgte 1999. Sie beobachteten im Nordatlantik, unbeeinflusst von den Emissionen aus Sellafield und La Hague,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von etwa  $10^{-10}$ . In der nordwestlichen Nordsee stiegen die Isotopenverhältnisse durch den Einfluss von Sellafield auf ca.  $10^{-8}$ . Maximale Isotopenverhältnisse von ca.  $2 \cdot 10^{-7}$  wurden im Skagerrak beobachtet. Diese Isotopenverhältnisse sind niedriger als die in diesem Projekt an der deutschen Nordseeküste gemessenen. Dies lässt sich aber durch die Beeinflussung durch den oberflächennahen Ausstrom von Meerwasser aus der Ostsee erklären. In größerer Tiefe fanden Alfimov et al. (2002) deutlich höhere  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen als im oberflächennahen Seewasser.

Tabelle 5-4:  $^{127}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Meerwasser der Nordsee und der Biskaya.

Ort	Datum	$^{127}\text{I}$ ng g <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}$ fg g <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}$ mBq kg <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 10 <sup>-10</sup>
Geom. Mittelwerte und Standardabweichungen aller Nordsee-proben	Jul. 99 – Apr. 02	44,6 · 1,6 <sup>±1</sup>	65,5 · 1,7 <sup>±1</sup>	0,43 · 1,7 <sup>±1</sup>	14 500 · 1,4 <sup>±1</sup>
La Gulp Golf von Biskaya F	Jul. 01	134 ± 28	0,11 ± 0,01	7,2 · 10 <sup>-4</sup> ± 6,5 · 10 <sup>-5</sup>	7,8 ± 1,7

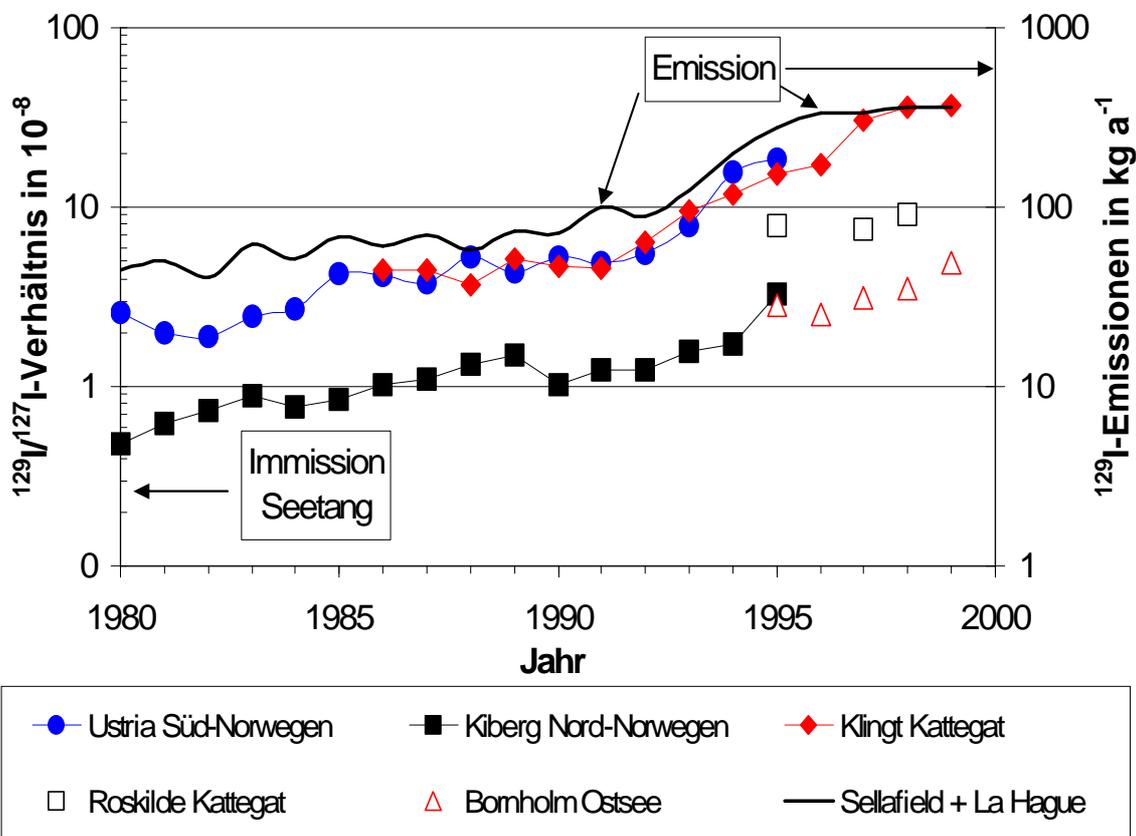


Abb. 5-13:  $^{129}\text{I}$ -Immissionen in Algen im Vergleich zu den flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen in Westeuropa (Hou et al., 1999, 2000, 2002).

Lopez-Gutiérrez et al. (2004) untersuchten ein Sedimentprofil aus dem Kattegat. In der obersten Schicht (0 cm bis 2 cm) fanden sie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von ca.  $3 \cdot 10^{-8}$ . In tieferen Schichten bis zu 15 cm Tiefe sanken die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse kontinuierlich von  $1,5 \cdot 10^{-8}$  bis auf Werte  $< 1 \cdot 10^{-9}$ . Diese Autoren führten Modellrechnungen für den  $^{129}\text{I}$  Transport von den Emittenten in England und Frankreich bis in den Kattegat unter Berücksichtigung des Fallouts der oberirdischen Kernwaffenexplosionen durch und schlossen aus den gemessenen Konzentrationen und Isotopenverhältnissen auf die Konzentrationen im Meerwasser. Danach kann im Kattegat ein Anstieg der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen 1952 und 1984 von ca.  $10^{-12}$  auf  $2 \cdot 10^{-9}$  durch den

Kernwaffenfallout erklärt werden. Durch die Wiederaufarbeitungsanlagen rechnen diese Autoren aber mit  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen  $> 10^{-7}$  für 1984 als Folge der Emissionen aus den europäischen Wiederaufbereitungsanlagen. Schätzungen für die Zeit nach 1984 waren aufgrund dieser Untersuchung nicht möglich.

Angesichts dieser Entwicklung, unter Berücksichtigung der Frage der Nachhaltigkeit menschlichen Handelns (Michel et al., 2003c, 2004) und auch im Hinblick auf die Diskussionen um die OSPAR Vereinbarungen (*Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic*; OSPAR, 1992) erscheint es daher dringend erforderlich, systematische Untersuchungen der Nordsee und des Nordostatlantiks durchzuführen. Dies ist auch wissenschaftlich von Bedeutung, da der Transport von Iod im Meer und der Transfer vom Meer in die Atmosphäre nach wie vor nicht vollständig verstanden sind.

Tabelle 5-5:  $^{129}\text{I}$ -Immissionen in Algen im Vergleich zu den flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen in Westeuropa (Hou et al., 1999, 2000, 2002).

Jahr	Immissionen als $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse in $10^{-8}$				Emissionen
	Klingt	Utsira	Bornholm	Roskilde	kg
1980		2,6			44,5
1981		2,0			50,3
1982		1,9			41,0
1983		2,5			62,9
1984		2,7			51,9
1985		4,2			67,6
1986	4,4	4,1			60,3
1987	4,4	3,8			69,5
1988	3,7	5,3			57,4
1989	5,1	4,3			73,6
1990	4,6	5,3			71,9
1991	4,6	4,9			100,2
1992	6,4	5,5			88,8
1993	9,5	7,9			124,0
1994	11,9	15,6			199,8
1995	15,2	18,5	2,9	7,9	275,7
1996	17,3		2,5		332,5
1997	30,6		3,2	7,6	334,5
1998	35,6		3,5	9,1	363,4
1999	37,1		4,9		358,4

Bei den bisher in Deutschland und der Schweiz im Niederschlag seit 1990 beobachteten Isotopenverhältnissen von ca.  $10^6$  wurde seinerzeit diskutiert, ob diese hohen Isotopenverhältnisse durch atmosphärischen Transport der luftgetragenen Emissionen zu erklären seien (Schnabel et al. 2000, 2001a, 2001b; Michel et al., 2002a, 2002b, 2002c, 2003a; Szidat et al., 2000a, 2000b), da die damals bekannten Messungen von Meerwasser, Algen und Seetang nicht die Isotopenverhältnisse von  $10^6$  erklären konnten. Angesichts der jetzt vorliegenden Ergebnisse und angesichts der Tatsache, dass

sich die Isotopenverhältnisse im Niederschlag nicht mit der Absenkung der luftgetragenen Emissionen verringert haben, kann davon ausgegangen werden, dass der dominierende Pfad des anthropogenen  $^{129}\text{I}$  über den Nordatlantik und die Nordsee führt (vgl. Kapitel 5.4.2). In diesem Zusammenhang bieten die Messungen der Iod-Isotope in der Luft nähere Hinweise.

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass ein Transport von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Meer in die Atmosphäre erfolgt aber nicht wie er sich im Einzelnen gestaltet. Ernst (2003) hat diese Frage dennoch unter Berücksichtigung der Bildung und Verteilung von Methyljodid im Meer ausführlich diskutiert. Zur Bestätigung seiner Vorstellungen sind jedoch auch noch weitere systematische Untersuchungen notwendig.

## 5.4.2 Luft

Es ist bis heute nicht klar, in welchem Maße die gegenwärtige Fallsituation des  $^{129}\text{I}$  in Norddeutschland (oder allgemein in Europa fernab von Wiederaufarbeitungsanlagen) durch die luftgetragenen und die flüssigen Ableitungen aus Sellafield und La Hague beeinflusst sind. In jedem Fall ist das Meer die wesentliche Quelle für  $^{127}\text{I}$ . Angesichts der zeitlichen Veränderungen der luftgetragenen und der flüssigen Ableitungen (vor allem aus La Hague) lassen sich aus den Untersuchungen des ZSR für die letzten sieben Jahre keine Schlüsse auf die Bedeutung der unterschiedlichen Emissionspfade des  $^{129}\text{I}$  aus den Wiederaufarbeitungsanlagen für die Immissionen in Europa für den Zeitraum vor 1995 ziehen. Ebenfalls lassen sich keine Aussagen über die großräumige Verteilung der Immissionen machen; vgl. hierzu die Diskussion durch Schnabel et al. (2001a). In Norddeutschland ist jedoch mit hoher Wahrscheinlichkeit das Meer als Hauptquelle für die  $^{129}\text{I}$  Immissionen während der letzten sieben Jahre anzunehmen.

Der Weg der Iod-Isotope führt vom Meer zum Land über die Atmosphäre. Wie bereits in Kapitel 5.1 angesprochen, sind es vor allem kurzlebige organische Iod-Verbindungen (Iod-VOC), die zum globalen Austausch von Iod zwischen Meer und Atmosphäre beitragen (Ernst, 2003). Dies ergibt sich aus der Annahme, dass Gase am besten über längere Distanzen transportiert werden können. Dabei sind aber der Verbleib und die Lebensdauer der gasförmigen Folgeprodukte in der Atmosphäre, die ebenfalls zur Verbreitung von Iod beitragen, nicht berücksichtigt.

Die Lebensdauer von Methyljodid beträgt in der Atmosphäre nur wenige Tage und wird durch die hohe Reaktivität gegenüber Nukleophilen und Radikalen begrenzt. Zu den Folgeprodukten zählen iodhaltige Partikel, die sich über den Stoffaustausch zwischen Gasphase und der Partikelphase in der Atmosphäre bilden. Die globale Verteilung ist somit nicht unmittelbar an die Gasphase gebunden, sondern unterliegt auch der Bildung und Mobilität von Aerosolen; vgl. O'Dowd et al. (2002).

Aerosole wechselwirken untereinander mit Luftfeuchtigkeit, Wolken und Niederschlagsbildnern (Hydrometeoren). Die Atmosphäre muss als Multikomponenten- und Multiphasensystem aufgefasst werden. Dies führt zu einer Dispersion von atmosphärischen Inhaltsstoffen über eine Reihe von chemischen und physikalischen Prozessen (Guderian, 2000). Um zwischen lokalem und globalem Austausch unterscheiden zu können, ist es wichtig, sich mit der Wechselwirkung zwischen Aerosolen und Gasen zu beschäftigen. In Abb. 5-14 sind die Stoffkreisläufe in der Atmosphäre zwischen Eintrag, Akkumulation und Deposition dargestellt. Zentrale Elemente der Akkumulation sind die Aerosole und gasförmigen Stoffe, die über die Koagulation miteinander verknüpft sind.

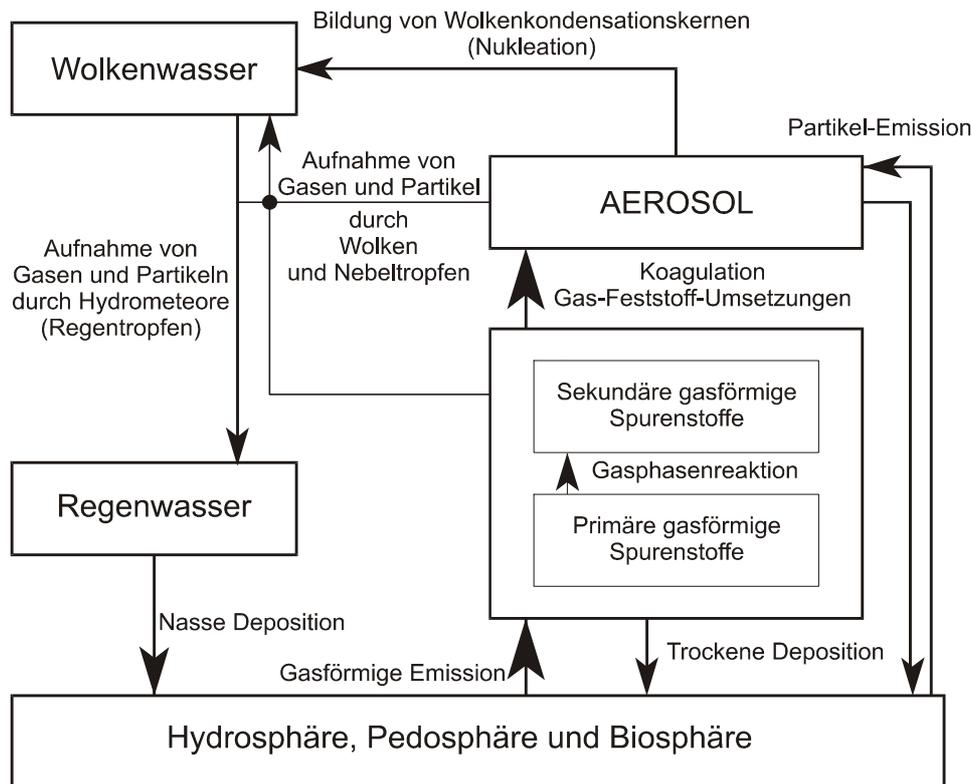


Abb. 5-14: Stoffkreisläufe in der Atmosphäre zwischen Eintrag, Akkumulation und Deposition (Guderian, 2000).

Für die Deposition sind neben der direkten Deposition von Aerosolen vor allem Hydrometeore verantwortlich. Die Lebensdauer von bestimmten atmosphärischen Aerosolen übertrifft die Lebensdauer von Iod-VOC. Die Mobilität zwischen Gasen und langlebigen Aerosolen unterscheidet sich nicht, sodass die Verbreitungsgeschwindigkeit identisch ist, aber die Verbreitungsentfernung von Gas zum Aerosol zunehmen kann. Der Grund liegt in der Größe der Partikel und der Möglichkeit der Aerosole über mehrere Lebenszyklen Anhaftungen weiträumig zu verbreiten. In Tab. 5.6 sind die unterschiedlichen Größenklassifizierungen von Aerosolen angegeben.

Tabelle 5-6: Grobklassifizierungen atmosphärischer Aerosole

Radiusbereich in $\mu\text{m}$	Deutsche Bezeichnung	englische Bezeichnung
< 0,01	ultrafeine Partikel	ultra fine mode
0,01 bis 0,1	Aitkenpartikel	nucleation mode
0,1 bis 1	große Partikel	accumulation mode
> 1	Riesenpartikel	coarse mode

Gerade die ultrafeinen Partikel und Aitkenpartikel besitzen ein nahezu gleiches Diffusionsverhalten wie Gasmoleküle. Aufgrund ihrer hohen Eigenbewegung koagulieren sie entsprechend schnell, sodass ihre Größe zunimmt und ihre Lebensdauer auf einige Minuten begrenzt ist. Während der Koagulation können ultrafeine und Aitkenpartikel Iod-VOC-Zerfallsprodukte aufnehmen und damit entscheidend zur Übertragung auf große Partikel beitragen. Der Grund ist die relativ größere Ober-

fläche, die Sorptionen wahrscheinlicher werden lassen. Entscheidend für die Koagulation ist zum einen die Weglänge, die ein Partikel zurücklegen kann, ohne auf ein anderes Aerosol zu stoßen (mittlere freie Weglänge) und zum anderen die beim Stoß auftretenden Kräfte. Die mittlere freie Weglänge ist höhenabhängig und liegt zwischen 0,1  $\mu\text{m}$  in Bodennähe und 0,7  $\mu\text{m}$  in 15 km Höhe (Guderian, 2000). Die Stoßkräfte hängen von der Variabilität der mittleren freien Weglängen und der Größe der Partikel ab.

Die Folge der wirksamen Stoßkräfte ist, dass kleine Partikel schnell in große übergehen und große Partikel (0,1  $\mu\text{m}$  bis 1  $\mu\text{m}$ ) besonders häufig sind. Riesenpartikel größer als 10  $\mu\text{m}$  sind wiederum äußerst selten, da sie ausreichend groß sind, um zu sedimentieren. Die Sedimentationswahrscheinlichkeit ist so groß, dass Aerosole größer als 10  $\mu\text{m}$  räumlich nahen Quellen zugerechnet werden müssen.

Will man das Gleichgewicht zwischen der Hydrosphäre und Atmosphäre in Bezug auf Isotopenverhältnisse untersuchen ist es notwendig Partikel zu berücksichtigen, die aufgrund ihrer hohen Lebenserwartung und hohen Beweglichkeit zu einem maximalen Transport und Austausch beitragen können. Größenverteilung und Lebensdauer von Aerosolen sind jedoch von dessen Entstehungsgeschichte und den klimatischen Bedingungen abhängig. Hieraus ergibt sich eine Reihe von Aerosoltypen mit charakteristischen Aerosol-Größenverteilungen (Guderian, 2000). Man unterscheidet:

- Reinluft: Troposphäre im Sommer ab 3 km ü. NN, im Winter ab 0,3 km ü. NN.
- Kontinentale Reinluft: fernab von anthropogenen Aktivitäten in unberührten Gebieten
- Ländliche Luft: Aerosol abseits von Städten
- Städtisches Aerosol: Aerosol mit hoher Variabilität der Größenverteilung und Konzentration
- Maritime Luft: Aerosol über dem Ozean bei 5  $\text{m s}^{-1}$  bis 8  $\text{m s}^{-1}$  Windgeschwindigkeit

Ein Vergleich der Lebensdauer innerhalb und zwischen den einzelnen Aerosoltypen ist schwierig, da die Aerosole unterschiedliche physikalische und chemische Eigenschaften besitzen. Insbesondere die Anlagerung von Feuchtigkeit – und damit die Änderung der Größenverteilung – ist je nach chemischer Zusammensetzung sehr unterschiedlich. Dennoch lässt sich eine mittlere Lebensdauer für Aerosole in der Troposphäre (0 bis 15 km ü NN) angeben.

Bei allen Überlegungen, die den Transport von Aerosolen betreffen, muss berücksichtigt werden, dass die Größenverteilung ein dynamisches Gleichgewicht zwischen Bildung (Koagulation, Kondensation) und Verlust (Sedimentation) der Aerosole darstellt. Die Lebensdauer eines Aerosols ist somit eine statistische Größe. Sie sagt nichts darüber aus, inwieweit partikelgebundenes Iod über mehrere Aerosol-Lebenszyklen global verteilt werden kann. Dennoch ist der Anteil der großen Partikel entscheidend für den globalen Transport, während Riesenpartikel den lokalen Austausch zwischen den Sphären dominieren.

Das wichtigste Aerosol zur Klärung des Anteiles der flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen auf die globale  $^{129}\text{I}$ -Verteilung ist das maritime Aerosol. Aufgrund der unterschiedlichen chemischen Zusammensetzung und der Größenverteilung ist es möglich, die Quelle der Aerosole innerhalb eines Aerosoltyps zu bestimmen. Für das maritime Aerosol kommen vier Quellen in Betracht. Der Hauptanteil besteht aus Resuspension von Seesalzteilchen (Seaspray), gefolgt von sekundären Aerosolen, die über physikalisch-chemische Prozesse in der Gasphase gebildet werden. Die Verwitterung der Erdkruste sowie Emissionen von anthropogen erzeugten Partikeln aus industriellen Prozessen und der Verbrennung fossiler Brennstoffe tragen ebenfalls nennenswert zur gesamten Aerosolmenge bei. Die geschätzten jährlichen global emittierten Aerosol-Mengen zeigen eine hohe Variabilität der Zusammensetzung innerhalb bestimmter Größenklassifizierungen.

Durch unterschiedliche Entfernungen zu den einzelnen global wirksamen Quellen steigt die Variabilität der Aerosolzusammensetzung nochmals an. Eine Aerosolsammlung ist somit nur innerhalb definierter Größenverteilungen sinnvoll. Um den globalen  $^{129}\text{I}$ -Austausch zu ermitteln, ist die Erfassung der großen Partikel (0,1  $\mu\text{m}$  bis 1  $\mu\text{m}$ ) notwendig. Der Anteil dieser Partikel, die den Nukleations- und Akkumulationsmode darstellen, beträgt jedoch nur ca. 2 % des gesamten Seasprays, das die Hauptquelle maritimer Aerosole darstellt.

Tabelle 5-7: Mittlere Lebensdauern von Aerosolen (Guderian, 2000).

	Ultrafeine Partikel	Aitkenpartikel	Große Partikel	Riesenpartikel
Größe	< 0,01 $\mu\text{m}$	0,01–0,1 $\mu\text{m}$	0,1–1 $\mu\text{m}$	> 1 $\mu\text{m}$
untere Troposphäre	bis 24 Stunden	6 Tage	8 Tage	1–7 Tage
obere Troposphäre	bis 24 Stunden	12 Tage	24 Tage	2–10 Tage
Stratosphäre	bis 24 Stunden	24 Tage	300 Tage	< 100 Tage

Guderian (2000) gibt die in Tab. 5-7 aufgeführten Lebensdauern für die unterschiedlichen Aerosolpartikel in den verschiedenen Schichten der Atmosphäre an. Danach tragen etwa 99 % der globalen Aerosolmenge nicht zu einer effektiven globalen Verteilung bei. Abweichungen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen global wirksamen und lokal wirksamen Aerosolen können den  $^{129}\text{I}$ -Austausch zwischen der Hydrosphäre und der Atmosphäre beschreiben, wenn das lokal wirksame Aerosol der Hydrosphäre zuzurechnen ist. Erst die getrennte Erfassung von Partikeln größer als 1  $\mu\text{m}$  und von Partikeln einschließlich Gasen kleiner als 1  $\mu\text{m}$ , ermöglicht eine Zuordnung der globalen und lokalen Stoffströme.

Für die lokalen Stoffströme in Küstennähe ist das lokale Aerosol, der Seaspray, von besonderer Bedeutung. Nach Kriews (1992) zeigt das lokale Aerosol des Seasprays folgende Größenverteilung: 24 % Riesenpartikel mit aerodynamischen Durchmessern > 10  $\mu\text{m}$ , 54 % mit Durchmessern zwischen 3  $\mu\text{m}$  und 10  $\mu\text{m}$  sowie 20 % mit Durchmessern zwischen 1  $\mu\text{m}$  und 3  $\mu\text{m}$ . Nur 2 % der Teilchen mit Durchmessern < 1  $\mu\text{m}$  stammen aus dem globalen Aerosol.

Im April 2002 wurde mit dem in Kapitel 4.1.3 beschriebenen Sammelsystem auf der Insel Föhr eine Probensammlung durchgeführt, die dann auf  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  untersucht wurde. Die Wetter-Parameter dieser Probensammlung sind in den Tabellen III.3 und III.4 im Anhang angegeben. Die Aerosolgrößenverteilung, die Blindwerte, die Iod-Sammelmengen sowie die Endergebnisse der Aerosolsammlung Föhr einschließlich Penetrationskorrektur aller Messwerte sind in den Tabellen III.5 bis III.8 im Anhang aufgelistet. Eine ausführliche Darstellung dieses Experimentes und der damit verbundenen Analytik ist bei Ernst (2003) gegeben. Hier sollen lediglich die Ergebnisse dargestellt und in Bezug auf ihre Bedeutung für den Transport von Iod vom Meer zum Land diskutiert werden.

Insgesamt wurde ein Luftvolumen von  $(348 \pm 35) \text{m}^{-3}$  beprobt. Partikel mit aerodynamischen Durchmessern größer 0,06  $\mu\text{m}$  wurden mittels Impaktor größen aufgelöst gesammelt. Für aerodynamische Durchmesser kleiner 0,06  $\mu\text{m}$  wurde anorganisches und organisches Iod durch selektive Filter erfasst (Abb. 5-15).

Die Verteilung der Partikel als Funktion des aerodynamischen Durchmessers (Abb. 5-15) ist bimodal und erlaubt die Unterscheidung zwischen globalem und lokalem, marinem Aerosol (Ernst, 2003). Analysen der Iod-Isotope konnten jedoch wegen der geringen Probenmassen nicht für die einzelnen Durchmesserklassen durchgeführt werden. Die Endergebnisse (nach Blindwert- und Penetrationskorrektur) der Messung der luftgetragenen Iod-Isotope auf der Insel Föhr im April 2002 sind in Tab. 5-8 aufgeführt.

Die Iod-Isotope lagen in der marinen Luft nahezu gleich speziiert vor. Das stabile Iod lag zu 15 % gebunden an Partikel  $> 0,1 \mu\text{m}$ , zu 45 % als anorganisches Iod und zu 40 % als organisches Iod vor.  $^{129}\text{I}$  war zu 18 % an Partikel gebunden und lag zu 43 % als anorganisches Iod und zu 40 % als organisches Iod vor. Diese Verteilung belegt einen massiven Beitrag des lokalen, marinen Aerosols für den Transport von  $^{129}\text{I}$  vom Meer zur Atmosphäre. Ernst (2003) diskutiert in diesem Zusammenhang die Rolle mariner Organismen für den Transport der Iod-Isotope vom Meer in die Atmosphäre anhand der auftretenden Konzentrationsverteilung von Methyljodid in den Meeren.

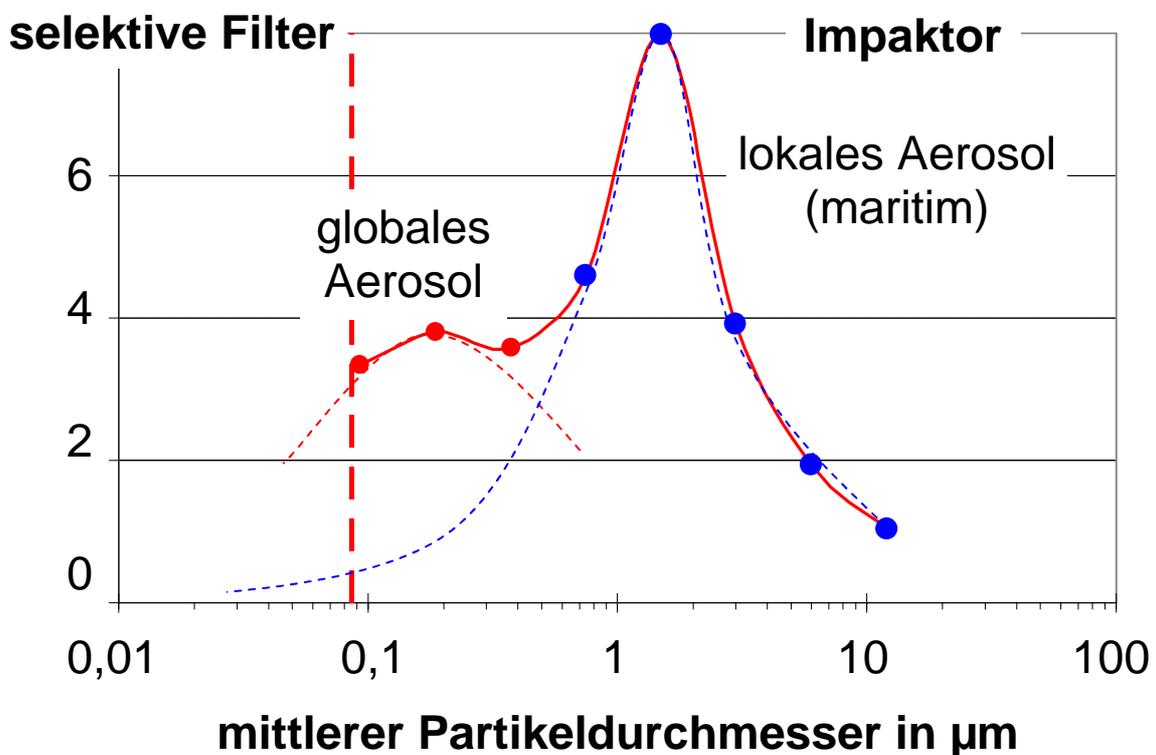


Abb. 5-15: Sammelgut in  $\mu\text{g}$  der Messung auf der Nordseeinsel Föhr im April 2002 als Funktion des aerodynamischen Partikeldurchmessers. Die gestrichelten Kurven wurden von Ernst (2003) durch Vergleich mit der Aerosolgrößenverteilung und Quellenzuordnung über dem Atlantik gesammelter Aerosole (Gravenhorst, 1975; Guderian, 2000) ermittelt.

Tabelle 5-8:  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  Ergebnisse der Aerosolsammlung auf Föhr nach Penetrationskorrekturen.

	$^{127}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis
	in $\text{ng m}^{-3}$	in %	$\text{fg m}^{-3}$	$\text{nBq m}^{-3}$	in %	$10^{-7}$
Gebunden an Partikel > 0,1 $\mu\text{m}$	$1,93 \pm 0,43$	15	$1,65 \pm 0,20$	$11,1 \pm 1,3$	18	$8,4 \pm 1,8$
Anorganisch < 0,1 $\mu\text{m}$	$5,79 \pm 0,85$	45	$0,72 \pm 0,09$	$4,6 \pm 0,7$	43	$1,2 \pm 0,2$
Organisches Iod	$5,14 \pm 0,78$	40	$1,64 \pm 0,18$	$10,5 \pm 1,3$	40	$3,1 \pm 0,4$
Summe	$12,8 \pm 1,2$	100	$4,01 \pm 0,28$	$26,1 \pm 2,0$	100	$3,1 \pm 0,4$

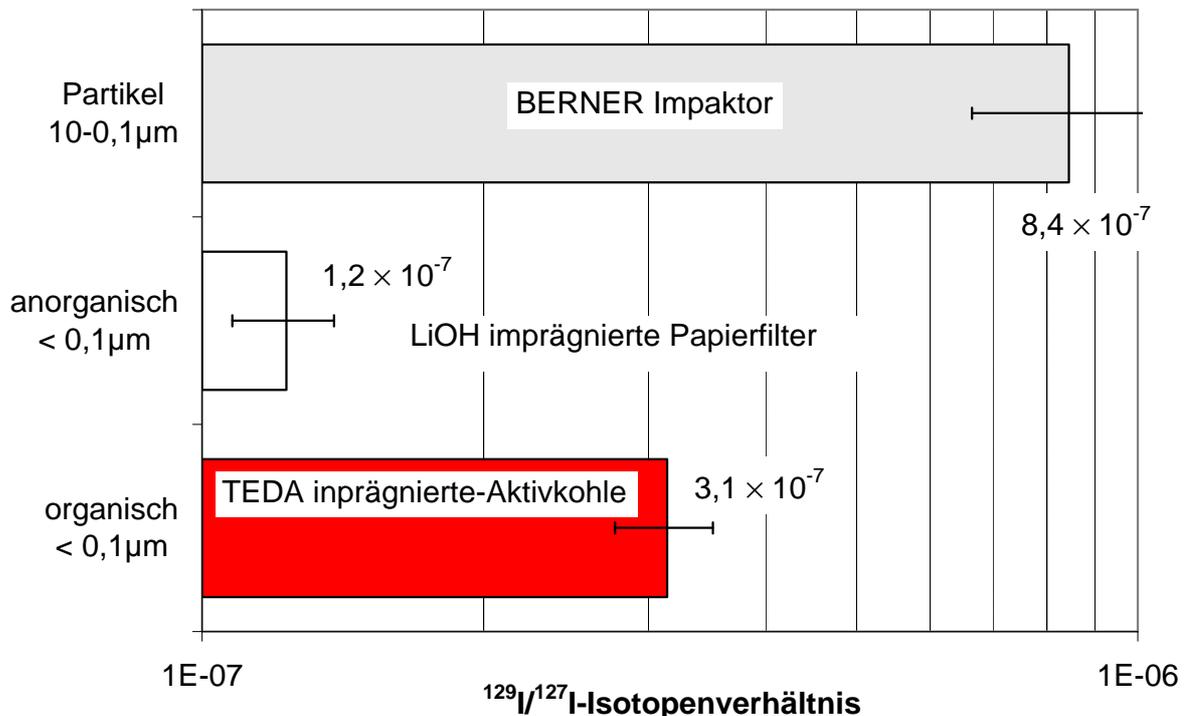


Abb. 5-16:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse nach Penetrationkorrektur aller Daten.

Die Isotopenverhältnisse der drei Fraktionen atmosphärischen Iods unterscheiden sich signifikant (Abb. 5-16). Die höchsten Isotopenverhältnisse von  $8,4 \cdot 10^{-7}$  werden im partikelgebundenen Iod des lokalen marinen Aerosols beobachtet. Die anorganische Fraktion zeigt mit  $1,2 \cdot 10^{-7}$  die niedrigsten Werte, die jedoch um ca. drei Zehnerpotenzen höher sind, als sie für das globale Aerosol mit überwiegenden Quellen im Ozean fernab von Emittenten erwartet würde. Das organische Iod liegt mit seinem Isotopenverhältnis von  $3,1 \cdot 10^{-7}$  zwischen denen des partikelgebundenen und des anorganischen Iods. Insgesamt sind die in der Atmosphäre an der Insel Föhr beobachteten Isotopenverhältnisse hinreichend, die im Niederschlag beobachteten Isotopenverhältnisse zu erklären.

### 5.4.3 Niederschlag

Zur systematischen Untersuchung des  $^{129}\text{I}$  Fallouts in Deutschland werden in Niedersachsen durch das ZSR seit 1997 Proben von Niederschlag an vier verschiedenen Stationen des Niedersächsischen Depositionsmessnetzes genommen. Zusätzlich werden Oberflächen- und Grundwasser an nahe liegenden Stationen des IMIS Messnetzes beprobt. Um eine räumliche Übersicht über die  $^{129}\text{I}$  Deposition zu erhalten, wurde Niedersachsen in 4 Regionen unterteilt: küstennahes Gebiet an der Nordsee (Region I), das norddeutsche Tiefland (Region II), das Harzvorland (Region III) und das Elbetal in der Umgebung von Gorleben (Region IV). Niederschlagsproben wurden als Quartals-Mischproben, Proben von Oberflächen- und Grundwasser in viertel- bzw. halbjährigem Abstand einzeln genommen. In den Regionen II und III wurde zusätzlich zum Freilandniederschlag auch durchfallender Niederschlag unter Bäumen (Traufregen) beprobt.

Im Rahmen dieses Projektes wurden insgesamt 41 Proben von Niederschlagswässern untersucht. Eine Zusammenstellung aller bisher gewonnenen Ergebnisse ist in den Tabellen III.9 – III.14 im Anhang gegeben. In Tab. 5-9 sind die Mittelwerte zusammengefasst.

Tab. 5-9: Geometrische Mittelwerte und Standardabweichungen der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Nordseewasser und in Niederschlagswässern aus Niedersachsen sowie Verhältnisse der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in den verschiedenen Matrices  $M$  zu denen im Nordseewasser.

Region	Ort und Matrix $M$	$^{127}\text{I}$ in $\text{ng g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ In $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	$^{127}\text{I}_M/^{127}\text{I}_{\text{Nordsee}}$	$^{129}\text{I}_M/^{129}\text{I}_{\text{Nordsee}}$
I	Nordseewasser 1999 - 2002	$45 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$66 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$15 \cdot 1,4^{\pm 1}$	1	1
I	Norderney Freilandregen 1997 – 2002	$3,2 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$2,5 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$7,5 \cdot 1,3^{\pm 1}$	0,072	0,038
II	Buer- Ostenwalde Freilandregen 1997 – 2001	$1,6 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$0,73 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$4,5 \cdot 1,6^{\pm 1}$	0,036	0,011
III	Seesen Freilandregen 1997 – 2000	$1,6 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$0,64 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$4,0 \cdot 1,7^{\pm 1}$	0,036	0,010
IV	Siemen Freilandregen 1997 – 2001	$1,7 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$0,58 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$3,3 \cdot 1,7^{\pm 1}$	0,039	0,009
II	Buer- Ostenwalde Traufregen 1997 – 2001	$6,3 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$2,8 \cdot 1,9^{\pm 1}$	$4,4 \cdot 1,4^{\pm 1}$	0,14	0,042
III	Seesen Traufregen 1997 – 2000	$5,1 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$2,2 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$4,3 \cdot 1,3^{\pm 1}$	0,11	0,033

Im Freilandregen der Regionen II – IV sind keine signifikanten Unterschiede der Mittelwerte der  $^{129}\text{I}$  und der  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen zu verzeichnen. Die Werte der Region I sind allerdings signifikant

gegenüber denen der anderen Regionen erhöht. Die höheren Werte in Küstennähe werden von uns auf den Einfluss von Seaspray zurückgeführt.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind ebenfalls in der Region I leicht erhöht, unterscheiden sich aber nicht signifikant von den in den anderen Regionen gemessenen. Die mittleren  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag können mit ca.  $5 \cdot 10^{-7}$  angegeben werden.

Sowohl die  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen als auch die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sind im durchfallenden Niederschlag der Regionen II und III um ca. den Faktor 4 höher als die im Freilandniederschlag bei etwa gleichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von ca.  $5 \cdot 10^{-7}$ . Die höheren Konzentrationen im durchfallenden Regen werden von uns mit der Filterwirkung der Bäume als trockene Deposition von Iod-Isotopen auf den Blättern der Bäume interpretiert.

Auch die Maximalwerte der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Regen aus Norderney sind mit den Messungen der Impaktormessung auf der Insel Föhr kompatibel (Tab. 5-10). Damit werden die  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen im Niederschlag von uns als Washout von lokalem marinem Aerosol interpretiert. Signifikante Beiträge luftgetragener Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen sind zur Erklärung der in Niederschlagswässern beobachteten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis nicht erforderlich.

In Tab. 5-9 sind neben den Konzentrationen der Iod-Isotope und den Isotopenverhältnissen die Verhältnisse  $^{127}\text{I}_M/^{127}\text{I}_{\text{Nordsee}}$  und  $^{129}\text{I}_M/^{129}\text{I}_{\text{Nordsee}}$  der Konzentrationen der Iod-Isotope im Material  $M$  dividiert durch die Konzentrationen im Nordseewasser angegeben. Dies erlaubt im Falle des  $^{127}\text{I}$  unter der Annahme konstanter  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in den Teilen der Meeresoberfläche, die für die Niederschläge in Norddeutschland relevant sind, Aussagen über den Anteil des Seasprays im küstennahen Niederschlag von Region I und über die Anteile nasser und trockener Deposition in den Regionen II und III.

Im küstenfernen Freilandregen sind die  $^{127}\text{I}_M/^{127}\text{I}_{\text{Nordsee}}$ -Verhältnisse sehr ähnlich (0,036 bis 0,039), sodass man von knapp 4 % Transferwahrscheinlichkeit für  $^{127}\text{I}$  vom Meer in den küstenfernen Freilandniederschlag ausgehen kann. Im Freilandniederschlag in Norderney (Region I) ist dieser Anteil etwa doppelt so hoch. Das heißt, dass das  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag auf Norderney etwa zu 50 % dem direkten Einfluss der Nordsee über Seaspray zuzurechnen ist.

Im durchfallenden Regen der Regionen II und III liegen die  $^{127}\text{I}_M/^{127}\text{I}_{\text{Nordsee}}$ -Verhältnisse bei etwa 0,13. Unter der Annahme, dass der durchfallende Regen eine Abschätzung der trockenen plus nassen Deposition erlaubt, bedeutet dies, dass nur etwa ein Viertel der gesamten  $^{127}\text{I}$  Deposition in den Regionen II und III durch nasse Deposition erfolgt, ca. 75 % durch trockene Deposition. Diese Aussage ist insofern unsicher, als der Einfluss von Evaporation und Transpiration von am Boden abgelagerten  $^{127}\text{I}$  nicht abgeschätzt werden kann. Da aber die Isotopenverhältnisse im Freilandregen und im durchfallenden Regen nicht unterscheidbar sind, die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden und im Oberflächenwasser signifikant niedriger als im Niederschlag sind, erscheint diese Abschätzung der Anteile trockener und nasser Deposition dennoch sinnvoll.

Diese Aussagen sind im Blick auf die Ergebnisse für  $^{129}\text{I}$  in Tab. 5-9 zu hinterfragen. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag in den Regionen II bis IV sind um etwa den Faktor vier niedriger als im Nordseewasser. Dies wird von uns so interpretiert, dass für die Freisetzung von Iod, das in den Niederschlägen in Niedersachsen enthalten ist, auch Meeresgebiete relevant sind, die niedrigere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse haben als das küstennahe Nordseewasser. Dies ist plausibel, da im Nordostatlantik  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bis herab zu  $10^{-10}$  gefunden werden. Wolkenwasser enthält mit Ausnahme von Wolkenkondensationskeimen nur sehr begrenzt Verunreinigungen mit Aerosolen und Gasen, die zu nennenswerten Iod-Gehalten führen können. Erst beim Auftreffen von

Hydrometeoren auf Partikel und Gase der Atmosphäre entstehen die von uns gemessenen Iod-Gehalte im Niederschlag.

Das höhere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Freilandregen auf Norderney ist mit dem Einfluss des Seasprays zu erklären. In den Regionen II und III ergeben sich durch den Vergleich der  $^{129}\text{I}_M/^{129}\text{I}_{\text{Nordsee}}$ -Verhältnisse etwa gleiche Anteile für die nasse und trockene Deposition von Iod wie aus den  $^{127}\text{I}_M/^{127}\text{I}_{\text{Nordsee}}$ -Verhältnissen.

Im Freilandniederschlag in Norderney (Region I) sind die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit denen der Impaktormessung kompatibel (Tab. 5-10). Dies gilt auch für die übrigen Regionen: die im Niederschlag beobachteten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden durch den Bereich der in Luft gemessenen Isotopenverhältnisse abgedeckt.

Tabelle 5-10: Vergleich der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Regen und Aerosol  $> 0,1 \mu\text{m}$

Impaktormessung Föhr	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in $10^{-7}$
2002	$8,4 \pm 1,8$
Regen Norderney (maximale Werte)	
1997	$9,5 \pm 1,6$
1998	$10,7 \pm 2,0$
1999	$8,4 \pm 1,7$
2000	$11,8 \pm 1,8$
2001	$5,4 \pm 1,5$

Die langfristige Entwicklung der Iod-Isotopenverhältnisse im Niederschlag in Deutschland und der Schweiz ist in Abb. 5-17 dargestellt. Messungen an einem Eisbohrkern vom Fiescherhorn/Schweiz belegten erstmals, dass der  $^{129}\text{I}$ -Fallout nicht den charakteristischen Bomben-Peak zeigt, sondern seit den 50er Jahren bis Ende der 80er Jahre kontinuierlich anwuchs (Wagner, 1995; Wagner et al., 1996). Bereits 1950 übertrafen die atmosphärischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse fernab von  $^{129}\text{I}$ -Emittenten auf der Nordhalbkugel Werte von  $10^{-9}$ ; siehe Literaturübersicht in (Schmidt et al., 1998). Wenn man die hochalpinen Proben von Beginn der 1950er Jahre bis Mitte der 1980er Jahre mit den mitteleuropäischen Flachlandproben seit 1987 vergleicht, so nahmen die Isotopenverhältnisse und die jährlichen Depositionsdichten in Europa bis Ende der 1980er Jahre zu (Tab. 5-11; Abb. 5-17). Seitdem werden Isotopenverhältnisse von nahezu ca.  $5 \cdot 10^{-7}$  in Deutschland und der Schweiz beobachtet, die bis heute in etwa konstant geblieben sind. Der Fallout von  $^{129}\text{I}$  durch nasse Deposition aus dem Unfall von Tschernobyl war lediglich eine kurzzeitige Episode. Die höchsten dabei gemessenen Isotopenverhältnisse lagen in Westeuropa bei knapp  $10^{-5}$  (Paul et al., 1987).

Die vorliegenden Daten können dazu genutzt werden, anhand der jährlichen Niederschlagsmengen (Abb. 5-18) die jährlichen  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten aus den gemessenen  $^{127}\text{I}$  bzw.  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen im Quartalsniederschlag und den langjährigen Mittelwerten der jährlichen Niederschlagsmengen (Abb. 5-19) abzuschätzen. Die Ergebnisse sind in den Tabellen III.15 bis III.17 im Anhang dargestellt. Diese Ergebnisse sind in Tab. 5-12 zusammengefasst. Aus den Daten für Freilandregen ergeben sich für die Regionen II bis IV jährliche Depositionsdichten für  $^{127}\text{I}$  von  $1,2 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  und für  $^{129}\text{I}$  von  $0,4 \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  bis  $0,6 \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ . In der Region I ist die Deposition

nahe der Nordsee höher:  $2,4 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  und  $1,8 \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$ . Für  $^{129}\text{I}$  bedeutet das, dass durch nasse Deposition jährlich zwischen  $12 \text{ mBq m}^{-2}$  und  $2,5 \text{ mBq m}^{-2}$   $^{129}\text{I}$  abgelagert werden.

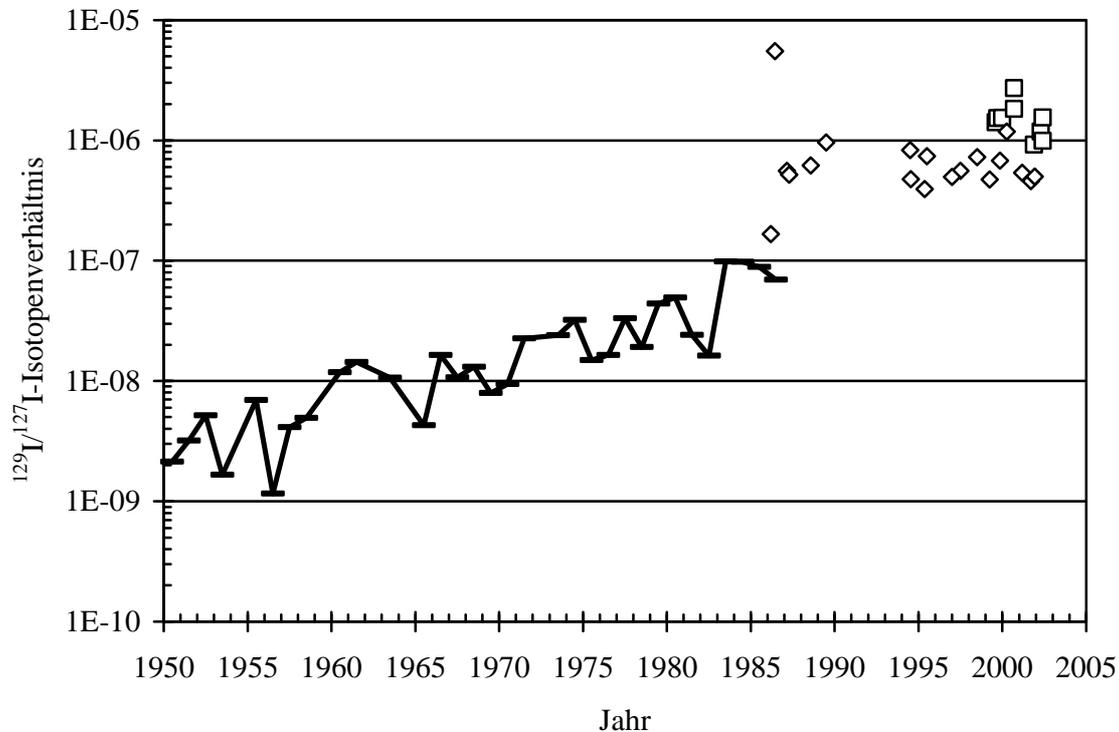


Abb. 5-17:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlagswässern aus Deutschland und der Schweiz und in Nordseewasser. Die durchgezogene Linie stellt die Daten eines Eisbohrkerns vom Fiescherhorn/Schweiz, Rauten Niederschlag aus Deutschland und der Schweiz, Quadrate die Ergebnisse für Nordseewasser dar. Die Daten für Niederschlag stammen aus dieser Arbeit und den Arbeiten von Paul et al. (1987), Wagner et al. (1996), Bachhuber und Bunzl (1992), Krupp und Aumann (1999), Schnabel et al. (2001a, 2001b) und Szidat et al. (2000a, 2000b).

Die Ergebnisse für durchfallenden Regen belegen, dass auch die trockene Deposition eine Rolle beim Eintrag von Iod-Isotopen spielt. Aus den Daten für durchfallenden Regen berechnet man jährliche Depositionsdichten von  $4,8 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  und  $4,0 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  in den Regionen II bzw. III und von  $2,2 \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  und  $1,7 \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$ , entsprechend  $14 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  und  $11 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ .

Wir nehmen daher mit den Ergebnissen für die jährlichen Depositionsdichten aus Tab. 5-12 für die küstenfernen Regionen II bis IV für  $^{127}\text{I}$  für die Jahre 1997 bis 2002 eine mittlere jährliche trockene Deposition von  $3,6 \text{ mg m}^{-2}$  und eine nasse Deposition von  $1,2 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , für  $^{129}\text{I}$  eine mittlere jährliche trockene Deposition von  $9,6 \text{ mBq m}^{-2}$  und eine nasse Deposition von  $3,1 \text{ mBq m}^{-2}$ ; insgesamt also  $4,8 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  und  $12,7 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$ .

In Tabelle 5-11 sind die verfügbaren Bestimmungen der jährlichen  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten anderer Autoren sowie unsere eigenen Ergebnisse zusammengestellt. Danach stiegen die jährlichen  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten in den letzten 5 Jahrzehnten von  $0,01 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  im Jahr 1950 in der Schweiz um nahezu drei Größenordnungen. Seit ca. 1990 sind sie im Mittel konstant auf dem heutigen Niveau (Abb. 5-19).

Die gegenwärtigen Depositionsdichten in Niedersachsen zeigen sowohl für  $^{127}\text{I}$  als auch für  $^{129}\text{I}$  zeitliche und räumliche Variationen (Szidat, 2000; Szidat et al., 2000a, 2000b; Ernst, 2003). Die entsprechenden Quartalsdaten sind für  $^{127}\text{I}$  in Abb. 5-20, für  $^{129}\text{I}$  in Abb. 5-21 und für die  $^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in Abb. 5-22 dargestellt. Die Variabilität der  $^{129}\text{I}$  Daten ist deutlich größer als die der  $^{127}\text{I}$  Daten. Die Isotopenverhältnisse variieren im Bereich einer Zehnerpotenz. Sie zeigen um 2001 etwas niedrigere Werte als in den Vorjahren. Ob dieser Trend anhält, kann erst in der Zukunft beurteilt werden.

Tabelle 5-11: Übersicht über die in Deutschland und der Schweiz von anderen Autoren ermittelten jährlichen Depositionsdichten von  $^{129}\text{I}$ .

Ort	Material		Jahr	$^{129}\text{I}$ in $\text{mBq m}^{-2} \text{a}^{-1}$
Fiescherhorn, CH	Eisbohrkern	Wagner et al. (1996)	1950	0,014
Fiescherhorn, CH	Eisbohrkern	Wagner et al. (1996)	84/85	0,7 bis 0,9
Mappenberg, D	Regen + Aerosol	Bachhuber und Bunzl (1992)	88/89	4,0 bis 6,6
D, fünf Standorte	Niederschlag	Krupp und Aumann (1999)	94/95	5,1 bis 11
Dübendorf, CH	Niederschlag	Schnabel et al. (2001a, 2001b)	94–97	2,3 bis 5,3
Niedersachsen, D; Region I	Freilandnieder- schlag	diese Arbeit	97 – 02	8,0 bis 20,2
Niedersachsen, D; Region II	Freilandnieder- schlag	diese Arbeit	97 – 01	1,5 bis 7,6
Niedersachsen, D; Region III	Freilandnieder- schlag	diese Arbeit	97 – 00	1,2 bis 7,3
Niedersachsen, D; Region IV	Freilandnieder- schlag	diese Arbeit	97 – 01	1,2 bis 6,3
Niedersachsen, D; Region II	Bestandsnieder- schlag	diese Arbeit	97 – 01	10,1 bis 33,9
Niedersachsen, D; Region III	Bestandsnieder- schlag	diese Arbeit	97 – 02	7,2 bis 20,3

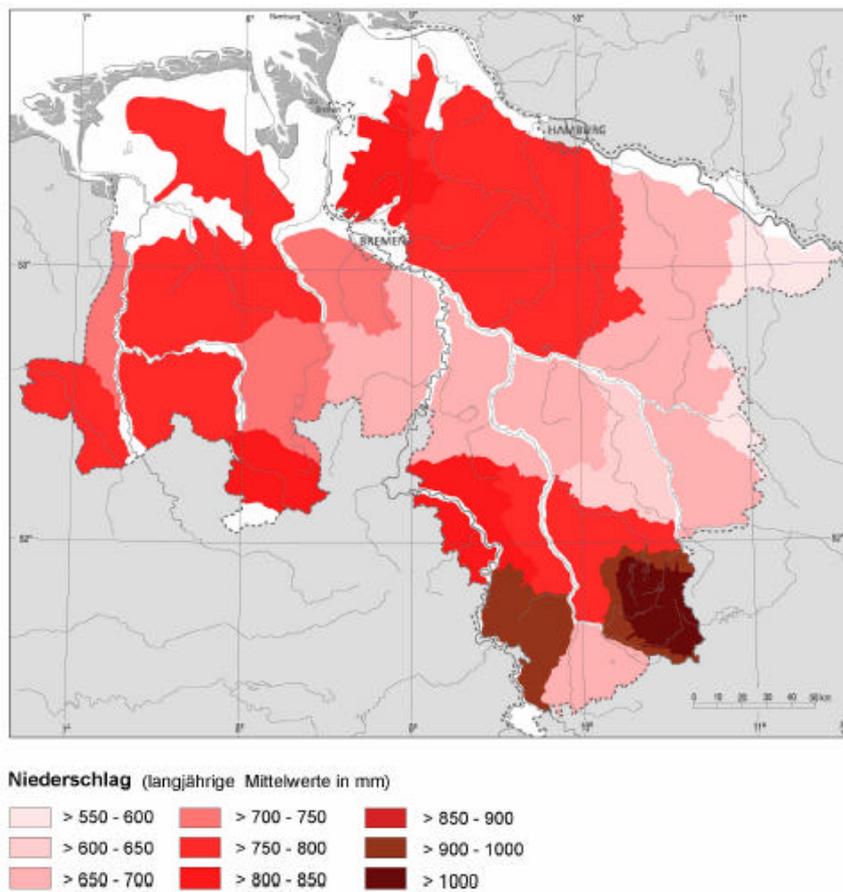


Abb. 5-18: Hydrologische Landschaften im Raum Niedersachsen, Verteilung des Niederschlages ohne tidebeeinflussten Küstenbereich (Elsholz und Berger, 1998).

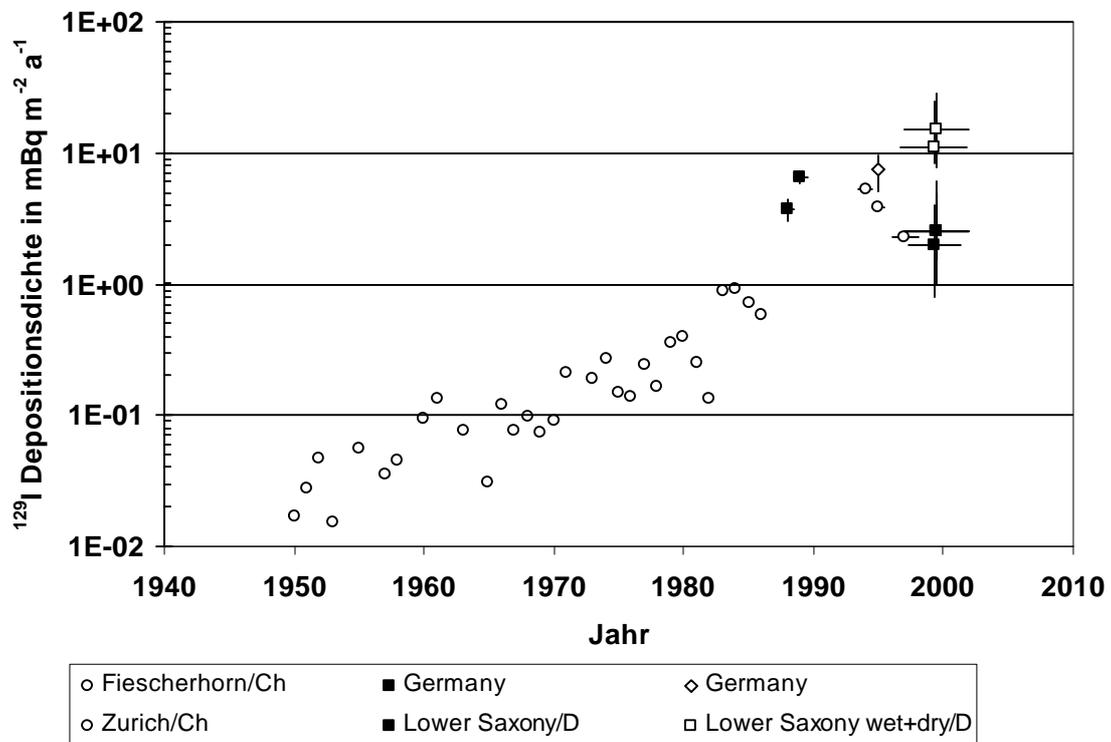


Abb. 5-19: Zeitreihe von jährlichen <sup>129</sup>I-Depositionsdichten in der Schweiz (1950–1986) und in Deutschland (1988–2002); dieser Bericht Tab. 5-12 sowie andere Autoren nach Tab. 5-11.

Tabelle 5-12: Jährliche Depositionsdichten von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  ermittelt aus den logarithmischen Mittelwerten der Quartalsdepositionsdichten und den Niederschlags-  
höhen der Gebiete

Ort	Gebiet	Zeitraum	Niederschlagsart	log <hN in mm a <sup>-1</sup> >	Jährliche $^{127}\text{I}$ -	Jährliche $^{129}\text{I}$ -	Jährliche $^{129}\text{I}$ -
					Depositions- dichte	Depositions- dichte	Depositions- dichte
					mg m <sup>-2</sup> a <sup>-1</sup>	ng m <sup>-2</sup> a <sup>-1</sup>	mBq m <sup>-2</sup> a <sup>-1</sup>
Norderney	I	I/97 bis I/02	Freilandniederschlag	742	2,4 · 1,3 <sup>±1</sup>	1,8 · 1,3 <sup>±1</sup>	11,9 · 1,3 <sup>±1</sup>
Buer-Ostenwalde	II	I/97 bis III/01	Freilandniederschlag	775	1,2 · 1,4 <sup>±1</sup>	0,57 · 1,6 <sup>±1</sup>	3,7 · 1,6 <sup>±1</sup>
Buer-Ostenwalde	II	I/97 bis III/01	Bestandsniederschlag	775	4,8 · 1,6 <sup>±1</sup>	2,2 · 1,9 <sup>±1</sup>	14,2 · 1,9 <sup>±1</sup>
Seesen	III	I/97 bis III/00	Freilandniederschlag	775	1,2 · 1,4 <sup>±1</sup>	0,40 · 1,6 <sup>±1</sup>	3,2 · 1,6 <sup>±1</sup>
Seesen	III	I/97 bis I/00	Bestandsniederschlag	775	4,0 · 1,2 <sup>±1</sup>	1,7 · 1,3 <sup>±1</sup>	11,4 · 1,3 <sup>±1</sup>
Siemen	IV	I/97 bis IV/01	Freilandniederschlag	675	1,2 · 1,4 <sup>±1</sup>	0,40 · 1,6 <sup>±1</sup>	2,6 · 1,6 <sup>±1</sup>

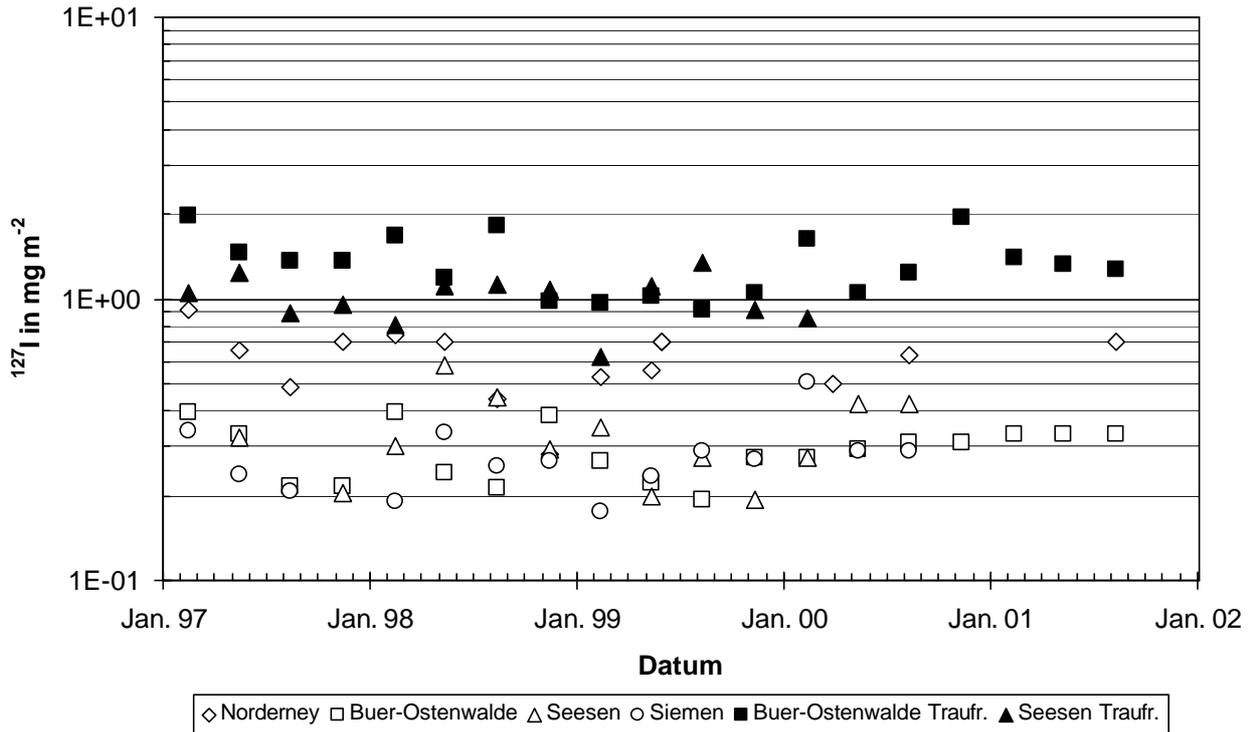


Abb. 5-20: Depositionsdichten von  $^{127}\text{I}$  pro Quartal.

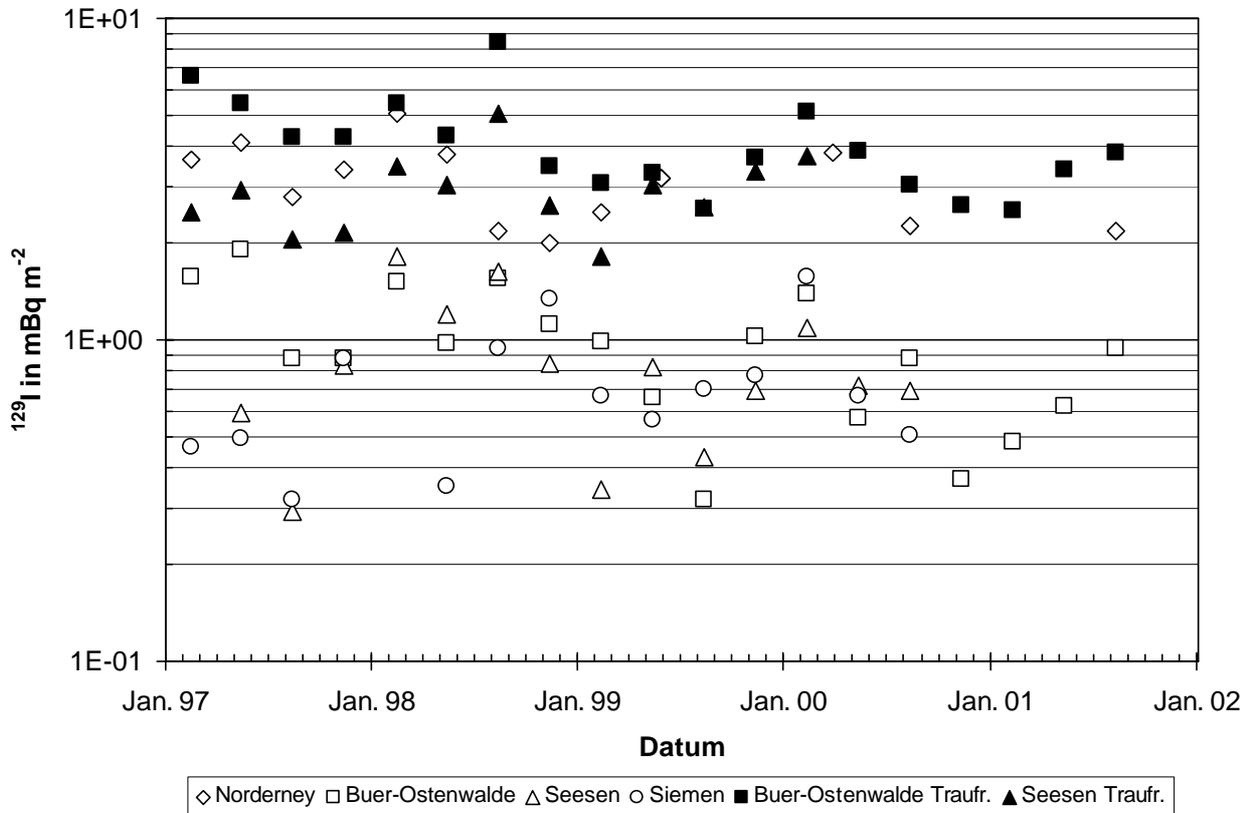


Abb. 5-21: Depositionsdichten von  $^{129}\text{I}$  pro Quartal.

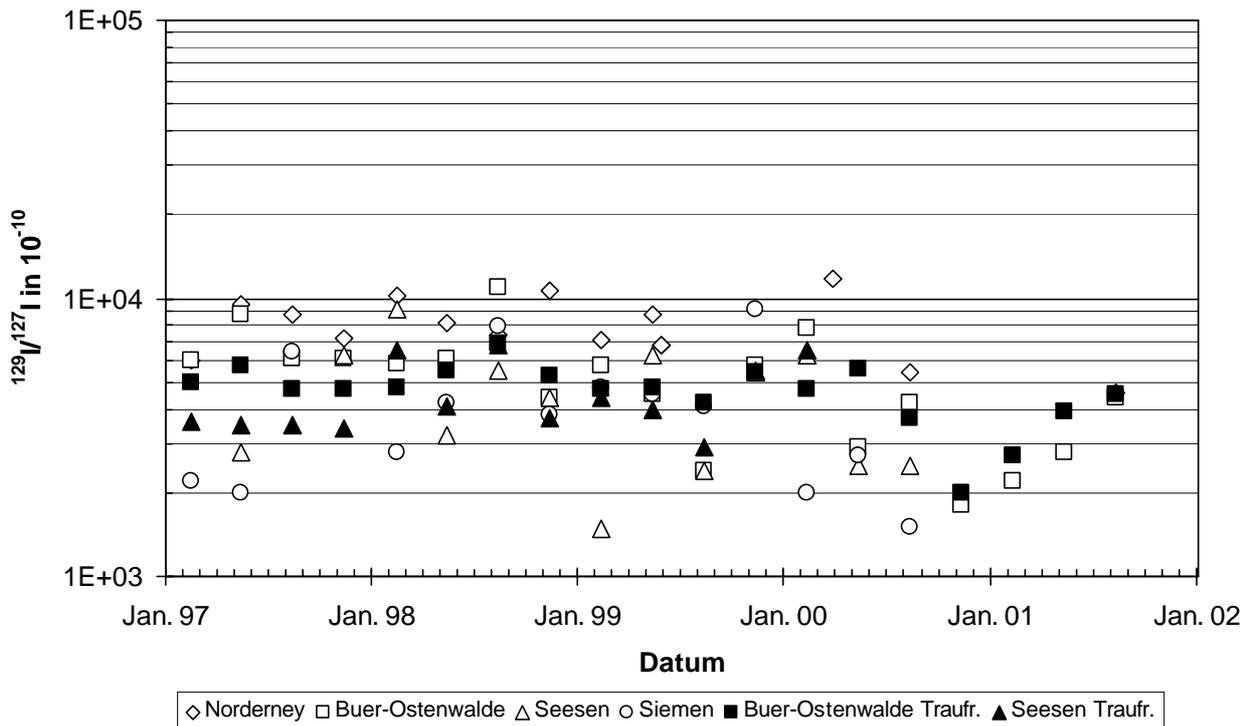


Abb. 5-22:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Quartalsniederschlag.

Nach der Darstellung der Analysenergebnisse von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Meerwasser und Niederschlagswässern ist es zur Diskussion sinnvoll die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von den  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen darzustellen (Abb. 5-23). Diese Darstellung wird im Folgenden für alle untersuchten Materialien benutzt. Dabei werden jeweils die gleichen Symbole für die unterschiedlichen Regionen nach Abb. 4-1 benutzt: Dreiecke für Region I, Kreise für Region II, Quadrate für Region III, Rauten für Region IV. Die unterschiedlichen Matrices werden durch farbliche Codierung unterschieden.

In beiden Teilen von Abb. 5-23 sind die Bereiche des Nordseewassers und der Niederschlagswässer deutlich von einander getrennt. Dies gilt sowohl für die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als auch für die Konzentrationen.

Im geometrischen Mittel (vgl. Tab. 5-13) liegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im Freilandregen der Regionen II bis IV um den Faktor 30 niedriger als im Nordseewasser, die  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen um einen Faktor 100 niedriger. Die höchsten  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im Niederschlag liegen um einen Faktor 2 unter den niedrigsten  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im Meerwasser. Für  $^{129}\text{I}$  macht dieser Unterschied einen Faktor 5 aus.

Die höchsten Isotopenverhältnisse im Niederschlag überdecken den Bereich minimaler Isotopenverhältnisse im Nordseewasser. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Meerwasser sind nicht mit der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration korreliert: (Pearson'scher) Korrelationskoeffizient  $R = 0,08$ . Für  $^{129}\text{I}$  (Abb. 5-23) zeigt sich eine schwache Korrelation mit einem Korrelationskoeffizienten  $R = 0,56$ . Auch für die Niederschlagsproben zeigt sich keine Korrelation der Isotopenverhältnisse mit der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration, jedoch schwache Korrelationen mit den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen. Dies kann dahingehend interpretiert werden, dass die durch Hydrometeore aus der Luft ausgewaschenen Aerosole für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  zu unterschiedlichen Mengenverhältnissen aus globalen und lokalen Aerosolen stammen. Für  $^{127}\text{I}$  ist ein höherer Anteil an global verteiltem Aerosol aufgrund der längeren Eintragszeit in die Atmosphäre anzunehmen.

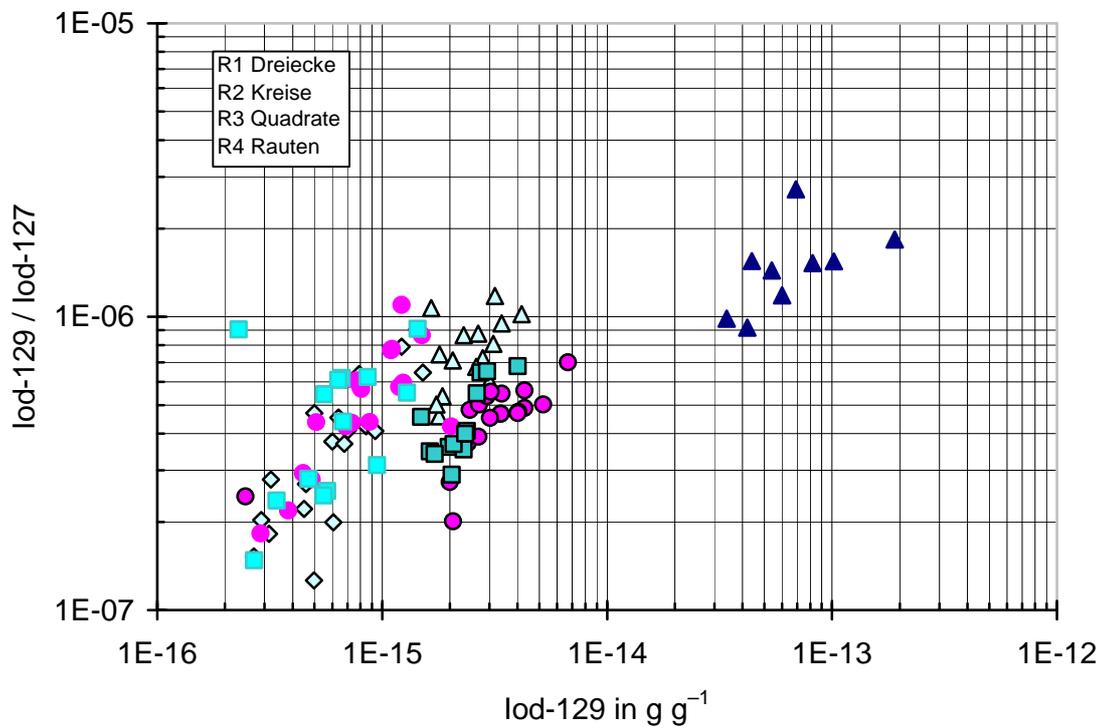
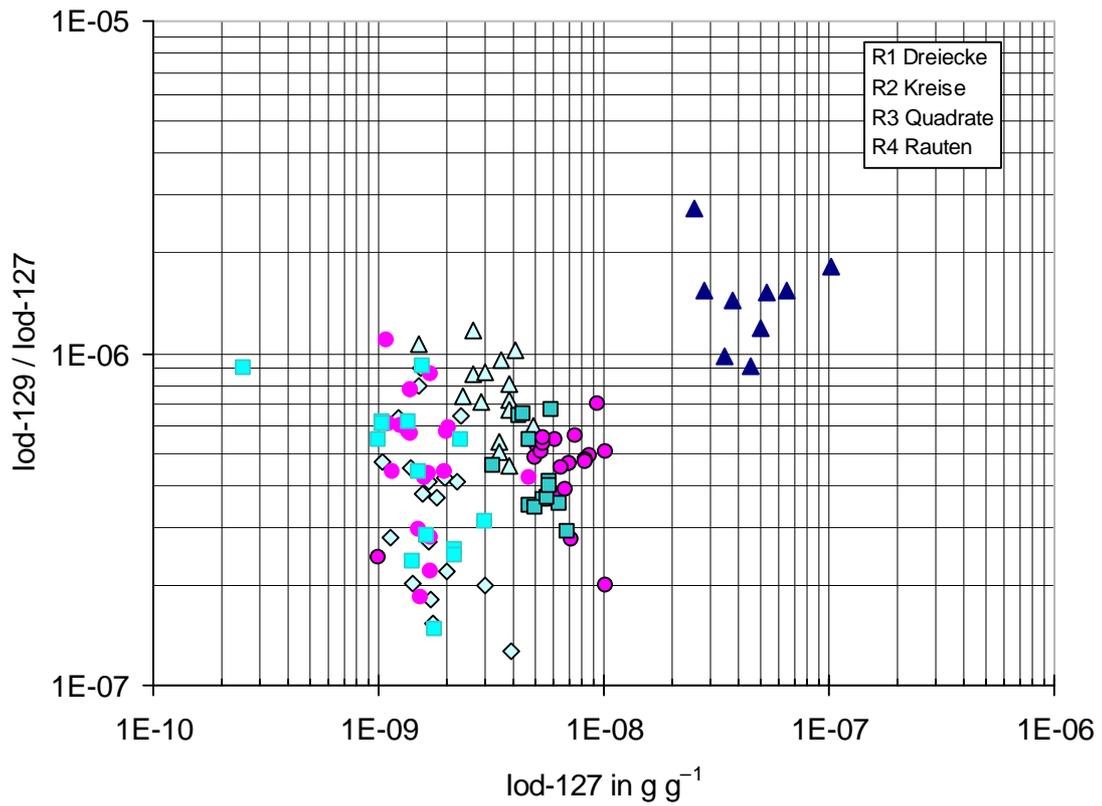


Abb. 5-23: <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Isotopenverhältnisse und <sup>127</sup>I bzw. <sup>129</sup>I-Gehalte im Nordseewasser und Niederschlag aus Niedersachsen.

Die Tatsache, dass die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen nicht und mit den  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen nur schwach korreliert sind, zeigt bereits hier, dass die Iod-Isotope nicht im Gleichgewicht vorliegen und ein radioökologisches Gleichgewichtsmodell wie es für  $^{14}\text{C}$  und  $^3\text{H}$  vielfach in radioökologischen Modellen benutzt wird, für  $^{129}\text{I}$  nicht anwendbar ist.

#### 5.4.4 Oberflächen- und Grundwasser

Auch Oberflächen- und Grundwässer wurden durch das ZSR seit 1997 systematisch untersucht. Im Rahmen dieses Projektes wurden 26 Proben von Oberflächenwässern und 16 Proben von Grundwässern untersucht. Die Ergebnisse der früheren Untersuchungen zusammen mit den neuen Messwerten sind in den Tabellen III.18 bis III.22 im Anhang dargestellt.

Die geometrischen Mittelwerte (Tab. 5-13) der  $^{127}\text{I}$ -Gehalte der Oberflächenwässer der Regionen II bis IV sind sehr ähnlich, allerdings mit deutlich unterschiedlichen geometrischen Standardabweichungen. Gegenüber dem Freilandregen sind die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte der drei Oberflächenwässer um den Faktor 4 erhöht, entsprechen aber in etwa denen, die im durchfallenden Regen gemessen wurden. Dies kann jedoch Zufall sein, da die Niederschlagswässer auf ihrem Weg zum Oberflächenwasser mit zusätzlichen Iod-Reservoirs in Boden und Bewuchs in Kontakt treten und Austauschprozesse stattfinden können (vgl. Kapitel 5.4.5).

Tab. 5-13: Geometrische Mittelwerte und geometrische Standardabweichungen der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Oberflächenwässern aus Niedersachsen gemittelt über die Jahre von 1997 bis 2001 im Vergleich mit den entsprechenden Daten für Niederschlag und Nordseewasser.

Region		Probenahmeort	$^{127}\text{I}$ in ng g <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}$ in fg g <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis in 10 <sup>-10</sup>
<b>I</b>	<b>Oberflächenwasser</b>	<b>Großes Meer</b>	<b>22 · 1,5<sup>±1</sup></b>	<b>0,96 · 2,3<sup>±1</sup></b>	<b>430 · 2,3<sup>±1</sup></b>
		Nordseewasser	45 · 1,6 <sup>±1</sup>	66 · 1,7 <sup>±1</sup>	15 000 · 1,4 <sup>±1</sup>
		Freilandregen	3,2 · 1,3 <sup>±1</sup>	2,5 · 1,3 <sup>±1</sup>	7 500 · 1,3 <sup>±1</sup>
<b>II</b>	<b>Oberflächenwasser</b>	<b>Bokeloh</b>	<b>6,7 · 1,2<sup>±1</sup></b>	<b>0,16 · 1,7<sup>±1</sup></b>	<b>240 · 1,7<sup>±1</sup></b>
		Freilandregen	1,6 · 1,4 <sup>±1</sup>	0,73 · 1,6 <sup>±1</sup>	4 500 · 1,6 <sup>±1</sup>
		Traufregen	6,3 · 1,6 <sup>±1</sup>	2,80 · 1,9 <sup>±1</sup>	4 400 · 1,4 <sup>±1</sup>
<b>III</b>	<b>Oberflächenwasser</b>	<b>Leineturm</b>	<b>5,9 · 1,5<sup>±1</sup></b>	<b>0,042 · 1,9<sup>±1</sup></b>	<b>70 · 2,3<sup>±1</sup></b>
		Freilandregen	1,6 · 1,4 <sup>±1</sup>	0,64 · 1,6 <sup>±1</sup>	3 950 · 1,8 <sup>±1</sup>
		Traufregen	5,1 · 1,2 <sup>±1</sup>	2,2 · 1,3 <sup>±1</sup>	4 300 · 1,3 <sup>±1</sup>
<b>IV</b>	<b>Oberflächenwasser</b>	<b>Meetschow</b>	<b>7,1 · 1,7<sup>±1</sup></b>	<b>0,11 · 1,9<sup>±1</sup></b>	<b>160 · 2,1<sup>±1</sup></b>
		Freilandregen	1,7 · 1,4 <sup>±1</sup>	0,58 · 1,6 <sup>±1</sup>	3 300 · 1,7 <sup>±1</sup>

Das Große Meer nimmt unter den Oberflächenwässern eine Sonderstellung ein. Es ist beeinflusst von Tide und Seaspray und zeigt einen deutlich höheren geometrischen Mittelwert der  $^{127}\text{I}$ -Gehalte. Dies deutet auf eine langfristige Akkumulation von Iod gegenüber dem Niederschlag oder eine di-

rekte Beeinflussung durch Nordseewasser (Tide) hin. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte liegen hier bei der Hälfte des Wertes für Nordseewasser.

$^{129}\text{I}$  verhält sich in Oberflächenwässern völlig anders als  $^{127}\text{I}$ . An allen vier Standorten liegen die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte deutlich niedriger als in den entsprechenden Niederschlagswässern. Dies kann dadurch erklärt werden, dass  $^{129}\text{I}$  durch Wechselwirkung mit Boden und Bewuchs aus dem Wasser der Niederschläge auf ihrem Weg zum Oberflächenwasser entfernt oder durch mobiles  $^{127}\text{I}$  verdünnt wird. Auch für  $^{129}\text{I}$  nimmt das große Meer mit mindestens 6-fach höheren  $^{129}\text{I}$ -Gehalten eine Sonderstellung ein, ist jedoch auch gegenüber dem Freilandregen um etwa einen Faktor drei erniedrigt.

Die komplexen Wege der Iod-Isotope vom Meer über den Niederschlag zum Oberflächenwasser werden in den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen besonders deutlich (Abb. 5-24). Die Isotopenverhältnisse liegen im Oberflächenwasser um mehr als eine Zehnerpotenz niedriger als im Niederschlag. Eine Systematik der Regionen lässt sich hier noch nicht erkennen. Auch die hydrologischen Unterschiede der Oberflächengewässer (Abb. 5-25) lassen keine nähere Deutung zu. Zu bemerken ist allerdings, dass das Große Meer mit seinen hohen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen einen bekannten, direkten Einfluss des Tidewassers aufweist. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im großen Meer sind jedoch kaum höher als die in Region II (Bokeloh). Das Iod der Oberflächenwässer ist durch eine Verdünnung mit Iod niedrigerer  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse charakterisiert. Jedoch wird erst nach der Diskussion der Ergebnisse für Böden eine Erklärung für die in Oberflächenwässern beobachteten Isotopenverhältnisse gegeben werden können.

Der zeitliche Verlauf der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser weist eine gewisse Streuung auf (Abb. 5-24), allerdings sind im Beobachtungszeitraum von 1997 bis 2002 keine systematischen Trends zu erkennen. Dies ist in Grundwässern teilweise anders. Der zeitliche Verlauf der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in niedersächsischen Grundwässern unterschiedlicher Filtrationstiefen ist in Abb. 5-26 dargestellt. Man beobachtet für Region II in Woltrup-Wehbergen einen kontinuierlichen Anstieg der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, in Region I in Raudafehn, sanken die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den letzten vier Jahren um ca. eine Zehnerpotenz. Die Grundwässer der Regionen III und IV zeigen keine einheitlichen Trends.

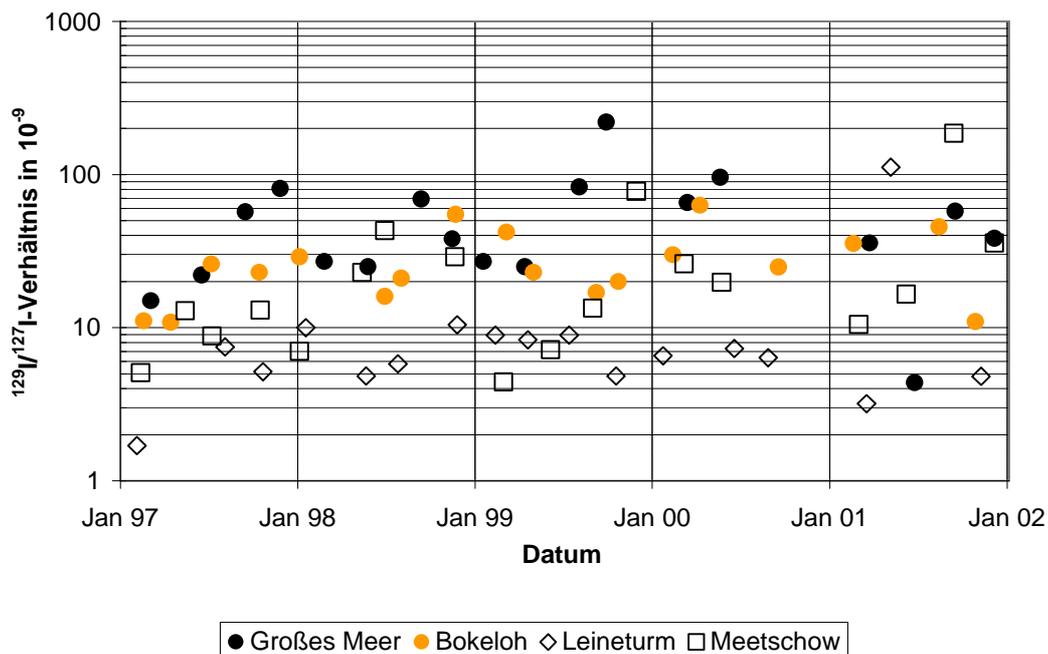


Abb. 5-24:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in niedersächsischen Oberflächenwässern: Region I Großes Meer, Region II Bokeloh, Region III Leineturm, Region IV Meetschow (aus Ernst, 2003).

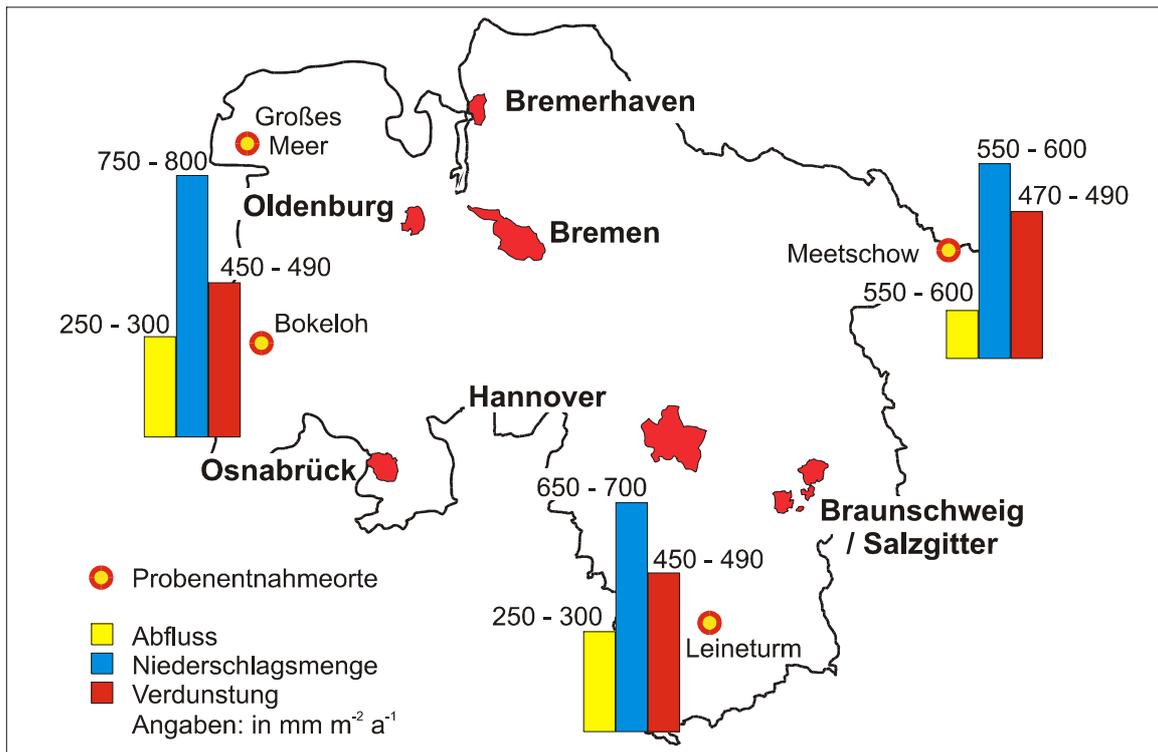


Abb. 5-25: Hydrologische Unterschiede der Oberflächengewässer nach Daten des NLÖ (NLÖ, 2004). Für das Große Meer wurden aufgrund des Tidewassereinflusses keine Daten angegeben.

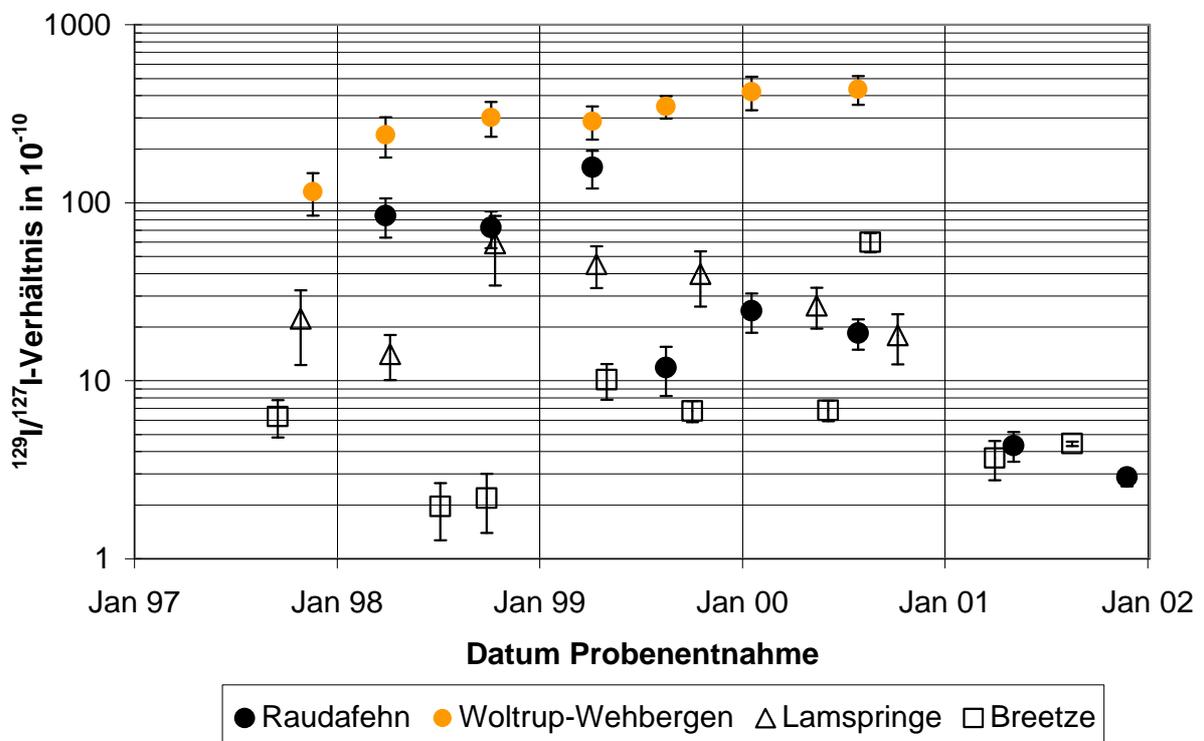


Abb. 5-26: Zeitlicher Verlauf der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in niedersächsischen Grundwässern unterschiedlicher Filtrationstiefen  $h_1$  (Region I: Raudafehn  $h_1 = 10$  m, Region II: Woltrup-Wehbergen  $h_1 = 8$  m, Region III: Lamspringe  $h_1 = 3$  m und Region IV: Breetze  $h_1 = 5$  m).

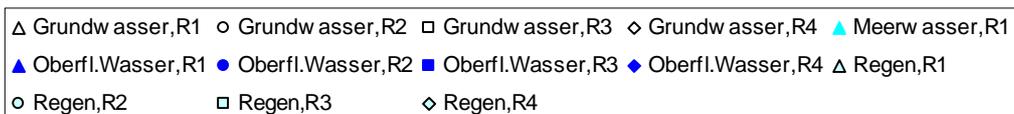
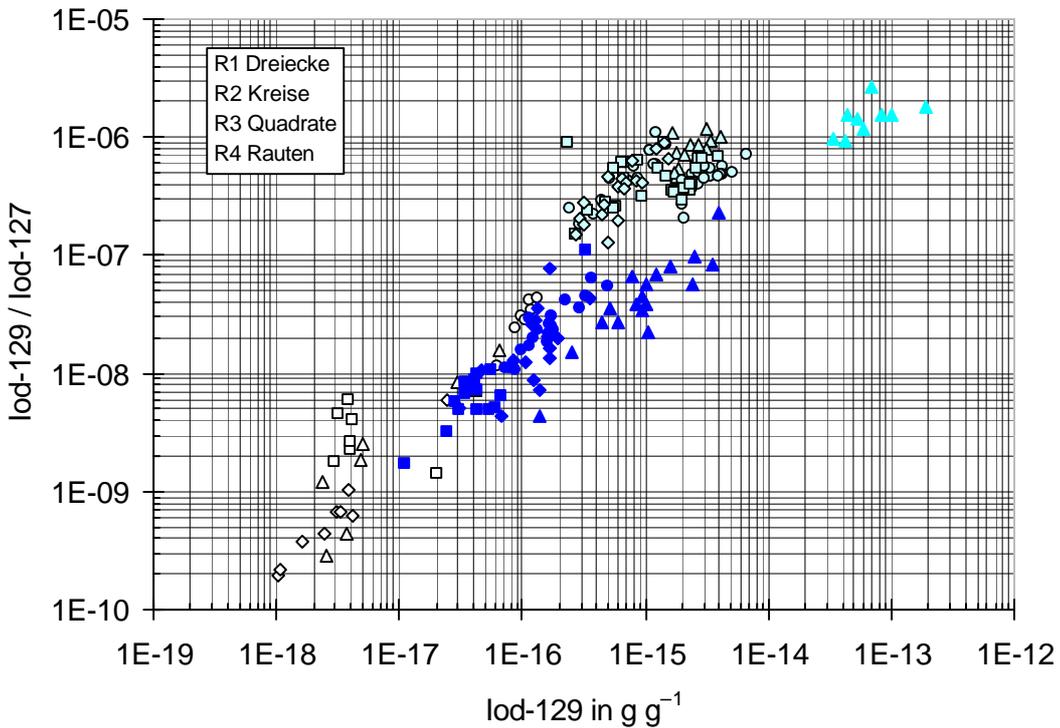
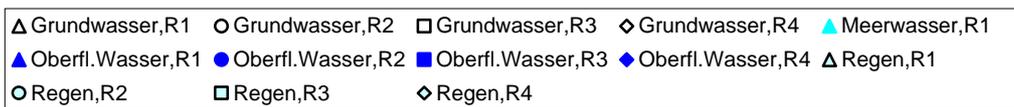
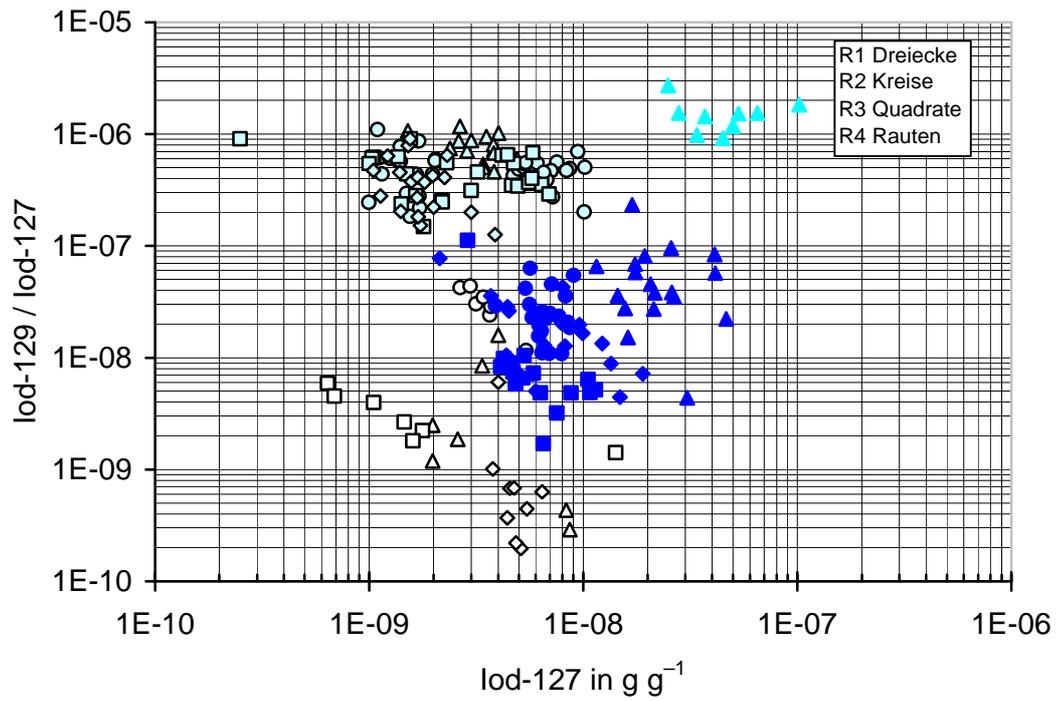


Abb. 5-27:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$  bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser aus Niedersachsen.

In der Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit der jeweiligen  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (Abb. 5-27) sind die Daten für Oberflächen- und Grundwässer deutlich von denen für Niederschlag und Meerwasser abgesetzt. In Abhängigkeit von den  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zeigen sie jedoch ganz unterschiedliche Muster. Die höchsten  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im Oberflächenwasser sieht man im Großen Meer als Folge des Tidewassereinflusses; sie übersteigen auch die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im Niederschlag. In den anderen Regionen liegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen des Oberflächenwassers am oberen Ende der Konzentrationen, die in den Niederschlägen beobachtet werden. Sie sind jedoch höher als die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in den Freilandregen der Regionen II und IV. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen der Oberflächenwässer sind nur durch eine zusätzliche Iod-Quelle zu erklären. In Kapitel 5.4.4. wird sich der Oberboden als diese Quelle erweisen.

Die Grundwässer haben sehr unterschiedliche Muster in der grafischen Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen. Eine Systematik ist nicht zu erkennen und die Daten sind im Einzelnen sicher nur unter Betrachtung der jeweiligen hydrologischen Bedingungen interpretierbar. Eine derartige Diskussion würde jedoch den Rahmen dieser Arbeit sprengen.

Die Auftragung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zeigt eine zunehmende Verdünnung des  $^{129}\text{I}$  mit  $^{127}\text{I}$  aus anderen Kompartimenten vom Meer über den Niederschlag zum Oberflächen- und Grundwasser hin. Auch hier zeigt sich der direkte Einfluss der Nordsee im Großen Meer. Der allgemeine Trend zunehmender Verdünnung gilt auch für die verschiedenen Grundwässer, obwohl auch hier deutliche Unterschiede bei den verschiedenen Grundwässern zu verzeichnen sind.

Szidat et al. (2001) haben versucht, die Unterschiede zwischen den verschiedenen Grundwasserdaten im Sinne von Transportzeiten zu interpretieren. Dies ist möglich, da die Deposition atmosphärischen  $^{129}\text{I}$  die wesentlichste Quelle in der terrestrischen Umwelt in Europa ist. Benutzt man die Niederschlagsdaten als Eintragsfunktion in einem einfachen exponentiellen Modell (Zuber, 1986) für den Transfer von Iod vom Ort des Niederschlags zu dem der Probenahme, kann man die mittleren Iod-Verweilzeiten in den oberflächlichen Bodenzonen berechnen und diese mit den Wasser-Transferzeiten auf der Basis von Tritiumaktivitätskonzentrationen vergleichen (Tab. 5-14). In einem solchen Modell wird die mittlere Verweilzeit  $t$  nach Gleichung 3 berechnet.

$$t = - \frac{T}{\ln(1-H(T))} \quad \text{Gl. 3}$$

Dabei ist  $T$  die Zeit konstanten Eintrags und  $H(T)$  der Anteil des Eintragsignals der im jeweiligen Kompartiment beobachtet wird.  $T$  charakterisiert die Zeitspanne zwischen der Probenahme und dem Jahr 1986, für das der Beginn des konstanten Eintrags angenommen wird.  $H(T)$  wird angenommen als das Verhältnis von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  in der jeweiligen Probe und dem Mittelwert im Niederschlag von  $6,5 \cdot 10^{-7}$ .  $t$  wird für jede einzelne Probe berechnet. In Tab. 5-14 sind die so resultierenden geometrischen Mittelwerte mit ihren Standardabweichungen des Mittelwertes angegeben. Dieses Modell zeigt scheinbar, dass der horizontale und vertikale Iod-Transport um bis zu drei Größenordnungen gegenüber dem Wassertransport verzögert ist. Oberflächen- und Grundwässer zeigen ähnliche Werte mit Ausnahme von Region IV, wo von Szidat et al. eine impermeable Zone über dem Ort der Grundwasser-Probenahme angenommen wurde.

Tab. 5-14: Mittlere Transferzeiten von Iod in oberflächennahen Bodenzonen abgeleitet mit einem einfachen exponentiellen Modell und mittlere Zeitkonstanten des Wassertransfers abgeleitet aus  $^3\text{H}$  in Grundwasser mit Standardunsicherheiten (Szidat et al., 2001).

Material	Region	$t_{\text{Iod}}$ in a	$t_{\text{Tritium}}$ in a
Oberflächenwasser	I	kontaminiert durch Nordseewasser	–
	II	$364 \cdot 1,1^{\pm 1}$	–
	III	$1.290 \cdot 1,2^{\pm 1}$	–
	IV	$670 \cdot 1,2^{\pm 1}$	–
Grundwasser	I	$828 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$7 \pm 5$
	II	$359 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$12 \pm 1$
	III	$2\ 670 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$9 \pm 4$
	IV	$40\ 200 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$19 \pm 2$

### 5.4.5 Boden

In der Pedosphäre tritt sowohl  $^{129}\text{I}$ -Akkumulation als auch  $^{129}\text{I}$ -Verteilung auf. Durch den Kontakt mit dem Boden werden die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Oberflächenwässern, Grundwässern und Pflanzen beeinflusst. Darüber hinaus besteht durch das Landschaftsbild und die unterschiedliche Landnutzung ein Einfluss auf Wolken- und Niederschlagsbildung (Mölders, 1999). Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Umweltkompartimente, die im Kontakt mit dem Boden sind, lassen eine hohe Variabilität erkennen und sind zwischen zwei und sieben Größenordnungen gegenüber dem gemessenen prä nuklearen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis erhöht (Abb. 5-28).

Der Boden nimmt in der Ökologie der Iod-Isotope eine Schlüsselrolle ein. Im Kompartiment Boden findet der Austausch zwischen Regenwasser, Bodenmatrix, Bodenwasser, Oberflächenwasser und Pflanzen statt. Der Boden wird durch nasse und trockene Deposition beaufschlagt, durch Evapo-Transpiration werden flüchtige Iodverbindungen zurück an die Atmosphäre gegeben. Durch Migration in tiefere Bodenschichten gelangen die Iod-Isotope ins Grundwasser. Dabei sind neben vertikalen Transportprozessen in allen Bodentiefen auch horizontale von Bedeutung, die die Iod-Isotope mit Grundwasser und Oberflächenwasser verlagern. Dabei sind all diese Prozesse von der Speziation des Iods und der Bildung von organischen Iodverbindungen abhängig. Iod ist biophil und geht in den verschiedensten Umweltkompartimenten organische Iodverbindungen ein; siehe Santschi und Schwer (2004). Ernst (2003) hat die Rolle organischer Iodverbindungen beim Transport vom Meer in die Atmosphäre eingehend diskutiert. 40 % des  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in der Atmosphäre lagen als organisches Iod vor. Feststellungen über Speziation der Iod-Isotope im Niederschlag, in Oberflächenwässern und Grundwässern und im Boden sind meist noch spekulativ; vgl. Santschi und Schwer (2004). Speziell das Verhalten von Iod in Böden, die die Schlüsselrolle im terrestrischen Iodkreislauf einnehmen, ist weitgehend unbekannt.

Vor diesem Forschungsvorhaben wurden am ZSR, im Rahmen eines DFG-Projektes, sieben bodenkundlich vollständig charakterisierte Bodenprofile aus Niedersachsen bis in eine Tiefe von 2,5 m auf  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  hin untersucht (Ernst, 2003; Ernst et al., 2002, 2003). Da die Ergebnisse dieser Untersuchung auch für das vorliegende Forschungsvorhaben von Bedeutung sind, sollen sie hier kurz dargestellt werden.

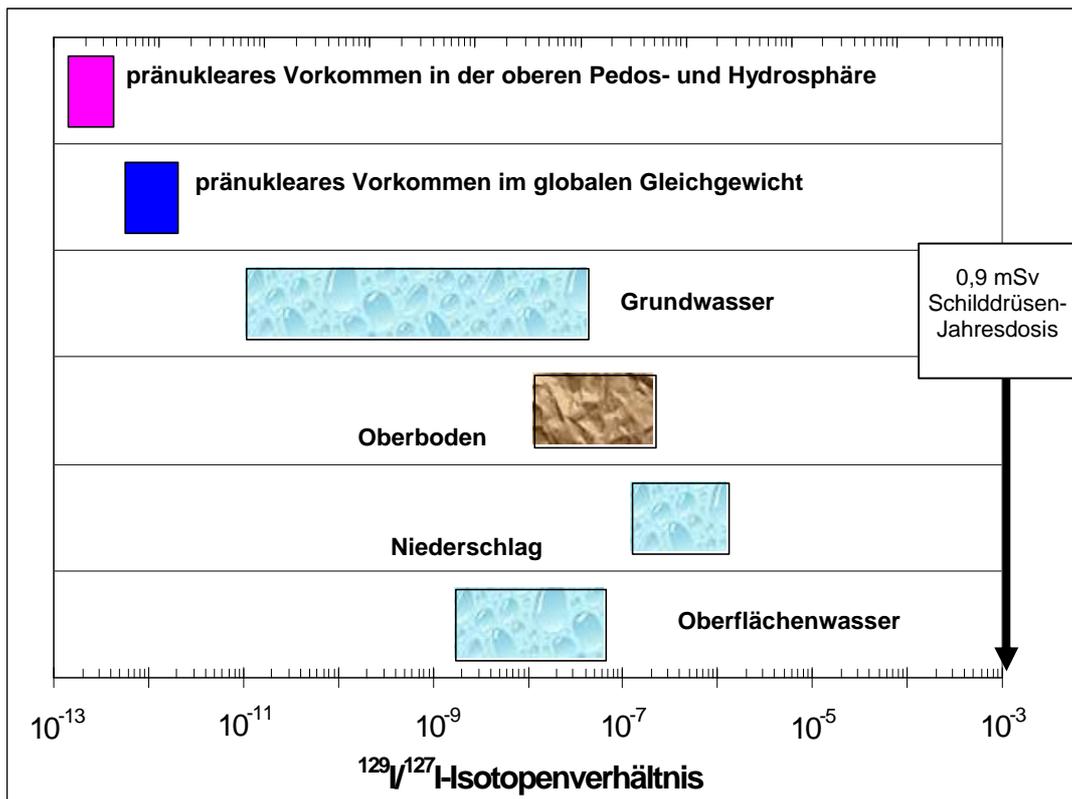


Abb. 5-28: Niedersächsische  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Pedosphäre im Vergleich zum pränukearen Verhältnis und zu den Verhältnissen in Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser (Ernst, 2003). Bzgl. der zu erwartenden Schilddrüsendosis vgl. Kap. 6.2.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse (Abb. 5-29) belegen, dass anthropogenes  $^{129}\text{I}$  bis in alle Tiefen der untersuchten Bodenprofile vorgedrungen ist. Die niedrigsten Isotopenverhältnisse in den Profilen lagen ein bis drei Größenordnungen höher als das in einem pränukearen Boden gemessene Verhältnis von  $5,7 \cdot 10^{-12}$ .

Dennoch wurde versucht, die integralen Depositionsdichten für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  durch Integration über die Bodensäulen abzuschätzen (Abb. 5-30 und Tab. 5-15). Die Tiefenverläufe der oberflächenprojizierten Konzentrationen zeigen deutliche Unterschiede sowohl zwischen den Iod-Isotopen als auch für jedes Isotop für die verschiedenen Standorte.

Für  $^{127}\text{I}$  können diese Verläufe in erster Näherung mit einer mit der Tiefe fallenden Exponentialfunktion beschrieben werden. Dieser Kurvenverlauf belegt eindeutig, dass das im Boden vorhandene Iod das Ergebnis atmosphärischen Eintrags ist. Vergleicht man den Bereich der aus den Niederschlagsuntersuchungen gewonnenen Abschätzungen der  $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichte von  $1,2 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  bis  $4,8 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (Tab. 5-12) mit den aus den Bodenprofilen ermittelten ( $2\,300 \text{ mg m}^{-2}$  bis  $7\,200 \text{ mg m}^{-2}$ ), so stellt man fest, dass das stabile Iod in Böden das Ergebnis eines Jahrtausende langen Eintrags ist.

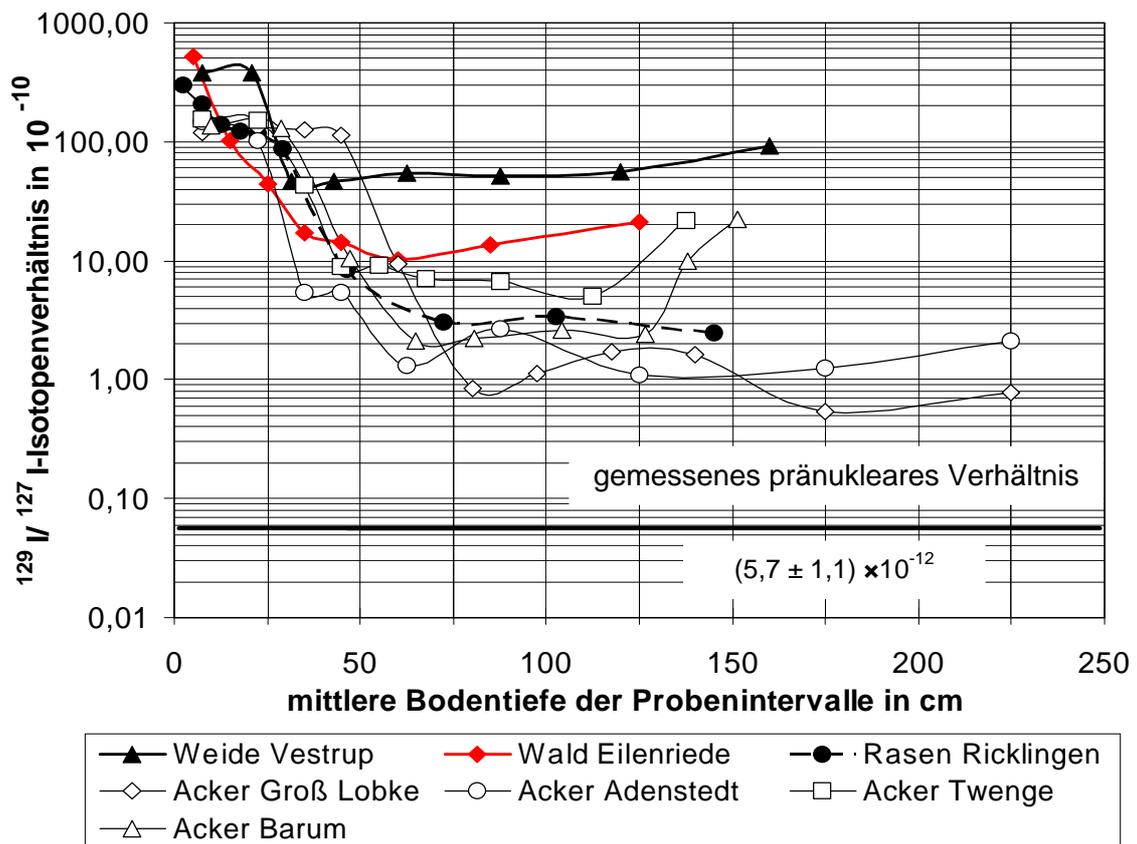


Abb. 5-29:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der niedersächsischen Böden im Vergleich zum gemessenen präkerns  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis (Ernst et al., 2002, 2003).

In diesem Zusammenhang ist es erwähnenswert, dass in Böden aus der Ukraine und aus Moskau lediglich  $0,44 \cdot 1,3^{\pm 1} \text{ g m}^{-2}$  bzw.  $0,47 \cdot 1,5^{\pm 1} \text{ g m}^{-2}$  stabiles Iod gefunden wurde. Hier macht sich offensichtlich die größere Entfernung von maritimen Iod-Quellen auch langfristig bemerkbar.

Das im Boden gefundene  $^{129}\text{I}$  wurde überwiegend während der letzten 50 Jahre eingetragen. Die über die Tiefe integrierten Konzentrationen liegen in den sieben niedersächsischen Bodenprofilen im Bereich von  $118 \text{ mBq m}^{-2}$  bis  $390 \text{ mBq m}^{-2}$  mit einem geometrischen Mittel von  $168 \cdot 1,5^{\pm 1} \text{ mBq m}^{-2}$ . Aus den Niederschlagsdaten für Niedersachsen ergaben sich derzeitige jährliche Depositionsdichten von  $2,4 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  bis  $14 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (Tab. 5-12). Das heißt, dass ein signifikanter Eintrag auch heute noch stattfindet und dass der Transfer von  $^{129}\text{I}$  in die Nahrungskette sowohl von schon lange im Boden vorhandenen  $^{129}\text{I}$  als auch durch aktuellen Fallout beeinflusst wird.

Auch hier ist ein Hinweis auf die Situation in der Ukraine und in Russland angebracht. In nicht von Chernobyl-Fallout beeinflussten Gebieten wurden in der Ukraine nur  $38 \cdot 1,7^{\pm 1} \text{ mBq m}^{-2}$  und in Moskau nur  $49 \cdot 1,5^{\pm 1} \text{ mBq m}^{-2}$  gefunden. Dies interpretieren wir auch als Ausdruck der größeren Entfernung von Emittenten und von marinen, anthropogen beeinflussten Iod-Quellen.

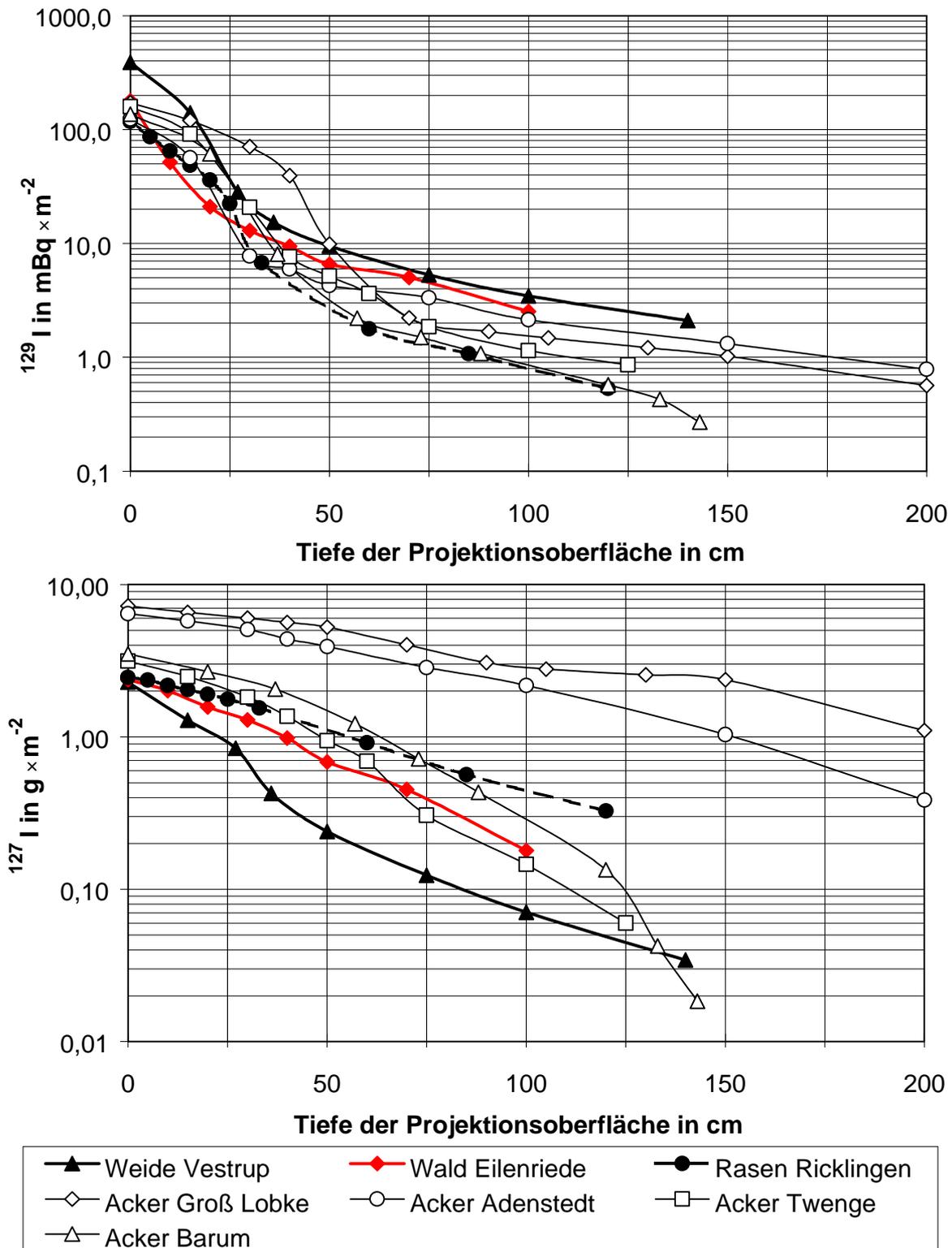


Abb. 5-30: Oberflächenprojizierte <sup>129</sup>I- und <sup>127</sup>I-Gehalte der niedersächsischen Böden im Tiefenverlauf nach Ernst et al. (2002, 2003)

Die Migration von Radionukliden hängt von vielen Faktoren ab. Die Beobachtungen an den sieben niedersächsischen Bodenprofilen können nach Ernst et al. (2002, 2003) wie folgt gedeutet werden. In realen Böden haben Gleichgewichts- bzw. Mobilitätsparameter wie  $K_d$ -Werte nur sehr begrenzte Gültigkeit, da Adsorptionsplätze in der Regeln mit Co-Adsorptiven belegt sind und im Gegensatz zur Ermittlung von  $K_d$ -Werte kein konvektiver Austausch des Fluids mit dem Bodenkörper existiert.

tiert. Als Co-Adsorptive können Ionen mit ähnlichen hydrodynamischen Radius und gleicher Polarität gelten, z.B.  $K^+$  und  $Cs^+$  und  $I^-$  und  $NO_3^-$ . Für  $^{129}I$  ist es jedoch vor allem das stabile  $^{127}I$ , das als perfektes Co-Adsorptiv die irreversiblen und einen Großteil der reversiblen Sorptionsplätze im Boden belegt.

Nicht nur in diesem Punkt weicht Ernst in seiner Arbeit „Anthropogenes  $^{129}I$  als Tracer für Umweltprozesse. Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport“ von der Lehrmeinung ab: Entscheidend für die Sorption und Desorption ist nach Ernst die Kinetik der Überwindung von Diffusionsgrenzschichten am Bodenkörper, die in Form von kapillaren Grenzschichten bei geringer Wassersättigung sowohl die Migration als auch die Akkumulation von Bodeninhaltsstoffen bei hoher Mobilität erklären. Die Migration im Boden erfolgt abgesehen von der Bioturbation (Maulwürfe, Regenwürmer usw.) vor allem durch die Hydrologie, die hydrodynamische Dispersion, Evaporation und Transpiration.

Der Anteil an frei fließendem Fluid, unterschiedliche morphologische und mineralogische Zusammensetzungen des Bodens und unterschiedliche Verweilzeit des Wassers erschweren die Abschätzung der Migration. Hinzu kommen Unterschiede in der thermodynamischen Stabilität der möglichen Sorptionen, die chemisch spezifische und unspezifische Adsorptionen mit unterschiedlichem Einfluss von Co-Adsorptiven und unterschiedlicher Kinetik der Sorption und Desorption zur Folge haben. Der Einfluss all dieser Faktoren auf Bodeneigenschaften und Migration ist von Ernst in seiner Arbeit ausführlich beschrieben worden. Danach sind die entscheidenden Faktoren für die Migration eines Nuklids im Boden die gegensätzliche Bewegung von Bodenwasser durch wassergesättigte Kapillare in die Tiefe und aus der Tiefe über kapillare Grenzschichten mittels Kapillarkräften, sowie Evaporation und Transpiration. Dabei entscheidet der Grad der Wassersättigung in den Poren des Bodenkörpers über Migrations- und Akkumulationsanteile.

Die  $^{129}I$  Aktivitätskonzentrationen der beprobten Böden lagen zwischen  $(266 \pm 12) \text{ nBq g}^{-1}$  und  $(1\,413 \pm 36) \text{ nBq g}^{-1}$  an der Oberfläche und  $(3,51 \pm 0,14) \text{ nBq g}^{-1}$  bis  $(0,76 \pm 0,09) \text{ nBq g}^{-1}$  in den tiefsten beprobten Schichten. Die  $^{127}I$ -Konzentrationen lagen im Bereich von  $(2\,473 \pm 200) \text{ ng g}^{-1}$  bis  $(5\,636 \pm 139) \text{ ng g}^{-1}$  an der Oberfläche und  $(1\,630 \pm 79) \text{ ng g}^{-1}$  bzw.  $(65 \pm 13) \text{ ng g}^{-1}$  in der Tiefe. Zur Erörterung ist es sinnvoll die Daten in Form von  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnissen (Abb. 5-29) und oberflächenprojizierten  $^{127}I$ - und  $^{129}I$ -Gehalten (Abb. 5-30) darzustellen. Die Isotopenverhältnisse an den Oberflächen lagen zwischen  $10^{-7}$  und  $10^{-8}$ . Selbst bei maximaler Probertiefe wird das niedrigste bisher an einem prä nuklearen Boden gemessene  $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnis von  $(5,7 \pm 1,1) \cdot 10^{-12}$  (Szidat et al., 2000b) um mehr als eine Größenordnung überschritten.

Eine räumliche Projektion des zeitlichen Eintrages auf die Tiefe ist nicht möglich, da Bodeneigenschaften die  $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnisse dominieren. Die  $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnisse in den Oberflächen sind um ein bis zwei Größenordnungen geringer als im Niederschlag, d. h. es tritt im Boden eine Veränderung der  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse ein. Die Isotopenverhältnisse zeigen keine kontinuierlichen Tiefenverläufe, d. h.  $^{129}I$  und  $^{127}I$  unterscheiden sich in ihrem anscheinenden Migrationsverhalten (Abb. 5-30). Eine Festlegung der Reihenfolge der Böden anhand der Iod-Gehalte zeigt, dass die Reihenfolge für  $^{129}I$  nicht der für  $^{127}I$  entspricht. Ein Migrationsmodell muss im Stande sein, dies unter Berücksichtigung der Bodeneigenschaften zu erklären.

Der Iod-Gehalt im Boden ist das Ergebnis des Eintrags aus nasser und trockener Deposition atmosphärischen Iods, das natürlicher Weise aus dem Meer stammt oder anthropogen über den Luft- und/oder Wasserpfad emittiert wird. Für  $^{127}I$  hat der Eintrag am Ende einer Eiszeit begonnen, während anthropogenes  $^{129}I$  erst seit den 1940er Jahren in nennenswertem Umfang in den Boden eingetragen wird. Damit unterscheiden sich die Eintragsfunktionen beider Nuklide um mehrere tausend Jahre. Aufgrund der Beobachtung, dass 99 % der gefundenen  $^{129}I$ -Gehalte bis zu

einer Tiefe von 47 cm bis 80 cm anzutreffen sind, folgt, dass die Verweilzeit im Boden ausreicht, um  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in gleiche chemische Spezies zu überführen. Damit ist der dynamische Prozess der Migration für beide Nuklide durch  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationsgradienten bestimmt, die sich über Jahrtausende mit dem jetzigen Gleichgewicht eingestellt haben. Dennoch ergeben sich für  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Gehalte unterschiedliche Tiefenverläufe.

Tabelle 5-15: Oberflächenprojizierte, tiefenintegrierte (Aktivitäts-) Konzentrationen nach Szidat et al. (2000b), Ernst et al. (2002, 2003), Michel et al. (2003b) sowie Anteile der Iod-Isotope in den jeweils obersten 30 cm der 7 niedersächsischen Tiefenprofile aus Ernst et al. (2002, 2003).

Bodennutzung und Probenstandort	$^{129}\text{I}$	Anteil in den oberen 30 cm	$^{127}\text{I}$	Anteil in den oberen 30 cm	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis
	in $\text{mBq m}^{-2}$	in %	in $\text{g m}^{-2}$	in %	
Weide Vestrup	$390 \pm 50$	96	$2,3 \pm 0,5$	81	$2,6 \cdot 10^{-8}$
Wald Eilenriede	$178 \pm 26$	93	$2,4 \pm 0,4$	46	$1,1 \cdot 10^{-8}$
Rasen Ricklingen	$118 \pm 25$	94	$2,5 \pm 0,4$	37	$7,2 \cdot 10^{-9}$
Geom. Mittel geschlossener Bewuchs	$201 \cdot 1,6^{\pm 1}$	-	$2,4 \cdot 1,03^{\pm 1}$	-	$1,3 \cdot 10^{-8}$
Acker Twenge	$158 \pm 20$	87	$3,1 \pm 0,5$	42	$7,5 \times 10^{-9}$
Acker Barum	$136 \pm 16$	94	$3,5 \pm 0,4$	41	$5,8 \times 10^{-9}$
Acker Adenstedt	$124 \pm 16$	94	$6,4 \pm 1,1$	21	$2,8 \times 10^{-9}$
Acker Groß Lobke	$171 \pm 23$	59	$7,2 \pm 0,9$	17	$3,5 \times 10^{-9}$
Geom. Mittel Äcker	$146 \cdot 1,2^{\pm 1}$	-	$4,8 \cdot 1,5^{\pm 1}$	-	$4,6 \cdot 10^{-9}$
Geom. Mittel gesamt	$168 \cdot 1,5^{\pm 1}$	-	$3,5 \cdot 1,6^{\pm 1}$	-	$7,1 \cdot 10^{-9}$
Geom. Mittel gesamt ohne Vestrup	$146 \cdot 1,2^{\pm 1}$	-	$3,8 \cdot 1,6^{\pm 1}$	-	$5,7 \cdot 10^{-9}$
Zhitomir Ukraine 1997	$38 \cdot 1,7^{\pm 1}$	-	$0,44 \cdot 1,3^{\pm 1}$	-	-
Moskau 1996	$49 \cdot 1,5^{\pm 1}$	-	$0,47 \cdot 1,5^{\pm 1}$	-	-
Ukraine (Zhitomir) 1997 + Moskau 1996	$40 \cdot 1,6^{\pm 1}$	-	$0,52 \cdot 2,1^{\pm 1}$	-	-
prä nuklearer Boden: Russland 1939	$0,084 \pm 0,017$	-	-	-	$1,5 \cdot 10^{-11}$

Vergleicht man die  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Tiefenverläufe (Abb. 5-30), so zeigt sich nur für  $^{129}\text{I}$  ein abweichendes Migrationsverhalten zwischen Ober- und Unterboden. Das lässt sich über unterschiedliche Adsorption/Desorption-Gleichgewichtseinstellungen erklären. Aufgrund der unterschiedlichen Eintragszeiträume, hat  $^{127}\text{I}$  bereits alle thermodynamisch günstigen Adsorptionsplätze besetzt. Das hat zur Folge, dass  $^{129}\text{I}$  nur dann im Boden immobilisiert werden kann, wenn es gegen immobilisiertes  $^{127}\text{I}$  ausgetauscht wird. Das ist nur dann möglich, wenn die Gleichgewichtseinstellungen dynamisch genug sind, sodass ein Austausch innerhalb des Eintragszeitraumes erfolgen kann. Die gleichmäßigeren  $^{127}\text{I}$ -Tiefenverläufe resultieren damit aus einer höheren Anzahl an Gleichgewichtseinstellungsmöglichkeiten. Die Bereiche stark abfallender  $^{129}\text{I}$ -Gehalte (Abb. 5-30) kennzeichnen die Übergänge zwischen Ober- und Unterboden. Dieser Bereich ist von der Variabilität der Wassersäule im Unterboden, dem Gehalt an organischem Material und der Infiltrationsraten von Sickerwasser abhängig.

Die plateauähnlichen Verläufe der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse (Abb. 5-29), im Oberboden sind nicht notwendigerweise das Ergebnis von Bodenbearbeitungen. Deutlich wird das am Acker „Groß Lobke“. Hier verläuft das Plateau ohne Störung über die übliche Pflugschartiefe hinaus. Das Plateau deckt sich dabei mit dem vorgefundenen Wurmhumus-Horizont. Ein weiterer Hinweis ist das Zwischenmaximum zwischen 30 cm und 40 cm im  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Tiefenverlauf des Ackers „Adenstedt“, das dort auftritt, wo eingelagertes organisches Material gefunden wurde.

Im Unterboden tragen vor allem die thermodynamisch stabilen Bindungen mit Tonmineralen zur Immobilisierung von Iod bei (Chemisorption ca.  $60 \text{ kJ mol}^{-1}$  bis  $450 \text{ kJ mol}^{-1}$ ) (Kümmel und Worch, 1990). Die Gleichgewichtslage der Adsorption/Desorption liegt auf Seiten der Adsorption. Damit ist es unwahrscheinlich, dass chemisorbiertes  $^{127}\text{I}$  gegen freies  $^{129}\text{I}$  ausgetauscht wird. Die  $^{129}\text{I}$ -Migration im Unterboden wird somit vorwiegend über den Wasserhaushalt bestimmt. Im Unterboden treten dort höhere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse auf, wo der vertikale Abfluss von Sickerwasser gestört wird - das ist bei den Böden „Twenge“ und „Barum“ ab 120 cm Tiefe der Fall - und wo kleinere Korngrößen (Schluff statt Sand) eine größere Oberfläche zur Adsorption bereitstellen. Dies führt zu den Zwischenmaxima in den Verläufen der Böden „Groß Lobke“, „Twenge“ und „Adenstedt“ (Abb. 5-29). Nimmt die Korngröße weiter ab und das Korngefüge wechselt vom Einzelkorngefüge zum Kittgefüge, beobachtet man ein weiteres Ansteigen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse, wie es beim Boden „Vestrup“ durchgängig deutlich wird (Abb. 5-29). Im Gegensatz zu den anderen Böden tritt hier neben einer hohen  $^{129}\text{I}$ -Immobilisierung eine effektivere  $^{127}\text{I}$ -Migration auf, die anhand der stärkeren Neigung des  $^{127}\text{I}$ -Tiefenverlaufs (Abb. 5-30) zu erkennen ist. Hier ist die Immobilisierung von Iod am Boden schwerer zu realisieren als bei Einzelkorngefüge. Ein Teil des Bodenwassers ist im Kittgefüge soweit gebunden, dass es seine Fließeigenschaften verliert. Damit ist der Stofftransport aus dem durchfließenden Wasser zum Boden stark eingeschränkt (Diffusionsgrenzschicht). Ein Teil des Iods wird mit dem durchfließenden Wasser verlagert. Ein anderer Teil verbleibt in der Diffusionsgrenzschicht. Diese Art der Immobilisierung ist thermodynamisch wenig stabil (Physisorptionsenthalpien  $> 60 \text{ kJ mol}^{-1}$ ) (Kümmel und Worch, 1990). Somit tritt hier wie sonst nur im Oberboden die  $^{129}\text{I}$ -Immobilisierung durch dynamischen Austausch von  $^{127}\text{I}$  gegen  $^{129}\text{I}$  verstärkt auf.

Im Oberboden sind die Verhältnisse anders. Das im Oberboden anzutreffende Wasser liegt als Teil der Bodenluft und in Form von Kapillar- und Haftwasseranteilen vor, sodass hier nur in Ausnahmefällen ein zeitlich und räumlich stationärer Wasserfluss erfolgt. Dadurch ist es möglich, Iod in Haft- und Kapillarwasser des Porenraumes über Evaporation und Transpiration anzureichern (Physisorption). Hier greift der bedeutende Einfluss von Bewuchs und Bodenbearbeitung. Die Iod-Migration ist umso schlechter je weniger es zu einem Austausch zwischen dem infiltrierten Regenwasser und dem Kapillar- und Haftwasser kommt. Die Immobilisierung von Iod durch Chemisorption an organischem Material ist im Ergebnis ähnlich, obwohl die Bindungen thermodynamisch als Chemisorption betrachtet werden muss. Hier führt die ständige Umsetzung von organischem Material in anorganisches (Mineralisierung) zu einem Austausch zwischen gebundenem und ungebundenem Iod (Schäfer, 1994). Darüber hinaus kann organisches Material durch Bodentiere verlagert werden. Bei stark saurer Reaktion findet ebenfalls eine Verlagerung von organischem Material statt, weil dann Nährstoffmangel den mikrobiellen Abbau der organischen wasserlöslichen Komplexbildner hemmt. Ein kühlfeuchtes Klima hemmt die Organistentätigkeit abermals (Scheffer und Schachtschnabel, 1998). Beide Voraussetzungen sind in der „Eilenriede“ gegeben, sodass hier der Übergang zwischen Ober- und Unterboden weniger scharf verläuft (Abb. 5-30). Insgesamt wird Iod im Oberboden unter hoher Verfügbarkeit gespeichert. Das Adsorptions-/Desorptionsgleichgewicht ist somit dynamisch genug, um nennenswerte Mengen an  $^{129}\text{I}$  zu immobilisieren.

Das hier beschriebene Modellkonzept einer Radionuklid-Migration, welches auf Austausch beruht, ist aufgrund der besonderen Eigenschaften von Iod eindeutig. Weder die Homologen des Iods noch andere Ionen sind anhand der Ladung, Größe und der Affinität zu Wasserstoff und Sauerstoff in der Lage Iod spezifisch aus dem Boden auszutauschen. Das Konzept kann auf andere Radionuklide angewandt werden, wenn Co-Absorptionen berücksichtigt werden (Ernst et al., 2002, 2003).

Für den Haushalt der Iod-Isotope in Böden sind mehrere Faktoren maßgeblich: Austausch des Niederschlags mit dem Oberboden in der wasserungesättigten Bodenzone, Austausch und Transport mit dem Oberflächenwasser, Rückemission in die Atmosphäre durch Evaporation und Transpiration, Akkumulation in der wasserungesättigten Bodenzone, Migration in tiefere Bodenschichten und die gesättigte Bodenzone sowie der Transport in das und mit dem Grundwasser.

Da man sowohl beim 50-jährigen Eintrag von  $^{129}\text{I}$  als auch beim jahrtausendelangen Eintrag von  $^{127}\text{I}$  von einer räumlichen Homogenität der tatsächlichen Depositionsdichte ausgehen kann, erscheint die Variabilität der tiefenintegrierten Konzentrationen bemerkenswert. Die tiefenintegrierten Konzentrationen (Tab. 5-15) sind durch Transportprozesse und Verluste aus der beprobten Zone beeinflusst. Sie variieren für  $^{127}\text{I}$  zwischen  $2,3 \text{ g m}^{-2}$  und  $7,2 \text{ g m}^{-2}$ , für  $^{129}\text{I}$  zwischen  $118 \text{ mBq m}^{-2}$  und  $390 \text{ mBq m}^{-2}$ . Für  $^{129}\text{I}$  befinden sich mit Ausnahme des Ackers Groß Lobke zwischen 87 % und 96 % des  $^{129}\text{I}$  in den obersten 30 cm der Profile. Im Acker groß Lobke sind es nur 59 %.  $^{127}\text{I}$  ist entsprechend der langen Eintragszeit wesentlich gleichmäßiger über die Profile verteilt und die Anteile in den obersten 30 cm liegen meist, teilweise deutlich unter 50 %. Nur in der Weide Vestrup befinden sich 81 % des  $^{127}\text{I}$  in den obersten 30 cm der Profile.

Das heißt, dass in den Böden  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  nicht im Gleichgewicht vorliegen und es fraglich ist, inwiefern die tiefenintegrierten Konzentrationen als integrale Depositionsdichten interpretierbar sind. Sie können für  $^{129}\text{I}$  lediglich als erste Näherung der integralen Depositionsdichten angesehen werden. Für  $^{127}\text{I}$  gilt diese Näherung nicht.

Tabelle 5-16: Gegenüberstellung der Iod-Gehalte im Niederschlag (Quelle) und in den Oberflächenwässern (Senke) im Vergleich zu Oberböden

	$^{127}\text{I}$ in $\text{ng g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Niederschlag	$2,7 \cdot 2,0^{\pm 1}$	$1\ 260 \cdot 2,3^{\pm 1}$	$4\ 610 \cdot 1,6^{\pm 1}$
Bestandsniederschlag	$5,6 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$2\ 460 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$4\ 300 \cdot 1,3^{\pm 1}$
Freilandniederschlag	$1,9 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$888 \cdot 2,1^{\pm 1}$	$4\ 730 \cdot 1,7^{\pm 1}$
Oberflächenwasser ohne Großes Meer	$6,6 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$95 \cdot 2,3^{\pm 1}$	$142 \cdot 2,4^{\pm 1}$
7 Niedersächsische Böden bis 40 cm Tiefe	-	-	$117 \cdot 2,5^{\pm 1}$
Grundwasser	$3,4 \cdot 2,0^{\pm 1}$	$8,3 \cdot 6,2^{\pm 1}$	$24 \cdot 6,8^{\pm 1}$

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Oberböden der 7 Bodenprofile sind deutlich niedriger als die im Niederschlag (Tab. 5-16). Sie überdecken den gleichen Wertebereich wie das Oberflächenwasser, wenn auch der geometrische Mittelwert etwas geringer ist. Damit sind die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Böden nur bedingt aussagekräftig. Ernst (2000) hat in diesem Zusammenhang den Einfluss des Oberflächenwassers und oberflächlicher Transportprozesse diskutiert. Mit dem Oberflächenwasser werden besonders die unspezifisch sorbierten Iod-Spezies verlagert. Es

fehlt bis heute eine Bilanzierung der verschiedenen Wege, die das Iod letztlich wieder zum Meer bringen. Die Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser sind außer von den Bodeneigenschaften bei gleichen aus dem Niederschlag ermittelten jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichten (Tab. 5-18) von der Orographie des Geländes und von Größe und Art der Wassereinzugsgebiete abhängig (Tab. 5-17). Das hat dann auch Auswirkungen auf die Isotopenverhältnisse in den Oberböden (Abb. 5-31).

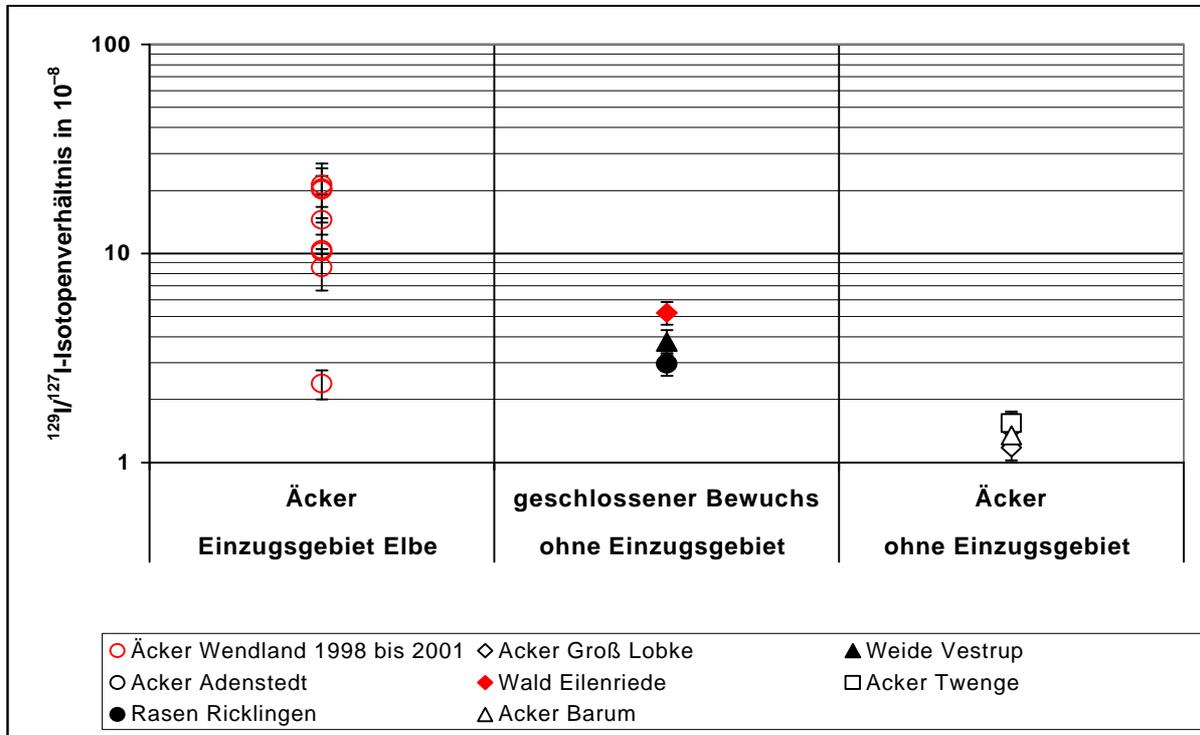


Abb. 5-31: Vergleich der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im und außerhalb eines Oberflächeneinzugsgebietes in Böden (Ernst, 2002, 2003)

Tabelle 5-17:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Oberflächenwasser unterschiedlich geneigter Bodentypografien

Oberflächenwässer	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in 10 <sup>-10</sup>	Literatur
Drei Flüsse in Niedersachsen 1997 bis 2001	17 bis 775	dieser Bericht und Szidat (2000)
Drei Flüsse der Schweiz 1996	180 bis 3 600	Szidat (2000)

Tabelle 5-18:  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichten in der Schweiz und in Niedersachsen im Vergleich

	Jährliche Depositionsdichte in $\text{mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	Literatur
Dübendorf bei Zürich, 1994	5,3	Schnabel et al. (2001a)
Dübendorf bei Zürich, 1995	3,8	
Dübendorf bei Zürich, 1996/97	2,3	
Niedersachsen, 1997	1,8 bis 5,7	Szidat (2000)
Niedersachsen, 1998	3,9 bis 6,6	
Niedersachsen, 1999 Januar bis Ende Juni	1,9 bis 3,4	

Tab. 5-19: Geometrische Mittelwerte und Standardabweichungen von  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in Oberböden. Die Tabelle fasst die Ergebnisse dieser Arbeit und der Dissertation von Ernst (2003) zusammen.

Region		$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
I	Wiese/Weide ( $n = 3$ )	$9,2 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$122 \cdot 1,1^{\pm 1}$	$130 \cdot 1,1^{\pm 1}$
I	Acker ( $n = 11$ )	$8,0 \cdot 2,1^{\pm 1}$	$97 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$120 \cdot 2,8^{\pm 1}$
II	Wiese/Weide (Ernst, 2003)	$3,3 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$58 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$171 \cdot 1,5^{\pm 1}$
II	Acker (Ernst, 2003)	$3,4 \cdot 1,1^{\pm 1}$	$46 \cdot 1,1^{\pm 1}$	$133 \cdot 1,1^{\pm 1}$
III	Wiese/Weide ( $n = 3$ )	$8,1 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$65 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$80 \cdot 1,4^{\pm 1}$
III	Acker ( $n = 15$ )	$2,3 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$50 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$214 \cdot 1,8^{\pm 1}$
III	Wald ( $n = 5$ )	$1,1 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$201 \cdot 2,6^{\pm 1}$	$1\,723 \cdot 2,4^{\pm 1}$
IV	Wiese/Weide ( $n = 8$ )	$0,8 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$92 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$1\,133 \cdot 2,0^{\pm 1}$

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens wurden keine Bodenprofile untersucht, sondern Bodenproben, die zur Beurteilung des Transfers in Nahrungskette relevant sind. Es handelte sich um für das zu beprobende Gelände repräsentative Bodenmischproben aus einer Bodentiefe von 30 cm. Die Ergebnisse der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Analysen sind in Tab. III.24 im Anhang wiedergegeben. Tab. 5-19 fasst die Ergebnisse dieser Analysen für die vier Regionen Niedersachsens zusammen. Zur Vervollständigung sind auch die Ergebnisse der 0 bis 30 cm Schicht der sieben Bodenprofile aus Region II (Ernst et al., 2002, 2003) mit aufgeführt.

Für  $^{127}\text{I}$  sind die hohen Gehalte in den Böden aus Region I auffällig. Dies ist sicherlich dem direkten Einfluss der Nordsee über Seaspray zuzuschreiben. Auch die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in Region I sind signifikant höher als die Gehalte in Wiesen- und Ackerböden aus den übrigen Regionen. Auffällig sind weiterhin die niedrigen  $^{127}\text{I}$  Gehalte in Region IV denen relativ hohe  $^{129}\text{I}$ -Gehalte gegenüberstehen. Dies wurde von Ernst (2003) als Auswirkung unterschiedlicher Oberflächeneinzugsgebiete auf den Transport von Iod-Isotopen mit dem Oberflächenwasser diskutiert.

Eine Sonderstellung nehmen die in dieser Arbeit untersuchten Böden von Waldstandorten ein. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte sind relativ niedrig und nehmen in der Richtung Spreu > Auflage > Boden ab. Andererseits sind die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte außergewöhnlich hoch, aber auch sie unterscheiden sich mit fallenden Gehalten in derselben Reihenfolge. Bisher sind uns keine Arbeiten zum Verhalten von Iod in Wald-Ökosystemen bekannt. Unsere Ergebnisse weisen aber auf die Bedeutung des organisch gebundenen Iods und die Akkumulation in der organischen Bodenauflage hin.

Im Boden verhalten sich  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  aufgrund des unterschiedlichen Sorptions- und Migrationseigenschaften von „altem“ und rezemem Iod anscheinend verschieden. In Abb. 5-32 sind für die untersuchten Bodenproben die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von den  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Kontext der bisher betrachteten Umweltkompartimente Nordseewasser, Regenwasser und Grundwasser dargestellt. Während für die natürlichen Wässer die absoluten  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen direkt verglichen werden können, ist dies für die Bodenproben wegen einer anderen Matrix als Bezugsgröße nicht möglich.

Abb. 5-32 zeigt jedoch, dass die Böden in den standardisierten Diagrammen einen eigenen, deutlich von den Wässern getrennten Bereich belegen. Dabei sind diese Bereiche für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Form und Lage sehr unterschiedlich. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in den landwirtschaftlich genutzten Böden sind nicht mit den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen korreliert. Obwohl die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte einen Bereich von  $30 \text{ fg g}^{-1}$  bis  $154 \text{ fg g}^{-1}$  überdecken, wirken die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in der Darstellung von Abb. 5-32 jedoch sehr ähnlich.

Für  $^{127}\text{I}$  sieht die grafische Darstellung anders aus. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte liegen zwischen  $0,5 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $20 \mu\text{g g}^{-1}$ . Es zeigt sich eine deutliche Antikorrelation zwischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen und den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten. Die Waldböden zeigen sich zwar auch hier auffällig, passen sich jedoch in etwa der Korrelation der Daten der landwirtschaftlich genutzten Böden an.

Abb. 5-33 belegt, dass die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte bzw. die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte für die Kompartimente Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser sowie Boden in der gewählten Darstellung wohl definierte Bereiche einschließen. Die  $^{127}\text{I}$ - und die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in Böden können nur durch eine Akkumulation der Iod-Isotope erklärt werden: Für  $^{129}\text{I}$  entsprechen sie denen des Meerwassers, für  $^{127}\text{I}$  gehen sie als Folge langer Akkumulationszeiten um Größenordnungen über die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte des Nordseewassers hinaus. Diese Akkumulation in der wasserungesättigten Bodenzone, der die untersuchten Oberflächenproben entstammen, kann zum einen durch die von Ernst (2003) und Ernst et al. (2002, 2003) begründete, bei der Migration in Böden erfolgende Akkumulation, zum anderen durch die Sorption an und die Inkorporation in die Biomasse erklärt werden. Die im Rahmen einer Größenordnung konstanten  $^{129}\text{I}$ -Gehalte belegen, dass der überwiegende Teil des rezemten  $^{129}\text{I}$  noch im Oberboden vorhanden ist. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in Oberflächen- und Grundwasser zeigen einen zunehmenden Verdünnungsprozess des  $^{129}\text{I}$  beim horizontalen und vertikalen Transport mit  $^{127}\text{I}$ . Die im Rahmen von etwa 1,5 Größenordnungen konstanten  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in den Oberflächen- und Grundwässern sind Ausdruck eines über lange Zeiten eingestellten Gleichgewichtes, das in vielfältiger Weise aufgrund hydrologischer und pedologischer Einflüsse variiert.

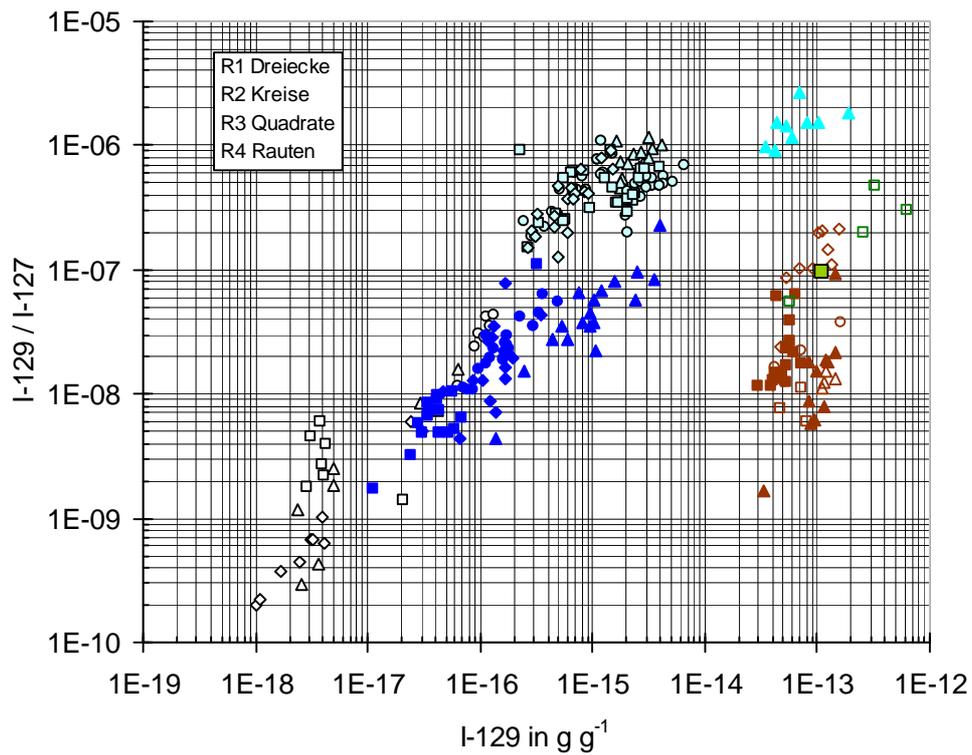
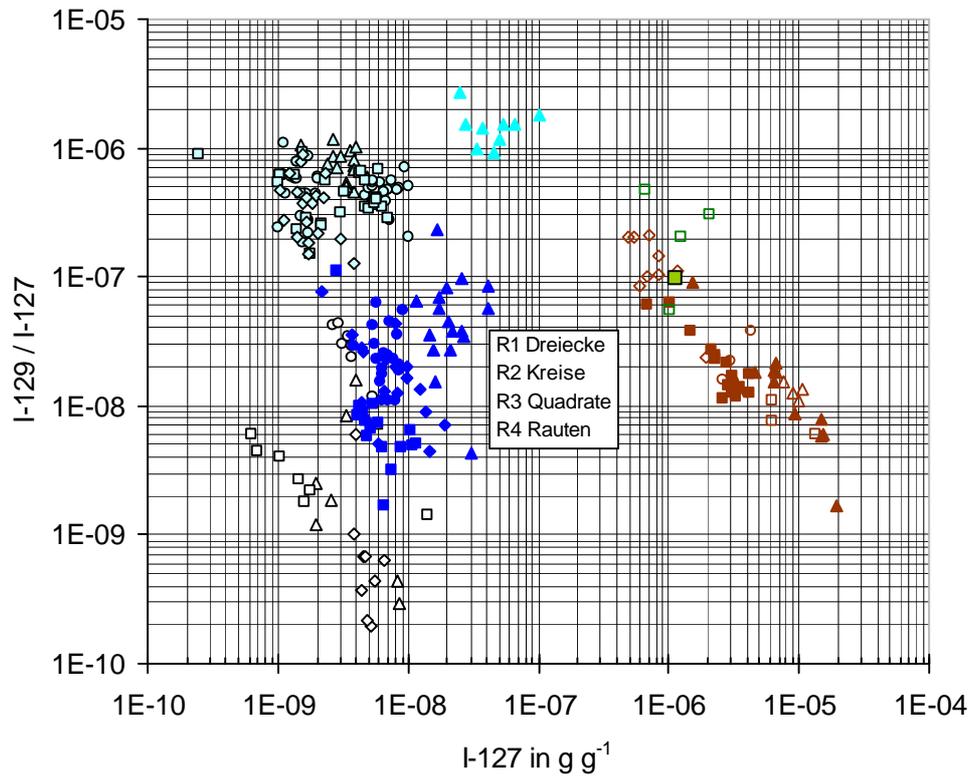
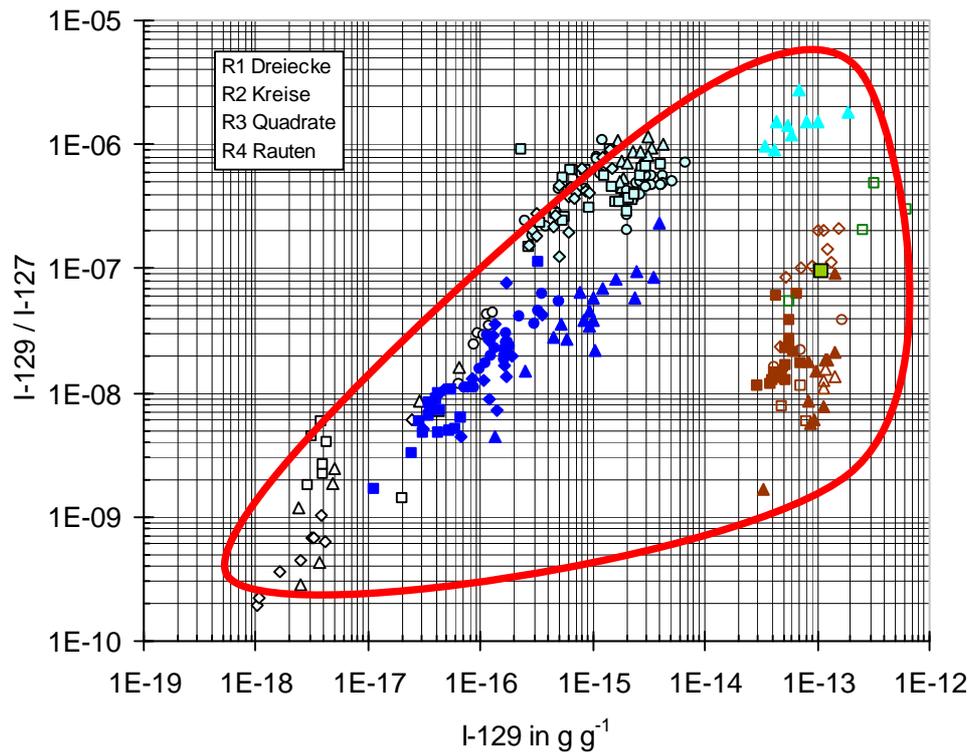
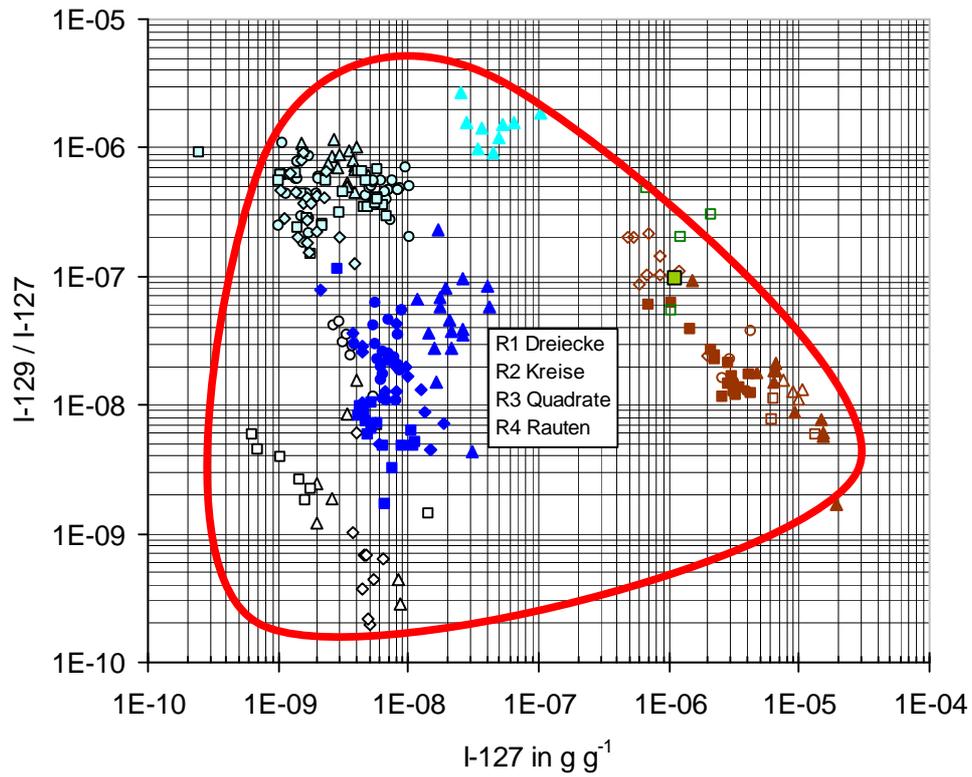


Abb. 5-32:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser und im Oberboden aus Niedersachsen.

Auf dem Weg der Iod-Isotope in die Biosphäre ist zu erwarten, dass die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte bzw. die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte von biosphärischen Materialien sich in den in Abb. 5-33 eingezeichneten Bereichen anordnen. Daten außerhalb dieser Bereiche sind nur möglich, wenn eine zusätzliche  $^{129}\text{I}$ - oder  $^{127}\text{I}$ -Quelle vorhanden ist, die nicht dem System Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser und Boden zuzuordnen ist, oder wenn Organismen oder Gewebe selektiv Iod aufkonzentrieren. Eine solche „externe“ Quelle könnte z. B. die direkte Kontamination von oberflächlichen Pflanzenteilen durch trockene Deposition sein. Selektive Aufkonzentrierung ist z. B. für Schilddrüsengewebe zu erwarten.

Die in Abb. 5-33 dargestellten Bereiche „zulässiger“ Isotopenverhältnis/Gehalt-Wertepaare machen das unterschiedliche Verhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  deutlich, dass durch die unterschiedlichen Zeitskalen des Eintrags verursacht werden und die in Böden dann zu unterschiedlich starker Sorption, unterschiedlicher Speziation, Mobilität und Verfügbarkeit führen. Die Dynamik der Austausch-, Migrations- und Sorptionsprozesse ist hier entscheidend.

Bei näherer Betrachtung (Abb. 5-34) verstärkt sich der Eindruck des unterschiedlichen Verhaltens der Iod-Isotope. Das heißt, die Unterschiede in den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in Böden werden überwiegend durch die Vermischung mit im Boden bereits vorhandenem  $^{127}\text{I}$  erzeugt. Die Variabilität der  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in den Böden beeinflusst die Isotopenverhältnisse nur in geringerem Maße.



▲ Ackerboden,R1	■ Ackerboden,R3	△ Wiesenboden,R1	□ Wiesenboden,R3
◇ Wiesenboden,R4	△ Grundw asser,R1	○ Grundw asser,R2	□ Grundw asser,R3
◇ Grundw asser,R4	▲ Meerw asser,R1	▲ Oberfl.Wasser,R1	● Oberfl.Wasser,R2
■ Oberfl.Wasser,R3	◆ Oberfl.Wasser,R4	△ Regen,R1	○ Regen,R2
□ Regen,R3	◇ Regen,R4	□ Boden,Wald,R3	● Ackerboden, R2
○ Wiesenboden, R2	■ Boden zu Birke, R3		

Abb. 5-33:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser und im Oberboden aus Niedersachsen.

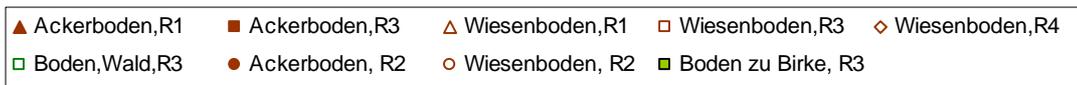
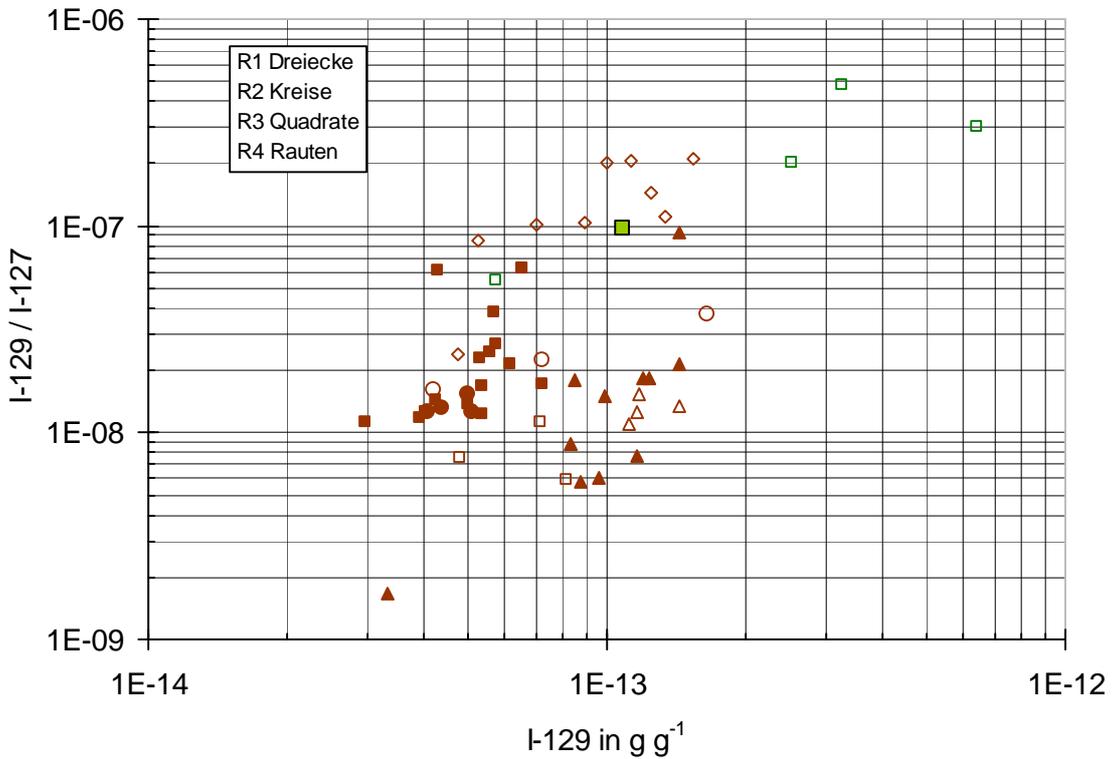
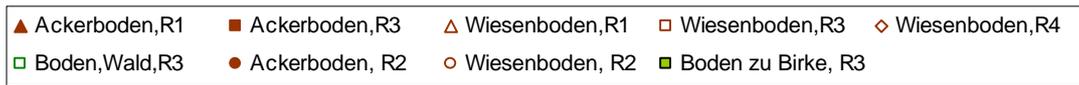
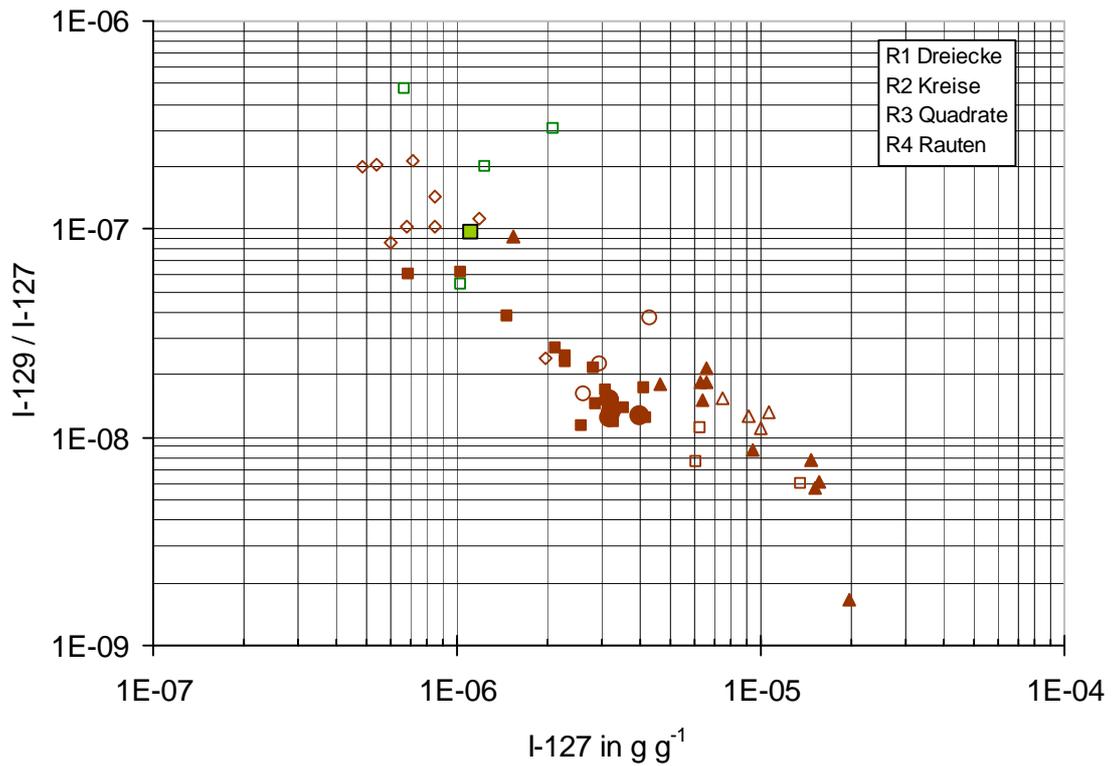


Abb. 5-34:  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}I$ - bzw.  $^{129}I$ -Gehalte im Oberboden aus Niedersachsen.

Die unterschiedlichen  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in den Bodenproben (Abb. 5-33) sind auf die Einwirkungen der Nordsee (Region I) bzw. auf besondere hydrologische Gegebenheiten (Region IV) zurückzuführen. Dies belegen auch die relativ geringen Unterschiede der Gehalte der landwirtschaftlich genutzten Böden und die sehr kleinen geometrischen Standardabweichungen (Tab. 5-19). Besonders klar wird in Abb. 5-34 die Besonderheit der Waldstandorte; hier sind weitere Untersuchungen notwendig.

#### 5.4.6 Pflanzliche Nahrungsmittel und Futtermittel

Eine Zusammenfassung der Ergebnisse der Analysen pflanzlicher Nahrungsmittel und Futtermittel ist in Tab. 5-20 gegeben. Dort sind auch die Ergebnisse für Beerenobst und Pilze mit eingeschlossen. Die Einzelergebnisse der Analysen sind in Tab. III.24 im Anhang aufgeführt. Die im Rahmen dieses Vorhabens untersuchten Proben pflanzlicher Nahrungsmittel und Futtermittel fügen sich in das zu Abb. 5-33 abgeleitete Schema ein. Die Daten liegen überwiegend im Bereich des durch die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die Gehalte der beiden Iod-Isotope in Niederschlag, Oberflächenwasser und Boden aufgespannten Bereichs (Abb. 5-35). Lediglich die Proben von Weidebewuchs aus Region I liegen außerhalb des „erlaubten“ Bereichs. Hier wird der Einfluss der direkten oberflächlichen Kontamination durch Seaspray deutlich.

Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte aller Proben pflanzlicher Nahrungs- und Futtermittel variieren zwischen  $0,002 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $2,8 \mu\text{g g}^{-1}$ , die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte zwischen  $0,17 \text{fg g}^{-1}$  und  $351 \text{fg g}^{-1}$  und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $161 \cdot 10^{-10}$  und  $14\,000 \cdot 10^{-10}$ . Weder die Isotopenverhältnisse noch die Gehalte zeigen, auch bei näherer Betrachtung (Abb. 5-36), eine einfache oder eindeutige Systematik. Grob lässt sich jedoch eine Unterscheidung von Weidebewuchs, Getreide und Blattgemüse und Wurzelgemüse treffen.

Der Weidebewuchs zeigt trotz beträchtlichen Variationen die höchsten  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalte. Beim Weidebewuchs beobachtet man für die  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in etwa dasselbe Verhalten wie für ihre Gehalte im Boden, d. h. die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse fallen mit zunehmenden  $^{127}\text{I}$ -Gehalten. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten nicht korreliert. Dies muss durch ein Überwiegen des Transfers aus dem Boden in die Pflanze gegenüber der Bedeutung der nassen und trockenen Deposition verursacht sein. Auch wenn einige Proben des Weidebewuchses (vor allem aus Region I) die Auswirkungen der atmosphärischen Deposition erkennen lassen.

Die Proben von Getreide, Blatt- und Wurzelgemüse zeigen deutlich niedrigere  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalte. Trotz der geringen Probenanzahlen lässt sich in der Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte auch hier grob der Einfluss des Wurzelpfades erkennen. Ohne der Diskussion der Transferfaktoren vorzugreifen, kann man erkennen, dass Getreide und Blattgemüse in Abb. 5-36 bei gleichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen um ca. eine Zehnerpotenz niedrigere  $^{127}\text{I}$ -Gehalte und die Knollen- und Wurzelgemüse um ca. zwei Zehnerpotenzen niedrigere  $^{127}\text{I}$ -Gehalte als Weidebewuchs und Boden aufweisen. Auch für  $^{129}\text{I}$  (Abb. 5-36) lässt sich diese Unterscheidung treffen.

Unter den Proben mit den höchsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen ( $> 10^{-7}$ ) überwiegen, wie man es nach den Niederschlagsdaten erwartet, Proben aus Region I. Für Knollen- und Wurzelgemüse werden keine  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse  $> 10^{-6}$  erreicht.

Die pflanzlichen Nahrungsmittel weisen allgemein sehr niedrige  $^{127}\text{I}$ -Gehalte auf: Blatt-, Knollen- und Wurzelgemüse  $< 0,05 \mu\text{g g}^{-1}$ , Getreide  $< 0,2 \mu\text{g g}^{-1}$  und Beerenobst  $< 0,02 \mu\text{g g}^{-1}$ . Die höchsten  $^{127}\text{I}$ -Gehalte wurden in Maronenröhrlinge mit  $1,9 \mu\text{g g}^{-1}$  gemessen, Steinpilze und Schirmlingen zeigen  $^{127}\text{I}$ -Gehalte  $< 0,25 \mu\text{g g}^{-1}$ . Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte zeigen eine hohe Variabilität. Auffällig ist der

Kopfsalat aus Region I, der dem direkten Einfluss des Seasprays der Nordsee ausgesetzt war. Alle Proben von Wurzelgemüse haben  $^{129}\text{I}$ -Gehalte  $< 2 \text{ fg g}^{-1}$ . Die höchsten  $^{129}\text{I}$ -Gehalte werden bei den pflanzlichen Nahrungsmitteln bei den Pilzen beobachtet, während Beerenobst nicht auffällig ist. Eine weitere Diskussion dieser Ergebnisse wird in Kapitel 6.1 im Zusammenhang mit den ermittelten Transferfaktoren geführt werden.

Tabelle 5-20: Zusammenfassung der Ergebnisse für pflanzliche Nahrungsmittel und Futtermittel. Die Einzelergebnisse mit Messunsicherheiten und weiteren Informationen finden sich im Anhang, Tab. III-24 u. III-27.

Region	Material	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Weidebewuchs				
I	Heu ( $n = 3$ )	$1,36 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$238 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$1\,720 \cdot 1,7^{\pm 1}$
III	Gras ( $n = 2$ )	$0,96 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$41,8 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$429 \cdot 1,7^{\pm 1}$
III	Heu	0,37	17,4	464
IV	Weidebewuchs ( $n = 8$ )	$1,44 \cdot 1,8^{\pm 1}$	$112 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$764 \cdot 1,8^{\pm 1}$
Blattgemüse				
I	Kopfsalat	0,024	9,44	3 850
I	Weißkohl	$< 0,005$	$< 0,3$	-
I	Blumenkohl	$< 0,007$	$< 0,4$	-
I	Wirsingkohl	0,012	$< 0,5$	-
I	Lauch	0,049	8,36	1 690
III	Wirsingkohl	0,020	27,7	14 000
III	Lauch	0,016	1,3	814
Knollen- und Wurzelgemüse				
I	Kartoffeln	0,013	0,42	323
I	Kohlrabi	0,0059	0,17	287
I	Radieschen	0,0182	1,60	862
III	Kohlrabi	0,049	0,80	161
Getreide				
I	Gerste	0,096	49,3	5 050
I	Hafer	0,14	32,9	2 350
I	Weizen	0,12	8,45	675
III	Weizen	0,18	6,67	361
III	Gerste ( $n = 2$ )	$0,063 \cdot 5,0^{\pm 1}$	$5,53 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$865 \cdot 3,8^{\pm 1}$
Beerenobst				
III	Brombeeren	0,014	1,05	768
III	Himbeeren	0,012	7,30	593
Pilze				
III	Schirmlinge	0,12	29,9	2410
III	Steinpilze	0,24	8,6	348
III	Maronen-Röhrlinge	1,9	28,0	149

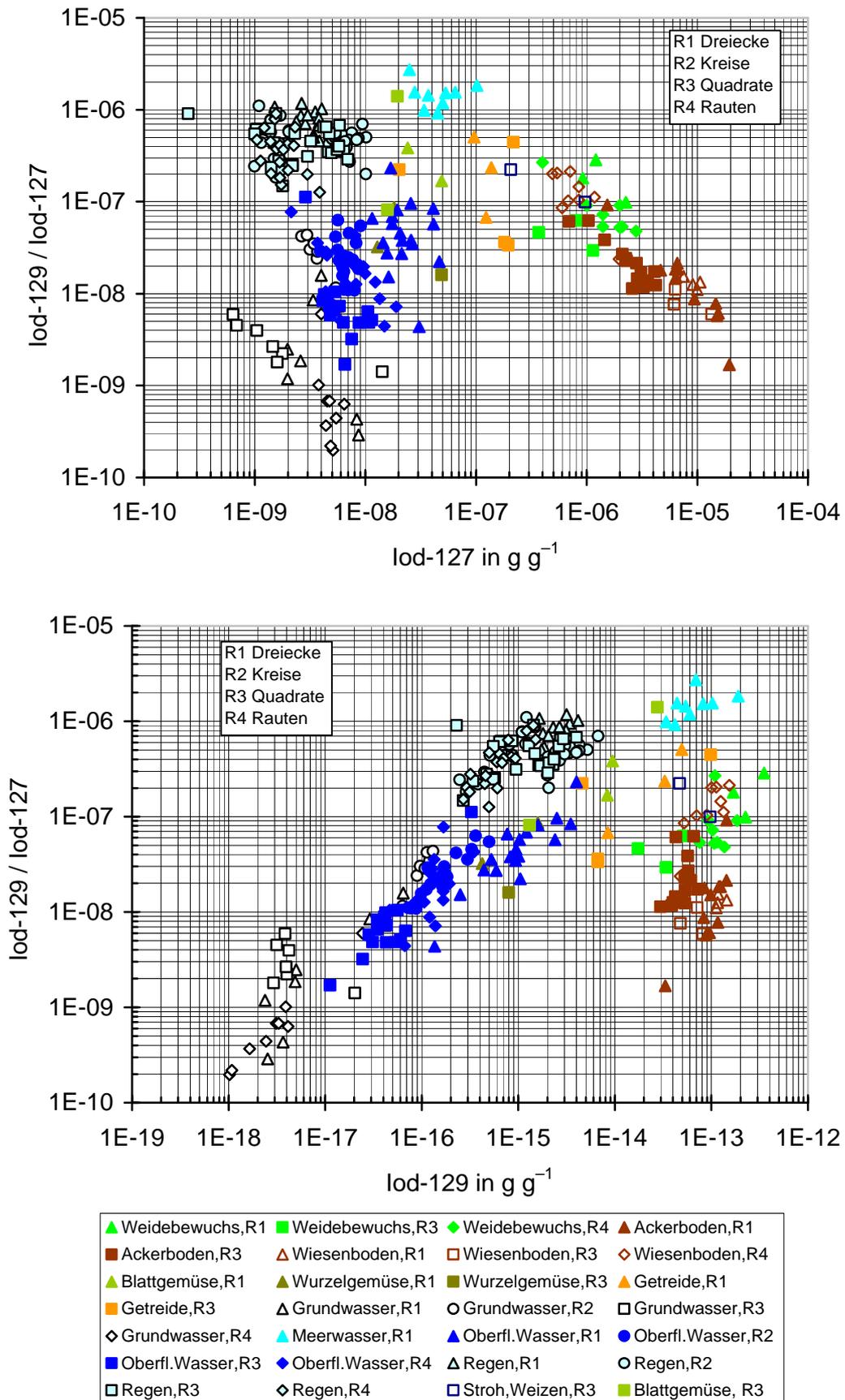


Abb. 5-35:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Oberboden, Bewuchs, Getreide und Gemüse aus Niedersachsen.

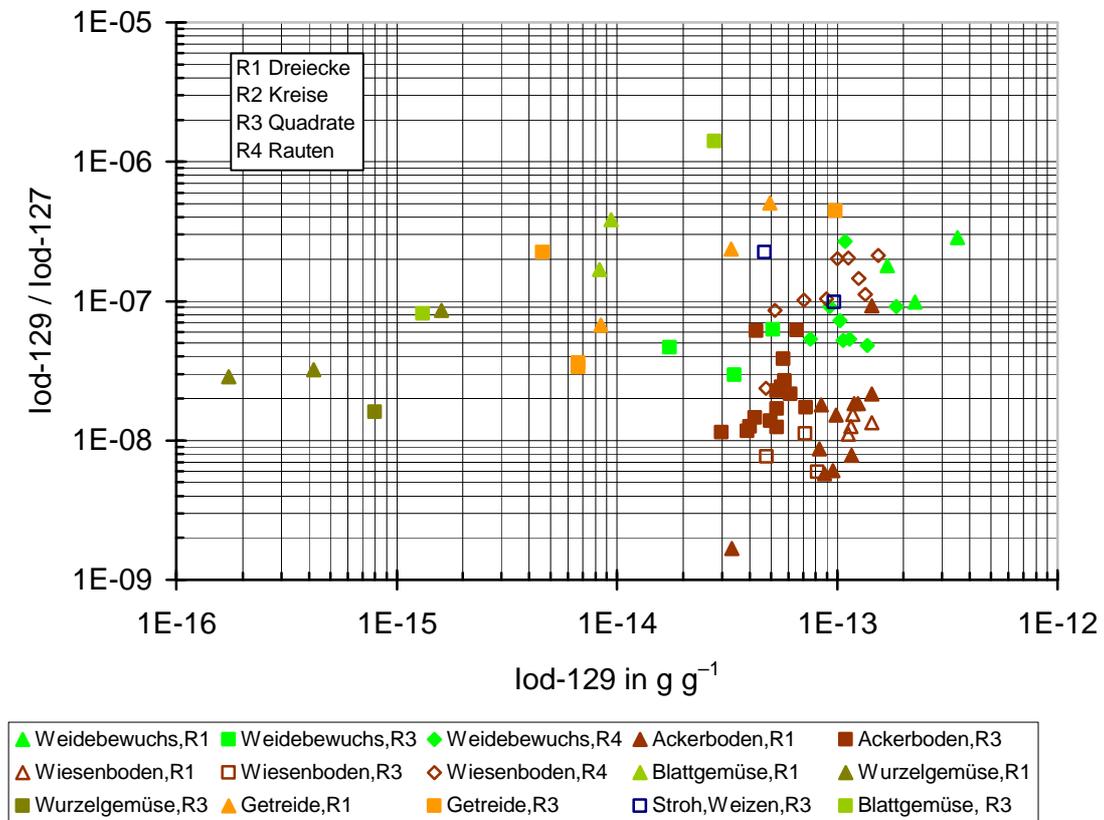
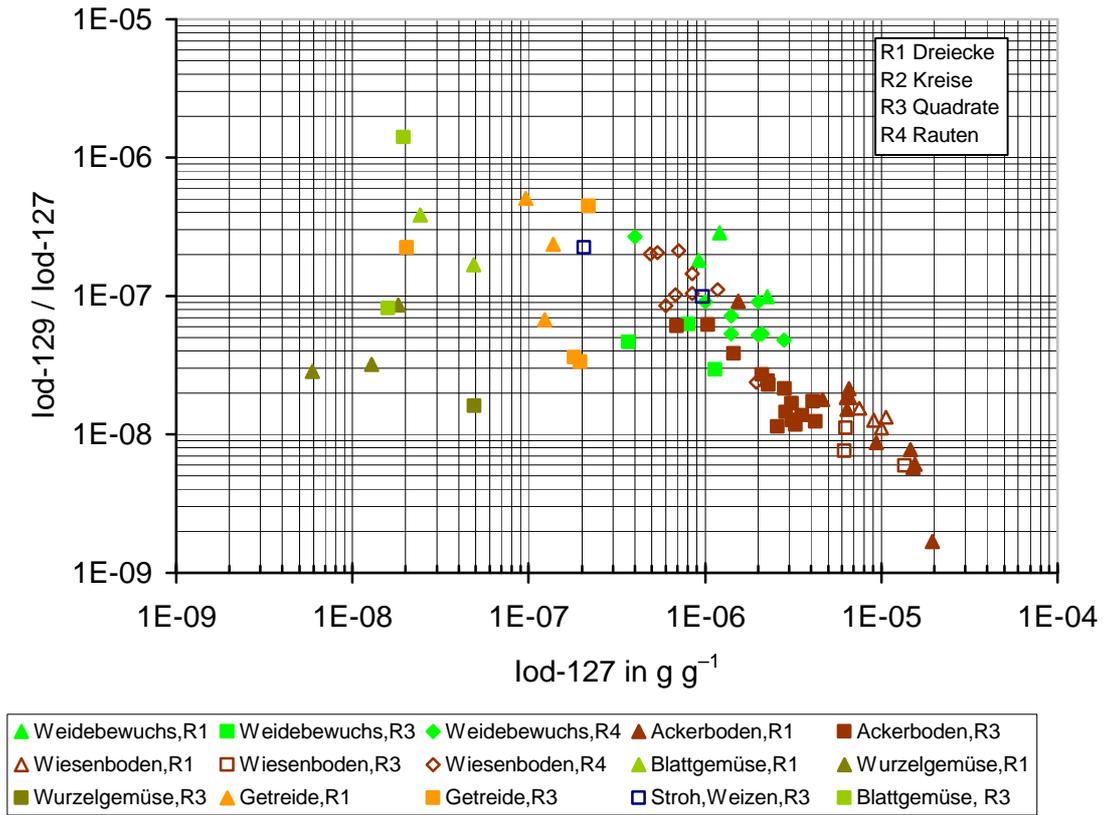


Abb. 5-36:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Oberboden, Bewuchs, Getreide und Gemüse aus Niedersachsen.

## 5.4.7 Tierische Nahrungsmittel

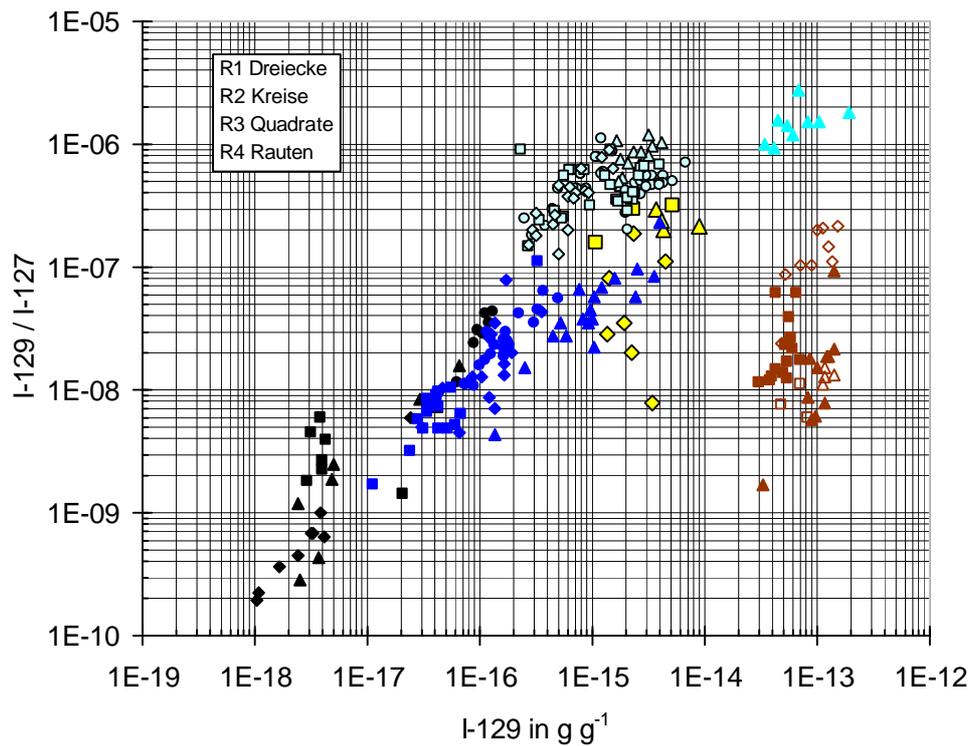
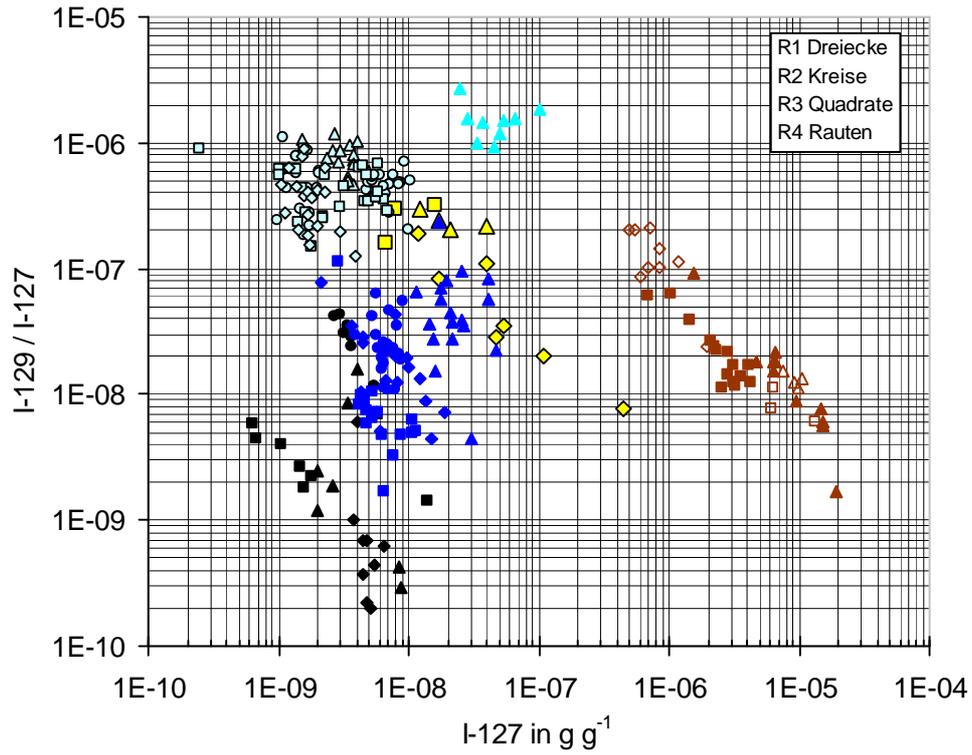
An tierischen Nahrungsmitteln wurden aus landwirtschaftlicher Erzeugung Kuhmilch und Rind-, Schweine-, Schaf- und Ziegenfleisch sowie von einem Waldstandort Rehfleisch untersucht. Außerdem wurden Schilddrüsen von Rind, Schwein und Schaf untersucht. Von besonderer Bedeutung ist im Hinblick auf den Transfer von radioaktiven Iod-Isotopen aus der Umwelt zum Menschen ist die Milch, die für die Strahlenexposition durch kurzlebige  $^{131}\text{I}$  nach Fallout-Ereignissen eine Schlüsselrolle spielt. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse für Kuhmilch ist in Tab. 5-21 dargestellt. Die Einzelergebnisse sind in Tab. III.24 im Anhang aufgeführt. Für die folgende Diskussion werden für Milch nicht nur die Ergebnisse dieses Vorhabens für die Regionen I und III, sondern auch früher gemessene Daten für zwei Standorte aus Region IV herangezogen.

Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte der Kuhmilchproben liegen zwischen  $0,007 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $0,44 \mu\text{g g}^{-1}$ , die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte zwischen  $1,1 \text{ fg g}^{-1}$  und  $8,8 \text{ fg g}^{-1}$  und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $77 \cdot 10^{-10}$  und  $3\,210 \cdot 10^{-10}$ . Für  $^{127}\text{I}$  sind die geometrischen Mittelwerte der Proben aus den Regionen I, III und IV (Marleben) relativ ähnlich ( $0,01 \mu\text{g g}^{-1}$  bis  $0,02 \mu\text{g g}^{-1}$ ). Die Proben aus Meetschow haben einen fünffach höheren geometrischen Mittelwert von  $0,10 \mu\text{g g}^{-1}$ . Beim  $^{129}\text{I}$  ist der geometrische Mittelwert der Gehalte der Proben aus Region I gegenüber den Mittelwerten der Gehalte der Proben aus den Regionen III und IV um etwa das Doppelte erhöht. Bei den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen sind die Mittelwerte für die Regionen I und III gegenüber denen aus Region IV um ein Vielfaches erhöht. All dies deutet auf eine hohe Komplexität des Transfers der Iod-Isotope in die Milch hin. Dies kann anhand der Darstellungen der Isotopenverhältnisse als Funktion der Gehalte diskutiert werden (Abb. 5-37).

Tab. 5-21: Zusammenfassung der Ergebnisse für Kuhmilch aus den Regionen I, III und IV. Die Einzelergebnisse mit Messunsicherheiten und weiteren Informationen finden sich im Anhang Tab. III.24.

Region	Probenanzahl	Probenahmeort	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
I	n = 4	Neßmerpolder	$0,020 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$4,9 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$2\,362 \cdot 1,2^{\pm 1}$
III	n = 3	HLW	$0,0093 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$2,3 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$2\,479 \cdot 1,5^{\pm 1}$
IV	n = 3	Marleben	$0,021 \cdot 2,0^{\pm 1}$	$1,7 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$761 \cdot 2,6^{\pm 1}$
IV	n = 4	Meetschow	$0,10 \cdot 2,9^{\pm 1}$	$2,8 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$278 \cdot 3,0^{\pm 1}$

Die Daten liegen alle im Bereich der durch die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die Gehalte der beiden Iod-Isotope in Niederschlag, Oberflächenwasser und Boden aufgespannten Bereich (Abb. 5-37). Die maximalen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen höher als die im Boden, nahe oder in dem Bereich der für Niederschlag und Oberflächenwasser. Hier wird die Bedeutung des Wassers für den Transfer von Iod in die Nahrungskette deutlich. Insgesamt sind die Daten für Kuhmilch klar vom Bereich der im Boden gemessenen Werte abgesetzt.



▲ Ackerboden,R1	■ Ackerboden,R3	△ Wiesenboden,R1	□ Wiesenboden,R3	◇ Wiesenboden,R4
▲ Grundw.asser,R1	● Grundw.asser,R2	■ Grundw.asser,R3	◆ Grundw.asser,R4	▲ Meerw.asser,R1
▲ Milch,R1	■ Milch,R3	◆ Milch,R4	▲ Oberfl.Wasser,R1	● Oberfl.Wasser,R2
■ Oberfl.Wasser,R3	◆ Oberfl.Wasser,R4	△ Regen,R1	○ Regen,R2	□ Regen,R3
◇ Regen,R4				

Abb. 5-37:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Oberboden und in Kuhmilch aus Niedersachsen.

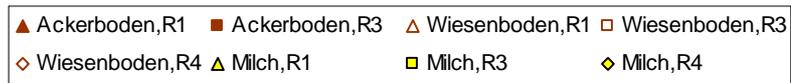
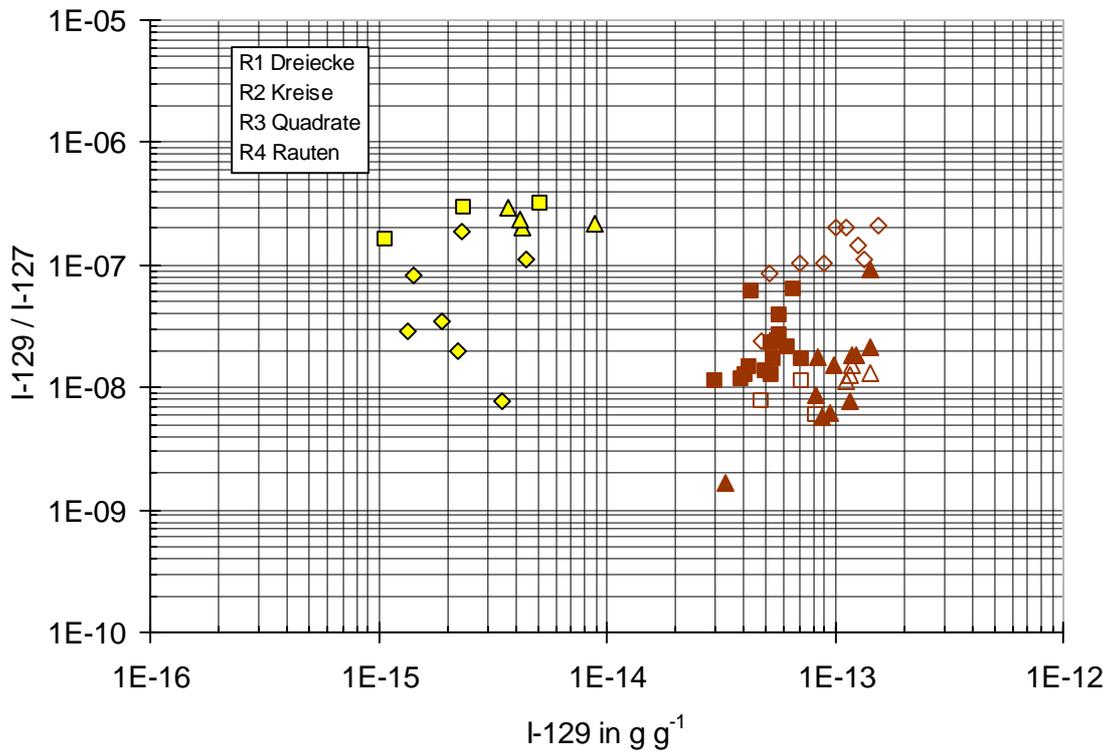
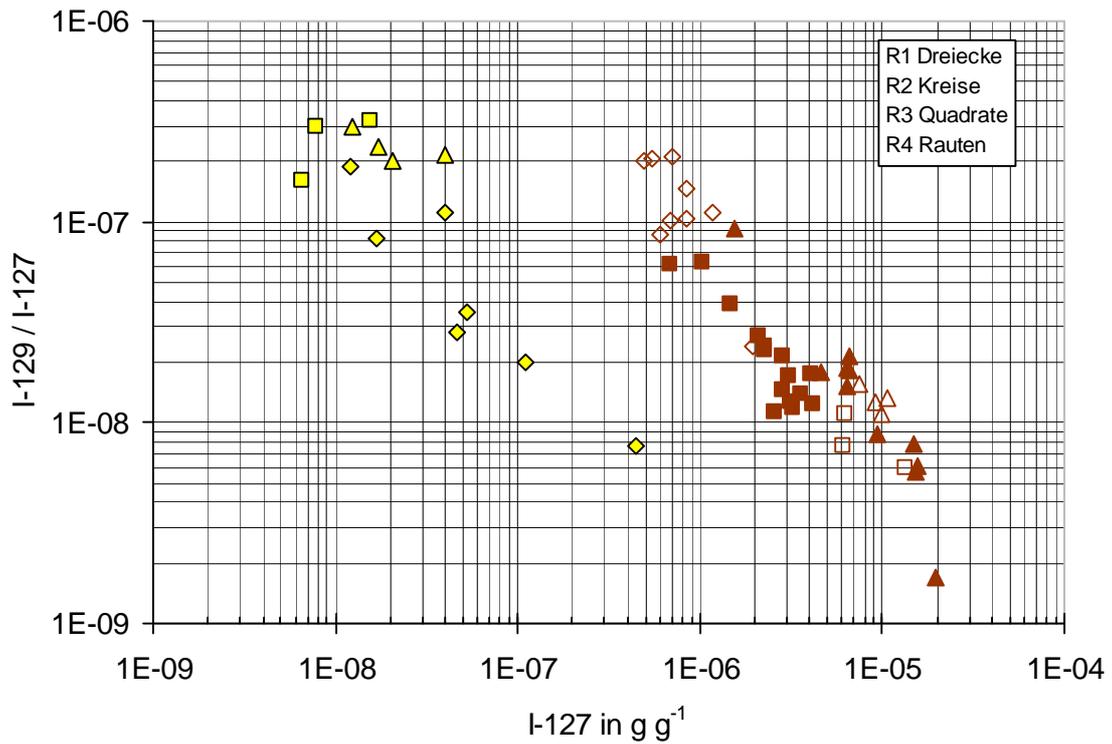


Abb. 5-38:  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}I$ - bzw.  $^{129}I$ -Gehalte im Oberboden und in Kuhmilch aus Niedersachsen.

Bei näherer Betrachtung (Abb. 5-38) der Gehalte und Isotopenverhältnisse zeigt sich jedoch die Komplexität des Transfers der Iod-Isotope in die Milch. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Kuhmilch sind deutlich mit den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten korreliert; sie sinken mit steigenden  $^{127}\text{I}$ -Gehalten. Die Gehalte und Isotopenverhältnisse überstreichen jeweils einen Bereich von anderthalb Zehnerpotenzen. Für den Transfer von  $^{129}\text{I}$  zum Menschen bedeutet dies, dass die Milch mit den höchsten  $^{127}\text{I}$ -Gehalten, die geringsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aufweist. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte der Kuhmilch liegen bei gleichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen etwa eine Zehnerpotenz niedriger als im Boden, was etwa dem bekannten Transferfaktor von etwa  $0,1 \text{ L kg}^{-1}$  entspricht (vgl. Kap. 6.1).

Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte zeigen keinen so eindeutigen Zusammenhang mit den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen (Abb. 5-38). Sie sind allerdings bei gleichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen ebenso wie die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte um etwa eine Zehnerpotenz niedriger als im Boden und lassen einen ähnlichen Transferfaktor erwarten (vgl. Kap. 6.1).

Tabelle 5-22 fasst die Ergebnisse der Analysen von tierischen Geweben (Muskelfleisch) und Schilddrüsen zusammen. Die Einzelergebnisse sind in Tab. III.24 im Anhang aufgeführt. Abb. 5-39 gibt die Ergebnisse in Form einer generellen Übersicht über die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als Funktion der  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte wieder. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in Muskelfleisch liegen zwischen  $0,027 \mu\text{g g}^{-1}$  (Schaffleisch) und  $0,28 \mu\text{g g}^{-1}$  (Ziegenfleisch). Im Schweinefleisch und im Rehfleisch liegen die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte unter den Erkennungsgrenzen. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in den entsprechenden Schilddrüsen liegen etwa drei Größenordnungen höher. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Muskelfleisch sind relativ ähnlich zwischen  $1,2 \text{ fg g}^{-1}$  und  $11 \text{ fg g}^{-1}$ . Für Schweinefleisch konnte nur eine obere Grenze für  $^{129}\text{I}$  angegeben werden, die aber in gleichen Bereich liegt. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte der Schilddrüsen sind etwa vier Zehnerpotenzen höher als die in Muskelfleisch.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Fleischproben liegen zwischen  $3,1 \cdot 10^{-8}$  und  $4,4 \cdot 10^{-8}$ . Für Rind und Schaf liegen sie in Muskelfleisch um Faktoren von 6 bzw. 10 niedriger als in den entsprechenden Schilddrüsen. Dies wäre nur auf Grund unterschiedlicher Bioverfügbarkeit der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Spezies im Iod-Stoffwechsel der Schilddrüse zu erklären. Der Grund hierfür ist nicht klar und bedarf weiterer Untersuchungen, insbesondere einer höheren Probenanzahl.

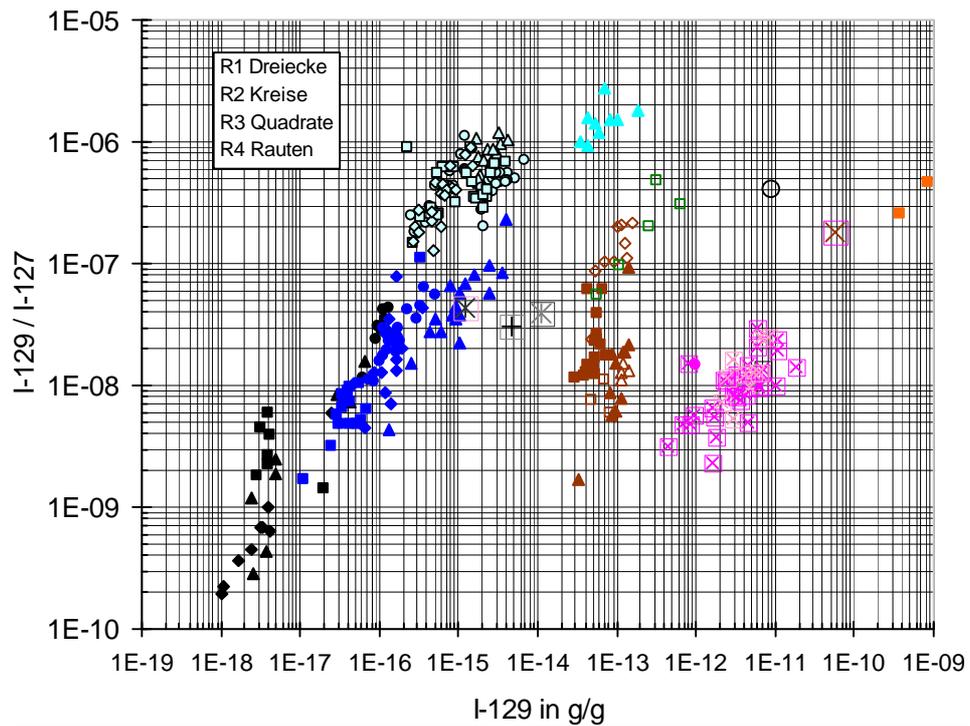
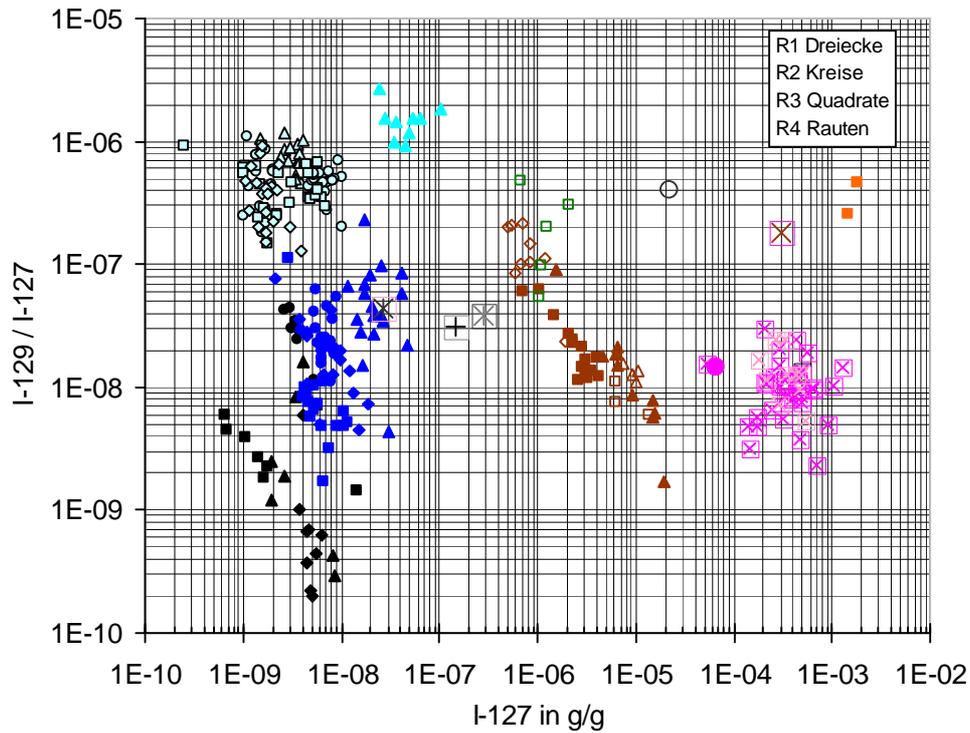
Ein Aspekt, der die unterschiedlichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in Muskel und Schilddrüsen erklären könnte, ist der folgende: Mit Ausnahme der Schilddrüsen ist  $^{127}\text{I}$  in anderen menschlichen Geweben und Organen das Ergebnis von Prozessen mit relativ langen biologischen Halbwertszeiten ( $> 10 \text{ d}$ ), Schwankungen in der Tagesdiät werden ausgeglichen. Derartige Schwankungen sind jedoch für  $^{129}\text{I}$  entscheidend. Das heißt, dass die Schilddrüsen mit kürzeren biologischen Halbwertszeiten stärker durch Schwankungen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse beeinflusst werden.

Tab. 5-22: Zusammenfassung der Ergebnisse für Tierfleisch und -schilddrüsen. Die Messunsicherheiten und weiteren Informationen finden sich im Anhang III.

Region	Material	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Muskelfleisch				
I	Rind	0,15	4,6	307
III	Schwein	< 0,037	< 2,2	-
III	Schaf	0,027	1,2	439
III	Ziege	0,28	10,9	384
III	Reh	< 0,014	1,3	-
Schilddrüsen				
III	Rind	310	55 600	1 790
III	Schwein	65,0	969	147
III	Schaf	22,1	9 000	4 010
III	Reh	1 820	843 000	4 570
III	Reh	1 490	385 000	2 540

Die Ergebnisse für Muskelfleisch fügen sich in das Schema der „erlaubten“ Bereiche von Isotopenverhältnissen und Gehalten (Abb. 5-39) ein. In diese Abbildung sind auch die Daten für menschliche Schilddrüsen (vgl. Kap. 5.4.9) mit aufgenommen. Alle Schilddrüsen liegen außerhalb des „erlaubten“ Bereichs und zeigen die aktive Rolle der Schilddrüsen, Iod aus Nahrung und Trinkwasser in ihrem Gewebe anzureichern. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Schilddrüsen von Rind, Schaf und Rehen liegen mehr als eine Größenordnung höher als die in menschlichen Schilddrüsen gemessenen Werte. Das Isotopenverhältnis der Schweineschilddrüse liegt im Bereich der Werte menschlicher Schilddrüsen, allerdings liegen sowohl die  $^{127}\text{I}$ - als auch die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte am unteren Ende der beim Menschen beobachteten Werte. Die Untersuchung des Schweinefutters steht noch aus. Generell muss bei Rind und Schwein davon ausgegangen werden, dass kommerzielles Kraftfutter verwendet werden könnte. Für das Rindfleisch aus Region I kann dies jedoch aufgrund von Befragung des Landwirtes ausgeschlossen werden. Generell muss aber beim Vergleich von Rind und Schwein die unterschiedliche Zusammensetzung des Futters und die unterschiedliche Physiologie der Tiere berücksichtigt werden.

Die Daten der Schilddrüsen (Abb. 5-40) ergeben kein einheitliches Bild. Die Tierschilddrüsen, die alle Region III stammen, zeigen die höchsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für die Weidetiere Schaf, Rind und Reh und liegen zwischen  $1\,790 \cdot 10^{-10}$  und  $4\,570 \cdot 10^{-10}$ . Dabei unterscheiden sich die  $^{127}\text{I}$ - und die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte um ca. 2 Zehnerpotenzen. Besonders auffällig sind die Rehschilddrüsen, die sowohl die höchsten  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen als auch die höchsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aufweisen. Es ist aber bei Weidetieren zu erwarten, dass der Bodenpfad von geringerer Relevanz ist und die direkte Beaufschlagung des Weidebewuchses und die unterschiedlichen Futtermittel wesentliche Rollen spielen.



▲ Ackerboden,R1	■ Ackerboden,R3	△ Wiesenboden,R1	□ Wiesenboden,R3
◇ Wiesenboden,R4	▲ Grundw.asser,R1	● Grundw.asser,R2	■ Grundw.asser,R3
◆ Grundw.asser,R4	▲ Meerw.asser,R1	▲ Oberfl.Wasser,R1	● Oberfl.Wasser,R2
■ Oberfl.Wasser,R3	◆ Oberfl.Wasser,R4	△ Regen,R1	○ Regen,R2
□ Regen,R3	◇ Regen,R4	⊠ menschl.SD,R3	⊠ menschl.SD,R1
⊠ Fleisch,Schaf,R3	⊠ Fleisch,Ziege,R3	⊠ Fleisch,Rind,R1	○ Schilddrüse,Schaf,R3
● Schilddrüse,Schw ein,R3	⊠ Schilddrüse,Rind,R3	□ Boden,Wald,R3	■ Schilddrüse, Reh, R3

Abb. 5-39 :  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Nordseewasser, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Oberboden, in Tierfleisch und in tierischen und menschlichen Schilddrüsen aus Niedersachsen. Alle Gehalte sind auf die Trockenmasse bezogen.

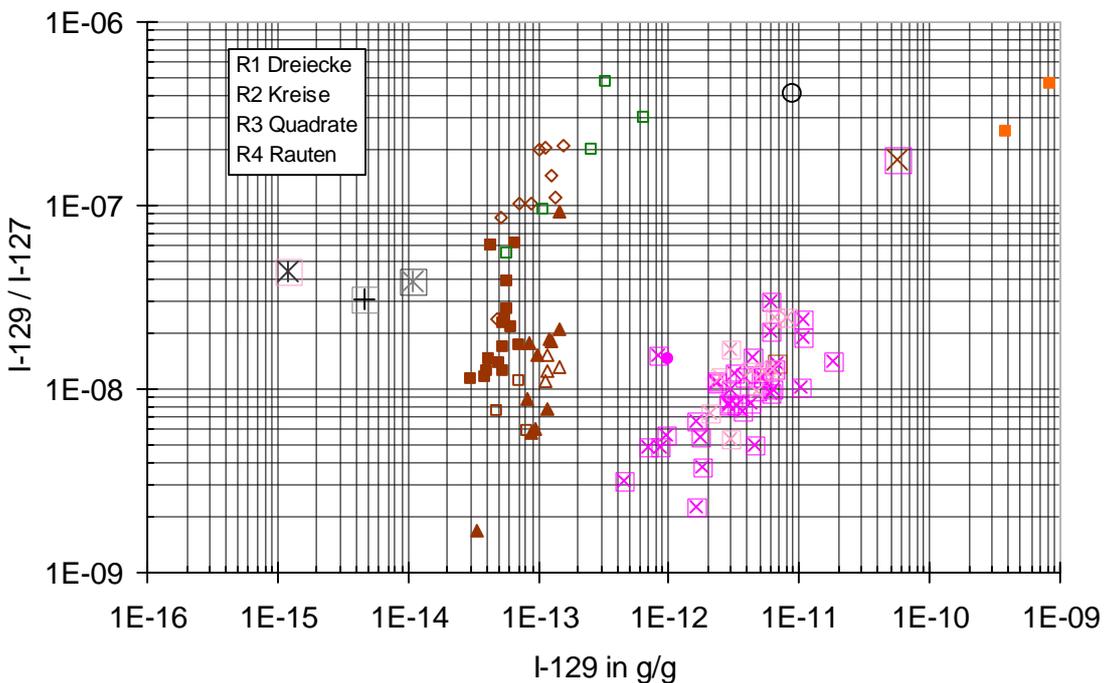
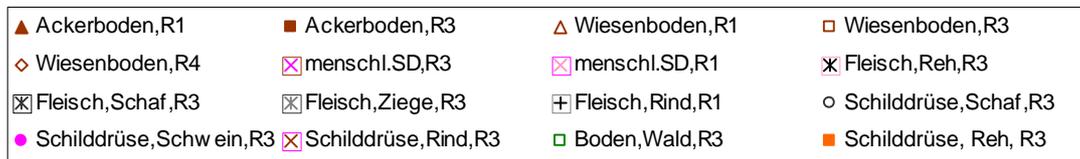
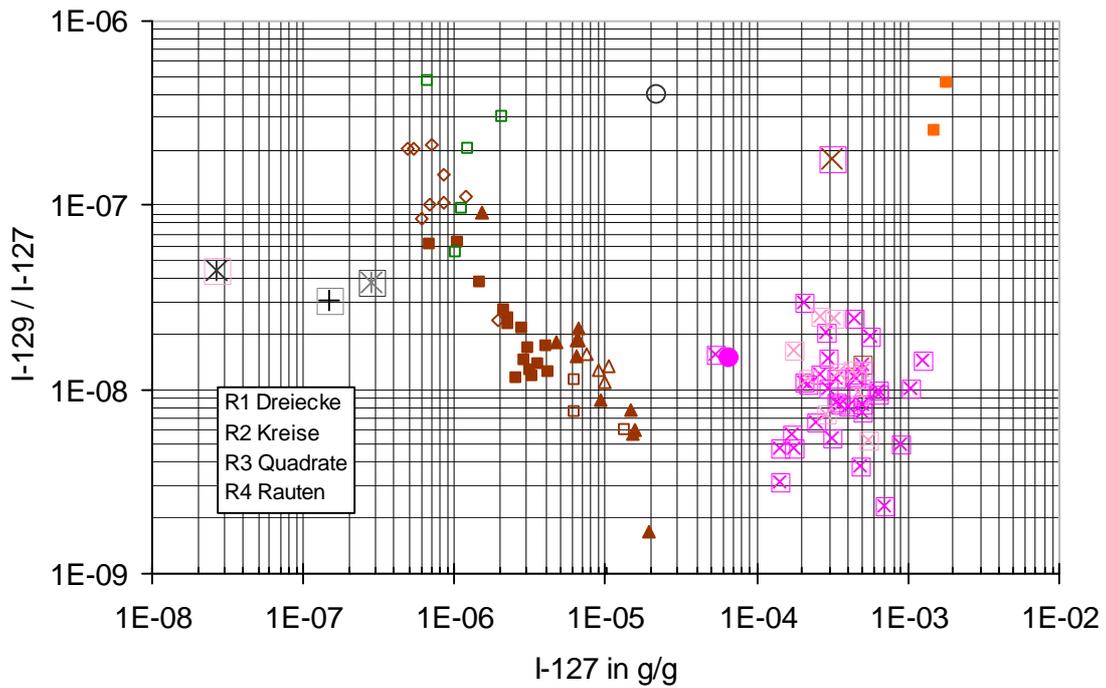


Abb. 5-40:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Oberboden, in Tierfleisch und in tierischen und menschlichen Schilddrüsen aus Niedersachsen.

Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte menschlicher Schilddrüsen liegen zwischen  $53 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $1\,260 \mu\text{g g}^{-1}$ , die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte zwischen  $446 \text{fg g}^{-1}$  und  $18\,000 \text{fg g}^{-1}$ , die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $23 \cdot 10^{-10}$  und  $300 \cdot 10^{-10}$ . Die Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen sind nicht mit den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten korreliert, sie zeigen aber eine schwache Korrelation mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten (Abb. 5-40).

Es ist auffällig, dass sich die Iod-Isotope in menschlichen Schilddrüsen (Abb. 5-39) nicht wie die Iod-Isotope in Böden sondern eher wie die Iod-Isotope in Oberflächenwasser verhalten. Wir interpretieren dies als einen Hinweis, dass die Rolle des Trinkwassers beim Transfer der Iod-Isotope zum Menschen nicht außer Acht gelassen werden darf. Man könnte spekulieren, dass unter Berücksichtigung der Verhältnisse von Frischmasse zu Trockenmasse menschlicher Schilddrüsen von 4 : 1, ein Transferfaktor von ca.  $10^{-4} \text{g g}^{-1}$  vom Oberflächenwasser zur menschlichen Schilddrüse ausreichen würde, um die Ergebnisse dieser Arbeit zu erklären. Sicherlich ist der Trinkwasserpfad nicht der einzige relevante Pfad der Iod-Isotope zum Menschen. Dies wird im Zusammenhang mit den Ergebnissen für Gesamtnahrung (Kap. 5.4.7) und der allgemeinen Diskussion der Ergebnisse für menschliche Schilddrüsen in Kap. 5.4.9 weiter ausgeführt werden.

## 5.4.8 Gesamtnahrung

In Tabelle 5-23 sind die Ergebnisse der Untersuchungen von neun Proben von Gesamtnahrung aus der Mensa der Universität Hannover zusammengestellt; siehe auch Tab. III.24 im Anhang.  $^{127}\text{I}$  konnte in allen Proben gut nachgewiesen werden. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte liegen zwischen  $0,09 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $0,19 \mu\text{g g}^{-1}$  (bezogen auf Frischmasse), die relativen Unsicherheiten lagen für  $^{127}\text{I}$  zwischen 5,1 % und 5,6 %. Bei acht der neun Proben konnte kein  $^{129}\text{I}$  nachgewiesen werden. Die Nachweisgrenzen lagen zwischen  $0,55 \text{fg g}^{-1}$  und  $1,4 \text{fg g}^{-1}$ . Diese Nachweisgrenzen der  $^{129}\text{I}$ -Gehalte entsprechen Aktivitätskonzentrationen zwischen  $4,3 \text{nBq g}^{-1}$  und  $9,3 \text{nBq g}^{-1}$ . Bei einer angenommenen Masse an Gesamtnahrungsverzehr von  $2 \text{kg d}^{-1}$ , bedeutet dies, dass weniger als  $1 \mu\text{Bq }^{129}\text{I}$  pro Tag aufgenommen wird.

Die Probe der Gesamtnahrung vom 16.8.2003 war die einzige der untersuchten Proben, die Fisch (unspezifiziert) enthielt. Nur in ihr konnte  $^{129}\text{I}$  mit einer relativen Unsicherheit von 9,6 % nachgewiesen werden. Das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis dieser Mahlzeit lag mit  $10^{-7}$  relativ hoch.

Angesichts der massiven Iod-Verluste bei der haushaltsüblichen Zubereitung von Nahrungsmitteln, ist der hohe Gehalt an  $^{127}\text{I}$  in der Gesamtnahrung auffällig. Unter der plausiblen Annahme einer täglichen Aufnahme von  $2 \text{kg Gesamtnahrung}^5$  (bezogen auf Frischmasse) ergibt sich eine tägliche Iod-Zufuhr zwischen  $180 \mu\text{g d}^{-1}$  und  $400 \mu\text{g d}^{-1}$ , mehr als der von der WHO empfohlene Wert<sup>6</sup> von  $150 \mu\text{g d}^{-1}$ . Angesichts der niedrigen  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in den unzubereiteten Nahrungsmitteln, können die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte nur durch die Zugabe von iodiertem Speisesalz erklärt werden. Bisher liegen keine Messungen über die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in iodiertem Speisesalz vor. Entsprechende Untersuchungen werden derzeit durchgeführt.

In diesem Zusammenhang soll darauf hingewiesen werden, dass für große Teile der deutschen Bevölkerung die tägliche Einnahme von Vitamin- und Spurenelementpräparaten angenommen werden muss. So enthalten z. B. die von Handelsketten wie ALDI vertriebenen Vitamin- und Spurenele-

<sup>5</sup> Schelenz (1983) gibt einen Bereich des täglichen Verzehrs von Nahrungsmitteln von 1,8 bis 2,3 kg an.

<sup>6</sup> Die Deutsche Gesellschaft für Ernährung (2000) gibt eine Übersicht über Werte für die empfohlene Zufuhr von Iod. Danach werden in Deutschland und Österreich altersabhängig zwischen  $40 \mu\text{g d}^{-1}$  für Säuglinge unter 4 Monaten und  $200 \mu\text{g d}^{-1}$  für Jugendliche ab 15 Jahren und Erwachsene bis 50 Jahren empfohlen. Die WHO und die Schweiz empfehlen Werte zwischen  $50 \mu\text{g d}^{-1}$  (Säuglinge) und  $150 \mu\text{g d}^{-1}$  (Erwachsene). Für Schwangere und Stillende werden in Deutschland und Österreich  $230 \mu\text{g d}^{-1}$  bzw.  $260 \mu\text{g d}^{-1}$  empfohlen; die WHO und die Schweiz empfehlen  $200 \mu\text{g d}^{-1}$ .

menttabletten „1×Täglich“ und die von Penny-Markt vertriebene Vitamin- und Spurenelementtabletten „OmniVit“ laut Deklarationen auf den Packungen jeweils 100 µg Iod pro Tablette. 100 µg Iod entsprechen 50 % der von der Deutschen Gesellschaft für Ernährung für Jugendliche und Erwachsene empfohlenen täglichen Aufnahme bzw. 75 %<sup>7</sup> der von der WHO empfohlenen täglichen Aufnahme (s. o.). Der Iod-Status von menschlichen Schilddrüsen hängt nicht vom <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I Isotopenverhältnis ab.

Tabelle 5-23: Zusammenfassung der Ergebnisse für Gesamtnahrung aus der Mensa der Universität Hannover. Alle Gehalte beziehen sich auf Frischmasse.

Probenahmedatum	<sup>127</sup> I in µg g <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I in fg g <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-10</sup>
09. 04. 2002	0,19	< 0,78	< 40
10. 04. 2002	0,12	< 0,55	< 46
11. 04. 2002	0,20	< 0,82	< 41
12. 04. 2002	0,12	< 0,72	< 58
12. 08. 2002	0,092	< 0,78	< 83
13. 08. 2002	0,16	< 0,70	< 44
14. 08. 2002	0,11	< 0,66	< 58
15. 08. 2002	0,12	< 1,4	< 120
16. 08. 2002 <sup>a</sup>	0,090	9,6	1 050

<sup>a</sup> Nur diese Mahlzeit enthielt Fisch

Für Vitamin- und Spurenelement-Präparate liegen bisher keine Informationen über die Herkunft des verwendeten Iods und keine Untersuchungen über die Isotopenzusammensetzung vor. Desgleichen liegen bisher keine Untersuchungen von <sup>127</sup>I und <sup>129</sup>I in Trink- und Mineralwässern vor. Während bei Mineralwässern zumindest bei den aus tiefen geologischen Vorkommen gewonnenen Wässern von niedrigen, prä nuklearen Isotopenverhältnissen ausgegangen werden kann, ist dies für Trinkwasser aus der öffentlichen Versorgung nicht klar. Die in dieser Arbeit untersuchten Oberflächenwässer belegen die Bedeutung des Trinkwasserpfad für den Weg der Iod-Isotope zum Menschen. Entsprechende Untersuchungen sind dringend erforderlich, um die in Kap. 5.4.9 diskutierte Entkopplung des <sup>129</sup>I in menschlichen Schilddrüsen von den normalen ökologischen Transferpfaden zu verstehen.

## 5.4.9 Pflanzliche Produkte von Waldstandorten

Im Rahmen dieses Vorhabens wurde auch der Übergang der Iod-Isotope vom Waldboden in Holz und Pilze in Region III untersucht. Außerdem wurden Himbeeren und Brombeeren untersucht. Tabelle 5-24 fasst die Ergebnisse zusammen; siehe auch Tab. III.24 im Anhang. Generell sind die Iod-

<sup>7</sup> Nach der EU-Richtlinie über die Nährwertkennzeichnung von Lebensmitteln.

Gehalte von Brom- und Himbeeren, die von Plantagen stammen, um mindestens eine Zehnerpotenz geringer als die von Pilzen.

Die Bestimmung der Iod-Isotope in Holzproben von Rinde und innerem Stamm einer Birke aus Region III war analytisch begrenzt durch die maximal in der Verbrennungsapparatur handhabbaren Probenmasse von ca. 6 g. Nur in der Rinde waren  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  nachzuweisen (Tab. 5-24). Dabei zeigt sich, dass die Isotopenverhältnisse für die Rinde ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 6\,430 \cdot 10^{-10}$ ) durch externe Kontamination mit Regenwasser zu erklären sind (vgl. Abb. 5-26 und 5-27). Die Obergrenze für das Isotopenverhältnis im Inneren des Stammes ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 395 \cdot 10^{-10}$ ) sind mit den Werten für Oberflächenwasser verträglich.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Brom- und Himbeeren liegen relativ hoch bei knapp  $10^{-7}$ . Jedoch liegen die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Gehalte um ca. zwei Zehnerpotenzen niedriger als die niedrigsten in allen Oberböden gemessenen Gehalte. Sie Verhalten sich ähnlich wie Knollen- und Wurzelgemüse. Aus Abb. 5-41 in Verbindung mit Tab. 5-24 wird ersichtlich, dass diese Beeren ihr Iod vornehmlich über den Wurzelpfad beziehen.

Tab. 5-24: Ergebnisse der Analysen von Beeren, Pilzen und Holz aus Region III

Matrix	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Brombeeren	0,014	1,1	768
Boden zu Brombeeren	4,22	53,2	124
Himbeeren	0,012	0,73	593
Boden zu Himbeeren	1,04	65,5	622
Schirmlinge	0,12	29,9	2 410
Steinpilze	0,24	8,6	348
Maronen-Röhrlinge	1,9	28,0	149
Spreu zu Pilzen	2,09	639	3 010
Bodenauflage zu Pilzen	1,25	254	2 010
Boden zu Pilzen	1,03	57,5	549
Boden zu Pilzen	0,67	324	4 770
Birke Rinde	0,22	98,5	6 430
Birke innerer Stamm	< 0,009	< 6,1	-
Boden zu Birke	1,11	109	962

Die drei untersuchten Pilz-Spezies, Schirmlinge, Steinpilze und Maronen-Röhrlinge, unterscheiden sich in den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten um den Faktor 10. In Abb. 5-41 ist ersichtlich, dass die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte der Pilze der in den Bodenproben beobachteten Korrelation der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten folgen. Die Pilze mit den höchsten  $^{127}\text{I}$ -Gehalten (Maronen-Röhrlinge) weisen die niedrigsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse auf. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte der Pilze unterscheiden sich um we-

niger als eine Zehnerpotenz von denen im Oberboden. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte liegen jedoch ca. eine Zehnerpotenz unter den Gehalten von Auflage und Spreu des Waldbodens. Dies ist verständlich, da die Spurenelementaufnahme der Pilze nicht aus dem Oberboden, sondern aus Auflage oder Spreu erfolgt.

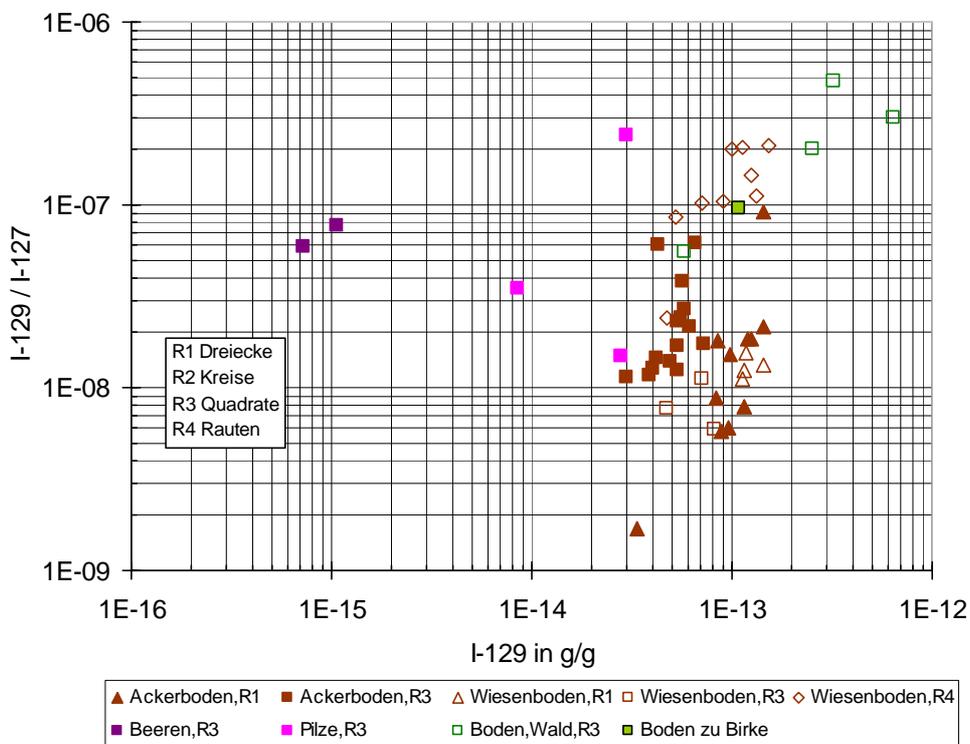
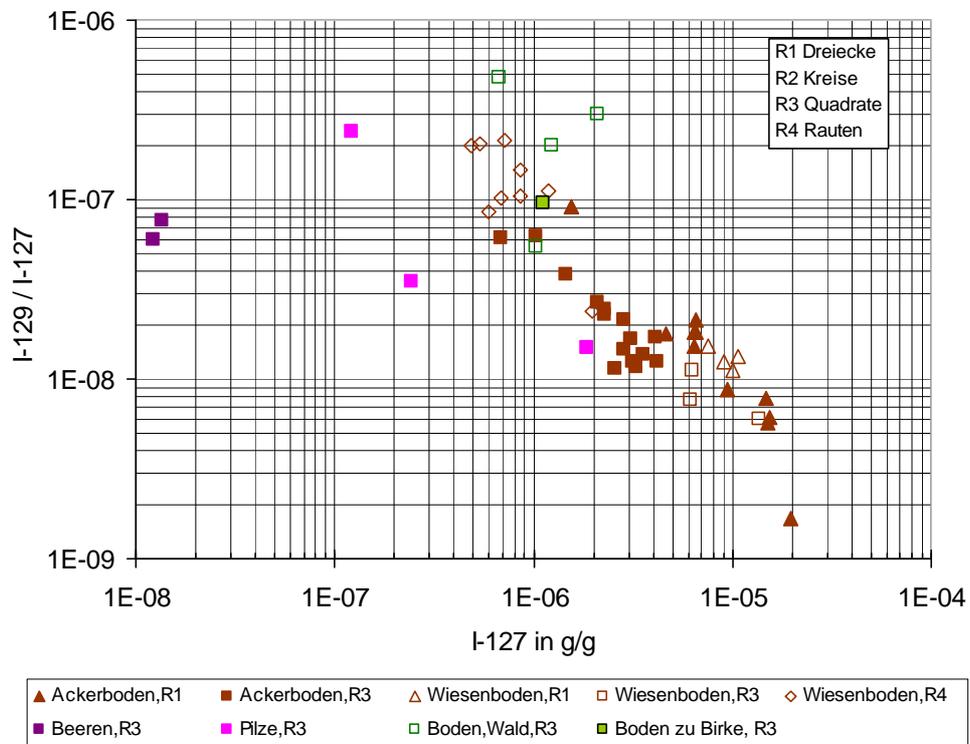


Abb. 5-41:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Gehalte im Oberboden, Brom- und Himbeeren und in Pilzen.

### 5.4.10 Iod-129 in menschlichen und tierischen Schilddrüsen

Seit 1977 werden am ZSR, bzw. einem seiner Vorgängerinstitute, dem Niedersächsischen Institut für Radioökologie von Handl und Mitarbeitern  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in menschlichen und tierischen Schilddrüsen untersucht (Handl, 1996; und dort angegebene Literaturstellen). Außer diesen Untersuchungen wurden in Europa lediglich von Hou et al. (2003a) menschliche und tierische Schilddrüsen und von Aumann et al. (1985), von Robens et al. (1988a) und von Fréchou et al. (2002) tierische Schilddrüsen untersucht. In dieser Arbeit wurden 13 menschliche Schilddrüsen aus dem Großraum Hamburg, 30 menschliche Schilddrüsen aus dem Großraum Hannover und je eine Rinder-, eine Schaf-, eine Schweineschilddrüse und 2 Rehschilddrüsen aus Region III untersucht (Tab. III.24 und Tab. III.25 im Anhang). Abb. 5-42 gibt eine Übersicht über alle heute verfügbaren Daten menschlicher und tierischer Schilddrüsen aus Europa fernab von Emittenten (Handl, 1996; Hou et al., 2003a und diese Arbeit). Für menschliche Schilddrüsen mit einem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnis von  $10^{-8}$  kann eine effektive Dosis durch Ingestion von  $^{129}\text{I}$  von 6 nSv pro Jahr angenommen werden; vgl. Kapitel 6.2.

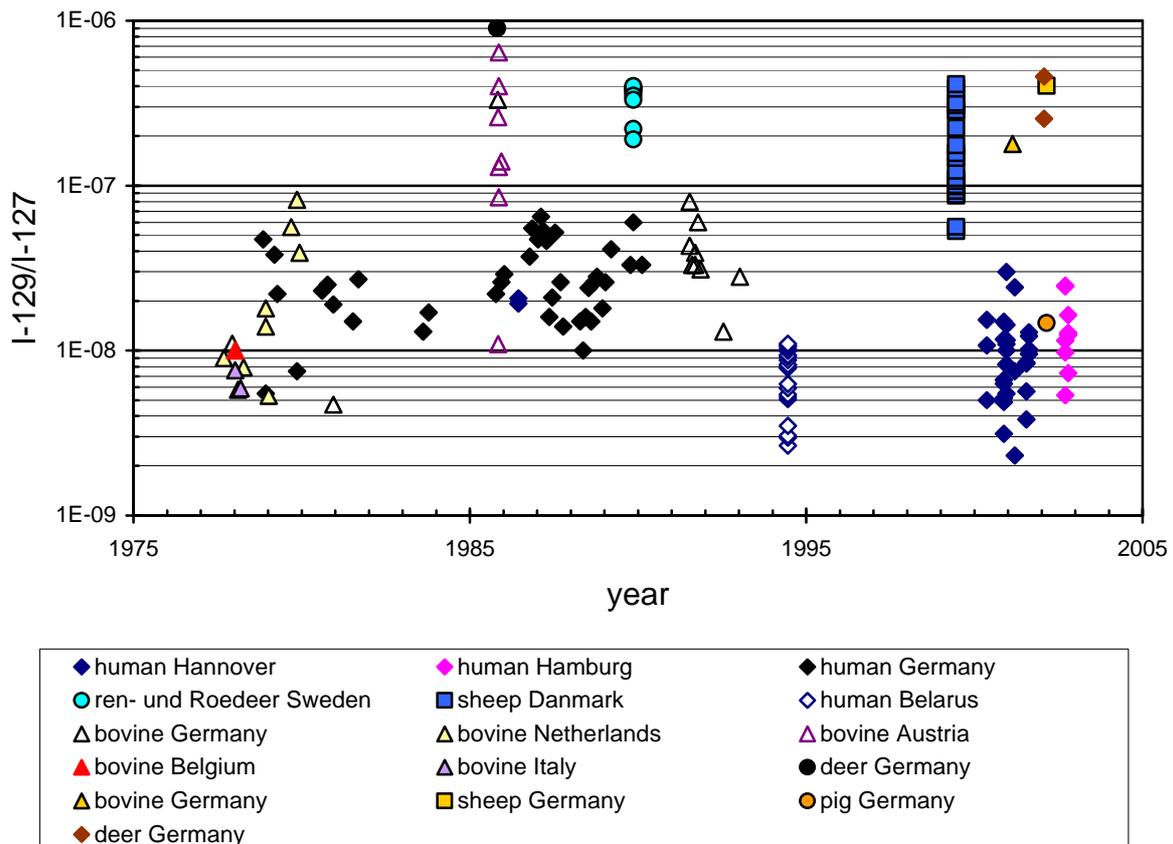


Abb. 5-42: Übersicht über die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die bisher in menschlichen und tierischen Schilddrüsen von Standorten in Europa, die nicht unmittelbar in der Nähe von Wiederaufarbeitungsanlagen liegen, gemessen wurden.

Handl und Mitarbeiter untersuchten menschliche Schilddrüsen aus Deutschland, unbeeinflusst von der WAK, und Rinderschilddrüsen aus Belgien, Deutschland und den Niederlanden (Handl, 1996,

und dort angegebene Literaturstellen). VanMiddlesworth und Handl (1997) untersuchten auch Rinderschilddrüsen aus Deutschland und Österreich sowie eine Rehschilddrüse aus Österreich, die kurz nach dem Reaktorunfall in Chernobyl im Jahr 1986 genommen wurden.

In Abb. 5-42 sind außerdem die Ergebnisse von unveröffentlichten Untersuchungen von Handl und Mitarbeitern für Schilddrüsen von Ren- und Roedeer aus Gävle, Schweden – genommen 1990 –, dargestellt.

Die Daten von Hou et al. (2003a) sind auch für diese Arbeit relevant, da diese Autoren Proben untersuchten, die fernab von  $^{129}\text{I}$ -Emittenten genommen wurden: Schafschilddrüsen aus Dänemark und menschliche Schilddrüsen aus Weißrussland.

Die Untersuchung von Rehschilddrüsen aus der näheren Umgebung der WAK aus dem Jahr 1983 durch Robens et al. (1988a) ergaben  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $9 \cdot 10^{-6}$  und  $1,5 \cdot 10^{-5}$ . Hier wurde der direkte Einfluss der atmosphärischen  $^{129}\text{I}$ -Ableitungen der WAK durch nasse und trockene Deposition und direkte Kontamination der Pflanzenoberflächen für die außergewöhnlich hohen Isotopenverhältnisse verantwortlich gemacht. Die Gruppe von Aumann und Mitarbeitern untersuchte auch Rinder- und Schweineschilddrüsen aus Deutschland, unbeeinflusst von der WAK aus den Jahren 1979 bis 1982. Sie fanden  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $4 \cdot 10^{-10}$  und  $9 \cdot 10^{-8}$  (Aumann et al., 1985). Diese Daten sind in guter Übereinstimmung mit denen von Handl und Mitarbeitern in diesen Jahren ermittelten Werte.

Fréchu et al. (2002) untersuchten Rinderschilddrüsen aus dem Nord-Cotentin, die durch direkten Fallout von  $^{129}\text{I}$  aus der Abluftfahne der Wiederaufarbeitungsanlage von La Hague beeinflusst waren. Diese Proben zeigen, mit Ausnahme eines Goldfisches aus einem Teich bei Hanford (Kilius et al., 1994), die bisher höchsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von bis zu  $2,5 \cdot 10^{-4}$ . Die Rinderschilddrüse mit dem höchsten Isotopenverhältnis wurde in März 1999 in Digulleville genommen. In diesem Ort ist die kritische Gruppe der Bevölkerung in der Umgebung von La Hague in Bezug auf die atmosphärischen Ableitungen beheimatet. In allen Proben, die von diesen Autoren untersucht wurden, lagen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Jahr 1999 zwischen  $0,9 \cdot 10^{-6}$  und  $2,5 \cdot 10^{-4}$ . Schilddrüsen aus dem Jahr 1980 lagen damals noch bei Isotopenverhältnissen zwischen  $1,0 \cdot 10^{-6}$  und  $2,1 \cdot 10^{-5}$  (Digulleville). Für eine Schilddrüsenprobe aus La Hague aus dem Jahr 1973 zitieren diese Autoren eine Arbeit von Gros et al. (1975) mit einem Wert von  $0,13 \cdot 10^{-6}$ . Leider liegen bisher keine Daten für menschliche Schilddrüsen aus den Nord-Cotentin vor. Derartige Daten wären ideal zum Test radioökologischer Modelle des  $^{129}\text{I}$ -Transfers in einer durch nasse und trockene Deposition dominierten Expositionssituation.

Für die weitere Diskussion in dieser Arbeit werden die Untersuchungen von Robens et al. (1988a), Aumann et al. (1985) und Fréchu et al. (2002) nicht herangezogen. Diese Daten sind auch nicht in Abb. 5-42 dargestellt.

Die Daten in Abb. 5-42 zeigen keine systematischen Änderungen während der letzten 30 Jahre. Bereits in Schilddrüsen aus den Jahren 1977 bis 1980 lagen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $4,7 \cdot 10^{-9}$  und  $8,2 \cdot 10^{-8}$ . Seit 1980 lagen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen und tierischen Schilddrüsen, abgesehen von einem scharfen Maximum von ca.  $10^{-6}$  nach dem Unfall von Chernobyl, zwischen  $10^{-8}$  und  $10^{-7}$ . In den Daten für Schilddrüsen zwischen 1977 und 1980 (ohne das Maximum nach dem Unfall von Chernobyl) ist ein leichter Anstieg der Isotopenverhältnisse als Funktion der Zeit auszumachen.

Für tierische Schilddrüsen liegen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse dieser Arbeit mit Ausnahme der Schweineschilddrüse rund eine Zehnerpotenz höher als in den 1990er Jahren. Die Ergebnisse für tierische Schilddrüsen aus Deutschland liegen in dem Bereich von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen,

die Hou et al. (2003a) in Schafschilddrüsen aus Dänemark beobachteten. Die Daten von Handl und Mitarbeitern für Ren- und Roedeer aus Gävle aus dem Jahr 1990 ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  zwischen  $1,9 \cdot 10^{-7}$  und  $4,0 \cdot 10^{-6}$ ) sind für einen Vergleich mit Weidetieren aus Deutschland oder Dänemark nicht geeignet, da zum einen Gävle einen besonders hohen Fallout aus dem Unfall von Chernobyl erhalten hat und sich zum anderen die Grasungsgewohnheiten von Ren- und Roedeer von denen der Weidetiere unserer Breiten deutlich unterscheiden. Es wäre allerdings wünschenswert, den Transfer der Iod-Isotope für Ren- und Roedeer unter den dortigen ökologischen Gegebenheiten näher zu untersuchen.

Tab. 5-25: Zusammenfassung der Ergebnisse für menschliche Schilddrüsen aus den Großräumen Hannover und Hamburg. Die Einzelwerte und Messunsicherheiten sowie weiteren Informationen zu den Proben finden sich im Anhang III. Die Konzentrationen beziehen sich auf Frischmasse der Proben.

Region	Großraum	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
I	Hamburg ( $n = 10$ )	$380 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$4\,480 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$118 \cdot 1,5^{\pm 1}$
II	Hannover ( $n = 38$ )	$335 \cdot 1,9^{\pm 1}$	$3090 \cdot 2,4^{\pm 1}$	$92,3 \cdot 1,8^{\pm 1}$

Während man also bei den tierischen Schilddrüsen zwischen den 1970er Jahren bis heute eine Erhöhung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse beobachtet, ist dies für die menschlichen Schilddrüsen nicht der Fall. Die menschlichen Schilddrüsen aus Hannover und Hamburg aus den Jahren 1999 bis 2003 zeigen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $2,3 \cdot 10^{-9}$  und  $3,0 \cdot 10^{-8}$ . In Tabelle 5-25 sind die geometrischen Mittelwerte und Standardabweichungen für die in dieser Arbeit untersuchten menschlichen Schilddrüsen angegeben. Menschliche Schilddrüsen aus Deutschland aus den Jahren 1986 bis 1991 lagen mit Werten zwischen  $1,0 \cdot 10^{-8}$  und  $6,5 \cdot 10^{-8}$  etwas höher.

Die in dieser Arbeit untersuchte Schweineschilddrüse liegt mit einem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $1,5 \cdot 10^{-8}$  im oberen Bereich der für menschliche Schilddrüsen gemessenen Werte. Im Vergleich der Weidetiere und Schweine zeigt sich, dass die Iod-Isotope zu den Weidetieren einen deutlich direkteren Weg als zu den Schweinen nehmen.

Die Ergebnisse von Hou et al. (2003a) für menschliche Schilddrüsen aus Weißrussland sind mit denen für deutsche Schilddrüsen nicht direkt vergleichbar. Zum einen ist für Weißrussland ein geringerer Einfluss der Emissionen der westeuropäischen Wiederaufarbeitungsanlagen anzunehmen, zum anderen können sie durch Fallout von  $^{129}\text{I}$  aus dem Unfall von Chernobyl beeinflusst sein. Auffällig ist jedoch, dass die Schilddrüsen aus Weißrussland im selben Bereich von Isotopenverhältnissen liegen wie die Schilddrüsen aus Hannover. Allerdings wurden in Weißrussland keine  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse größer  $1,1 \cdot 10^{-8}$  beobachtet.

Die Unterschiede zwischen den Entwicklungen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen und tierischen Schilddrüsen werden besonders deutlich, wenn die Zeitreihen getrennt dargestellt werden (Abb. 5-43). Dazu wurde in diese Darstellung eine geglättete Kurve der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag eingezeichnet wie sie sich aus den verfügbaren Daten für die Schweiz und Deutschland (vgl. Kapitel 5.4.2) ergibt. Bei den menschlichen Schilddrüsen ist in den letzten 15 Jahren eindeutig eine Verringerung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zu erkennen, während die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Pflanzenfressern einen deutlichen Auswärtstrend zeigen.

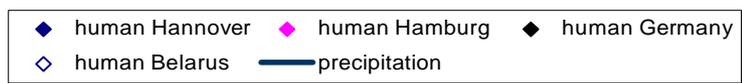
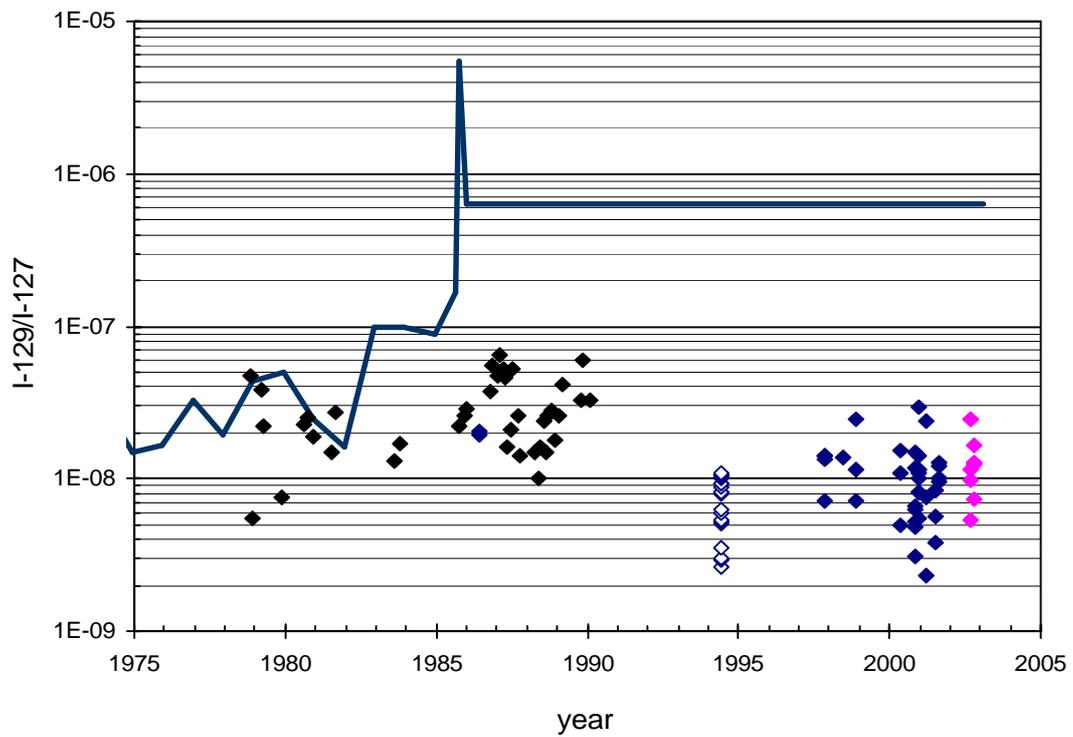
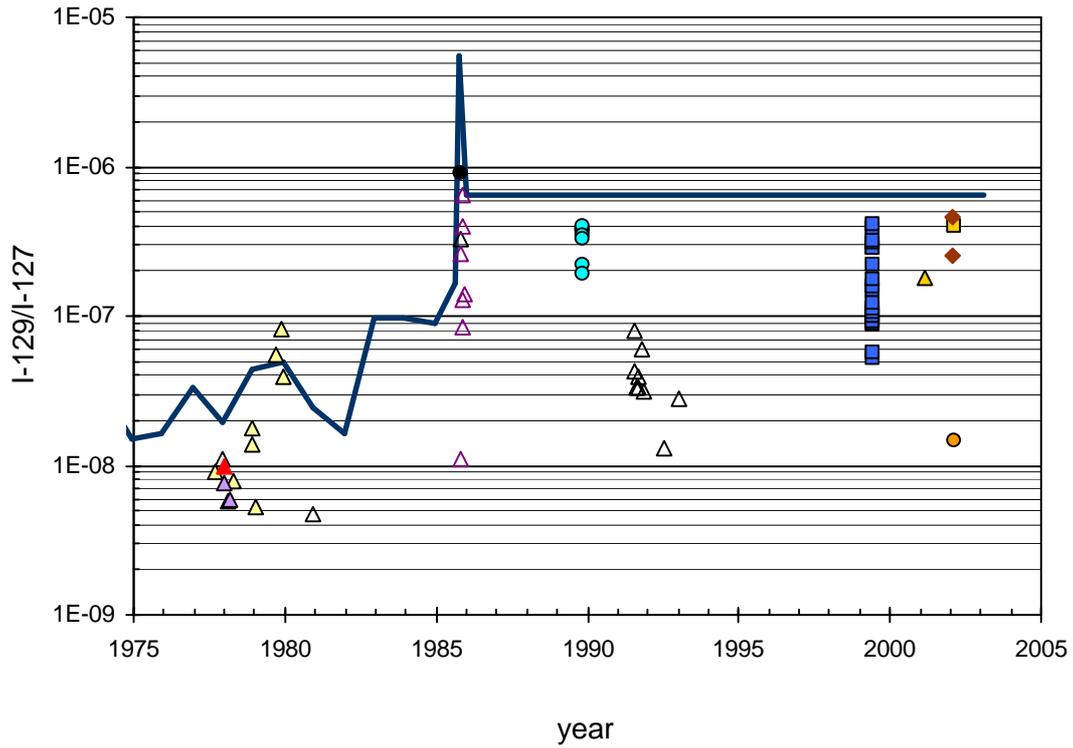
Die Unterschiede des Transfers von Iod-Isotopen zwischen Weidetieren und Schweinen wurden bereits in Abb. 5-43 deutlich, wo die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Gehalten

verglichen wurden. In Abb. 5-44 können die Schilddrüsendaten in dieser Darstellung näher betrachtet werden.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen sind nicht mit ihren  $^{127}\text{I}$ -Gehalten korreliert. Dies ist verständlich, da der Iod-Status des Menschen nicht von der Kontamination des Gesamtiods mit  $^{129}\text{I}$  abhängt. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte überstreichen einen Bereich von etwa einer Größenordnung, was kompatibel ist mit einer geometrischen Standardabweichung von knapp zwei (vgl. Tab. 5-25). Man beobachtet aber eine Korrelation der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten, die allerdings in der doppelt logarithmischen Darstellung von Abb. 5-44 eine Steigung kleiner eins aufweist. Dies deutet darauf hin, dass es außer der  $^{129}\text{I}$ -Kontamination der Lebensmittel noch andere Iod-Quellen geben muss, die das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis beeinflussen.

Die Ergebnisse der menschlichen Schilddrüsen aus den Großräumen Hannover und Hamburg sind in Tab. 5-25 zusammengefasst. Die Einzelergebnisse finden sich in Tab. III.25. Betrachtet man die Schilddrüsen aus den Großräumen Hannover und Hamburg separat (Abb. 5-45 und 5-46), sieht man deutliche Unterschiede. In den Proben aus Hannover (Abb. 5-45) sind die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse völlig unkorreliert mit den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten und zeigen eine Korrelation mit Steigung 0,45 mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten. In den Proben aus Hamburg (Abb. 5-46) sinken die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte leicht mit den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen und die Korrelation der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den  $^{129}\text{I}$ -Gehalten ist steiler ( $m = 0,72$ ). Allerdings muss festgestellt werden, dass die Anzahl der Proben aus dem Großraum Hamburg noch relativ gering ist und daher die Unterschiede zwischen den Großräumen Hannover und Hamburg nicht überbewertet werden sollten. Ob diese Unterschiede real sind, müssen weitere Untersuchungen zeigen.

Abb. 5-43 (nächste Seite) : Übersicht über die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die bisher in menschlichen und tierischen Schilddrüsen von Standorten in Europa, die nicht unmittelbar in der Nähe von Wiederaufarbeitungsanlagen liegen, gemessen wurden. Die Daten für Schilddrüsen stammen aus dieser Arbeit und aus Handl (1996) und dort angegebene Literaturstellen und Hou et al. (2003a), die Daten für Niederschlag stammen aus dieser Arbeit und aus Szidat et al. (2000b), den dort angegebenen Literaturstellen und dieser Arbeit.



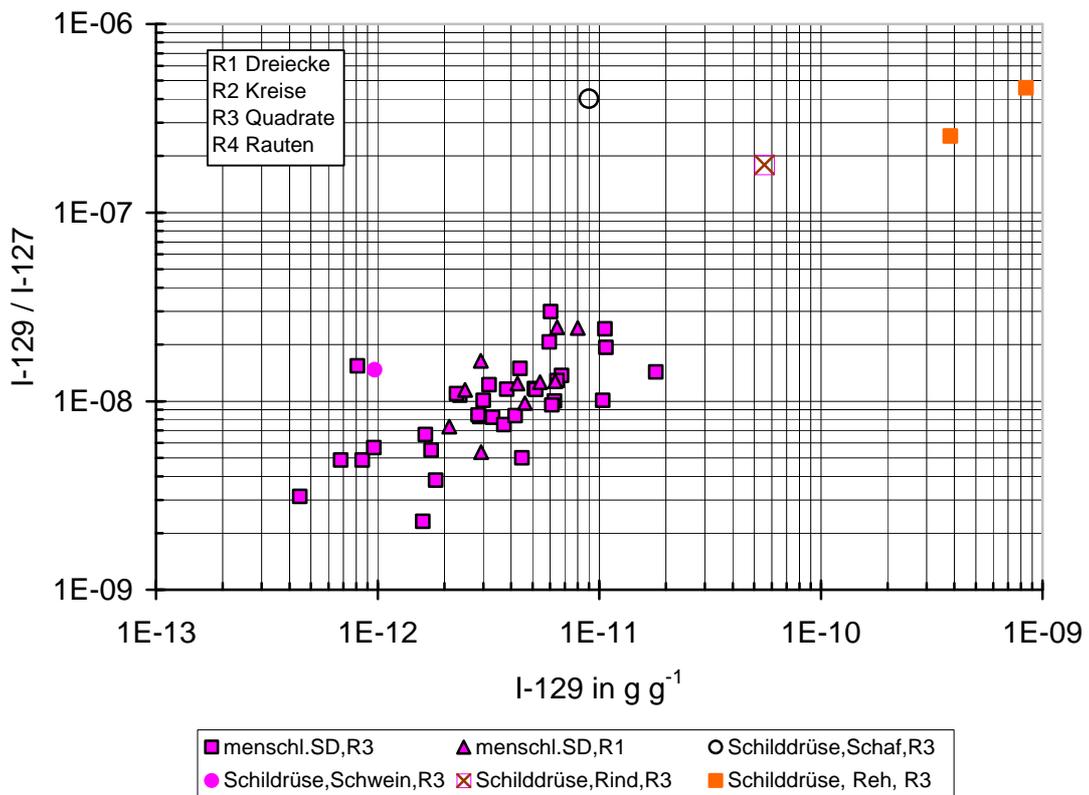
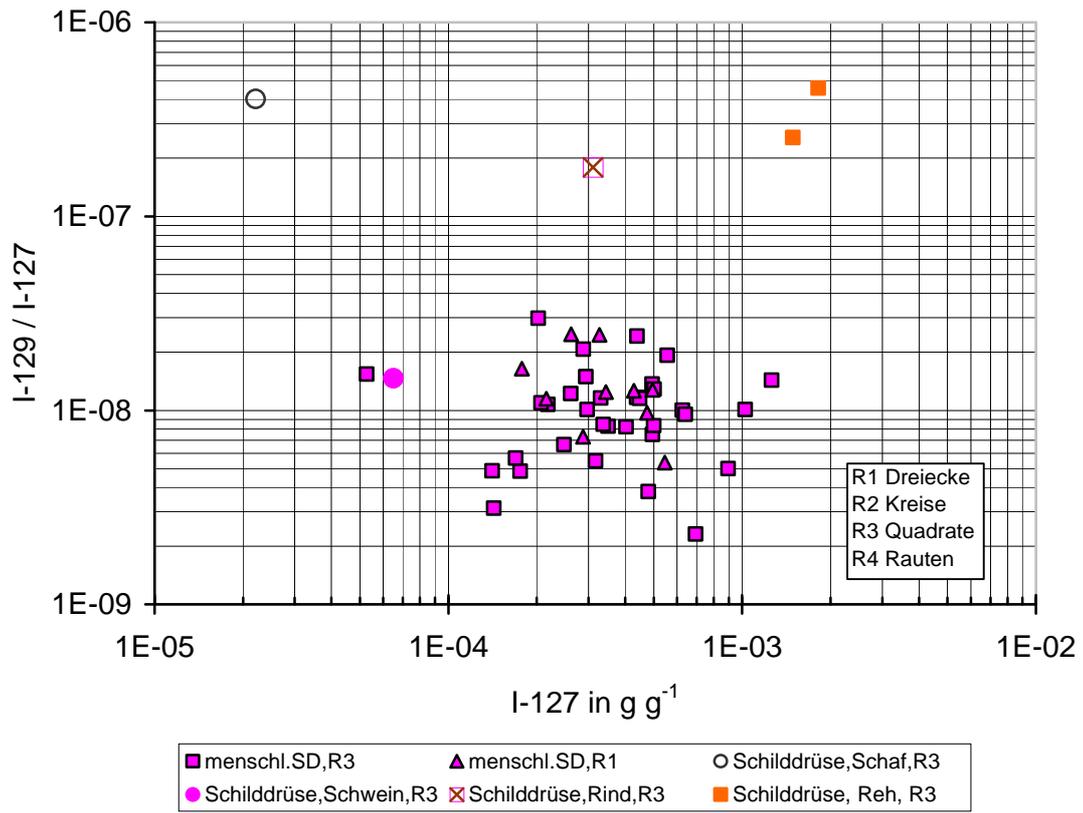


Abb. 5-44:  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}I$ - bzw.  $^{129}I$ -Gehalte in menschlichen und tierischen Schilddrüsen.

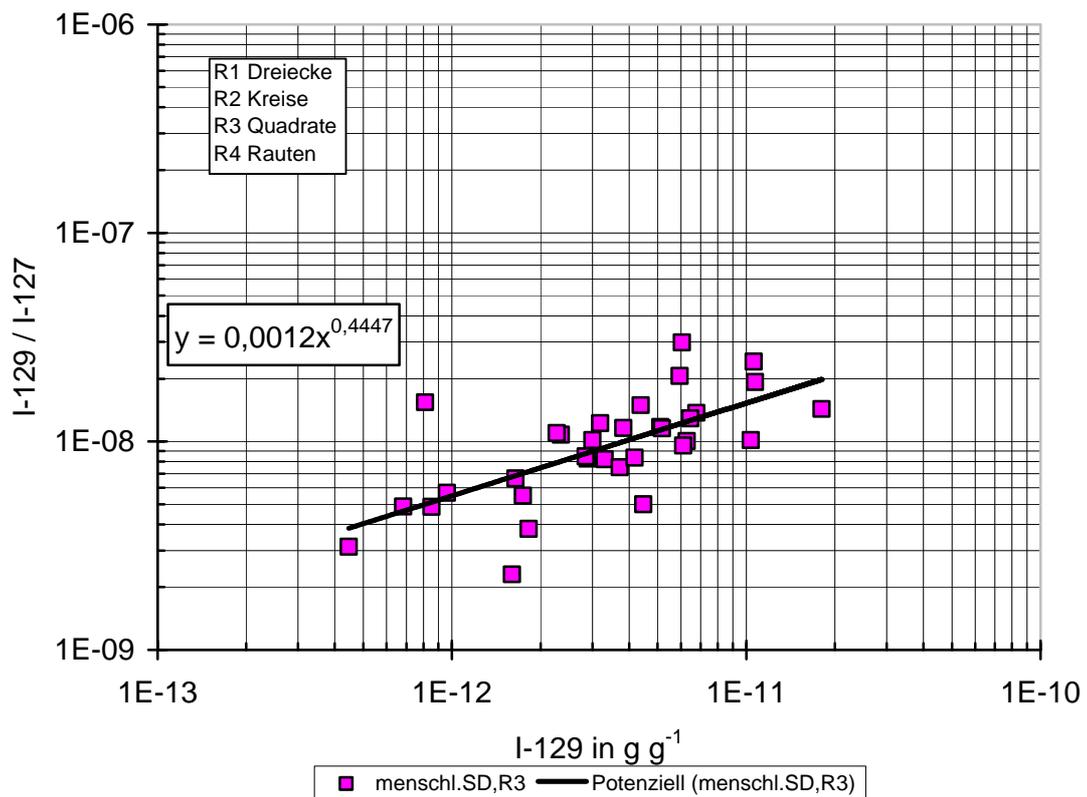
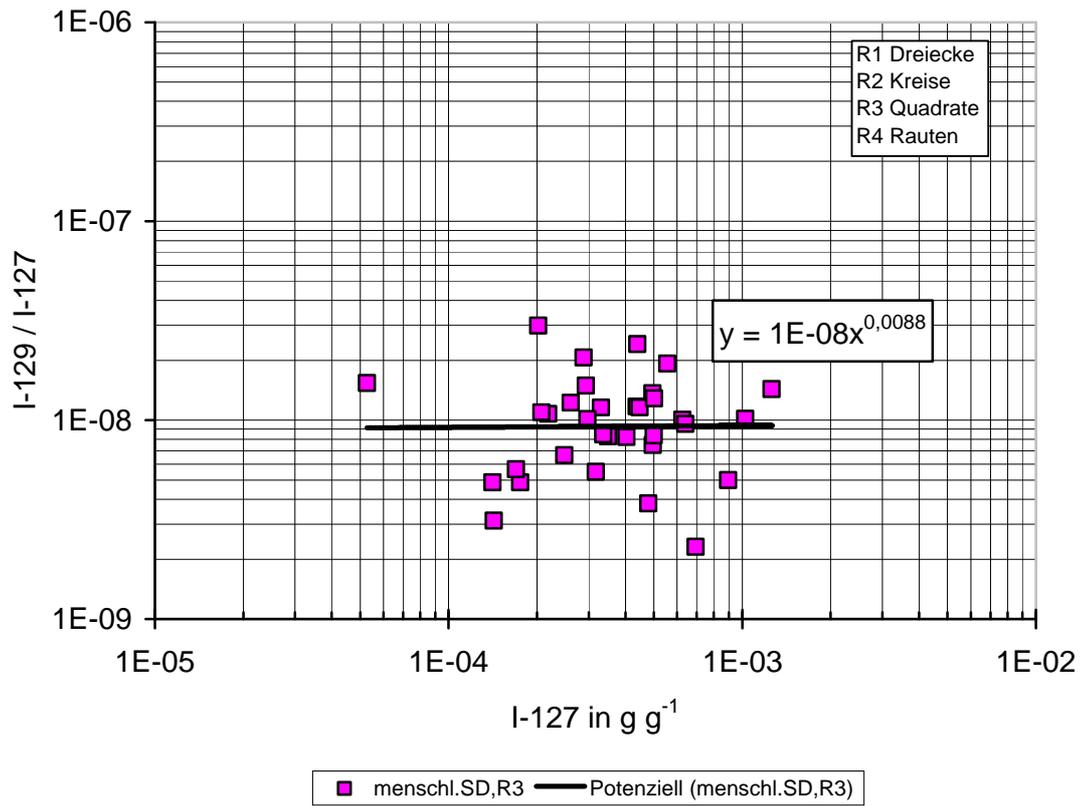


Abb. 5-45:  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}I$ - bzw.  $^{129}I$ -Gehalte in menschlichen Schilddrüsen aus dem Raum Hannover.

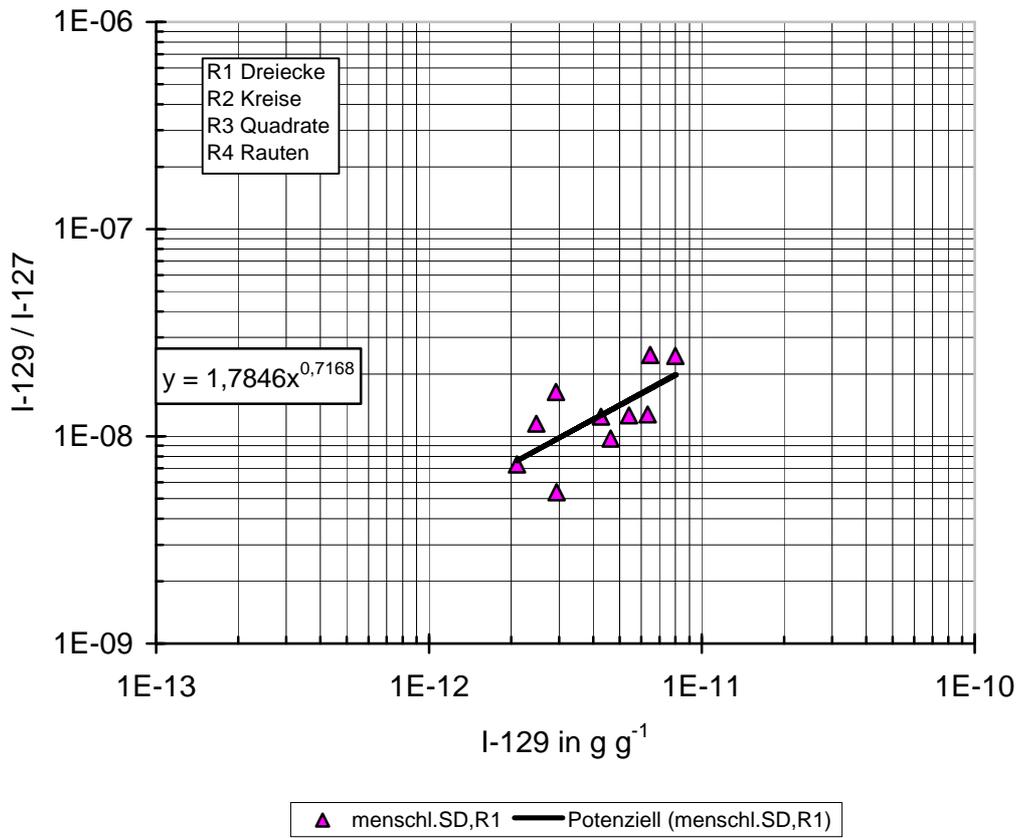
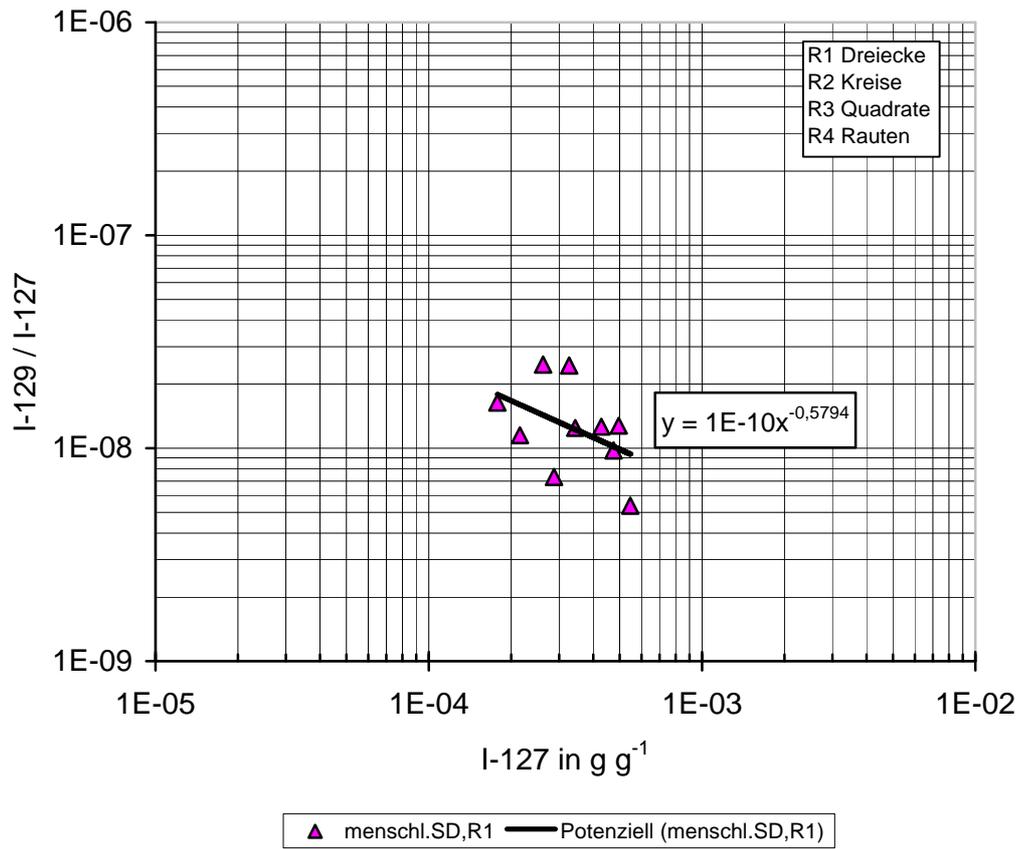


Abb. 5-46:  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}I$ - bzw.  $^{129}I$ -Gehalte in menschlichen Schilddrüsen aus dem Raum Hamburg.

## 6 Radioökologische Parameter

### 6.1 Transfer von Iod-129 und Iod-127 durch die Nahrungskette

Mit den Ergebnissen der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in Boden, Bewuchs und pflanzlichen und tierischen Nahrungsmitteln konnten Transferfaktoren für die Iod-Isotope bestimmt werden (Tab. III.26 – I-II.28 im Anhang). Tab. 5-26 fasst sie zusammen. Es sind *in-situ* Faktoren für den Transfer Boden-Pflanzen, Futter-Milch und Futter-Fleisch, sowie aggregierte Faktoren für den Transfer Boden-Milch und Boden-Fleisch.

Die Bezeichnung *in-situ* Transferfaktoren wurde gewählt, um zu betonen, dass diese Faktoren sich auf eine ganz bestimmte reale Situation beziehen und für einige Transferwege nicht eindeutig sind. Für  $^{129}\text{I}$  ist die Situation dadurch gekennzeichnet, dass eine  $^{129}\text{I}$ -Flächenbelegung von ca.  $150 \text{ mBq m}^{-2}$  vorliegt (vgl. Tab. 5-15, Kapitel 3.4.5) und gleichzeitig eine trockene und nasse Deposition mit einer jährlichen  $^{129}\text{I}$ -Depositionsdichte hoher Variabilität von mehr als  $10 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  stattfindet (vgl. Tab. 5-12, Kapitel 3.4.4). Für  $^{127}\text{I}$  ist die Situation anders. Einer  $^{127}\text{I}$ -Flächenbelegung mit ca.  $3,5 \text{ g m}^{-2}$  (vgl. Tab. 5-15, Kapitel 3.4.5) steht eine jährliche  $^{127}\text{I}$ -Depositionsdichte von nur etwa  $5 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (vgl. Tab. 5-12, Kapitel 3.4.4) gegenüber. Dabei ist die Situation für beide Iod-Isotope in Region I wegen des Einflusses von Seaspray weiter kompliziert.

Die geschilderte, spezielle radioökologische Situation wird die Kontamination von Bewuchs, oberirdischen Pflanzenteilen, speziell von Futter und Blattgemüse, sowie Milch und Fleisch von Weidetieren beeinflussen. Auch für Knollen- und Wurzelgemüse ist angesichts möglicher Aufnahme über die Blätter die Situation nicht eindeutig. Pilze sind angesichts unserer Unkenntnis über das Verhalten von Iod in Waldökosystemen in jedem Fall gesondert zu betrachten.

Die ermittelten Transferfaktoren sind in Tab. III.26 – III.28 im Anhang aufgelistet. Man beachte die unterschiedlichen Einheiten für die einzelnen Transferwege. Für die Umrechnung von Frisch- und Trockenmassen wurden folgende Parameter gewählt und in den berechneten Messunsicherheiten berücksichtigt (Vahlbruch, 2004):

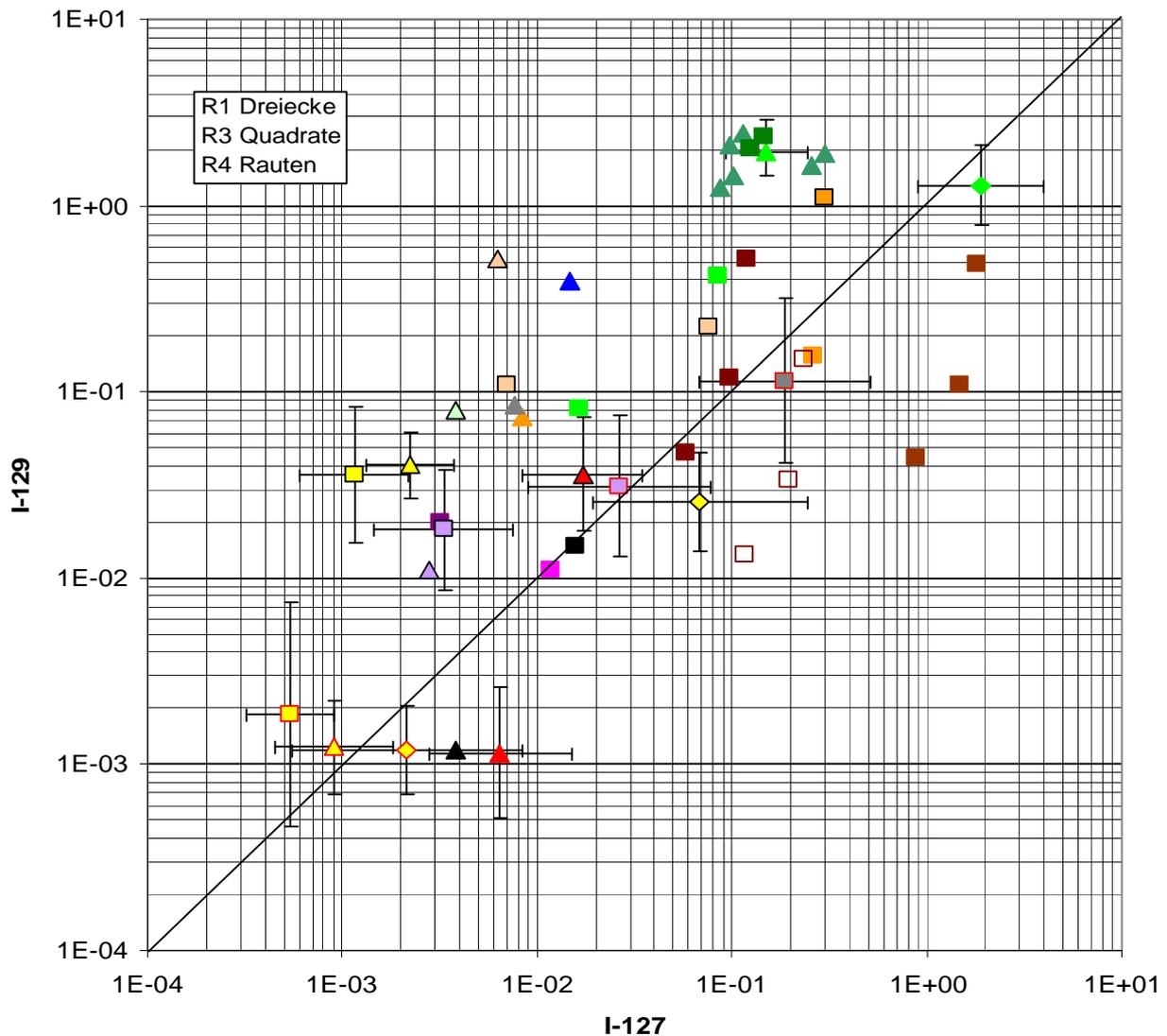
- Trockenmasse von Gras =  $19,7 \% \pm 2,7 \%$  der Frischmasse,
- Trockenmasse von Heu =  $86,1 \% \pm 0,3 \%$  der Frischmasse.

Bei der Berechnung der Transferfaktoren Futter-Milch bzw. Futter-Fleisch wurden die folgenden Werte für den täglichen Verzehr von Trockenmasse von Futter aus dem „Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments“ (IAEA, 1994) angenommen, die auf den Arbeiten von Coughtrey et al. (1990) und Ng et al. (1982) beruhen. Die Berechnung der Transferfaktoren erfolgte probabilistisch mittels Crystal-Ball<sup>®</sup>, wobei für die täglichen Verzehrsmengen jeweils Dreiecksverteilungen angenommen wurden.

- Rind  $16,1 \text{ (kg TM) d}^{-1}$  (minimal  $10 \text{ (kg TM) d}^{-1}$ , maximal  $25 \text{ (kg TM) d}^{-1}$ ),
- Schaf  $1,3 \text{ (kg TM) d}^{-1}$  (minimal  $1 \text{ (kg TM) d}^{-1}$ , maximal  $2,5 \text{ (kg TM) d}^{-1}$ ),
- Ziege  $1,3 \text{ (kg TM) d}^{-1}$  (minimal  $1 \text{ (kg TM) d}^{-1}$ , maximal  $3,5 \text{ (kg TM) d}^{-1}$ ).

Der Bezug der täglichen Verzehrsmengen auf Trockenmasse vermeidet das Problem unterschiedlichen Feuchtigkeitsgehaltes bei Frischmassen von Gras und Heu. Die hier gewählte Verzehrsmenge für Rinder von  $16,1 \text{ (kg TM) d}^{-1}$  ist hinreichend kompatibel mit den Vorgaben der AVV (BMU, 2003), die  $65 \text{ (kg FM) d}^{-1}$  angibt, um einen direkten Vergleich der Ergebnisse dieser Arbeit mit den Transferfaktoren der AVV durchzuführen. Für Schafe und Ziegen macht die AVV keine Angaben.

Abb. 5-47 gibt einen Überblick über die Transferfaktoren, wobei die Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  gegen die von  $^{127}\text{I}$  aufgetragen sind. Die eingezeichnete Gerade mit Steigung eins ist die Ortslinie gleicher Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ . In Abb. 5-47 sind keine Messunsicherheiten eingezeichnet; bzgl. dieser wird auf Anhang III verwiesen. Die relativen Messunsicherheiten der Transferfaktoren liegen für  $^{127}\text{I}$  zwischen 2 % und 55 % und für  $^{129}\text{I}$  zwischen 4 % und 42 %.



- |                       |                       |                         |                    |
|-----------------------|-----------------------|-------------------------|--------------------|
| ▲ Bewuchs, Mittel, R1 | ◆ Bewuchs, Mittel, R4 | ■ Gras, R3              | ▲ Heu, R1          |
| ■ Heu, R3             | △ Gerste, R1          | ■ Gerste, R3            | ▲ Hafer, R1        |
| ▲ Weizen, R1          | ■ Weizen, R3          | ■ Weizenstroh, R3       | △ Kopfsalat, R1    |
| ▲ Lauch, R1           | △ Radieschen, R1      | ● Wirsingkohl, R1       | ▲ Kohlrabi, R1     |
| ■ Kohlrabi, R3        | ◆ Kartoffeln, R3      | ■ Maronen-Röhrlinge, R3 | ■ Schirmlinge, R3  |
| □ Steinpilze, R3      | ■ Brombeeren, R3      | ■ Himbeeren, R3         | ▲ Milch-Futter, R1 |
| ■ Milch-Futter, R3    | ◆ Milch-Futter, R4    | ▲ Milch-Boden, R1       | ■ Milch-Boden, R3  |
| ◆ Milch-Boden, R4     | ▲ Rind-Futter, R1     | ■ Schaf-Futter, R3      | ■ Ziege-Futter, R3 |
| ▲ Rind-Boden, R1      | ■ Schaf-Boden, R3     |                         |                    |

Abb. 5-47: In diesem Vorhaben ermittelte Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$ . Bzgl. der jeweiligen Einheiten siehe Tab. III.26 – III.28 im Anhang.

Tab. 5-26: Geometrische Mittelwerte und geometrische Standardabweichungen der Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  aus der Pedosphäre in die Nahrungskette; vgl. Tab. III.26 bis III.28.

Region	Transfer	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	bezogen auf Konzentrationen von
I	Bewuchs/Boden	$0,15 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$2,0 \cdot 1,5^{\pm 1}$	TM Bewuchs / TM Boden
III	Bewuchs/Boden	$0,11 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$0,99 \cdot 3,4^{\pm 1}$	TM Bewuchs / TM Boden
IV	Bewuchs/Boden	$1,9 \cdot 2,1^{\pm 1}$	$1,3 \cdot 1,6^{\pm 1}$	TM Bewuchs / TM Boden
I	Milch/Futter	$0,00090 \cdot 2,0^{\pm 1}$	$0,0012 \cdot 1,8^{\pm 1}$	d/kg FM
III	Milch/Futter	$0,00054 \cdot 1,7$	$0,0019 \cdot 4,0^{\pm 1}$	d/kg FM
IV	Milch/Futter	$0,0021 \cdot 3,9$	$0,0012 \cdot 1,7^{\pm 1}$	d/kg FM
I	Milch/Boden	$0,0022 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$0,040 \cdot 1,5^{\pm 1}$	FM Milch / TM Boden
III	Milch/Boden	$0,0012 \cdot 1,9^{\pm 1}$	$0,036 \cdot 2,3^{\pm 1}$	FM Milch / TM Boden
IV	Milch/Boden	$0,068 \cdot 3,6^{\pm 1}$	$0,026 \cdot 1,8^{\pm 1}$	FM Milch / TM Boden
I	Rind/Futter	$0,0065 \cdot 2,3^{\pm 1}$	$0,0012 \cdot 2,2^{\pm 1}$	d/kg FM
III	Schaf/Futter	$0,026 \cdot 2,9^{\pm 1}$	$0,031 \cdot 2,4^{\pm 1}$	d/kg FM
III	Ziege/Futter	$0,19 \cdot 2,8^{\pm 1}$	$0,12 \cdot 2,8^{\pm 1}$	d/kg FM
I	Rind/Boden	$0,017 \cdot 2,0^{\pm 1}$	$0,036 \cdot 2,0^{\pm 1}$	FM Fleisch / TM Boden
III	Schaf/Boden	$0,0033 \cdot 2,3^{\pm 1}$	$0,018 \cdot 2,1^{\pm 1}$	FM Fleisch / TM Boden

Die ermittelten Transferfaktoren überstreichen jeweils den Bereich von  $10^{-3}$  bis 2 für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ . Wegen der unterschiedlichen Einheiten müssen die verschiedenen Transferfaktoren separat diskutiert werden. Abb. 5-47 lässt jedoch bereits erkennen, dass teilweise signifikante Unterschiede zwischen den Transferfaktoren von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  existieren. Die Ursachen dafür müssen ebenfalls im Einzelnen diskutiert werden. Für eine Reihe von Transferwegen existieren Mehrfachbestimmungen in den einzelnen Regionen. Tab. 5-26 fasst diese Einzelwerte in geometrischen Mittelwerten und geometrischen Standardabweichungen zusammen.

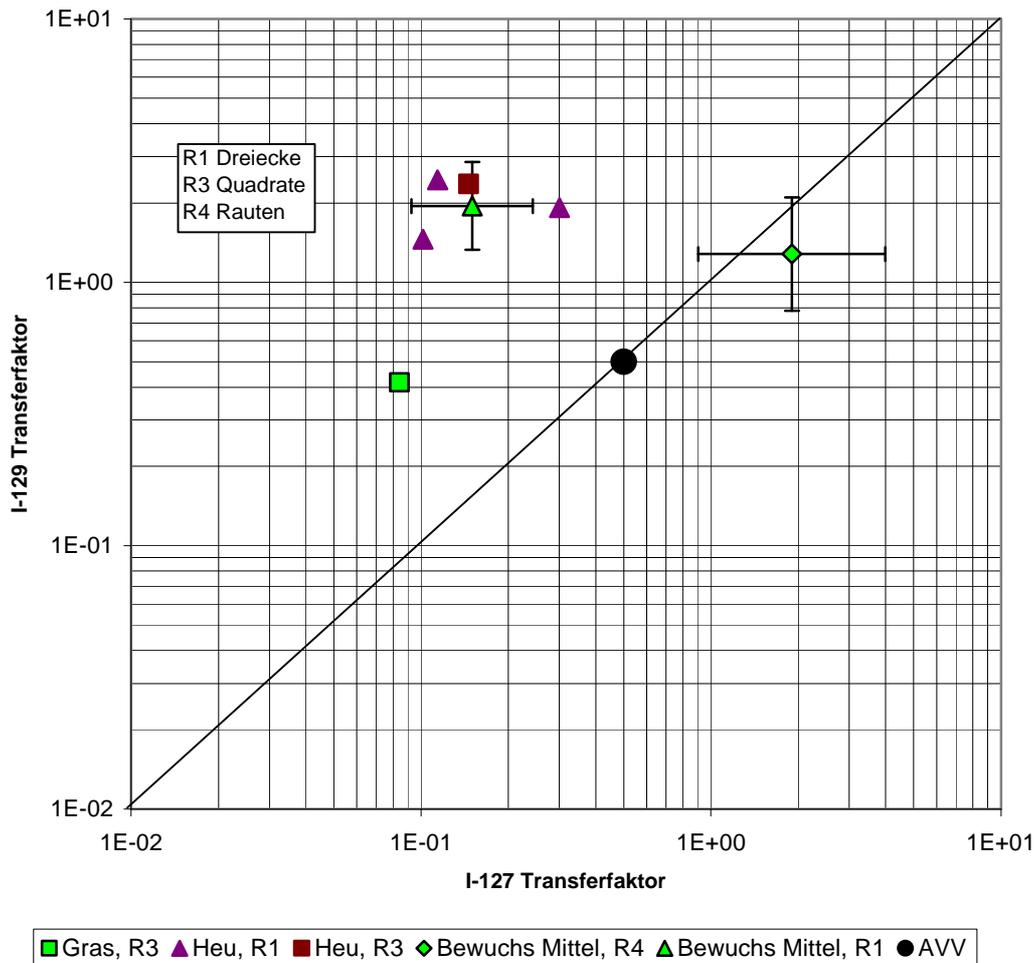


Abb. 5-48: Transferfaktoren für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Boden (Gehalte bezogen auf Trockenmasse) in Bewuchs (Gehalte bezogen auf Trockenmasse). Der Transferfaktor der AVV (BMU, 2001) wurde unter der Annahme Trockenmasse = 0,2 Frischmasse umgerechnet. Die für den Transfer Boden-Bewuchs Mittel in Region I und IV angegebenen „Fehlerbalken“ stellen geometrische Mittelwerte und geometrische Standardabweichungen der Einzelwerte dar.

Für den Transfer vom Boden in Bewuchs, Gras und Heu (Abb. 5-48) sind die individuellen Messunsicherheiten der Einzelwerte klein gegenüber den Unterschieden, die für den Transfer von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  gesehen werden. Mit Ausnahme von Region IV, wo  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  gleich verfügbar sind, zeigen die Proben aus den Regionen I und III um nahezu eine Zehnerpotenz höhere Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  als für  $^{127}\text{I}$ . Für Region I ist dies sicherlich auf die Nähe der Nordsee und die Tatsache zurückzuführen, dass die Transferfaktoren dort Beiträge von Seaspray enthalten und nicht alleine den Transfer vom Boden in die Pflanzen wiedergeben. Diese Argumentation gilt aber nicht in dem Maße für Gras aus Region III. Es ist allerdings nicht zu klären, wie hoch der Beitrag trockener Deposition oder Anreicherung von flüchtigen Iod-Verbindungen durch Evapo-Transpiration ist.

Die Unterschiede zwischen den Regionen I und III auf der einen Seite und Region IV auf der anderen sind aber auch in Bezug auf die Absolutwerte der Transferfaktoren bemerkenswert. In den Regionen I und III liegen die Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  unterhalb von  $0,3 \text{ (kg TM) (kg TM)}^{-1}$ , während in Region IV ein signifikant höherer Mittelwert von  $1,9 \text{ (kg TM) (kg TM)}^{-1}$  gefunden wird. Für  $^{129}\text{I}$  liegen mit Ausnahme der Gras-Probe aus Region III alle Transferfaktoren oberhalb von  $1 \text{ (kg TM) (kg TM)}^{-1}$ .

Durch den Bezug auf Trockenmasse sind auch die Transferfaktoren für den Transfer vom Boden zum Heu direkt mit denen für den Transfer vom Boden zum frischen Bewuchs vergleichbar und können im Zusammenhang mit den Literaturwerten gemeinsam verglichen werden. Der Transferfaktor für Iod vom Boden in Weidebewuchs der AVV (Tab. 3-2), der z. B. auch in ECOSYS (Müller und Pröhl, 1993) angenommen wird, ist höher als der in Region III für Gras gemessene Wert. Der Transferfaktor der AVV unterschätzt jedoch die Transferfaktoren von  $^{129}\text{I}$  aller übrigen Proben in den Regionen I, III und IV und auch den Transfer von  $^{127}\text{I}$  in Region IV. Während man argumentieren kann, dass in Region I die direkten Auswirkungen des Seaspray für die hohen Transferfaktoren verantwortlich sind und das Heu einer längeren Deposition ausgesetzt ist als Gras, gilt dies nicht für den Weidebewuchs aus Region IV, wo wir Transferfaktoren zwischen 1 und 2 finden. Die Werte, welche die IAEA (1994) in ihrer Zusammenstellung radioökologischer Parameter für Iod angibt, liegen signifikant niedriger als der Wert der AVV. Der höchste Wert für den Transfer Boden Weidebewuchs, den die IAEA (1994) angibt (Tab. 3-4), liegt bei 0,17 (Bq pro kg Trockenmasse/Bq pro kg Trockenmasse).

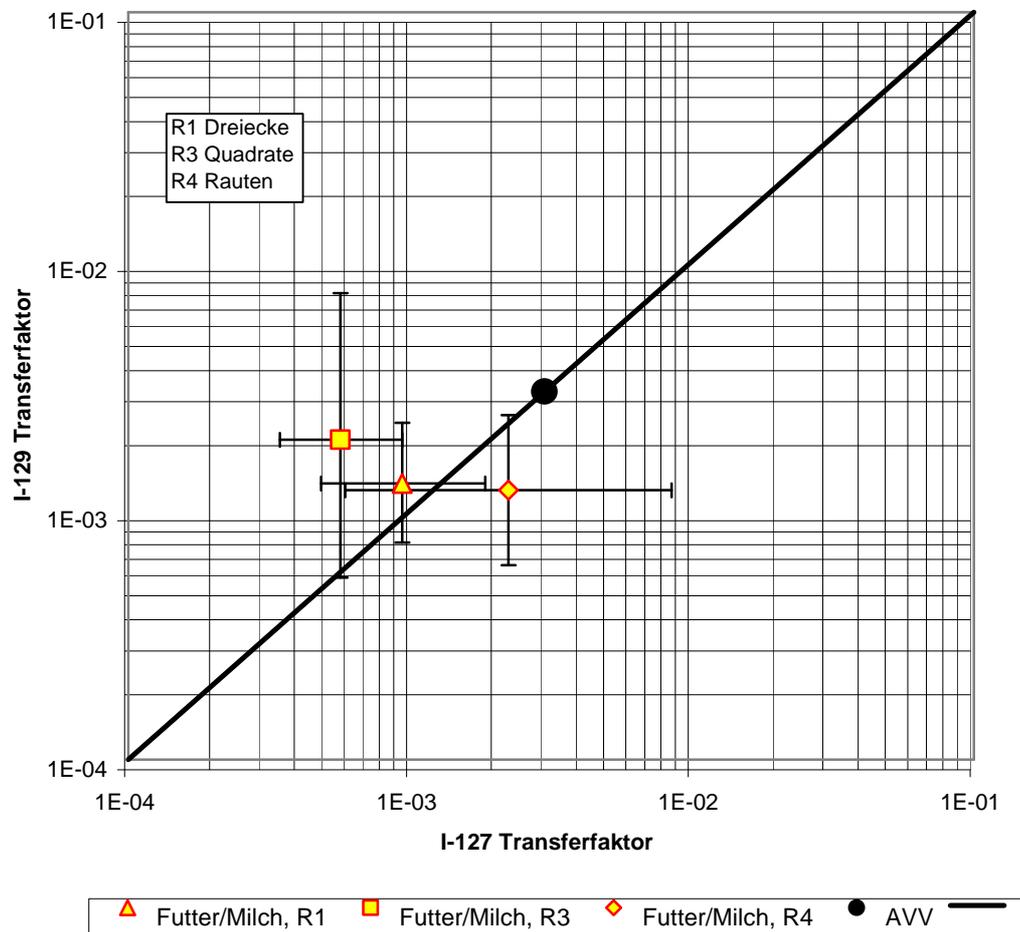


Abb. 5-49: Transferfaktoren für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Futter in die Milch. Die Futter-Milch- und Futter-Fleisch-Transferfaktoren sind in Einheiten von  $\text{d} (\text{kg FM})^{-1}$  angegeben. Die für den Transfer Futter-Milch in Region IV angegebenen „Fehlerbalken“ stellen geometrische Mittelwerte und geometrische Standardabweichungen der Einzelwerte dar.

Die Mittelwerte der Transferfaktoren für den Futter-Milch-Transfer (Abb. 5-49) liegen für  $^{129}\text{I}$  zwischen  $1 \cdot 10^{-3} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$  und  $2 \cdot 10^{-3} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$ , für  $^{127}\text{I}$  zwischen  $0,5 \cdot 10^{-3} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$  und  $2 \cdot 10^{-3} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$ . Die Mittelwerte haben geometrische Standardabweichungen zwischen 1,7 und 4,0 (Tab. 5-26). Innerhalb dieser Variabilität sind die Transferfaktoren von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  nicht unter-

scheidbar. Anders ist dies, wenn man den Transfer Boden-Milch betrachtet. Hier liegen die Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  zwischen  $2 \cdot 10^{-2} \text{ (kg TM) (kg FM)}^{-1}$  und  $4 \cdot 10^{-2} \text{ (kg TM) (kg FM)}^{-1}$ , für  $^{127}\text{I}$  zwischen  $1 \cdot 10^{-3} \text{ (kg TM) (kg FM)}^{-1}$  und  $7 \cdot 10^{-2} \text{ (kg TM) (kg FM)}^{-1}$ . In den Regionen I und III sind die Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  signifikant größer als die für  $^{127}\text{I}$ , während in Region IV ein nahezu gleicher Transfer der Iod-Isotope vom Boden in die Milch festzustellen ist. Die Böden in Region IV liegen im Wassereinzugsbereich der Elbe. Bereits in Kap. 5.4.4 wurde die Besonderheit dieser Böden in Bezug auf die Migration bzw. die Depositionsdichten der Iod-Isotope diskutiert. Diese Böden sind von großräumigem Transport mobiler Iod-Spezies geprägt. In der Region I muss mit der Beeinflussung des Bodens und des Futters durch leicht verfügbare Iod-Isotope des Seasprays gerechnet werden, in Region III erscheint  $^{129}\text{I}$  verfügbarer als  $^{127}\text{I}$ .

Der Transferfaktor der AVV für den Transfer vom Futter in die Milch (Tab. 3-2), der in Übereinstimmung mit der sonstigen Literatur steht, ist etwas größer, aber verträglich mit den in dieser Arbeit ermittelten Transferfaktoren (Abb. 5-49). Trotz Abweichungen der Daten für die Regionen II und IV von der Linie gleicher Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  kann ein signifikant unterschiedliches Verhalten der Iod-Isotope beim Transfer vom Futter in die Milch nicht festgestellt werden.

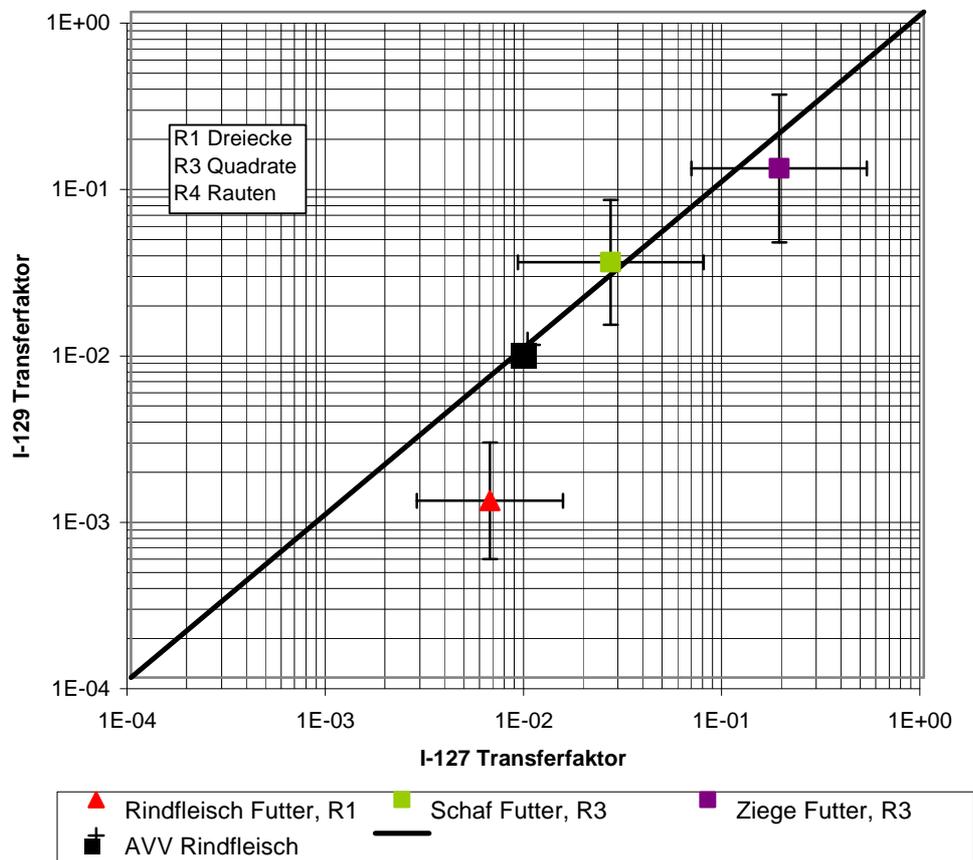


Abb. 5-50: Transferfaktoren für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Futter ins Fleisch. Die Futter-Fleisch-Transferfaktoren sind in Einheiten von  $\text{d (kg FM)}^{-1}$  angegeben.

Beim Transfer vom Futter ins Rind-, Schaf und Ziegenfleisch (Abb. 5-50) bzw. vom Boden ins Rind- und Schaffleisch (Abb. 5-51) sind die Iod-Isotope nicht unterscheidbar. Der Mittelwert der Transferfaktoren Futter-Rindfleisch für Region I beträgt für  $^{129}\text{I}$   $1,2 \text{ d} \cdot 10^{-3} \text{ (kg FM)}^{-1}$  und für  $^{127}\text{I}$   $6,5 \cdot 10^{-3} \text{ d (kg FM)}^{-1}$  mit geometrischen Standardabweichungen von 2,2 bzw. 2,3; für der Transfer Boden-Rindfleisch für  $^{129}\text{I}$   $3,6 \cdot 10^{-2} \text{ (kg TM) (kg FM)}^{-1}$  und für  $^{127}\text{I}$   $1,7 \cdot 10^{-2} \text{ (kg TM) (kg FM)}^{-1}$

mit geometrischen Standardabweichungen von jeweils 2,0. Das ähnliche Verhalten der Iod-Isotope beim Transfer in das Rindfleisch spricht für die bereits in Kap. 5.4.7 vorgeschlagene Erklärung, dass die Gehalte im Fleisch durch relativ lange biologische Halbwertszeiten einen längerfristigen Mittelwert darstellen als die in Schilddrüsen beobachteten Gehalte.

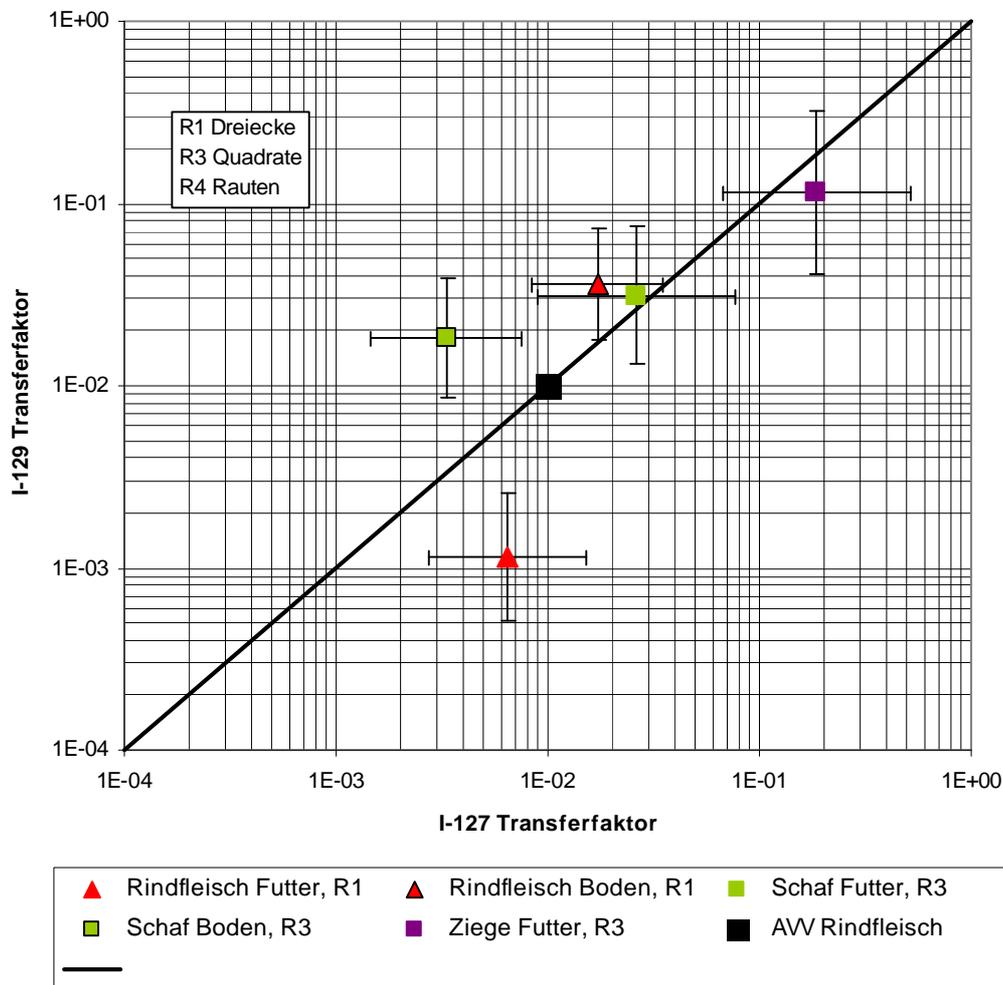


Abb. 5-51: Vergleich der Transferfaktoren für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Futter ins Fleisch mit aggregierten Transferfaktoren für den Übergang Boden in Fleisch. Die Futter-Fleisch-Transferfaktoren sind in Einheiten von  $\text{d} (\text{kg FM})^{-1}$  angegeben. Für die Boden-Fleisch-Transferfaktoren sind die Gehalte im Boden bezogen auf Trockenmasse die in Fleisch auf Frischmasse.

Die höchsten Futter-Fleisch Transferfaktoren wurden für Ziegenfleisch ermittelt:  $0,12 \cdot 2,8^{\pm 1} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$  und  $0,19 \cdot 2,8^{\pm 1} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$ . Für den Ziegenstandort standen keine Bodenproben zur Verfügung, sodass entsprechende Transferfaktoren nicht berechnet werden konnten.

Für Schaffleisch zeigen die Transferfaktoren für den Transfer Futter-Fleisch und Boden-Fleisch nicht die beim Rindfleisch beobachteten Unterschiede. Für  $^{129}\text{I}$   $0,031 \cdot 2,4^{\pm 1} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$  und für  $^{127}\text{I}$   $0,026 \cdot 2,9^{\pm 1} \text{ d} (\text{kg FM})^{-1}$  bzw. für  $^{129}\text{I}$   $0,018 \cdot 2,1^{\pm 1} (\text{kg TM}) (\text{kg FM})^{-1}$  und für  $^{127}\text{I}$   $0,0033 \cdot 2,3^{\pm 1} (\text{kg TM}) (\text{kg FM})^{-1}$ . Bezogen auf das Futter werden  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  gleich transferiert, bezogen auf den Boden erscheint  $^{129}\text{I}$  verfügbarer.

Der Transferfaktor der AVV (Tab. 3-2) von  $0,01 \text{ d (kg FM)}^{-1}$  für den Transfer von Iod vom Futter ins Rindfleisch stimmt mit dem von uns für  $^{127}\text{I}$  gefundenen Wert gut überein, der für  $^{129}\text{I}$  ist jedoch um eine Zehnerpotenz geringer. Der Transferfaktor der AVV deckt jedoch die Transferfaktoren für den Transfer vom Futter in Ziegen- und Schaffleisch nicht ab, die um bis zu eine Zehnerpotenz höher liegen als der für Rindfleisch. Die Daten der IAEA (1994, 2001) nach Tab. 3-4 und 3-5 weichen deutlich von den in dieser Arbeit gefundenen Werten ab.

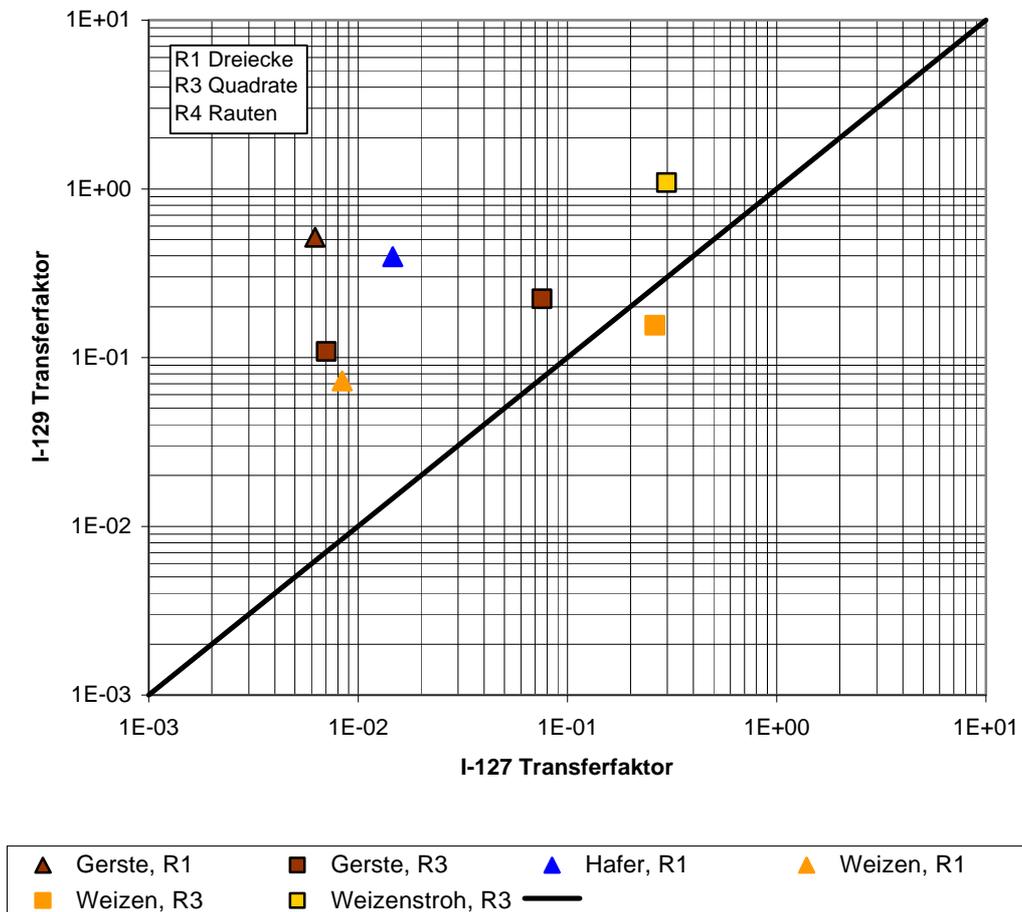


Abb. 5-52: Transferfaktoren in  $(\text{kg TM}) (\text{kg TM})^{-1}$  für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Boden (Gehalte bezogen auf Trockenmasse) in Getreide (Gehalte bezogen auf Trockenmasse).

Für Getreide konnten nur in einigen Proben Transferfaktoren für beide Iod-Isotope bestimmt werden (Abb. 5-52). In einigen Weizenproben und in einer Probe von Weizenstroh konnte nur  $^{127}\text{I}$  nachgewiesen werden. Die dafür erhaltenen Transferfaktoren sind in Tab. 5-27 zusammengefasst. Generell, kann man feststellen, dass die Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  außergewöhnlich variabel sind. Mit den Daten aus Tab. 5-27 und Abb. 5-52 überstreichen sie zwei Zehnerpotenzen. Man erkennt in Abb. 5-50 eine deutlich höhere Verfügbarkeit von  $^{129}\text{I}$  gegenüber der von  $^{127}\text{I}$ . Auch hier ist, wie bei allen oberirdischen Pflanzenteilen nicht zu klären, inwiefern direkte Kontamination durch trockene und nasse Deposition für die hohen  $^{129}\text{I}$  Transferfaktoren verantwortlich sind oder ob es tatsächlich eine höhere Verfügbarkeit von  $^{129}\text{I}$  gegenüber  $^{127}\text{I}$  aufgrund unterschiedlich stabiler Bindungsverhältnisse vorliegt.

Tab. 5-27: Transferfaktoren in (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> für den Transfer von <sup>127</sup>I in Weizenkorn und -stroh.

Region	Pflanze	Transferfaktor für <sup>127</sup> I	Bezug
3	Weizen	0,0026 ± 0,0003	TM Korn / TM Boden
3	Weizen	0,036 ± 0,003	TM Korn / TM Boden
3	Weizen	0,042 ± 0,005	TM Korn / TM Boden
3	Weizen	0,14 ± 0,06	TM Korn / TM Boden
3	Weizen	0,26 ± 0,04	TM Korn / TM Boden
3	Geometrischer Mittelwert Weizen	0,042 · 5,9 <sup>±1</sup>	TM Korn / TM Boden
3	Weizenstroh	0,34 ± 0,04	TM Stroh / TM Boden

Die Literaturwerte für den Transfer von Iod vom Boden in Getreide sind mit Werten zwischen 0,02 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> und 0,1 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> widersprüchlich (Tab. 3-4, 3-7, 3-8). Die Angaben in Tab. 3-4 (IAEA, 1994) und in Tab. 3-7 (Müller und Pröhl, 1993) stimmen unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Bezugsgrößen überein. Der Wert in Tab. 3-8 (Brown und Simmonds, 1995) macht nur Sinn, wenn als Bezugsgröße Trockenmasse und nicht Frischmasse angenommen wird. Der Wert von 0,02 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> liegt im Bereich der Werte, die von uns z. B. für <sup>127</sup>I im Weizen (Tab. 5-27) gefunden wurden. Auffällig ist der weite Bereich der Transferfaktoren in Tab. 5-27. Der von Shinonaga et al. (2001) für diesen Transferfaktor angegebene 95 %-Vertrauensbereich von 0,0005 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> bis 0,008 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> mit einem Erwartungswert von 0,001 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> liegt deutlich niedriger als die von uns in Region III gefunden Daten. Auch der höhere, von Staven et al. (2003) empfohlene Transferfaktor von 0,04 (kg TM) (kg TM)<sup>-1</sup> für Getreidekorn liegt niedriger als einige unserer Werte.

Tab. 5-28: Transferfaktoren für den Transfer von <sup>127</sup>I in Wirsingkohl, Weißkohl, Lauch und Kartoffeln.

Region	Pflanze	Transferfaktor für <sup>127</sup> I			Transferfaktor für <sup>129</sup> I			Bezug
1	Kopfsalat	0,0038	±	0,0002	0,079	±	0,005	FM Gemüse / TM Boden
1	Wirsingkohl	0,0025	±	0,0002		-		FM Gemüse / TM Boden
1	Lauch	0,0076	±	0,0005	0,085	±	0,005	FM Gemüse / TM Boden
1	Radieschen	0,0028	±	0,0003	0,011	±	0,001	FM Gemüse / TM Boden
1	Kohlrabi	0,0039	±	0,0003	0,0012	±	0,0005	FM Gemüse / TM Boden
3	Wirsingkohl	0,0085	±	0,0055	0,52	±	0,03	FM Gemüse / TM Boden
3	Lauch	0,0045	±	0,0011	0,026	±	0,004	FM Gemüse / TM Boden
3	Kohlrabi	0,016	±	0,002	0,015	±	0,003	FM Gemüse / TM Boden
3	Kartoffeln	0,0060	±	0,0009		-		FM Gemüse / TM Boden

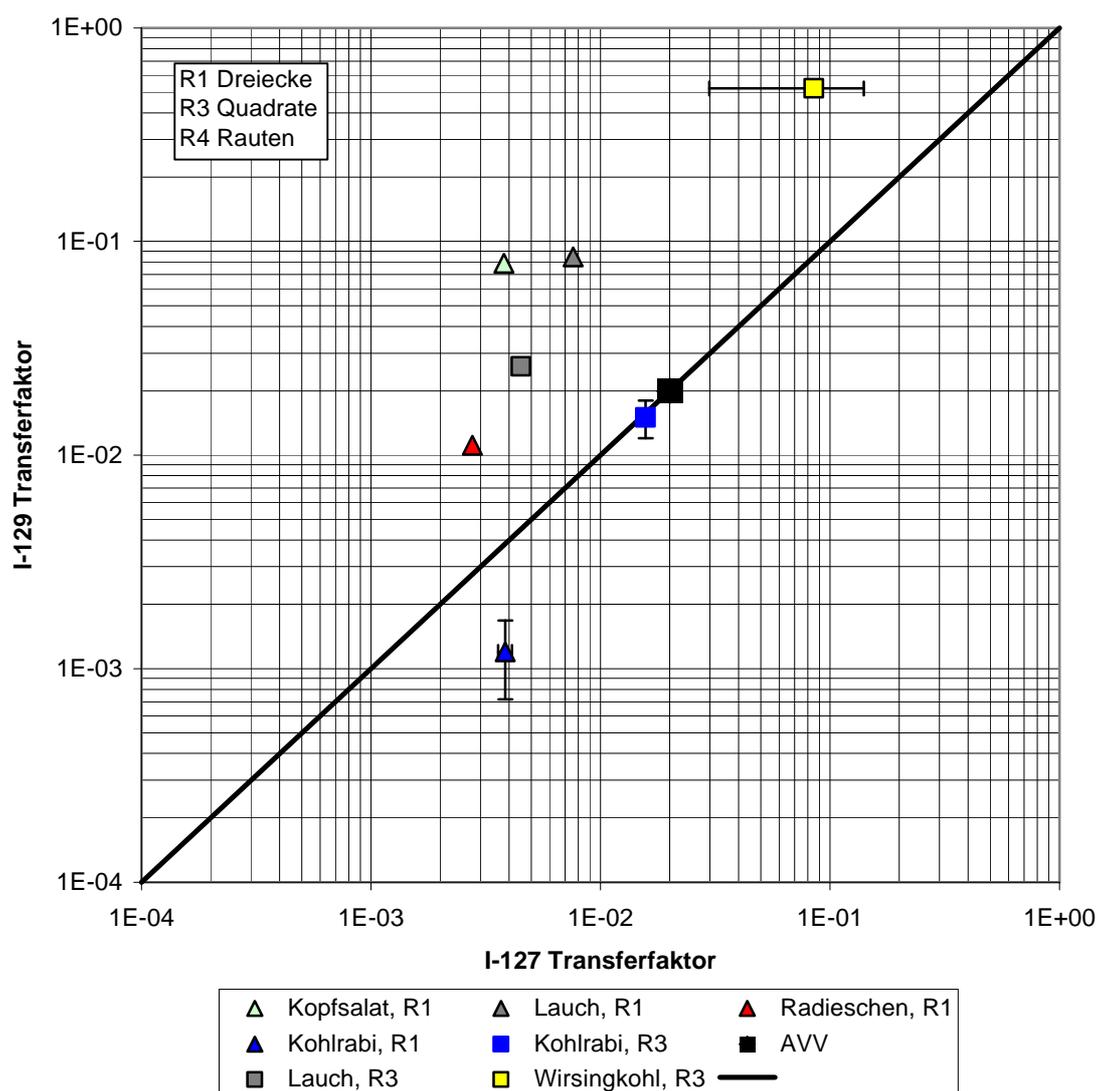


Abb. 5-53: Transferfaktoren für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Boden (Gehalte bezogen auf Trockenmasse) in Gemüse (Gehalte bezogen auf Frischmasse).

Auch für Blatt- und Wurzelgemüse konnten Transferfaktoren für beide Iod-Isotope nur in einigen Proben bestimmt werden (Abb. 5-53). Für Wirsingkohl aus Region I und Kartoffeln lagen die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte unter den Erkennungsgrenzen, sodass nur für  $^{127}\text{I}$  Transferfaktoren bestimmt werden konnten (Tab. 5-28). Letztere lagen in allen Fällen unter  $0,02 \text{ (kg FM) (kg TM}^{-1}\text{)}$ . Wesentlich höhere Transferfaktoren wurden lediglich für den Transfer von  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Blattgemüse, wie Kopfsalat und Lauch, in Region I und für Wirsingkohl in Region III beobachtet. Wiederum gilt für Region I hier die Einschränkung, dass diese Transferfaktoren einen unbekanntem Anteil direkter Beeinflussung durch die nahe Nordsee beinhalten.

Mit Ausnahme des Wirsingkohls werden die in dieser Arbeit gefunden Transferfaktoren für den Transfer vom Boden in Blatt- und Wurzelgemüse durch den Transferfaktor der AVV (Tab. 3-2) für  $^{127}\text{I}$  abgedeckt. Die Abweichungen der Daten für  $^{129}\text{I}$  können durch direkte Kontamination aus der Atmosphäre verursacht sein und müssen nicht den Literaturwerten dieses Transferfaktors widersprechen.

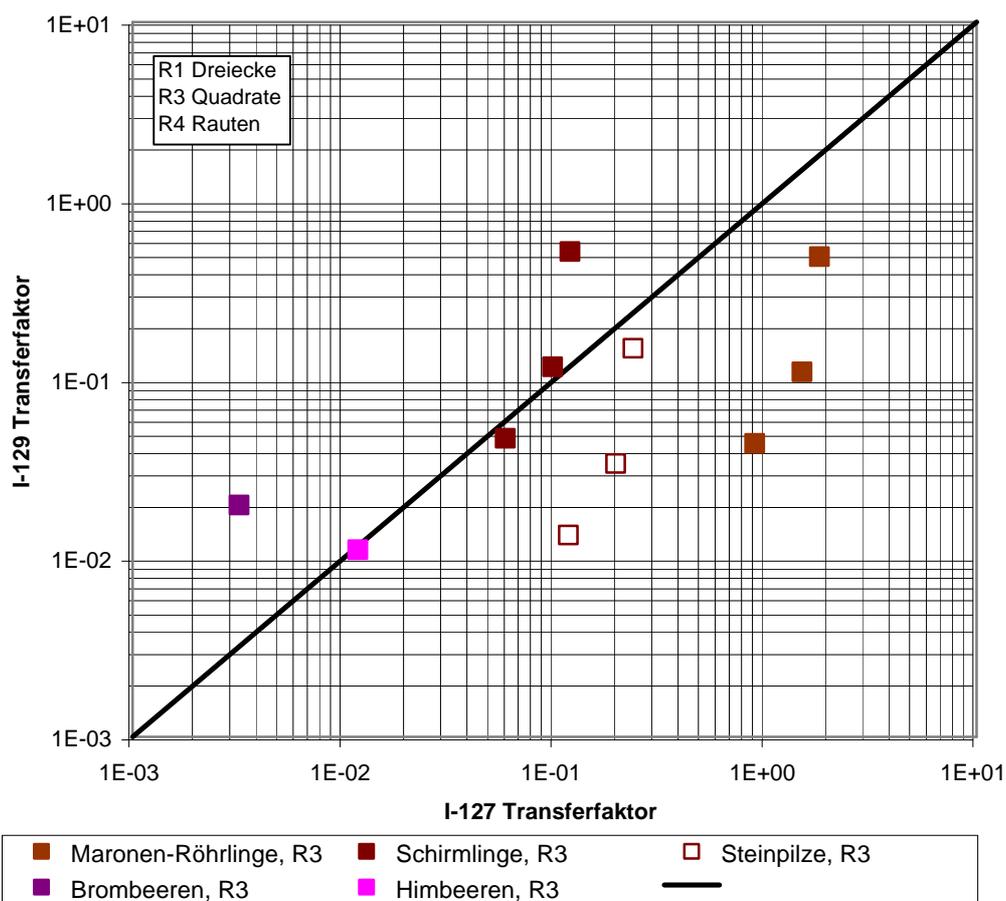


Abb. 5-54: Transferfaktoren für den Übergang von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  vom Boden (Gehalte bezogen auf Trockenmasse) in Pilze (Gehalte bezogen auf Trockenmasse) und Beeren (Gehalte bezogen auf Frischmasse). Alle Proben stammen aus Region 3.

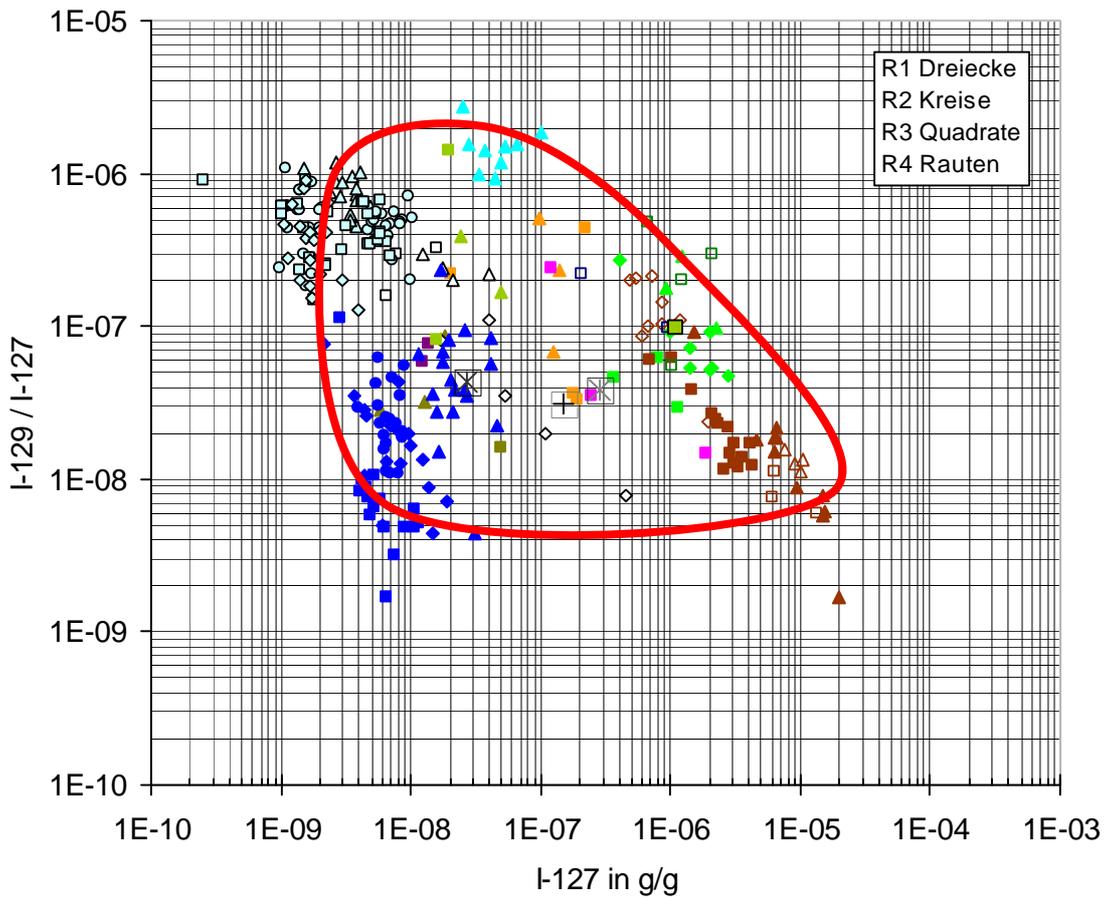
Von Waldstandorten wurden drei Sorten von Pilzen untersucht und Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  bestimmt (Abb. 5-54). Für Pilze wurden die Transferfaktoren jeweils bezogen auf den Boden, die organische Auflage und die Spreu berechnet. Die Unterschiede sind wegen der großen Unterschiede der Gehalte in den Waldboden-Kompartimenten beträchtlich. In jedem Fall liegen die Transferfaktoren deutlich höher als die für Brom- und Himbeeren von Plantagen, die Werte von ca.  $10^{-2} \text{ (kg FM) (kg TM)}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  zeigen. Literaturwerte für den Transfer von Iod vom Boden in pflanzliche Produkte liegen nicht vor.

Tab. 5-29: Transferfaktoren für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Pilze

Pilze	Transferfaktor für $^{127}\text{I}$	Transferfaktor für $^{129}\text{I}$	Bezug
Maronen-Röhrlinge	1,80 ± 0,04	0,49 ± 0,05	TM Pilze / TM Boden
Maronen-Röhrlinge	1,49 ± 0,53	0,11 ± 0,01	TM Pilze / TM Bodenauflage
Maronen-Röhrlinge	0,888 ± 0,023	0,044 ± 0,004	TM Pilz / TM Spreu
Schirmlinge	0,118 ± 0,026	0,52 ± 0,05	TM Pilze / TM Boden
Schirmlinge	0,098 ± 0,041	0,118 ± 0,009	TM Pilze / TM Bodenauflage
Schirmlinge	0,058 ± 0,013	0,047 ± 0,004	TM Pilz / TM Spreu
Steinpilze	0,235 ± 0,012	0,15 ± 0,03	TM Pilze / TM Boden
Steinpilze	0,195 ± 0,070	0,034 ± 0,006	TM Pilze / TM Bodenauflage
Steinpilze	0,116 ± 0,006	0,013 ± 0,003	TM Pilz / TM Spreu

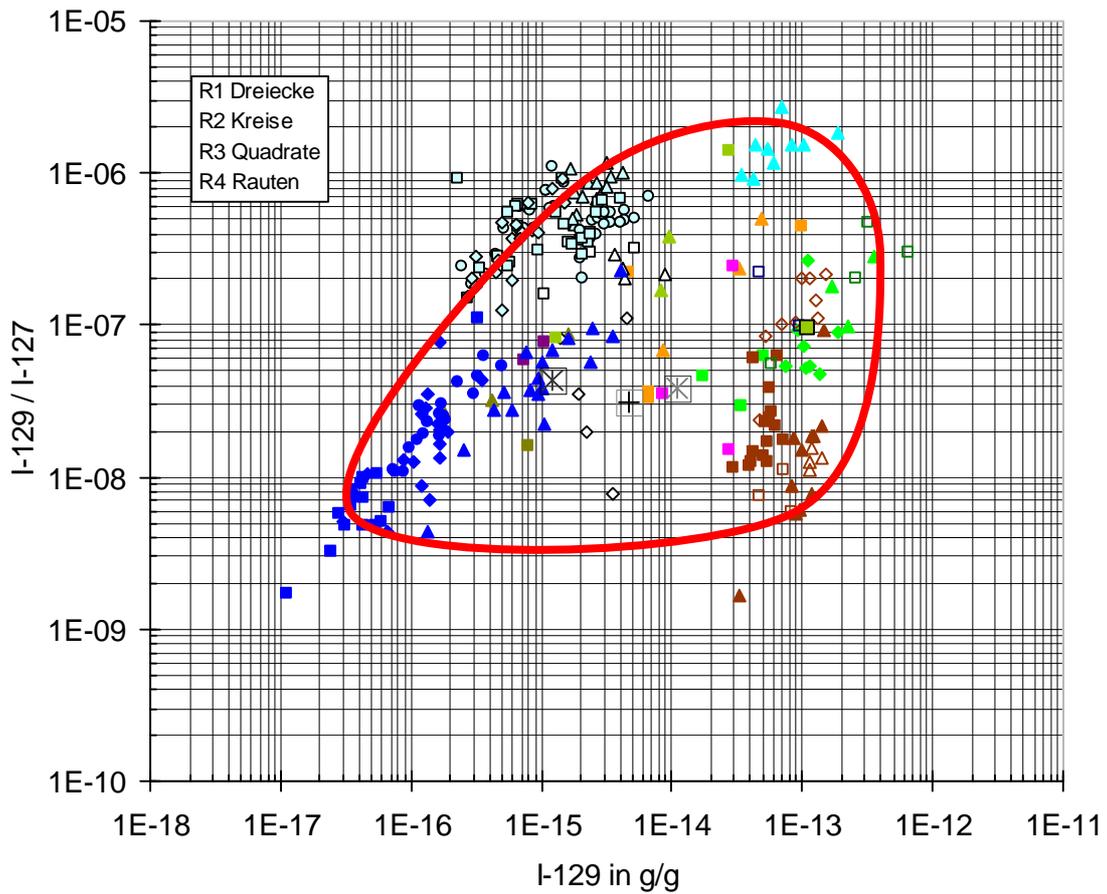
Zusammenfassend kann man feststellen, dass die *in-situ* Transferfaktoren dieser Arbeit für den Transfer der beiden Iod-Isotope,  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$ , durch die Wechselwirkung zwischen Niederschlag, Oberflächenwasser und Oberboden bestimmt werden. Insbesondere die unterschiedlich starken Bindungen der Iod-Isotope im Boden und die Verdünnung des anthropogenen  $^{129}\text{I}$  durch das bereits im Boden vorhandene  $^{127}\text{I}$  beeinflusst den Transfer. Hierbei ist wichtig, dass hohe Iod-Konzentrationen im Boden einhergehen mit niedrigen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen. Der Oberboden enthält das Iod, das am besten festgehalten wird, die Pflanzen das, was am verfügbarsten ist. So ist es nicht erstaunlich, dass der Transfer vom Futter in Milch und Fleisch keine signifikanten Unterschiede zwischen den Iod-Isotopen zeigt, während das beim Transfer vom Boden in die Pflanze oder vom Boden in Milch und Fleisch zu sehen ist.

Der Schlüssel zum Verständnis des Boden-Pflanze-Transfers liegt in den Wechselwirkungen des Wassers mit dem Boden in der wasserungesättigten Bodenzone, dem Oberboden. Diese Wechselwirkungen und auch die Rolle des Bewuchses in Bezug auf Evaporation, Transpiration und Akkumulation sind nur unvollständig verstanden in einem ökologischen System, das durch ausgeprägte Ungleichgewichte charakterisiert ist. Die in den Abb. 5-55 und 5-56 dargestellte, komplexe radioökologische Situation kann auch im Rahmen dieser Arbeit nur auf logarithmischen Skalen qualitativ verstanden werden. Wir sind noch weit von einem linearen Verständnis der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und einer vollständigen Beschreibung der Wege des Iods durch die terrestrische Ökosphäre entfernt.



▲ Weidebew uchs,R1	■ Weidebew uchs,R3	◆ Weidebew uchs,R4	▲ Ackerboden,R1	■ Ackerboden,R3
△ Wiesenboden,R1	□ Wiesenboden,R3	◇ Wiesenboden,R4	■ Beeren,R3	▲ Blattgemüse,R1
▲ Wurzelgemüse,R1	■ Wurzelgemüse,R3	▲ Getreide,R1	■ Getreide,R3	▲ Meerwasser,R1
△ Milch,R1	□ Milch,R3	◇ Milch,R4	▲ Oberfl.Wasser,R1	● Oberfl.Wasser,R2
■ Oberfl.Wasser,R3	◆ Oberfl.Wasser,R4	■ Pilze,R3	△ Regen,R1	○ Regen,R2
□ Regen,R3	◇ Regen,R4	⊠ Fleisch,Schaf,R3	⊠ Fleisch,Ziege,R3	⊠ Fleisch,Rind,R1
□ Boden,Wald,R3	□ Stroh,Weizen,R3	■ Blattgemüse, R3	■ Boden zu Birke, R3	

Abb. 5-55:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ -Gehalte in Umweltproben aus Niedersachsen



▲ Weidebew uchs,R1	■ Weidebew uchs,R3	◆ Weidebew uchs,R4	▲ Ackerboden,R1	■ Ackerboden,R3
△ Wiesenboden,R1	□ Wiesenboden,R3	◇ Wiesenboden,R4	■ Beeren,R3	▲ Blattgemüse,R1
▲ Wurzelgemüse,R1	■ Wurzelgemüse,R3	▲ Getreide,R1	■ Getreide,R3	▲ Meerwasser,R1
△ Milch,R1	□ Milch,R3	◇ Milch,R4	▲ Oberfl.Wasser,R1	● Oberfl.Wasser,R2
■ Oberfl.Wasser,R3	◆ Oberfl.Wasser,R4	■ Pilze,R3	△ Regen,R1	○ Regen,R2
□ Regen,R3	◇ Regen,R4	⊠ Fleisch,Schaf,R3	⊠ Fleisch,Ziege,R3	⊠ Fleisch,Rind,R1
□ Boden,Wald,R3	□ Stroh,Weizen,R3	■ Blattgemüse,R3	■ Boden zu Birke,R3	

Abb. 5-56:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalte in Umweltproben aus Niedersachsen

## 6.2 Strahlenexposition durch anthropogenes Iod-129

Schmidt et al. (1998) haben die durch  $^{129}\text{I}$  verursachte Strahlenexposition abgeschätzt. Unter der Annahme der Daten des ICRP Referenzmenschens (ICRP, 1971) für die Aufnahme von Iod und den Gehalt des Menschen an Iod und einen Dosiskoeffizienten für ein einjähriges Kind von  $2,2 \cdot 10^{-7} \text{ Sv Bq}^{-1}$  berechneten sie, dass ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Gesamtiod des Körpers von  $6,4 \cdot 10^{-4}$  eine effektive Jahresdosis von 0,3 mSv bewirken würde.

Mit den Dosiskoeffizienten der EURATOM Grundnormen (CEC, 1996) und einer mittleren täglichen Iod-Aufnahme in Deutschland von  $0,12 \text{ mg d}^{-1}$  ergibt sich die in Tab. 5-30 dargestellte Situation. Für die sechs Altersklassen der StrlSchV von 2001 würde der Grenzwert der Schilddrüse von 0,9 mSv bei  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von  $8,5 \cdot 10^{-4}$ ,  $7,3 \cdot 10^{-4}$ ,  $9,2 \cdot 10^{-4}$ ,  $8,3 \cdot 10^{-4}$ ,  $1,1 \cdot 10^{-3}$  bzw.  $1,5 \cdot 10^{-3}$  erreicht werden, wobei allerdings der Grenzwert der effektiven Dosis von  $0,3 \text{ mSv a}^{-1}$  nicht ausgeschöpft würde.

Derartig hohe Werte der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden bisher in der terrestrischen Biosphäre lediglich bei Rinderschilddrüsen aus der nächsten Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage von La Hague (Abb. 5-57) von Fréchet et al. (2002) beobachtet. Wie bereits in Kapitel 5.4.9 ausgeführt, liegen bisher keine Daten über menschliche Schilddrüsen aus dem Nord-Cotentin vor, sodass die interessante Frage, ob dort die  $^{129}\text{I}$  Exposition radiologisch relevante Werte erreicht hat, hier noch nicht beantwortet werden kann.

Es ist nicht Aufgabe dieser Diskussion auf die Unsicherheiten der Dosiskoeffizienten für die interne Strahlenexposition durch Inhalation und Ingestion von radioaktiven Iod-Isotopen einzugehen. Unterschieden in der Physiologie, der Variabilität der Größe von Schilddrüsen und andere Faktoren beeinflussen die tatsächliche Exposition. Hamby und Benke (1999), Harvey et al. (2003) sowie Apostoaei und Miller (2004) haben dieses Problem am Beispiel der Dosiskoeffizienten für  $^{131}\text{I}$  dargestellt.

Tabelle 5-30:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, bei denen in Deutschland eine Ausschöpfung des Dosisgrenzwertes für die Schilddrüse zu erwarten ist, und dadurch bewirkte Werte der effektiven Dosis.

	3-Monate- alter Säug- ling	1-Jahr-altes Kind	5-Jahre-altes Kind	10-Jahre- altes Kind	15-Jahre- altes Kind	Erwachsener	Einheit
$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	$8,5 \cdot 10^{-4}$	$7,3 \cdot 10^{-4}$	$9,2 \cdot 10^{-4}$	$8,3 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^{-3}$	1
tägliche Iod- Aufnahme	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12	mg
tägliche $^{129}\text{I}$ Auf- nahme	0,67	0,57	0,72	0,65	0,88	1,18	Bq
jährliche $^{129}\text{I}$ Auf- nahme	243	209	263	238	321	429,45	Bq
Ingestionsdosis- koeffizient $^{129}\text{I}$ , Schilddrüse	$3,7 \cdot 10^{-6}$	$4,3 \cdot 10^{-6}$	$3,4 \cdot 10^{-6}$	$3,8 \cdot 10^{-6}$	$2,8 \cdot 10^{-6}$	$2,1 \cdot 10^{-6}$	Sv Bq $^{-1}$
Schilddrüsendosis	0,90	0,90	0,90	0,90	0,90	0,90	mSv
Jahresgrenzwert Schilddrüsendosis	0,90	0,90	0,90	0,90	0,90	0,90	mSv
Ingestionsdosis- koeffizient $^{129}\text{I}$ , effektive Dosis	$1,8 \cdot 10^{-7}$	$2,2 \cdot 10^{-7}$	$1,7 \cdot 10^{-7}$	$1,9 \cdot 10^{-7}$	$1,4 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^{-7}$	Sv Bq $^{-1}$
Effektive Dosis	0,04	0,05	0,04	0,05	0,04	0,05	mSv
Jahresgrenzwert effektive Dosis	0,30	0,30	0,30	0,30	0,30	0,30	mSv

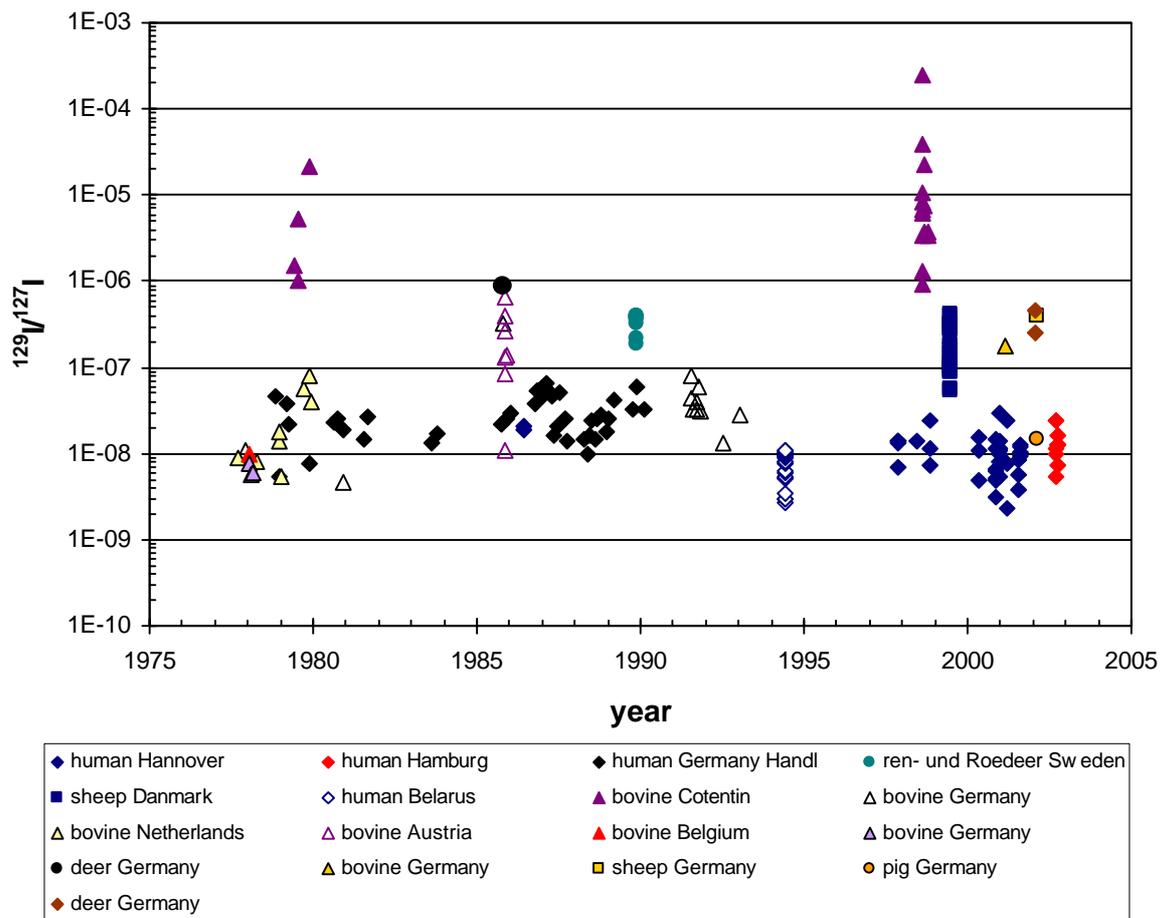


Abb. 5-57: Übersicht über die zeitliche Entwicklung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen und tierischen Schilddrüsen in Europa. Zur Veranschaulichung der Auswirkungen in der näheren Umgebung von Emittenten sind hier zusätzlich zu den Daten aus Kap. 5.4.10, Abb. 5-42 die Ergebnisse von Fréchou et al. (2002) für Schilddrüsen aus dem Nord-Cotentin eingetragen.

In Norddeutschland (und in anderen Gebieten Europas entfernt von Emittenten) ist  $^{129}\text{I}$  trotz der massiven Veränderungen, die die seine Vorkommen in der Umwelt erfahren haben und die noch andauern, radiologisch nicht relevant. Die Strahlenexpositionen der Menschen liegen unter  $10 \text{ nSv a}^{-1}$ .

Wenn diese Veränderungen auch aus radiologischer Sicht unerheblich sein mögen, so stellt sich doch die Frage, ob der Mensch langfristige Veränderungen der Umwelt nicht vermeiden oder zumindest minimieren sollte. Im Rahmen der Diskussionen um nachhaltiges Verhalten muss man sich diese Frage stellen. Im Zusammenhang mit Konzepten des allgemeinen Schutzes von Luft, Boden und Wasser ist  $^{129}\text{I}$  eines der Schlüsselnuklide, an denen die Frage nach der Nachhaltigkeit menschlichen Handelns zu diskutieren ist (Michel et al., 2003c, 2004).

## 7 Schlussfolgerung und Ausblick

Zum ersten Mal wurde in diesem Forschungsvorhaben versucht, die Iod-Isotope  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  durch die ganze ökologische Kette vom Meer über die Atmosphäre in die Pedo- und Biosphäre zu verfolgen. Dabei konnte eine Gesamtschau erreicht werden, die die ganze Komplexität des Iod-Kreislaufs offenbart. Einige Stufen dieses Kreislaufs konnten angemessen beschrieben werden. Für einige Kompartimente konnten im Rahmen des Forschungsauftrags nur erste Daten ermittelt werden. Dort, wo das Verständnis noch unvollständig ist, können aber auf der Basis der vorliegenden Untersuchung, sinnvolle weitere Forschungsarbeiten definiert werden.

In den letzten 50 Jahren sind die natürlichen Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt durch anthropogenes  $^{129}\text{I}$  dramatisch verändert worden. Diese Veränderungen dauern an. Obwohl  $^{129}\text{I}$  derzeit außer in der nächsten Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen radiologisch nicht relevant ist, sollten die anthropogenen Veränderungen sorgfältig verfolgt und dokumentiert werden. Ohne Wissen über den Ist-Zustand kann in der Zukunft nicht über zusätzliche anthropogene Veränderungen gesprochen werden.

In Ausgestaltung von Art. 35/36 des Euratom-Vertrages sind die  $\gamma$ -ODL sowie die Radioaktivität von Aerosolen, Oberflächenwasser, Trinkwasser, Milch und Gesamtnahrung zu überwachen. Dabei unterscheidet die Europäische Kommission ein weitmaschiges Spurenmessnetz und ein engmaschiges Routinemessnetz. Das weitmaschige Messnetz (SPARSE Netzwerk) sieht für Deutschland die Einteilung in vier Bereiche (Nord, Süd, Ost und Mitte) vor, in denen jeweils an einem Messort die tatsächlichen Aktivitätskonzentrationen von  $^7\text{Be}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Aerosolen, von  $^{137}\text{Cs}$  in Oberflächenwasser, von  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Trinkwasser und von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in Milch und Gesamtnahrung gemessen werden sollen; vgl. Edelhäuser et al. (2000).

Im Hinblick auf die Nachhaltigkeitsdiskussion und die Festlegungen der OSPAR Vereinbarungen (OSPAR, 1992), ist  $^{129}\text{I}$  das Radionuklid, das im SPARSE Netzwerk der europäischen Überwachung der Umweltradioaktivität überwacht werden sollte. Es ist von wesentlich höherer Bedeutung als die Radionuklide  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  und  $^{85}\text{Kr}$ , die ebenfalls in Bezug auf langfristige anthropogene Veränderungen in Boden, Luft und Wasser als relevant anzusehen sind.  $^{129}\text{I}$  sollte in die langfristige Überwachung von Meerwasser, Luft, Niederschlag, Oberflächenwasser, Trinkwasser und Boden aufgenommen werden.

Im vorliegenden Forschungsvorhaben konnten grundlegende radioökologische Parameter für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  durch die ökologische Kette zum Menschen bestimmt werden. Die beiden Iod-Isotope befinden sich in der europäischen Umwelt im Ungleichgewicht. Die unterschiedlichen Zeitskalen, auf denen  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in die Umwelt eingetragen worden sind, bedingen Kinetiken mit unterschiedlichen Zeitkonstanten. Iod ist biophil und äußerst beweglich. Dennoch können für das stabile  $^{127}\text{I}$  stabilere Bindungsformen mit wesentlich langsamerer Kinetik angenommen werden als für das rezente  $^{129}\text{I}$ . Dies bedingt eine anscheinend höhere Verfügbarkeit von  $^{129}\text{I}$  als  $^{127}\text{I}$ , wenn es über den Bodenpfad in die Nahrungskette gelangt.

Messungen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in oberirdischen Pflanzenteilen sowie in Schilddrüsen und Geweben von Pflanzenfressern belegen, dass die derzeitige Situation sowohl durch Transfer über den Bodenpfad als auch durch direkte atmosphärische Kontamination beeinflusst wird.

Der Transfer von Iod-Isotopen zum Menschen ist von den normalen radioökologischen Pfaden weitgehend entkoppelt. Haushaltsübliche Zubereitung von Speisen entfernt Iod aus den Lebensmitteln und die Verwendung von iodiertem Salz führt anscheinend Iod in die Nahrungskette ein, das nicht anthropogen beeinflusst ist. Hinzu kommt im Bereich des ökologischen Iod-Transfers, dass

die Nahrungsmittel mit den höchsten  $^{127}\text{I}$ -Gehalten die niedrigsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aufweisen. Dies wird durch das Verhalten von Iod im Oberboden bestimmt.

Folgende Fragestellungen, die nicht Gegenstand des Forschungsvorhabens waren und die nur unvollständig beantwortet werden konnten oder die sich erst auf der Grundlage der Ergebnisse dieses Forschungsvorhabens ergaben, sollten in der Zukunft bearbeitet werden:

- Status des  $^{129}\text{I}$  in der Nordsee und im Nordost-Atlantik,
- Übergang der Iod-Isotope vom Meer in die Atmosphäre,
- Atmosphärischer Transport der Iod-Isotope,
- Austausch der Iod-Isotope im System Niederschlag-Oberboden-Oberflächenwasser,
- Transport der Iod-Isotope mit dem Oberflächenwasser,
- Transport und Bilanzierung der Iod-Isotope im System Fluss-Schwebstoff-Sediment,
- Infiltration der Iod-Isotope in das Grundwasser,
- Verhalten der Iod-Isotope in Waldökosystemen,
- $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Trinkwasser,
- Iod-Isotopenverhältnisse in iodiertem Kochsalz und in medizinischen Iod-Präparaten,
- $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Süß- und Salzwasserfischen in Abhängigkeit der geographischen Herkunft,
- Speziation von Iod-Isotopen in allen betrachteten Kompartimenten.

Die Aufklärung der komplexen Wege der Iod-Isotope durch die verschiedenen Umweltkompartimente gehört für uns zu den spannendsten Fragen der Ökologie mit Bedeutung weit hinaus über die Radioökologie. Durch das anthropogene  $^{129}\text{I}$  wurden alle freien, Iod enthaltenden Kompartimente radioaktiv markiert.  $^{129}\text{I}$  ist damit ein Umwelttracer geworden, der eine einzigartige Chance zur Untersuchung des Iod-Kreislaufs bietet.

## Danksagung

Die Autoren danken den Herren Dr. W. Städe und Herrn J. Döhring vom Niedersächsischen Landesamt für Ökologie (NLÖ), die uns die Proben der langjährigen Messreihen an Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser zur Verfügung gestellt haben. Wir danken den Herren Prof. Dr. H.D. Tröger und Dr. K. Albrecht vom Institut für Rechtsmedizin der Medizinischen Hochschule Hannover und Prof. Dr. K. Püschel vom Institut für Rechtsmedizin des Universitätsklinikums Hamburg-Eppendorf für Schilddrüsenproben. Die Bestrahlungen für die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse wurden am Forschungsreaktor der GKSS Forschungszentrums Geesthacht GmbH durchgeführt. Wir danken speziell den Herren Dr. P. Schreiner und K. Pfaffenbach von der GKSS für ihre Unterstützung. Wir danken Frau Prof. Dr. C. Vogt und ihren Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern vom Lehrgebiet Analytische Chemie am Institut für Anorganische Chemie der Universität Hannover für die Möglichkeit der Durchführung von und die Unterstützung bei den ICP-MS Messungen. Beim Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit und dem Bundesamt für Strahlenschutz bedanken wir uns für die finanzielle Unterstützung und die Projektbegleitung durch Frau C. Willrodt (BfS). Wir danken Frau Willrodt besonders für die intensive und kritische Durchsicht des Abschlussberichtes und viele konstruktive Anmerkungen.

## Anhang

### Anhang I      Übersicht über die Probenahme

Tabelle I.1: Probenahme von Luft, Niederschlag, Oberflächenwasser und Grundwasser

<b>Beprobtes Medium</b>	<b>Region I</b>	<b>Region II</b>	<b>Region III</b>	<b>Region IV</b>
	<b>küstennah</b>	<b>küstenfern</b>		
Luft	Föhr			
Meerwasser	Amrum, Neßmersiel, Spieka-Neufeld	-	-	-
Freilandniederschlag	Norderney	Buer- Ostenwalde	Seesen	Siemen
Bestandsniederschlag	-	Buer- Ostenwalde	Seesen	-
Oberflächenwasser	Großes Meer	Bokeloh	Leineturm	Meetschow
Grundwasser	Rhauderfehn	Woltrup- Wehbergen	Lamspringe	Breetze
Bodenprofile	-	Vestrup	Adenstedt, Eilenriede, Groß Lobke, Twenge, Ricklingen	
Oberboden, Bewuchs, tierische und pflanzliche Produkte	Neßmerpolder, Gründeich	-	Buntenbock, HLW/ Hannover, Gestorf, Gleidingen, Jeinsen, Schessinghausen, Schlewecke, Reinhausen	Marleben, Meetschow

Tabelle I.2: Beschreibung der Probennahmeorte für Boden, pflanzliche und tierische Produkte und Gesamtnahrung

Bezeichnung des Hofes	Proben	geo. Breite	geo. Länge	Bodentyp
Neßmerpolder	Heu, Hafer, Weizen, Luzerne, Raps, Gerste Rindfleisch, innere Organe vom Rind, Kuhmilch	53° 40' 30"N	07° 22' 12"O	Seemarsch
HLW/Hannover	Heu, Grassilage, Grünfutter, Rindfleisch, Kuhmilch, Schafsfleisch, Schweinefleisch	52° 18' 34"N	09° 50' 09"O	Rendzina
Schessinghausen	Raps, Roggen, Triticale, Weizen, Mais (auch Silage), Putenfleisch (incl. Futter)	52° 35' 28"N	09° 15' 30"O	Podsol-Braunerde
Schlewecke	Gerste, Raps, Weizen, Zuckerrüben	52° 02' 29"N	10° 08' 13"O	(Pseudogley)-Parabraunerde
Gestorf	Weizen Kartoffeln, Zuckerrüben	52° 13' 04"N	09° 42' 28"O	Pseudogley-Parabraunerde
Jeinsen	Kopfsalat, Knollenpetersilie, Rote Bete, Mangold, Kohlrabi, Einlegegurken, Lauch, Petersilie, Wirsingkohl, Weißkohl, Blumenkohl, Brokkoli, Rosenkohl	52° 14' 05"N	09° 47' 26"O	Parabraunerde
Gründeich	Kopfsalat, Kohlrabi, Weißkohl, Mangold, Radieschen, Wirsingkohl, Blumenkohl, Petersilie, Rote Bete, Lauch, Kartoffeln	53° 39' 43"N	7° 30' 59"O	Brackmarsch-Seemarsch
Buntenbock	Ziegenmilch, Ziegenfleisch, Gras	51° 46' 23"N	10° 19' 49"O	-
Reinhausen	Pilze, Reh	52° 27' 46"N	10° 00' 49"O	Braunerde-Ranker
Gleidingen	Himbeeren, Brombeeren	52° 16' 09"N	09° 47' 57"O	Gley-Auenboden
Hauptmensa	Gesamtnahrung	52° 23' 11"N	09° 42' 50"O	-

Tabelle 1.3.a: Probennomenklatur

Beispiel:

Code	Ort	Kategorie	EP/MP	Beschreibung	Nummerierung
<b>GrGeEPBk01</b>	<b>Gr</b>	<b>Ge</b>	<b>EP</b>	<b>Bk</b>	<b>01</b>
	Gründeich	Gemüse	Einzelprobe	Blumenkohl	1. Probe dieser Art

	Orte		Kategorie		Material				
		Ab	Abendessen	Bb	Brombeeren	Kp	Knollenpetersilie	Rd	Radieschen
Bu	Buntenbock	Ba	Baum	Bf	Bratenfleisch	Kr	Kohlrabi	Rk	Rippenknochen
Ge	Gestorf	Bo	Boden	Bi	Birke	Krf	Krafftutter	Ro	Roggen
Gl	Gleidingen	Fr	Frühstück	Bk	Blumenkohl	Ks	Kopfsalat	Ro	Rosenkohl
Gr	Gründeich	Ge	Gemüse	Br	Brokoli	La	Lauch	Rü	Rücken
HLW	Hermansdorfer Landwerkstätten	GES	Gesamtnahrung	eF	"essbares Fleisch"	Le	Leber	SB	Schulterblatt
Je	Jeinsen	Kd	Kunstdünger	Eg	Einlegegurken	Lu	Luzerna	Sc	Schirmlinge
Po	Nessmerpolder	Ko	Korn	Ei	Eicheln	Lu	Lunge	Sd	Schilddrüse
Rh	Reinhausen	Ob	Obst	Ge	Gerste	Ma	Mais	Sd	Schilddrüse
Sc	Schessinghausen	Pi	Pilze	gK	gemischte Knochen	Mg	Mangold	Sp	Steinpilze
Sl	Schlewecke	Pu	Pute	Gk	Grünkohl	Mi	Milch	St	Schopftintlinge
ZSR	ZSR - Herrenhausen	Re	Reh	Gr	Gras	Mil	Milz	Tr	Triticale
		Ri	Rind	Gs	Grassilage	Mk	Markknochen	VB	Vorderbein
	<b>Unterscheidung EP/MP</b>	Sa	Schaf	Ha	Hafer	Mr	Maronen-Röhrlinge	Vr	Violetta Ritterling
EP	Einzelprobe	St	Stroh	Hb	Hinterbein	Ms	Maissilage	Wa	Wald
MP	Mischprobe	Sw	Schwein	Hb	Himbeeren	Ni	Niere	We	Weizen
		Ws	Wildschwein	He	Heu	Os	Ochsenschwanz	Wek	Weißkohl
				He	Herz	Pe	Petersilie	Wk	Wirsingkohl
				Hf	Hackfleisch	Pf	Putenfutter	Zu	Zuckerrüben
				Hk	Hüftknochen	Ra	Raps	Zun	Zunge
				Ka	Kartoffeln	Rb	Rote Bete		
				KF	Kammfleisch	Rb	Roastbeef		

Tabelle I.3.b: Übersicht über die gesamten genommenen Proben. Diese Übersicht dient lediglich der zeitlichen Dokumentation.

Details können der Datenbank "ZSR\_Proben" entnommen werden. Angaben zu den Frisch-, Trocken- und Aschgewichten der Proben finden sich in den Tabellen 5 bis 11 im Anhang der Dissertation von Vahlbruch (2004). Dabei wurde das Feuchtgewicht, falls es nicht ermittelt wurde, unter Zuhilfenahme von Farries (1988) oder den Messanleitungen (BMU, 2000) rekonstruiert. Abgesehen von Gemüse ist der Sinn der Ermittlung des Feuchtgewichtes, vor allem bei Proben wie Gras oder Stroh, zweifelhaft, weil Schwankungen der Luftfeuchtigkeit kurz vor den Probenahmen zu Variationen im Feuchtgewicht um einen Faktor zwei führen können. Allerdings ist die Kenntnis des Feuchtgewichtes manchmal zur Vergleichbarkeit mit anderen Studien von Nutzen. Schwankungen im Verhältnis von Trockengewicht zu Aschgewicht können aus einem unvollständigen Veraschungsprozess resultieren. Bei einer präzisen Bestimmung des Trockengewichtes spielen diese Schwankungen dann aber keine Rolle.

Nr.	Datum	Ort	Art	Abkürzung
1	25.05.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe Heu-Feld 17-19	PoBoMPHe01
2	25.05.2001	Neßmerpolder	Heumischprobe Feld 17-19 (1.Schnitt)	PoMPHe01
3	25.05.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe Heu-Feld 17	PoBoEPHe01
4	25.05.2001	Neßmerpolder	Heueinzelprobe Feld 17 (1. Schnitt)	PoEPHe01
5-13	25.05.2001	Neßmerpolder	Bodenprofil Feld 25	PoBoPr01 , 0-40 cm
14	25.05.2001	Neßmerpolder	4 L Milch	PoMPMi01
15	21.07.2001	Schlewecke	Bodenmischprobe Gerstefeld "am Dorf"	SIBoMPGe01
16	21.07.2001	Schlewecke	Kornmischprobe Gerste "am Dorf"	SIKoMPGe01
17	21.07.2001	Schlewecke	Strohmischprobe Gerste "am Dorf"	SISMPGe01
18	21.07.2001	Schlewecke	Bodenmischprobe Gerstefeld "am Wald"	SIBoMPGe02
19	21.07.2001	Schlewecke	Kornmischprobe Gerste "am Wald"	SIKoMPGe02
20	21.07.2001	Schlewecke	Strohmischprobe Gerste "am Wald"	SISMPGe02
21	27.07.2001	Schlewecke	Bodenmischprobe Rapsfeld	SIBoMPRa01
22	27.07.2001	Schlewecke	Kornmischprobe Rapsfeld	SIKoMPRa01
23	27.07.2001	Schlewecke	Bodeneinzelprobe Rapsfeld	SIBoEPRa01
24	06.08.2001	Schlewecke	Bodenmischprobe Weizenfeld 1	SIBoMPWe01
25	06.08.2001	Schlewecke	Bodeneinzelprobe Weizenfeld 1	SIBoEPWe01
26	06.08.2001	Schlewecke	Kornmischprobe Weizenfeld 1	SIKoMPWe01
27	06.08.2001	Schlewecke	Strohmischprobe Weizenfeld 1	SISMPWe01
28	13.08.2001	Schessinghausen	Kornmischprobe Raps	ScKoMPRa01
29	14.08.2001	Jeinsen	Kopfsalat	JeGeEPKs01
30	14.08.2001	Jeinsen	Einzelprobe Boden zu Kopfsalat an entsprechender Stelle	JeBoEPKs01
31	14.08.2001	Jeinsen	Knollenpetersilie	JeGeEPKp01
32	14.08.2001	Jeinsen	Einzelprobe Boden zu Knollenpetersilie an entsprechender Stelle	JeBoEPKp01
33	14.08.2001	Jeinsen	Rote Beete	JeGeEPRb01
34	14.08.2001	Jeinsen	Einzelprobe Boden zu Rote Beete an entsprechender Stelle	JeBoEPRb01

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
35	14.08.2001	Jeinsen	Mangold	JeGeEPMg01
36	14.08.2001	Jeinsen	Einzelprobe Boden zu Mangold an entsprechender Stelle	JeBoEPMg01
37	14.08.2001	Jeinsen	Kohlrabi	JeGeEPKr01
38	14.08.2001	Jeinsen	Einzelprobe Boden zu Kohlrabi an entsprechender Stelle	JeBoEPKr01
39	14.08.2001	Jeinsen	Einlegegurken	JeGeEPEg01
40	14.08.2001	Jeinsen	Einzelprobe Boden zu Einlegegurken an entsprechender Stelle	JeBoEPEg01
41	15.08.2001	Gestorf	Bodenmischprobe Weizenfeld	GeBoMPWe01
42	15.08.2001	Gestorf	Kornmischprobe Weizen	GeKoMPWe01
43	15.08.2001	Gestorf	Strohmischprobe Weizen	GeStMPWe01
44	15.08.2001	Gestorf	Einzelprobe Kartoffeln	GeGeEPKa01
45	15.08.2001	Gestorf	Einzelprobe Boden zu Kartoffeln an entsprechender Stelle	GeBoEPKa01
46	16.08.2001	Schessinghausen	Bodenmischprobe Raps	ScBoMPRa01
47	16.08.2001	Schessinghausen	Bodenmischprobe Roggenfeld "Kirchmoor"	ScBoMPRo01
48	16.08.2001	Schessinghausen	Kornmischprobe Roggen "Kirchmoor"	ScKoMPRo01
49	16.08.2001	Schessinghausen	Strohmischprobe Roggen "Kirchmoor"	ScStMPRo01
50	16.08.2001	Schessinghausen	Kornmischprobe Triticale "Brachkamp"	ScKoMPTr01
51	16.08.2001	Schessinghausen	Strohmischprobe Triticale "Brachkamp"	ScStMPTr01
52	16.08.2001	Schessinghausen	Putenfutter	ScPuMPPf01
53	16.08.2001	Schessinghausen	Weizenkorn aus dem Vorjahr -> Putenfutter	ScKoMPPf01
54	20.08.2001	Schlewecke	Bodenmischprobe "Weizenfeld 2"	SiBoMPWe02
55	20.08.2001	Schlewecke	Kornmischprobe "Weizenfeld 2"	SiKoMPWe02
56	20.08.2001	Schlewecke	Strohmischprobe "Weizenfeld 2"	SiStMPWe02
57	20.08.2001	Schlewecke	Mischprobe Zuckerrüben, Feld 1	SiGeMPZu01
58	20.08.2001	Schlewecke	Einzelprobe Boden zu den Zuckerrüben an entsprechender Stelle (Zuckerrübenfeld 1)	SiBoEPZu01
59	27.08.2001	Neßmerpolder	Heueinzelprobe Feld 17 (2. Schnitt)	PoEPHe02
60	27.08.2001	Neßmerpolder	Heueinzelprobe Feld 18 (2. Schnitt)	PoEPHe03
61	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe "Feld 17-19"	PoBoMPHe02
62	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Feld 17"	PoBoEPHe02
63	27.08.2001	Neßmerpolder	Kornmischprobe "Hafer I" (bei Fritschens)	PoKoMPHa01
64	27.08.2001	Neßmerpolder	Strohmischprobe "Hafer I zum Deich hin"	PoStMPHa01
65	27.08.2001	Neßmerpolder	Strohmischprobe "Hafer I vom Deich weg, bei Fritschens"	PoStMPHa02
66	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe "Hafer I"	PoBoMPHa01
67	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Hafer I zum Deich hin"	PoBoEPHa01
68	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Hafer I vom Deich weg, bei Fritschens"	PoBoEPHa02
69	27.08.2001	Neßmerpolder	Kornmischprobe "Weizen-Feld 22-23"	PoKoMPWe01
70	27.08.2001	Neßmerpolder	Strohmischprobe "Weizen-Feld 22-23"	PoStMPWe01
71	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe Weizen-Feld 22-23	PoBoMIWe01
72	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Weizen, am Deich" (Feld 23)	PoBoEPWe01
73	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Weizen, vom Deich weg" (Feld 22)	PoBoEPWe02

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
74	27.08.2001	Neßmerpolder	Kornmischprobe "Hafer II" (Feld 10)	PoKoMPHa02
75	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe "Hafer II" (Feld 10)	PoBoMPHa02
76	27.08.2001	Neßmerpolder	Heumischprobe "Luzerna" (Feld 1-3)	PoMPLu01
77	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe "Luzerna" (Feld 1-3)	PoBoMPLu01
78	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Luzerna, am Deich" (Feld 1-3)	PoBoEPLu01
79	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe "Luzerna, vom Deich weg" (Feld 1-3)	PoBoEPLu02
80	27.08.2001	Neßmerpolder	Kornmischprobe "Raps" (Feld 4-6)	PoKoMPRa01
81	27.08.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe "Raps" (Feld 4-6)	PoBoMPRa01
82	27.08.2001	Neßmerpolder	Kornmischprobe "Gerste"	PoKoMPGe01
83	27.08.2001	Neßmerpolder	Mischprobe Kraftfutter für Rinder	PoRiMPKrf01
84	27.08.2001	Neßmerpolder	2 L Milch	PoMPMi02
85	03.09.2001	HLW	2 L Milch	HLWMPMi01
86	03.09.2001	HLW	Heuprobe	HLWMPHe01
87	03.09.2001	HLW	Bodeneinzelprobe zur Heuprobe	HLWBoEPHe01
88	03.09.2001	HLW	Grassilageprobe	HLWMPGs01
89	06.09.2001	HLW	Schilddrüse, Schwarzrind, geb. 6/99	HLWRiEPSd01
90	06.09.2001	Jeinsen	3 Kopfsalat	JeGeEPKs02
91	06.09.2001	Jeinsen	2 Mangold	JeGeEPMg02
92	11.09.2001	Schessinghausen	Einzelprobe Kartoffeln	ScGeEPKa01
93	11.09.2001	Schessinghausen	Einzelprobe Boden zu den Kartoffeln	ScBoEPKa01
94	11.09.2001	Schessinghausen	Kornmischprobe Weizen "Tiefenbach"	ScKoMPWe01
95	11.09.2001	Schessinghausen	Bodenmischprobe "Tiefenbach"	ScBoMPWe01
96	11.09.2001	Schessinghausen	Kornmischprobe Triticale "Hein Lisa"	ScKoMPTr02
97	11.09.2001	Schessinghausen	Bodenmischprobe "Hein Lisa"	ScBoMPTr02
98	11.09.2001	Schessinghausen	Kornmischprobe Weizen "Dorfstr."	ScKoMPWe02
99	13.09.2001	Jeinsen	Lauchzwiebel	JeGeEPLa01
100	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu den Lauchzwiebel	JEBoEPLa01
101	13.09.2001	Jeinsen	Petersilie	JeGeEPPe01
102	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu der Petersilie	JeBoEPPe01
103	13.09.2001	Jeinsen	Wirsingkohl	JeGeEPWK01
104	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu dem Wirsingkohl	JeBoEPWK01
105	13.09.2001	Jeinsen	Weißkohl	JeGeEPWeK01
106	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu dem Weißkohl	JEBoEPWeK01
107	13.09.2001	Jeinsen	Blumenkohl	JeGeEPBk01
108	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu dem Blumenkohl	JeBoEPBk01
109	13.09.2001	Jeinsen	Brokkoli	JeGeEPBr01
110	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu dem Brokkoli	JeBoEPBr01
111	13.09.2001	Jeinsen	Rosenkohl	JeGeEPRo01
112	13.09.2001	Jeinsen	Bodeneinzelprobe zu dem Rosenkohl	JeBoEPRo01

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
113	19.09.2001	Neßmerpolder	Markknochen	PoRiEPMk01
114	19.09.2001	Neßmerpolder	Ochsenschwanz	PoRiEPOs01
115	19.09.2001	Neßmerpolder	Herz	PoRiEPHe01
116	19.09.2001	Neßmerpolder	Zunge	PoRiEPZu01
117	19.09.2001	Neßmerpolder	Leber	PoRiEPLe01
118	19.09.2001	Neßmerpolder	Schilddrüse	PoRiEPSd01
119	19.09.2001	Neßmerpolder	Niere	PoRiEPNi01
120	19.09.2001	Neßmerpolder	Schulterblatt	PoRiEPSB01
121	19.09.2001	Neßmerpolder	Kamm	PoRiEPKF01
122	19.09.2001	Neßmerpolder	Hüfte	PoRiEPHK01
123	19.09.2001	Neßmerpolder	Hinterbein	PoRiEPHB01
124	19.09.2001	Neßmerpolder	Hackfleisch	PoRiEPHF01
125	19.09.2001	Neßmerpolder	Roastbeef	PoRiEPRB01
126	19.09.2001	Neßmerpolder	gemischte Knochen	PoRiEPgK01
127	19.09.2001	Neßmerpolder	Braten	PoRiEPBf01
128	19.09.2001	Neßmerpolder	2 L Milch	PoMPMi03
129	21.09.2001	Jeinsen	Brokkoli (selber Standort wie JeGeEPBr01)	JeGeEPBr02
130	21.09.2001	Jeinsen	Lauch (selber Standort wie JeGeEPLa01)	JeGeEPLa02
131	21.09.2001	Jeinsen	Rosenkohl (selber Standort wie JeGeEPRo01)	JeGeEPRo02
132	21.09.2001	Jeinsen	Petersilie (selber Standort wie JeGeEPPe01)	JeGeEPPe02
133	27.09.2001	Schessinghausen	Bodenmischprobe "Weizen am Dorf"	ScBoMPWe02
134	27.09.2001	Schessinghausen	Bodenmischprobe "Tririkale Brachkamp"	ScBoMPTr01
135	01.10.2001	Reinhausen	Schirmlinge	RhPiMPSc01
136	01.10.2001	Reinhausen	Maronen-Röhrlinge	RhPiMPMr01
137	01.10.2001	Reinhausen	Violetta Ritterling	RhPiMPVR01
138	01.10.2001	Reinhausen	Bodeneinzelprobe "Waldboden"	RhBoEPWa01
139	02.10.2001	ZSR	Einzelprobe Eicheln	ZSREPEi01
140	09.10.2001	Schessinghausen	Bodeneinzelprobe "Mais"	ScBoEPMa01
141	09.10.2001	Schessinghausen	Gemüseeinzelprobe "Mais"	ScGeEPMa01
142	11.10.2001	HLW	2 L Milch	HLWMPMi02
143	12.10.2001	Wettbergen	Kastanien	WeEPKa01
144	24.10.2001	HLW	3 Schilddrüsen, Rinder	HLWRiEPSd02
145	07.11.2001	Schessinghausen	½ Pute	ScPuEPHä01
146	07.11.2001	Schessinghausen	½ Pute	ScPuEPHä02
147	07.11.2001	Schessinghausen	Innere Organe (Leber, Milz, Niere)	ScPuMPOr01
148	07.11.2001	Schessinghausen	Maissilage	ScGeMPMS01
149	22.11.2001	Gestorf	4 Zuckerrüben	GeGeEPZu01
150	22.11.2001	Gestorf	Boden-EP zu den Zuckerrüben	GeBoEPZu01
151	22.11.2001	Jeinsen	Grünkohl	JeGeEPGk01

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
152	22.11.2001	Jeinsen	Boden-EP zum Grünkohl	JeBoEPGK01
153	28.11.2001	HLW	2 L Milch	HLWMPMi03
154	28.11.2001		1 kg Rindermett als Test	ZSRRiTest01
155	05.12.2001	Neßmerpolder	Bodenmischprobe Gerste zu PoKoMPGe01	PoBoMPGe01
156	05.12.2001	Neßmerpolder	Lunge	PoRiEPLu01
157	05.12.2001	Neßmerpolder	Milz	PoRiEPMi01
158	05.12.2001	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von Oktober	PoMPMi04
159	05.12.2001	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von November	PoMPMi05
160	05.12.2001	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von Dezember	PoMPMi06
161	05.12.2001	Neßmerpolder	2 x 100 mL Meereswasser	PoWaMPMe01
162		Gümmer	Rhababer - eßbarer Teil	GuGeEPRh01
163	17.12.2001	HLW	2 x 1L Milch	HLWMPMi04
164	30.01.2002	HLW	2 x 1L Milch	HLWMPMi05
165	12.03.2002	HLW	2 x 1L Milch	HLWMPMi06
166	30.03.2002	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von Januar	PoMPMi07
167	30.03.2002	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von Februar	PoMPMi08
168	30.03.2002	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von März	PoMPMi09
169	30.03.2002	Neßmerpolder	2 x 100 mL Meereswasser	PoWaMPMe02
170	08.04.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES080402
171	09.04.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES090402
172	10.04.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES100402
173	11.04.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES110402
174	12.04.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES120402
175	02.05.2002	HLW	2 x 1L Milch	HLWMPMi07
176	21.05.2002	HLW	2 x 1L Milch	HLWMPMi08
177	21.05.2002	HLW	Heu (zugekauft)	HLWEPHe01
178	24.05.2002	HLW	Grünfutter (Gras)	HLWMPGr01
179	24.05.2002	HLW	Boden zum Grünfutter	HLWBoEPGr01
180	27.05.2002	Buntenbock	2 x 1 L Ziegenmilch	BuZiEPMi01
181	27.05.2002	Buntenbock	1 x Ziegenrippe	BuZiEPRi01
182	27.05.2002	Buntenbock	Bodenprobe von Ziegenweide	BuBoEPWd01
183	27.05.2002	Buntenbock	Grasprobe von Ziegenweide	BuMPGr01
184	27.05.2002	Reinhausen	Bodenmischprobe Pilze ("Wald")	RhBoMPWa01
185	30.05.2002	Neßmerpolder	Bodeneinzelprobe Wiese 17	PoBoEPHe03
186	30.05.2002	Neßmerpolder	Heueinzelprobe 1. Schnitt Wiese 17	PoEPHe04
187	30.05.2002	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von April	PoMPMi10
188	30.05.2002	Neßmerpolder	2 L Poldermilch von Mai	PoMPMi11
189	17.07.2002	Neßmerpolder	2 x 100 mL Meereswasser	PoWaMPMe03
190	17.07.2002	Neßmerpolder	2 L Poldermilch vom 15.07.02	PoMPMi12

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
191	17.07.2002	Neßmerpolder	Bodenmischprobe Feld 17-19	PoBoMPHe03
192	25.07.2002	HLW	2 L Milch	HLWMPMi09
193	05.08.2002	Schessinghausen	1 Boden-MP Birke	ScBoMPBi01
194	05.08.2002	Schessinghausen	Birken Stk 1m	ScBaEPBi01
195	05.08.2002	Schessinghausen	Birken Stk 2,5m	ScBaEPBi02
196	05.08.2002	Schessinghausen	Birken Stk 5,5m	ScBaEPBi03
197	05.08.2002	Schessinghausen	Birken Stk 7m	ScBaEPBi04
198	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Herz	RhRe4awHe
199	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Leber	RhRe4awLe
200	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Milz	RhRe4awMi
201	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Lunge	RhRe4awLu
202	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Niere	RhRe4awNi
203	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Schilddrüse	RhRe4awSd
204	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 4 Jahren, weibl, Blatt	RhRe4awBl
205	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Herz	RhRe8mmHe
206	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Leber	RhRe8mmLe
207	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Milz	RhRe8mmMi
208	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Lunge	RhRe8mmLu
209	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Niere	RhRe8mmNi
210	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Schilddrüse	RhRe8mmSd
211	13.08.2002	Reinhausen	Reh, ca. 8 Monate, männl., Blatt	RhRe8mmBl
212	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Herz	RhRewHe
213	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Leber	RhRewLe
214	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Milz	RhRewMi
215	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Lunge	RhRewLu
216	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Niere	RhRewNi
217	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Schilddrüse	RhRewSd
218	13.08.2002	Reinhausen	Reh, weibl., Blatt	RhRewBl
219	13.08.2002	Gleidingen	Brombeeren	GIObMPBb01
220	13.08.2002	Gleidingen	Boden von Brombeeren	GIBoMPBb01
221	13.08.2002	Gleidingen	Himbeere	GIObMPHb01
222	13.08.2002	Gleidingen	Boden von Himbeere	GIBoMPHb01
223	12.08.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES120802
224	13.08.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES130802
225	14.08.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES140802
226	15.08.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES150802
227	16.08.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES160802
228	03.09.2002	Gründeich	Kopfsalat	GrGeEPKs01
229	03.09.2002	Gründeich	Boden zum Kopfsalat	GrBoEPKs01

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
230	03.09.2002	Gründeich	Kohlrabi	GrGeEPKr01
231	03.09.2002	Gründeich	Boden zum Kohlrabi	GrBoEPKr01
232	03.09.2002	Gründeich	Weißkohl	GrGeEPWek01
233	03.09.2002	Gründeich	Boden zum Weißkohl	GrBoEPWek01
234	03.09.2002	Gründeich	Mangold	GrGeEPMg01
235	03.09.2002	Gründeich	Boden zum Mangold	GrBoEPMg01
236	03.09.2002	Gründeich	Radieschen	GrGeEPRd01
237	03.09.2002	Gründeich	Boden zu Radieschen	GrBoEpRd01
238	09.09.2002	HLW	Schwein, Rippenknochen	HLWSwRk01
239	09.09.2002	HLW	Schwein, Vorderbein	HLWSwVb01
240	09.09.2002	HLW	Schwein, Lunge	HLWSwLu01
241	09.09.2002	HLW	Schwein, essbares Fleisch	HLWSweF01
242	09.09.2002	HLW	Schwein, Milz	HLWSwMi01
243	09.09.2002	HLW	Schwein, Leber	HLWSwLe01
244	09.09.2002	HLW	Schwein, Schilddrüse	HLWSwSd01
245	09.09.2002	HLW	Schwein, Herz	HLWSwHe01
246	09.09.2002	HLW	Schwein, Niere	HLWSwNi01
247	09.09.2002	HLW	Schaf, Vorderbein	HLWSaVb01
248	09.09.2002	HLW	Schaf, Lunge	HLWSaLu01
249	09.09.2002	HLW	Schaf, essbares Fleisch (Keule)	HLWSaeF01
250	09.09.2002	HLW	Schaf, Milz	HLWSaMi01
251	09.09.2002	HLW	Schaf, Leber	HLWSaLe01
252	09.09.2002	HLW	Schaf, Schilddrüse	HLWSaSd01
253	09.09.2002	HLW	Schaf, Herz	HLWSaHe01
254	09.09.2002	HLW	Schaf, Niere	HLWSaNi01
255	01.10.2002	Neßmerpolder	Boden MP Wiese 17-19	PoBoMPHe04
256	01.10.2002	Neßmerpolder	Heumischprobe 2. Schnitt (15.8), Wiese 17-19	PoMPHe02
257	01.10.2002	Neßmerpolder	Grasbewuchs 1.10.02, Wiese 17-19	PoMPHe03
258	01.10.2002	Neßmerpolder	Boden-MP Hafer I "Fritschens", 0-30 cm	PoBoMPHa03
259	01.10.2002	Neßmerpolder	Boden-MP Hafer I "Fritschens", 30-60 cm	PoBoMPHa04
260	01.10.2002	Neßmerpolder	MP-Kraftfutter Rinder	PoRiMPKrf02
261	02.10.2002	Gründeich	Wirsingkohl	GrGeEPWk01
262	02.10.2002	Gründeich	Boden zum Wirsingkohl	GrBoEPWk01
263	02.10.2002	Gründeich	Blumenkohl	GrGeEPBk01
264	02.10.2002	Gründeich	Boden zum Blumenkohl	GrBoEPBk01
265	02.10.2002	Gründeich	Petersilie	GrGeEPPe01
266	02.10.2002	Gründeich	Boden zur Petersilie	GrBoEPPe01
267	02.10.2002	Gründeich	Rote Bete	GrGeEPRb01
268	02.10.2002	Gründeich	Boden zur roten Bete	GrBoEPRb01

<b>Nr.</b>	<b>Datum</b>	<b>Ort</b>	<b>Art</b>	<b>Abkürzung</b>
269	02.10.2002	Gründeich	Lauch	GrGeEPLa01
270	02.10.2002	Gründeich	Boden zum Lauch	GrBoEPLa01
271	02.10.2002	Gründeich	Kartoffeln	GrGeEPKa01
272	04.10.2002	Reinhausen	Steinpilze	RhPiMPSp01
273	04.10.2002	Reinhausen	Maronen	RhPiMPMr02
274	04.10.2002	Reinhausen	Schopftintlinge	RhPiMPSSt01
275	04.10.2002	Reinhausen	Schirmlinge	RhPiMPSc02
276	04.10.2002	Reinhausen	Boden zu den Pilzen: Spreu	RhBoEPSp01
277	04.10.2002	Reinhausen	Boden zu den Pilzen: Auflage	RhBoEPAu01
278	04.10.2002	Reinhausen	Boden zu den Pilzen: eigentl. Boden	RhBoEPPi01
279	01.11.2002	HLW	Schweinefutter	HLWSwMPFu01
280	01.11.2002	HLW	Grassilage (Rinderfutter)	HLWMPGs02
281	01.11.2002	HLW	Boden-MP zum Grünfutter (wie HLWBoEPGr01)	HLWBoMPGr01
282	02.11.2002	Lindener Markt	Karotten	LiGeEPKa01
283	11.11.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES111102
284	12.11.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES121102
285	13.11.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES131102
286	14.11.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES141102
287	15.11.2002	Hauptmensa	1 x Gesamtnahrung	GES151102
288	20.01.2003	HLW	1 L Milch	HLWMPMi10
289	20.01.2003		Frühstück	Fr200103
290	20.01.2003		Abendessen	Ab200103
291	20.04.2003	Neßmerpolder	1 L Milch vom Okt. 2002	PoMPMi13
292	20.04.2003	Neßmerpolder	2 L Milch vom Nov. 2002	PoMPMi14
293	20.04.2003	Neßmerpolder	2 x 100 mL Meereswasser	PoWaMPMe04
294	25.04.2003	HLW	2 L Milch vom April 2003	HLWMPMi11
295	25.04.2003	HLW	essbares Fleisch vom Rind	HLWRiEPF01
296	25.04.2003	HLW	essbares Fleisch vom Rind	HLWRiEPF02
297	17.07.2002	Neßmerpolder	Kunstdünger	PoKdMP01
298	25.05.2003	Schessinghausen	essbares Fleisch vom Wildschwein (Rücken)	ScWSEPRü01

## Anhang II      Zusammensetzung der Gesamtnahrungsproben

Tabelle II.1: Zusammensetzung der Gesamtnahrung aus der Mensa der Universität Hannover. Die Massenangaben beziehen sich auf Frischmasse.

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
08.04.2002	Tellergericht	Tafelspitz mit Frankfurter Grüne Sauce, Wurzelgemüse und Bouillonkartoffeln	447
	Vollwertmenü	Tofuschnitte Florida mit Pfirsich u. Käse überbacken, Sauce Hollandaise, Risi Bisi und gemischtem Salat	434,4
	Wahlmenü mit Fleisch:	Bifteki Schweinehack mit Schafskäse, Zaziki	227,4
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Vegetarisches Frikassee mit Tofu	377
	darin enthaltene Beilagen:	Tomatenreis, Pommes frites Gemüse, Salat, Mais-ZucchiniGemüse mit Tomate, Salat mit Schnittlauchdressing	
09.04.2002	Eintopf	Spargeleintopf mit Mettklößchen, Brötchen	625,5
	Vollwertmenü	Putenbrustfilet mit Zwiebelkruste, Paprikasauce, gemischtem Gemüse und Kräuterreis, Birnenkompott	423,7
	Wahlmenü mit Fleisch:	Hähnchenbrustfilet mit Erdnußsauce	404,6
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Zwiebel-Käseschnitte mit Estragonrahmsauce	401,2
	darin enthaltene Beilagen:	Kurkumareis, Gemüse, Salat Kohlrabigemüse, Gem. Salat mit Orangendressing	
10.04.2002	Eintopf	Kichererbseneintopf	525,7
	Vollwertmenü	Spätzlepfanne mit Putenfleisch und Gemüse, gemischter Salat mit Joghurt-Kräuterdressing	466
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweinegeschnetzeltes Züricher Art	493,5
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Falafelbratling mit Gemüserahmsauce	382,7
	darin enthaltene Beilagen:	Salzkartoffeln, Spiralnudeln	
11.04.2002	Eintopf	Botaggio italienischer Geflügeleintopf, Ciabattabrot	761,3
	Tellergericht	Senfeier mit Petersilienkartoffeln und Kopfsalat mit Zitronendressing	432,9
	Wahlmenü mit Fleisch:	Spiessbraten mit Burgundersauce	371,6
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Sojagulasch mit buntem Gemüse	388,3
	darin enthaltene Beilagen:	Schnittlauchkartoffeln, Chilireis, Gemüse, Salat: Italienisches Mischgemüse, Möhrenrohkostsalat mit Äpfeln und Sesam	
12.04.2002	Eintopf	Irish Stew Lammeintopf, Bauernbrot	659,7
	Tellergericht	Hot dog mit Pommes frites und American Salat mit Islanddressing	354,9
	Wahlmenü mit Fleisch:	Heilbuttsteak mit Estragon-Senfsauce	424,7
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Knusperschnitte Hawaii mit Currysauce	434,4
	darin enthaltene Beilagen:	Butterkartoffeln, Makkaroni, Gemüse, Salat: Balkangemüse, Fenchel-Karottensalat	

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
12.08.2002	Eintopf	Milchreis mit Früchten	437,1
	Tellergericht	Chili con Carne Rind, Naturreis und gem. Salat mit Quarkdressing	429,1
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweineschnitzel Toscana, Pizzaolasauce mit Oliven	391
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Champignonburger mit Sellerie-Apfelcremesauce	280,7
	darin enthaltene Beilagen:	Herzoginkartoffeln, Gnocchi mit Lauch, Chinakohlsalat mit Paprikastreifen, Buttererbsen, Joghurtcremesuppe, Mandarinenjoghurt	
13.08.2002	Eintopf	Linseneintopf mit Würstchen	415
	Tellergericht	Makkaroniauflauf mit Hack, Tomaten, Käse	306
	Wahlmenü mit Fleisch:	Putensteak mit Ananas und Käse überbacken	444
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Chinesische Gemüsepfanne	325
	darin enthaltene Beilagen:	Maissalat, Lauchgemüse in Rahm mit Curry, Heller u. dunkler Reis mit Sonnenblumenkernen, Kroketten	
14.08.2002	Eintopf	Salatteller mit Calamaris, Joghurt- Kräuterdressing und Baguette	185,3
	Tellergericht	Kohlroulade mit Kümmeljus, Salzkartoffeln* und Rote Betesala	316,4
	Wahlmenü mit Fleisch:	Hähnchen-Piccata mit Tomaten-Frischkäsesauce	351,3
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Makkaroni, Käsesauce mit Ratatouillewürfel	273,6
	darin enthaltene Beilagen:	Safranrisotto, Makkaroni, Tomatensalat, Paprika-Zwiebelgemüse, Kartoffelsuppe mit Mais, Melonenjoghut mit Minze	
15.08.2002	Eintopf	Botaggio italienischer Geflügeleintopf, Ciabattabrot	325,4
	Tellergericht	Vegetarische Frühlingsrolle, Chinesische Sauce, Butterreis* und Eisbergsalat mit Mandarinen	322,1
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweinebraten griechische Art mit Knoblauchsauce	395,5
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Gnocchi à la Romana mit Pesto	390,2
	darin enthaltene Beilagen:	Pommes frites, Rosmarinkartoffeln, Baltischer Gurkensalat, Grünes Bohnengemüse, Zucchini-suppe, Sanddorn-dickmilch	
16.08.2002	Eintopf	Bockwurst mit Senf	258,4
	Tellergericht	Pizza Salami	380,2
	Wahlmenü mit Fleisch:	Gebackenes Schollenfilet	455,2
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Vegetarisches Frikassee	307,5
	darin enthaltene Beilagen:	Apfel - Möhren – Fenchelsalat, Blattspinat, Vollkornrisotto mit Kräutern, Salzkartoffeln	
11.11.2002	Eintopf	Pfannkuchen mit Apfelmus	366,1
	Tellergericht	Geflügelbällchen mit Pistaziensauce, Safranrisotto und Blumenkohlsalat mit Orangendressing	351,1
	Wahlmenü mit Fleisch:	Cordon bleu mit Rahmsauce	417,6
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Bunte Spätzlepfanne mit Spinat und Gemüse Frischkäsesauce	274,9

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
	darin enthaltene Beilagen:	Herzoginkartoffeln, Kräuternudeln; Eisbergsalat, Erbsen-Möhrengemüse, Englische Hühnersuppe Mulligatawny, Multivitaminjoghurt	
12.11.2002	Tellergericht	Grünkohl mit Bregenwurst, Senf und Salzkartoffeln	586,1
	Vollwertmenü	Buchweizensuppe, Bunte Schupfnudelpfanne mit Kräuter-Sonnenblumenkernsauce und gem. Salat	419,2
	Wahlmenü mit Fleisch:	Rinderhacksteak mit Pfeffersauce	458,4
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Hörnchennudeln mit Gemüsebolognaise	280,3
	darin enthaltene Beilagen:	Pommes frites, Hörnchennudeln, Salat Nizza, Grilltomate, Kräutercremesuppe, Zitronenquarkspeise	
13.11.2002	Eintopf	Gemüse Eintopf mit Grünkern	471,1
	Tellergericht	1/2 Eisbein, mit Senf, Sauerkraut mit Speck, Kartoffelpüree	622,3
	Vollwertmenü	gedünstetes Seelachsfilet, indische Gemüsepfanne, Basmatireis mit Koriander	403,9
	Wahlmenü mit Fleisch:	Piccate von der Pute mit Kräuterkruste	462,2
	darin enthaltene Beilagen:	Macaire-Kartoffeln, Tomatensalat mit Gurke	
14.11.2002	Tellergericht	Bunte Tortellinin mit Spinat und Ricottafüllung, Tomatensahnesauce	407,4
	Vollwertmenü	Toskanische Geflügelpfanne mit Paprika und Knoblauch, Kurbiskernreis	380,1
	Wahlmenü mit Fleisch:	Schweingeschnetzeltes Züricher Art mit Röstlitalern	416,8
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Bunte Tortellini mit Spinat und Ricottafüllung mit Tomaten-Sahnesauce	407,4
15.11.2002	Tellergericht	Currywurst mit Sauce, Pommes, Salat	331,2
	Vollwertmenü	Curry-Tofu-Ragout mit Chinagemüse und Früchten, Vollkornreis	533,4
	Wahlmenü mit Fleisch:	Gebackenes Schollenfilet mit Senf-Remouladensauce, Kartoffelsalat mit Speck	367
	Wahlmenü ohne Fleisch:	Gemüselasagne mit Pestosauce und Oliven, Dillkartoffeln	445,7

## Anhang III Zusammenfassung der Analysenergebnisse

Tabelle III.1: Vergleich der Geräte-Blanks der Laboratorien „Am Kleinen Felde“ (KF) und „Herrenhausen“ (HH) am ZSR Universität Hannover mit Bezug auf die Woodward-Blanks des Laboratoriums „Am Kleinen Felde“

Zeitraum / Laboratorium	Geräteblank bzw. Feststoff	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis in $10^{-14}$
2/2000 Am Kleinen Felde	Gras	$67,0 \pm 8,6$
	Boden	$49,0 \pm 9,8$
	Gras	$26,0 \pm 7,3$
	Gras	$64,0 \pm 11,3$
	Boden	$28,0 \pm 8,9$
	Boden	$17,0 \pm 4,6$
	Boden	$20,0 \pm 5,0$
	Boden	$92,0 \pm 14,4$
	Papier	$49,0 \pm 10,4$
	Papier	$18,0 \pm 5,6$
2/2000 Herrenhausen	Boden	$20,0 \pm 6,4$
	Boden	$80,0 \pm 15,1$
	Boden	$40,0 \pm 11,6$
	Boden	$293,0 \pm 34,4$
	Boden	$157,0 \pm 14,2$
9/2000 – 5/2002 Am Kleinen Felde	Aktivkohle	$30,0 \pm 10,0$
	Boden	$29,0 \pm 4,6$
	Gras	$25,4 \pm 6,1$
	Gras	$37,4 \pm 8,2$
	Boden	$8,8 \pm 2,9$
	Boden	$19,1 \pm 8,2$
	Boden	$52,0 \pm 9,6$
	Boden	$27,9 \pm 2,6$
	Gras	$14,0 \pm 3,8$
	Boden	$43,0 \pm 6,4$
	Boden	$47,0 \pm 6,9$
	Boden	$44,0 \pm 6,3$
	Gras	$42,0 \pm 6,6$
	Gras	$27,0 \pm 3,3$
	Boden	$36,0 \pm 4,6$
	Aktivkohle	$16,4 \pm 5,2$
	Aktivkohle	$4,8 \pm 2,8$
	Papier	$9,1 \pm 4,1$
	Aktivkohle	$8,6 \pm 3,9$
	Aktivkohle	$2,3 \pm 1,9$
Papier	$7,1 \pm 3,4$	

Zeitraum / Laboratorium	Geräteblank bzw. Feststoff	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis in $10^{-14}$
	IAEA418 Boden Pilze Pilze	45,1 ± 10,5 34,7 ± 8,4 20,5 ± 4,8 11,0 ± 3,7
9/2000 – 5/2002 Herrenhausen	Boden Boden Boden Boden Boden Boden	213,0 ± 11,1 206,0 ± 11,1 104,9 ± 7,8 109,0 ± 11,8 83,4 ± 9,7 105,0 ± 11,9
2/2000 – 5/2002 Am Kleinen Felde	LiOH Glycerol TEDA KNO <sub>3</sub> Austauscher Wasser KNO <sub>3</sub>	8,0 ± 4,1 28,0 ± 7,8 29,0 ± 7,6 31,7 ± 6,2 84,3 ± 11,2 75,0 ± 6,7 53,0 ± 11,2
7/2002 – 3/2004 Herrenhausen	Boden Boden Boden Boden Boden Boden Boden Boden	68,0 ± 7,9 125 ± 13 360 ± 18 270 ± 16 140 ± 7 225 ± 23 299 ± 40 624 ± 180 297 ± 73

Tabelle III.2:  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Meerwasser

Ort	Datum	$^{127}\text{I}$ ng g <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}$ fg g <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}$ mBq kg <sup>-1</sup>	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 10 <sup>-10</sup>	Quelle
Vejers/DK	Jun. 99	37 ± 8	54 ± 4	0,35 ± 0,03	14100 ± 3100	Szidat (2000)
Spieka	Jul. 99	53 ± 11	82 ± 5	0,54 ± 0,03	15300 ± 3300	Szidat (2000)
Spieka	Jan. 00	28 ± 11	44 ± 4	0,29 ± 0,03	15400 ± 6000	Szidat (2000)
Amrum Wattseite	Jul. 00	102 ± 16	190 ± 16	1,24 ± 0,10	18200 ± 3200	diese Arbeit
Amrum Meerseite	Jul. 00	25 ± 5	69 ± 2	0,45 ± 0,01	27100 ± 5800	diese Arbeit
Neßmersiel	Dez. 01	45 ±	42 ± 1	0,27 ± 0,01	9200 ± 1100	diese Arbeit
Neßmersiel	Mrz. 02	50 ±	60 ± 3	0,39 ± 0,02	11800 ± 1400	diese Arbeit
Amrum Wattseite	Apr. 02	65 ± 7	102 ± 6	0,67 ± 0,04	15500 ± 1900	diese Arbeit
Amrum Meerseite	Apr. 02	34 ± 4	34 ± 1	0,22 ± 0,01	9900 ± 1100	diese Arbeit
La Gulp Golf von Biskaya	Jul. 01	134 ± 28	0,11 ± 0,01	7,19E-04 ± 6,54E-05	7,8 ± 1,7	diese Arbeit

Tabelle III.3: Allgemeine Wetterbeschreibung am Messstandort Föhr

Datum	Wetter allgemein	geschätzte Windstärke in Bfr	Hauptwindrichtung
02.04.02	sonnig	1 Abends 3	Süd-Ost-Ost
03.04.02	sonnig	4	Süd-Ost-Ost
04.04.02	sonnig	4 zunehmend	Süd-Ost-Ost
05.04.02	sonnig	4 – 5	Ost
06.04.02	sonnig	1 – 2 ab 14 <sup>00</sup> 3 – 4	Süd-Ost ab 13 <sup>00</sup> Nord-West
07.04.02	leicher Nieselregen	4 – 5	Nord-West
08.04.02	sonnig	4	Süd-Ost
09.04.02	sonnig	4	Süd-Ost-Ost
10.04.02	sonnig	4	Süd-Ost-Ost

Tabelle III.4: Ergebnis der kontinuierlich mechanisch erfassten Wetterdaten am Messstandort Föhr

	Temperatur in °C	Luftfeuchtigkeit in %	Luftdruck in mbar
Mittelwert	9,0	68	1014
Std.abw.	4,4	19	3
Maximalwert	23	100	1020
Minimalwert	0	38	1008

Tabelle III.5: Aerosolgrößenverteilung Messung Föhr

Impaktorstufe	Sammelmenge	Aerodynamischer Partikeldurchmesser D <sub>50</sub> mit einer Abscheidungs-wahrscheinlichkeit von 50% [199] [200]			Sammelmenge <sup>1)</sup> pro m <sup>3</sup>
		oberer	unterer	mittlerer	
	in mg	in µm	in µm	in µm	in µg m <sup>-3</sup>
1	2,513 ± 0,007	16	8	12	7,2 ± 2,0
2	2,965 ± 0,006	8	4	6	8,5 ± 2,3
3	3,961 ± 0,002	4	2	3	11,4 ± 3,1
4	5,986 ± 0,014	2	1	1,5	17,2 ± 4,6
5	4,303 ± 0,003	1	0,5	0,75	12,4 ± 3,3
6	3,789 ± 0,001	0,5	0,25	0,375	10,9 ± 2,9
7	3,906 ± 0,014	0,25	0,125	0,1875	11,2 ± 3,0
8	3,671 ± 0,002	0,125	0,06	0,0925	10,6 ± 2,8

<sup>1)</sup> Messunsicherheit mittlerer D<sub>50</sub> mit 25% festgelegt; Sammelvolumen: 347,85 ± 34,8 m<sup>-3</sup>

Tabelle III.6: Blindwerte der Messung Föhr

Material	Einwaage	$^{129}\text{I}$	60 fg pro Blank	$^{127}\text{I}$	600 ng pro Blank
	g	fg	-	ng	-
8 Impaktor-Filterscheiben	$1,97879 \pm 0,00002$	$3,03 \pm 0,54$	20	$1792 \pm 69$	0,3
1 selektiver Filter inkl. Imprägnierung	$0,82 \pm 0,03$	$1,49 \pm 0,46$	40	$761 \pm 45$	0,8
Aktivkohle inkl. Imprägnierung	Einwaage	$^{129}\text{I}$	60 fg pro Blank	$^{127}\text{I}$	600 ng pro Blank
	g	fg	-	ng	-
oben	$0,9602 \pm 0,0002$	$1,06 \pm 0,24$	57	$499 \pm 17$	1,2
unten	$1,0106 \pm 0,0002$	$1,05 \pm 0,24$		$524 \pm 18$	

Tabelle III.7: Iod-Sammelmenngen der Messung Föhr

Daten der Messung auf der Nordseeinsel Föhr ( $348 \pm 35 \text{ m}^3$ Luft)			
	$^{127}\text{I}$ in mg	$^{129}\text{I}$ in fg	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Isotopenverhältnis
Impaktor <sup>1)</sup>	$0,67 \pm 0,13$	$574 \pm 42$	$(8,4 \pm 1,8) \cdot 10^{-7}$
Filter oben	$0,57 \pm 0,11$	$203 \pm 15$	$(3,5 \pm 0,7) \cdot 10^{-7}$
Filter Mitte	$0,35 \pm 0,08$	$30,2 \pm 1,1$	$(8,6 \pm 1,9) \cdot 10^{-8}$
Filter unten	$0,31 \pm 0,10$	$13,2 \pm 0,7$	$(4,2 \pm 1,3) \cdot 10^{-8}$
Aktivkohle oben	$2,60 \pm 0,12$	$520 \pm 22$	$(2,0 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$
Aktivkohle unten	$0,47 \pm 0,08$	$48,9 \pm 2,0$	$(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$
	mg $^{127}\text{I m}^{-3}$	fg $^{129}\text{I m}^{-3}$	
<b>Summe</b>	$0,014 \pm 0,001$	$1390 \pm 50$	$(2,8 \pm 0,2) \cdot 10^{-8}$

<sup>1)</sup> Formaler geometrisch gemittelter Partikeldurchmesser der letzten Impaktorsstufe: MPD =  $0,087 \mu\text{m}$

Tabelle III.8: Endergebnisse der Aerosolsammlung Föhr einschließlich Penetrationskorrektur aller Messwerte

Filtereinheit	<sup>127</sup> I		<sup>129</sup> I		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I- Verhältnis in 10 <sup>-7</sup>
	in ng	in ng m <sup>-3</sup>	in fg	in fg m <sup>-3</sup>	
Impaktor	670 ± 133	1,93 ± 0,43	574,1 ± 41,8	1,65 ± 0,20	8,44 ± 1,79
Filter oben	565 ± 133	1,62 ± 0,36	203,5 ± 14,8	0,58 ± 0,07	3,55 ± 0,76
Filter Mitte	345 ± 76	0,99 ± 0,24	30,5 ± 1,2	0,09 ± 0,01	0,87 ± 0,19
Filter unten	310 ± 97	0,89 ± 0,29	13,6 ± 0,7	0,04 ± 0,004	0,43 ± 0,14
Penetration	792 ± 138		3,9 ± 5,6		
Ergebnis selektive Filter	2013 ± 217	5,79 ± 0,85	251,5 ± 15,9	0,72 ± 0,09	1,23 ± 0,15
Aktivkohle oben	1804 ± 121	5,19 ± 0,62	516,2 ± 21,7	1,48 ± 0,16	2,82 ± 0,22
Aktivkohle unten	624 ± 82	1,79 ± 0,30	53,7 ± 2,0	0,15 ± 0,02	0,85 ± 0,12
Penetration Filter	792 ± 138		3,9 ± 5,6		
Penetration Aktivkohle	154 ± 31		4,6 ± 0,9		
Ergebnis Aktivkohle	1790 ± 203	5,14 ± 0,78	570,6 ± 21,8	1,64 ± 0,18	3,14 ± 0,38
Summe	4472 ± 326	12,8 ± 1,23	1396,2 ± 49,7	4,01 ± 0,28	

Tabelle III.9: Grundgesamtheit aller bisher untersuchten Niederschlagswässer (Quartalswerte)

Ort	Quartal	Quelle	log <hN> hN in mm a <sup>-1</sup>	<sup>127</sup> I in µg kg <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I in fg kg <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-10</sup>	<sup>127</sup> I-Deposition in mg m <sup>-2</sup>	<sup>129</sup> I-Deposition in mBq m <sup>-2</sup>
Norderney	I/1997	Szidat (2000)	742	4,90 ± 0,26	3000 ± 400	6000 ± 800	0,91 ± 0,05	3,64 ± 0,48
	II/1997	Szidat (2000)	742	3,53 ± 0,50	3400 ± 500	9500 ± 1900	0,65 ± 0,09	4,12 ± 0,61
	III/1997	Szidat (2000)	742	2,62 ± 0,38	2300 ± 150	8700 ± 1400	0,49 ± 0,07	2,79 ± 0,18
Gebiet(I)	IV/1997	Szidat (2000)	742	3,81 ± 0,62	2800 ± 200	7200 ± 1300	0,71 ± 0,11	3,39 ± 0,24
	I/1998	Szidat (2000)	742	4,02 ± 0,55	4170 ± 270	10200 ± 1500	0,75 ± 0,10	5,05 ± 0,33
Freiland- niederschlag	II/1998	Szidat (2000)	742	3,80 ± 0,50	3120 ± 290	8100 ± 1300	0,70 ± 0,09	3,78 ± 0,35
	III/1998	Szidat (2000)	742	2,38 ± 0,34	1800 ± 500	7400 ± 2500	0,44 ± 0,06	2,18 ± 0,61
	IV/1998	Szidat (2000)	742	1,52 ± 0,23	1650 ± 180	10700 ± 2000	0,28 ± 0,04	2,00 ± 0,22
	I/1999	Szidat (2000)	742	2,86 ± 0,28	2070 ± 180	7100 ± 900	0,53 ± 0,05	2,51 ± 0,22
	II/1999	Szidat (2000)	742	3,00 ± 0,26	2700 ± 400	8700 ± 1400	0,56 ± 0,05	3,27 ± 0,48
	III-IV/1999	Szidat (2000)	742	3,80 ± 0,50	2620 ± 414	6800 ± 1100	0,70 ± 0,09	3,17 ± 0,50
	III-IV/1999	diese Arbeit	742	3,80 ± 0,50	2620 ± 414	6800 ± 1100	0,70 ± 0,09	3,17 ± 0,50
	I-II/2000	diese Arbeit	742	2,70 ± 0,40	3170 ± 451	11800 ± 1800	0,50 ± 0,07	3,84 ± 0,55
	III/2000	diese Arbeit	742	3,40 ± 1,00	1860 ± 284	5400 ± 1500	0,63 ± 0,19	2,25 ± 0,34
	III/2001	diese Arbeit	742	3,80 ± 0,10	1790 ± 283	4600 ± 200	0,70 ± 0,02	2,17 ± 0,34
	I/2002	diese Arbeit	742	3,40 ± 0,10	1740 ± 266	5000 ± 200	0,63 ± 0,02	2,11 ± 0,32
	Minimum			1,52	1650	4600	0,28	2,00
	Maximum			4,90	4170	11800	0,91	5,05
	log. Mittelwert			3,23	2459	7488	0,60	2,98
	log. Standardabweichung			1,32	1,32	1,31	1,32	1,32

Tabelle III.10: Grundgesamtheit aller bisher untersuchten Niederschlagswässer (Quartalswerte)

Ort	Quartal	Quelle	log <hN> hN in mm a <sup>-1</sup>	<sup>127</sup> I		<sup>129</sup> I		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I		<sup>127</sup> I-Deposition		<sup>129</sup> I-Deposition	
				in µg kg <sup>-1</sup>		in fg kg <sup>-1</sup>		in 10 <sup>-10</sup>		in mg m <sup>-2</sup>		in mBq m <sup>-2</sup>	
Buer- Ostenwalde	I/1997	Szidat (2000)	775	2,05 ± 0,14	1240 ± 170	6000 ± 900	0,40 ± 0,03	1,57 ± 0,22					
	II/1997	Szidat (2000)	775	1,71 ± 0,28	1500 ± 120	8700 ± 1600	0,33 ± 0,05	1,90 ± 0,15					
	III/1997	Szidat (2000)	775	1,11 ± 0,19	690 ± 60	6100 ± 1200	0,22 ± 0,04	0,87 ± 0,08					
Gebiet(II)	IV/1997	Szidat (2000)	775	1,11 ± 0,19	690 ± 60	6100 ± 1200	0,22 ± 0,04	0,87 ± 0,08					
	I/1998	Szidat (2000)	775	2,03 ± 0,33	1190 ± 120	5800 ± 1100	0,39 ± 0,06	1,51 ± 0,15					
Freiland- niederschlag	II/1998	Szidat (2000)	775	1,25 ± 0,23	770 ± 60	6100 ± 1200	0,24 ± 0,04	0,97 ± 0,08					
	III/1998	Szidat (2000)	775	1,10 ± 0,21	1220 ± 130	10900 ± 2400	0,21 ± 0,04	1,54 ± 0,16					
	IV/1998	Szidat (2000)	775	1,98 ± 0,07	880 ± 120	4400 ± 600	0,38 ± 0,01	1,11 ± 0,15					
	I/1999	Szidat (2000)	775	1,36 ± 0,17	780 ± 50	5700 ± 800	0,26 ± 0,03	0,99 ± 0,06					
	II/1999	Szidat (2000)	775	1,15 ± 0,12	520 ± 30	4500 ± 500	0,22 ± 0,02	0,66 ± 0,04					
	III/1999	diese Arbeit	775	1,00 ± 0,40	250 ± 10	2400 ± 900	0,19 ± 0,08	0,32 ± 0,01					
	IV/1999	diese Arbeit	775	1,40 ± 0,40	810 ± 30	5700 ± 1400	0,27 ± 0,08	1,03 ± 0,04					
	I/2000	diese Arbeit	775	1,40 ± 0,40	1100 ± 50	7800 ± 2000	0,27 ± 0,08	1,39 ± 0,06					
	II/2000	diese Arbeit	775	1,50 ± 0,50	450 ± 20	2900 ± 1000	0,29 ± 0,10	0,57 ± 0,03					
	III/2000	diese Arbeit	775	1,60 ± 0,50	690 ± 30	4200 ± 1300	0,31 ± 0,10	0,87 ± 0,04					
	IV/2000	diese Arbeit	775	1,60 ± 0,80	290 ± 10	1800 ± 1000	0,31 ± 0,15	0,37 ± 0,01					
	I/2001	diese Arbeit	775	1,70 ± 0,90	380 ± 20	2200 ± 1100	0,33 ± 0,17	0,48 ± 0,03					
	II/2001	diese Arbeit	775	1,70 ± 0,90	490 ± 20	2800 ± 1400	0,33 ± 0,17	0,62 ± 0,03					
	III/2001	diese Arbeit	775	1,70 ± 0,40	740 ± 30	4400 ± 1100	0,33 ± 0,08	0,94 ± 0,04					
		Minimum			1,10	290	1800	0,21	0,37				
	Maximum			4,70	2020	10900	0,91	2,56					
	log. Mit- telwert			1,59	727	4512	0,31	0,92					
	log. Standardabweichung			1,39	1,63	1,58	1,39	1,63					

Tabelle III.11: Grundgesamtheit aller bisher untersuchten Niederschlagswässer (Quartalswerte)

Ort	Quartal	Quelle	log <hN> hN in mm a <sup>-1</sup>	<sup>127</sup> I in µg kg <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I in fg kg <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-10</sup>	<sup>127</sup> I-Deposition in mg m <sup>-2</sup>	<sup>129</sup> I-Deposition in mBq m <sup>-2</sup>	
Seesen	I/1997	Szidat (2000)	775	-	-	-		-	
	II/1997	Szidat (2000)	775	1,65 ± 0,13	470 ± 60	2800 ± 400	0,32 ± 0,02	0,59 ± 0,08	
	III/1997	Szidat (2000)	775	<0,64	230 ± 40	>3600		0,29 ± 0,05	
Gebiet(III)	IV/1997	Szidat (2000)	775	1,05 ± 0,22	660 ± 50	6200 ± 1400	0,20 ± 0,04	0,84 ± 0,06	
	I/1998	Szidat (2000)	775	1,56 ± 0,29	1440 ± 140	9100 ± 1900	0,30 ± 0,06	1,82 ± 0,18	
Freiland- niederschlag	II/1998	Szidat (2000)	775	3,00 ± 0,50	950 ± 240	3200 ± 1000	0,58 ± 0,10	1,20 ± 0,30	
	III/1998	Szidat (2000)	775	2,30 ± 0,09	1290 ± 100	5500 ± 500	0,45 ± 0,02	1,63 ± 0,13	
	IV/1998	Szidat (2000)	775	1,50 ± 0,06	670 ± 50	4400 ± 400	0,29 ± 0,01	0,85 ± 0,06	
	I/1999	Szidat (2000)	775	1,79 ± 0,22	270 ± 20	1490 ± 210	0,35 ± 0,04	0,34 ± 0,03	
	II/1999	Szidat (2000)	775	1,03 ± 0,14	650 ± 100	6200 ± 1300	0,20 ± 0,03	0,82 ± 0,13	
	III/1999	diese Arbeit	775	1,40 ± 0,40	340 ± 10	2400 ± 600	0,27 ± 0,08	0,43 ± 0,01	
	IV/1999	diese Arbeit	775	1,00 ± 0,40	550 ± 20	5400 ± 1900	0,19 ± 0,08	0,70 ± 0,03	
	I/2000	diese Arbeit	775	1,40 ± 0,40	860 ± 30	6200 ± 1600	0,27 ± 0,08	1,09 ± 0,04	
	II/2000	diese Arbeit	775	2,20 ± 0,50	570 ± 20	2500 ± 600	0,43 ± 0,10	0,72 ± 0,03	
	III/2000	diese Arbeit	775	2,20 ± 0,50	550 ± 20	2500 ± 600	0,43 ± 0,10	0,70 ± 0,03	
		Minimum		1,00	230	1490		0,19	0,29
		Maximum		3,00	1440	9100		0,58	1,82
		log. Mittelwert		1,61	644	3949		0,31	0,81
		log. Standardabweichung		1,40	1,61	1,69		1,40	1,61

Tabelle III.12: Grundgesamtheit aller bisher untersuchten Niederschlagswässer (Quartalswerte)

Ort	Quartal	Quelle	log <hN>	<sup>127</sup> I	<sup>129</sup> I	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I	<sup>127</sup> I-Deposition	<sup>129</sup> I-Deposition
			hN in mm a <sup>-1</sup>	in µg kg <sup>-1</sup>	in fg kg <sup>-1</sup>	in 10 <sup>-10</sup>	in mg m <sup>-2</sup>	in mBq m <sup>-2</sup>
Siemen	I/1997	Szidat (2000)	675	<0,6	420 ± 120	>7000		0,46 ± 0,13
	II/1997	Szidat (2000)	675	2,00 ± 0,05	450 ± 60	2200 ± 300	0,34 ± 0,01	0,50 ± 0,07
	III/1997	Szidat (2000)	675	1,41 ± 0,41	290 ± 30	2000 ± 600	0,24 ± 0,07	0,32 ± 0,03
Gebiet(IV)	IV/1997	Szidat (2000)	675	1,22 ± 0,40	790 ± 60	6400 ± 2200	0,21 ± 0,07	0,87 ± 0,07
	I/1998	Szidat (2000)	675	-	-		±	±
Freiland- niederschlag	II/1998	Szidat (2000)	675	1,13 ± 0,21	320 ± 40	2800 ± 600	0,19 ± 0,04	0,35 ± 0,04
	III/1998	Szidat (2000)	675	1,98 ± 0,08	850 ± 60	4200 ± 400	0,33 ± 0,01	0,94 ± 0,07
	IV/1998	Szidat (2000)	675	1,52 ± 0,09	1220 ± 90	7900 ± 700	0,26 ± 0,02	1,34 ± 0,10
	I/1999	Szidat (2000)	675	1,57 ± 0,21	610 ± 60	3800 ± 600	0,27 ± 0,04	0,67 ± 0,07
	II/1999	Szidat (2000)	675	1,05 ± 0,17	510 ± 60	4800 ± 1000	0,18 ± 0,03	0,56 ± 0,07
	III/1999	diese Arbeit	675	1,40 ± 0,40	640 ± 30	4500 ± 1200	0,24 ± 0,07	0,71 ± 0,03
	IV/1999	diese Arbeit	675	1,70 ± 0,40	700 ± 30	4100 ± 900	0,29 ± 0,07	0,77 ± 0,03
	I/2000	diese Arbeit	675	1,60 ± 0,40	1430 ± 50	9100 ± 2200	0,27 ± 0,07	1,58 ± 0,06
	II/2000	diese Arbeit	675	3,00 ± 0,50	610 ± 20	2000 ± 400	0,51 ± 0,08	0,67 ± 0,02
	III/2000	diese Arbeit	675	1,70 ± 0,50	460 ± 20	2700 ± 800	0,29 ± 0,08	0,51 ± 0,02
	IV/2000	diese Arbeit	675	1,70 ± 0,50	270 ± 10	1500 ± 400	0,29 ± 0,08	0,30 ± 0,01
	I/2001	diese Arbeit	675	1,70 ± 0,80	310 ± 10	1800 ± 900	0,29 ± 0,13	0,34 ± 0,01
	II/2001	diese Arbeit	675	2,20 ± 0,90	930 ± 40	4100 ± 1600	0,37 ± 0,15	1,02 ± 0,04
	III/2001	diese Arbeit	675	3,90 ± 0,10	500 ± 30	1300 ± 100	0,66 ± 0,02	0,55 ± 0,03
	IV/2001	diese Arbeit	675	1,80 ± 0,10	680 ± 20	3700 ± 200	0,30 ± 0,02	0,75 ± 0,02
		Minimum		1,05	270	1300	0,18	0,30
	Maximum		3,90	1430	9100	0,66	1,58	
	log. Mittelwert		1,72	577	3312	0,29	0,64	
	log. Standardabweichung		1,38	1,61	1,74	1,38	1,61	

Tabelle III.13: Grundgesamtheit aller bisher untersuchten Niederschlagswässer (Quartalswerte)

Ort	Quartal	Quelle	log <hN> hN in mm a <sup>-1</sup>	<sup>127</sup> I		<sup>129</sup> I		<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I		<sup>127</sup> I-Deposition		<sup>129</sup> I-Deposition		
				in µg kg <sup>-1</sup>		in fg kg <sup>-1</sup>		in 10 <sup>-10</sup>		in mg m <sup>-2</sup>		in mBq m <sup>-2</sup>		
Buer- Ostenwalde	I/1997	Szidat (2000)	775	10,18	± 1,18	5200	± 600	5000	± 900	1,97	± 0,23	6,58	± 0,76	
	II/1997	Szidat (2000)	775	7,54	± 1,18	4300	± 300	5700	± 1000	1,46	± 0,23	5,44	± 0,38	
	III/1997	Szidat (2000)	775	7,08	± 1,19	3360	± 220	4700	± 800	1,37	± 0,23	4,25	± 0,28	
Gebiet(II)	IV/1997	Szidat (2000)	775	7,08	± 1,19	3360	± 220	4700	± 800	1,37	± 0,23	4,25	± 0,28	
	I/1998	Szidat (2000)	775	8,66	± 1,10	4300	± 400	4800	± 800	1,68	± 0,21	5,44	± 0,51	
Bestands- niederschlag	II/1998	Szidat (2000)	775	6,11	± 0,73	3400	± 300	5500	± 800	1,18	± 0,14	4,30	± 0,38	
	III/1998	Szidat (2000)	775	9,43	± 0,31	6700	± 500	6900	± 500	1,83	± 0,06	8,48	± 0,63	
	IV/1998	Szidat (2000)	775	5,09	± 0,18	2730	± 190	5300	± 400	0,98	± 0,03	3,46	± 0,24	
	I/1999	Szidat (2000)	775	5,00	± 0,44	2410	± 120	4700	± 500	0,97	± 0,08	3,05	± 0,15	
	II/1999	Szidat (2000)	775	5,29	± 0,56	2600	± 400	4800	± 900	1,02	± 0,11	3,29	± 0,51	
	III/1999	diese Arbeit	775	4,70	± 0,50	2020	± 70	4200	± 500	0,91	± 0,10	2,56	± 0,09	
	IV/1999	diese Arbeit	775	5,40	± 0,60	2920	± 210	5400	± 700	1,05	± 0,12	3,70	± 0,27	
	I/2000	diese Arbeit	775	8,40	± 0,60	4040	± 160	4700	± 400	1,63	± 0,12	5,11	± 0,20	
	II/2000	diese Arbeit	775	5,40	± 0,60	3040	± 130	5600	± 600	1,05	± 0,12	3,85	± 0,16	
	III/2000	diese Arbeit	775	6,40	± 0,60	2400	± 100	3700	± 400	1,24	± 0,12	3,04	± 0,13	
	IV/2000	diese Arbeit	775	10,10	± 1,80	2060	± 80	2000	± 400	1,96	± 0,35	2,61	± 0,10	
	I/2001	diese Arbeit	775	7,20	± 1,50	2000	± 80	2700	± 600	1,39	± 0,29	2,53	± 0,10	
	II/2001	diese Arbeit	775	6,80	± 1,30	2680	± 120	3900	± 800	1,32	± 0,25	3,39	± 0,15	
	III/2001	diese Arbeit	775	6,60	± 1,60	3020	± 100	4500	± 1100	1,28	± 0,31	3,82	± 0,13	
	Minimum				1,00		250		2000		0,19		0,32	
	Maximum				10,18		6700		6900		1,97		8,48	
log. Mittelwert				6,25		2795		4394		1,21		3,54		
log. Standardabweichung				1,64		1,94		1,37		1,64		1,94		

Tabelle III.14: Grundgesamtheit aller bisher untersuchten Niederschlagswässer (Quartalswerte)

Ort	Quartal	Quelle	log <hN> hN in mm a <sup>-1</sup>	<sup>127</sup> I in µg kg <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I in fg kg <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-10</sup>	<sup>127</sup> I-Deposition in mg m <sup>-2</sup>	<sup>129</sup> I-Deposition in mBq m <sup>-2</sup>	
Seesen	I/1997	Szidat (2000)	775	5,42 ± 0,61	1980 ± 240	3600 ± 600	1,05 ± 0,12	2,51 ± 0,30	
	II/1997	Szidat (2000)	775	6,41 ± 0,33	2300 ± 500	3500 ± 800	1,24 ± 0,06	2,91 ± 0,63	
	III/1997	Szidat (2000)	775	4,63 ± 2,68	1630 ± 140	3500 ± 2000	0,90 ± 0,52	2,06 ± 0,18	
Gebiet(III)	IV/1997	Szidat (2000)	775	4,94 ± 1,27	1710 ± 130	3400 ± 900	0,96 ± 0,25	2,16 ± 0,16	
	I/1998	Szidat (2000)	775	4,18 ± 0,53	2740 ± 260	6500 ± 1000	0,81 ± 0,10	3,47 ± 0,33	
Bestands- niederschlag	II/1998	Szidat (2000)	775	5,74 ± 0,67	2380 ± 220	4100 ± 600	1,11 ± 0,13	3,01 ± 0,28	
	III/1998	Szidat (2000)	775	5,82 ± 0,30	4010 ± 280	6800 ± 600	1,13 ± 0,06	5,07 ± 0,35	
	IV/1998	Szidat (2000)	775	5,57 ± 0,20	2080 ± 150	3700 ± 300	1,08 ± 0,04	2,63 ± 0,19	
	I/1999	Szidat (2000)	775	3,21 ± 0,29	1430 ± 150	4400 ± 600	0,62 ± 0,06	1,81 ± 0,19	
	II/1999	Szidat (2000)	775	5,76 ± 0,80	2400 ± 300	4000 ± 800	1,12 ± 0,15	3,04 ± 0,38	
	III/1999	diese Arbeit	775	6,90 ± 0,80	2040 ± 70	2900 ± 300	1,34 ± 0,15	2,58 ± 0,09	
	IV/1999	diese Arbeit	775	4,70 ± 0,50	2630 ± 90	5500 ± 600	0,91 ± 0,10	3,33 ± 0,11	
	I/2000	diese Arbeit	775	4,40 ± 0,60	2930 ± 170	6500 ± 1000	0,85 ± 0,12	3,71 ± 0,22	
		Minimum			3,21	1430	2900	0,62	1,81
		Maximum			6,90	4010	6800	1,34	5,07
	log. Mittelwert			5,11	2247	4322	0,99	2,84	
	log. Standardabweichung			1,22	1,31	1,33	1,22	1,31	

Tab. III.15: Jahresdepositionsraten durch nasse Deposition für  $^{127}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}$  in Niedersachsen

Ort	Quartal	log <hN>	$^{127}\text{I}$ -jährliche I-Deposition		$^{129}\text{I}$ -jährliche I-Deposition	
		hN in $\text{mm a}^{-1}$	in $\text{mg m}^{-2}$		in $\text{mBq m}^{-2}$	
Norderney	I/1997	742	3,6	$\pm 0,2$	14,6	$\pm 1,9$
	II/1997	742	2,6	$\pm 0,4$	16,5	$\pm 2,4$
Gebiet(I)	III/1997	742	2,0	$\pm 0,3$	11,2	$\pm 0,7$
	IV/1997	742	2,8	$\pm 0,4$	13,6	$\pm 1,0$
Freiland- niederschlag	I/1998	742	3,0	$\pm 0,4$	20,2	$\pm 1,3$
	II/1998	742	2,8	$\pm 0,4$	15,1	$\pm 1,4$
	III/1998	742	1,8	$\pm 0,2$	8,7	$\pm 2,4$
	IV/1998	742	1,1	$\pm 0,2$	8,0	$\pm 0,9$
	I/1999	742	2,1	$\pm 0,2$	10,0	$\pm 0,9$
	II/1999	742	2,2	$\pm 0,2$	13,1	$\pm 1,9$
	III-IV/1999	742	2,8	$\pm 0,4$	12,7	$\pm 2,0$
	III-IV/1999	742	2,8	$\pm 0,4$	12,7	$\pm 2,0$
	I-II/2000	742	2,0	$\pm 0,3$	15,4	$\pm 2,2$
	III/2000	742	2,5	$\pm 0,8$	9,0	$\pm 1,4$
	III/2001	742	2,8	$\pm 0,1$	8,7	$\pm 1,4$
	I/2002	742	2,5	$\pm 0,1$	8,4	$\pm 1,3$
		log. Mittelwert		2,4		11,9
	log. Standardabweichung		1,3		1,3	
Buer- Ostenwalde	I/1997	775	1,6	$\pm 0,1$	6,3	$\pm 0,9$
	II/1997	775	1,3	$\pm 0,2$	7,6	$\pm 0,6$
Gebiet(II)	III/1997	775	0,9	$\pm 0,2$	3,5	$\pm 0,3$
	IV/1997	775	0,9	$\pm 0,2$	3,5	$\pm 0,3$
Freiland- niederschlag	I/1998	775	1,6	$\pm 0,2$	6,0	$\pm 0,6$
	II/1998	775	1,0	$\pm 0,2$	3,9	$\pm 0,3$
	III/1998	775	0,8	$\pm 0,2$	6,2	$\pm 0,6$
	IV/1998	775	1,5	$\pm 0,0$	4,4	$\pm 0,6$
	I/1999	775	1,0	$\pm 0,1$	4,0	$\pm 0,2$
	II/1999	775	0,9	$\pm 0,1$	2,6	$\pm 0,2$
	III/1999	775	3,6	$\pm 0,4$	10,2	$\pm 0,4$
	IV/1999	775	1,1	$\pm 0,3$	4,1	$\pm 0,2$
	I/2000	775	1,1	$\pm 0,3$	5,6	$\pm 0,2$
	II/2000	775	1,2	$\pm 0,4$	2,3	$\pm 0,1$
	III/2000	775	1,2	$\pm 0,4$	3,5	$\pm 0,2$
	IV/2000	775	1,2	$\pm 0,6$	1,5	$\pm 0,0$
	I/2001	775	1,3	$\pm 0,7$	1,9	$\pm 0,1$
II/2001	775	1,3	$\pm 0,7$	2,5	$\pm 0,1$	
III/2001	775	1,3	$\pm 0,3$	3,8	$\pm 0,2$	
	log. Mittelwert		1,2		3,7	
	log. Standardabweichung		1,4		1,6	

Tab. III.16: Jahresdepositionsraten durch nasse Deposition für  $^{127}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}$  in Niedersachsen

Ort	Quartal	log <hN>	jährliche $^{127}\text{I}$ -Deposition		jährliche $^{129}\text{I}$ -Deposition	
		hN in mm a <sup>-1</sup>	in mg m <sup>-2</sup>		in mBq m <sup>-2</sup>	
Seesen	I/1997	775	-		-	
	II/1997	775	1,3	± 0,1	2,4	± 0,3
Gebiet(III)	III/1997	775	0,0	± 0,0	1,2	± 0,2
	IV/1997	775	0,8	± 0,2	3,4	± 0,2
Freiland- niederschlag	I/1998	775	1,2	± 0,2	7,3	± 0,7
	II/1998	775	2,3	± 0,4	4,8	± 1,2
	III/1998	775	1,8	± 0,1	6,5	± 0,5
	IV/1998	775	1,2	± 0,0	3,4	± 0,2
	I/1999	775	1,4	± 0,2	1,4	± 0,1
	II/1999	775	0,8	± 0,1	3,3	± 0,5
	III/1999	775	1,1	± 0,3	1,7	± 0,0
	IV/1999	775	0,8	± 0,3	2,8	± 0,1
	I/2000	775	1,1	± 0,3	4,4	± 0,2
	II/2000	775	1,7	± 0,4	2,9	± 0,1
	III/2000	775	1,7	± 0,4	2,8	± 0,1
		log. Mittelwert		1,2		3,2
	log. Standardabweichung		1,4		1,6	
Siemen	I/1997	675	0,0	± 0,0	1,8	± 0,5
	II/1997	675	1,4	± 0,0	2,0	± 0,3
Gebiet(IV)	III/1997	675	1,0	± 0,3	1,3	± 0,1
	IV/1997	675	0,8	± 0,3	3,5	± 0,3
Freiland- niederschlag	I/1998	675	0,0	± 0,0	0,0	± 0,0
	II/1998	675	0,8	± 0,2	1,4	± 0,2
	III/1998	675	1,3	± 0,0	3,8	± 0,3
	IV/1998	675	1,0	± 0,1	5,4	± 0,4
	I/1999	675	1,1	± 0,2	2,7	± 0,3
	II/1999	675	0,7	± 0,1	2,2	± 0,3
	III/1999	675	1,0	± 0,3	2,8	± 0,1
	IV/1999	675	1,2	± 0,3	3,1	± 0,1
	I/2000	675	1,1	± 0,3	6,3	± 0,2
	II/2000	675	2,0	± 0,3	2,7	± 0,1
	III/2000	675	1,2	± 0,3	2,0	± 0,1
	IV/2000	675	1,2	± 0,3	1,2	± 0,0
	I/2001	675	1,2	± 0,5	1,4	± 0,0
	II/2001	675	1,5	± 0,6	4,1	± 0,2
III/2001	675	2,6	± 0,1	2,2	± 0,1	
IV/2001	675	1,2	± 0,1	3,0	± 0,1	
	log. Mittelwert		1,2		2,6	
	log. Standardabweichung		1,4		1,6	

Tab. III.17: Jahresdepositionsraten durch nasse und trockene Deposition für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Niedersachsen

Ort	Quartal	log <hN>	jährliche $^{127}\text{I}$ -Deposition			jährliche $^{129}\text{I}$ -Deposition		
		hN in mm a <sup>-1</sup>	in mg m <sup>-2</sup>			in mBq m <sup>-2</sup>		
Buer-Ostenwalde	I/1997	775	7,9	±	0,9	26,3	±	3,0
	II/1997	775	5,8	±	0,9	21,8	±	1,5
Gebiet(II)	III/1997	775	5,5	±	0,9	17,0	±	1,1
	IV/1997	775	5,5	±	0,9	17,0	±	1,1
Bestandsniederschlag	I/1998	775	6,7	±	0,8	21,8	±	2,0
	II/1998	775	4,7	±	0,6	17,2	±	1,5
	III/1998	775	7,3	±	0,2	33,9	±	2,5
	IV/1998	775	3,9	±	0,1	13,8	±	1,0
	I/1999	775	3,9	±	0,3	12,2	±	0,6
	II/1999	775	4,1	±	0,4	13,2	±	2,0
	III/1999	775	0,8	±	0,3	1,3	±	0,0
	IV/1999	775	4,2	±	0,5	14,8	±	1,1
	I/2000	775	6,5	±	0,5	20,4	±	0,8
	II/2000	775	4,2	±	0,5	15,4	±	0,6
	III/2000	775	5,0	±	0,5	12,2	±	0,5
	IV/2000	775	7,8	±	1,4	10,4	±	0,4
	I/2001	775	5,6	±	1,2	10,1	±	0,4
	II/2001	775	5,3	±	1,0	13,6	±	0,6
	III/2001	775	5,1	±	1,2	15,3	±	0,5
	log. Mittelwert		4,8			14,2		
	log. Standardabweichung		1,6			1,9		
Seesen	I/1997	775	4,2	±	0,5	10,0	±	1,2
	II/1997	775	5,0	±	0,2	11,6	±	2,5
Gebiet(III)	III/1997	775	3,6	±	2,1	8,2	±	0,7
	IV/1997	775	3,8	±	1,0	8,6	±	0,6
Bestandsniederschlag	I/1998	775	3,2	±	0,4	13,9	±	1,3
	II/1998	775	4,4	±	0,5	12,0	±	1,1
	III/1998	775	4,5	±	0,2	20,3	±	1,4
	IV/1998	775	4,3	±	0,2	10,5	±	0,8
	I/1999	775	2,5	±	0,2	7,2	±	0,8
	II/1999	775	4,5	±	0,6	12,2	±	1,5
	III/1999	775	5,4	±	0,6	10,3	±	0,4
	IV/1999	775	3,6	±	0,4	13,3	±	0,4
	I/2000	775	3,4	±	0,5	14,8	±	0,9
		log. Mittelwert		4,0			11,4	
	log. Standardabweichung		1,2			1,3		

Tabelle III.18:  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im niedersächsischen Oberflächenwasser Großes Meer

Großes Meer	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis	Quelle
Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-9}$	
05.03.97	16,2 ± 1,8	250 ± 70	15,0 ± 0,6	Szidat (2000)
18.06.97	46,5 ± 9,0	1050 ± 230	22,0 ± 0,6	Szidat (2000)
16.09.97	41,3 ± 8,0	2400 ± 400	57,0 ± 1,4	Szidat (2000)
27.11.97	19,4 ± 4,0	1600 ± 120	81,0 ± 2,0	Szidat (2000)
26.02.98	15,7 ± 4,0	440 ± 50	27,0 ± 0,7	Szidat (2000)
27.05.98	26,6 ± 6,0	940 ± 100	25,0 ± 0,8	Szidat (2000)
14.09.98	17,5 ± 4,0	1220 ± 140	69,0 ± 1,6	Szidat (2000)
17.11.98	21,6 ± 4,0	830 ± 70	38,0 ± 0,8	Szidat (2000)
20.01.99	21,3 ± 4,0	590 ± 80	27,0 ± 0,6	Szidat (2000)
16.04.99	20,6 ± 4,0	950 ± 60	25,0 ± 0,9	Szidat (2000)
06.08.99	41,0 ± 8,0	3500 ± 200	83,0 ± 1,7	Szidat (2000)
01.10.99	17,0 ± 3,0	4000 ± 200	220,0 ± 5,0	Szidat (2000)
16.03.00	11,5 ± 1,7	767 ± 30,1	65,5 ± 10,2	diese Arbeit
23.05.00	25,7 ± 3,5	2507,9 ± 139,7	96,0 ± 14,0	diese Arbeit
27.03.01	14,5 ± 2,7	525,5 ± 21,4	35,7 ± 6,7	diese Arbeit
28.06.01	30,6 ± 0,4	135,5 ± 3,8	4,4 ± 0,1	diese Arbeit
20.09.01	17,5 ± 0,2	1028,2 ± 30,9	57,8 ± 1,7	diese Arbeit
10.12.01	26,0 ± 0,9	1009,0 ± 85,3	38,3 ± 3,2	diese Arbeit
Geom. Mittel	22 · 1,5 <sup>±1</sup>	960 · 2,4 <sup>±1</sup>	43 · 2,3 <sup>±1</sup>	

Tabelle III.19:  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im niedersächsischen Oberflächenwasser Bokeloh

Bokeloh	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis	Quelle
Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-9}$	
18.02.97	6,4 ± 1,2	72 ± 13	11,1 ± 0,3	Szidat (2000)
15.04.97	8,0 ± 1,5	88 ± 12	10,8 ± 0,3	Szidat (2000)
08.07.97	6,5 ± 1,5	168 ± 16	26,0 ± 0,6	Szidat (2000)
15.10.97	7,7 ± 1,5	183 ± 17	23,0 ± 0,5	Szidat (2000)
06.01.98	3,9 ± 1,5	115 ± 11	29,0 ± 1,2	Szidat (2000)
01.07.98	6,2 ± 1,4	99 ± 12	16,0 ± 0,4	Szidat (2000)
04.08.98	8,5 ± 1,8	178 ± 40	21,0 ± 0,5	Szidat (2000)
24.11.98	9,0 ± 1,7	500 ± 40	55,0 ± 1,1	Szidat (2000)
09.03.99	5,4 ± 1,1	227 ± 15	42,0 ± 0,9	Szidat (2000)
04.05.99	5,8 ± 1,2	135 ± 10	23,0 ± 0,5	Szidat (2000)
10.09.99	6,4 ± 1,3	112 ± 10	17,0 ± 0,4	Szidat (2000)
26.10.99	6,2 ± 1,3	124 ± 16	20,0 ± 0,5	Szidat (2000)
15.02.00	5,6 ± 0,9	170,8 ± 11,7	29,9 ± 5,2	diese Arbeit
11.04.00	5,7 ± 0,9	361,9 ± 13,8	63,0 ± 9,8	diese Arbeit
20.09.00	7,0 ± 1,1	176,1 ± 8,4	24,8 ± 4,1	diese Arbeit
22.02.01	8,3 ± 1,5	298,7 ± 12,2	35,5 ± 6,4	diese Arbeit
18.08.01	7,1 ± 0,3	330,0 ± 65,1	45,5 ± 2,0	diese Arbeit
21.08.01	8,7 ± 0,1	163,4 ± 45,0	18,6 ± 0,6	diese Arbeit
01.11.01	6,9 ± 0,1	77,1 ± 2,2	10,9 ± 0,3	diese Arbeit
Geom. Mittel	6,7 · 1,2 <sup>±1</sup>	163 · 1,7 <sup>±1</sup>	24 · 1,7 <sup>±1</sup>	

Tabelle III.20:  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im niedersächsischen Oberflächenwasser Leineturm

Leineturm	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis	Quelle
Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-9}$	
04.02.97	$6,5 \pm 1,2$	$11 \pm 2$	$1,7 \pm 0,0$	Szidat (2000)
05.08.97	$4,7 \pm 0,9$	$36 \pm 6$	$7,5 \pm 0,2$	Szidat (2000)
22.10.97	$11,4 \pm 4,5$	$60 \pm 6$	$5,2 \pm 0,2$	Szidat (2000)
19.01.98	$4,3 \pm 1,7$	$42 \pm 4$	$10,0 \pm 0,4$	Szidat (2000)
23.05.98	$6,3 \pm 2,5$	$31 \pm 4$	$4,8 \pm 0,2$	Szidat (2000)
28.07.98	$4,8 \pm 1,0$	$28 \pm 5$	$5,8 \pm 0,2$	Szidat (2000)
27.11.98	$5,3 \pm 1,1$	$56 \pm 8$	$10,4 \pm 0,3$	Szidat (2000)
14.02.99	$4,6 \pm 0,9$	$41 \pm 3$	$8,9 \pm 0,2$	Szidat (2000)
22.04.99	$4,1 \pm 0,9$	$35 \pm 3$	$8,3 \pm 0,2$	Szidat (2000)
16.07.99	$4,6 \pm 0,9$	$41 \pm 3$	$8,9 \pm 0,2$	Szidat (2000)
21.10.99	$10,8 \pm 2,2$	$53 \pm 6$	$4,8 \pm 0,1$	Szidat (2000)
26.01.00	$5,2 \pm 0,8$	$34,7 \pm 1,6$	$6,6 \pm 1,1$	diese Arbeit
21.06.00	$5,9 \pm 0,8$	$43,4 \pm 2,3$	$7,3 \pm 1,1$	diese Arbeit
30.08.00	$10,6 \pm 1,2$	$68,3 \pm 3,7$	$6,4 \pm 0,8$	diese Arbeit
21.03.01	$7,5 \pm 2,2$	$24,5 \pm 1,1$	$3,2 \pm 1,0$	diese Arbeit
10.05.01	$2,9 \pm 0,9$	$327,2 \pm 14,7$	$111,7 \pm 36,0$	diese Arbeit
12.11.01	$8,8 \pm 0,2$	$43,0 \pm 1,7$	$4,8 \pm 0,2$	diese Arbeit
Geom. Mittel	$5,9 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$42 \cdot 1,9^{\pm 1}$	$7,0 \cdot 2,3^{\pm 1}$	

Tabelle III.21:  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im niedersächsischen Oberflächenwasser Meetschow

Meetschow	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis	Quelle
Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-9}$	
12.02.97	$6,0 \pm 1,6$	$31 \pm 8$	$5,1 \pm 0,2$	Szidat (2000)
15.05.97	$6,6 \pm 1,2$	$86 \pm 11$	$12,8 \pm 0,2$	Szidat (2000)
09.07.97	$13,5 \pm 2,5$	$121 \pm 10$	$8,8 \pm 0,1$	Szidat (2000)
17.10.97	$8,2 \pm 1,5$	$106 \pm 27$	$13,0 \pm 0,3$	Szidat (2000)
06.01.98	$4,9 \pm 0,9$	$37 \pm 14$	$7,0 \pm 0,3$	Szidat (2000)
15.05.98	$6,9 \pm 2,7$	$158 \pm 18$	$23,0 \pm 0,8$	Szidat (2000)
01.07.98	$8,0 \pm 1,7$	$349 \pm 37$	$43,0 \pm 0,7$	Szidat (2000)
23.11.98	$4,4 \pm 0,8$	$128 \pm 12$	$29,0 \pm 0,3$	Szidat (2000)
03.03.99	$14,8 \pm 3,1$	$67 \pm 5$	$4,4 \pm 0,1$	Szidat (2000)
08.06.99	$19,0 \pm 3,9$	$138 \pm 11$	$7,2 \pm 0,1$	Szidat (2000)
03.09.99	$12,3 \pm 2,5$	$167 \pm 13$	$13,4 \pm 0,2$	Szidat (2000)
02.12.99	$2,1 \pm 0,7$	$168,1 \pm 6,9$	$77,5 \pm 26,4$	diese Arbeit
10.03.00	$4,5 \pm 0,8$	$119,3 \pm 5,0$	$26,2 \pm 4,7$	diese Arbeit
26.05.00	$9,6 \pm 1,0$	$193,3 \pm 8,7$	$19,8 \pm 2,3$	diese Arbeit
05.03.01	$4,4 \pm 1,9$	$46,6 \pm 2,1$	$10,5 \pm 4,5$	diese Arbeit
11.06.01	$9,9 \pm 0,1$	$166,8 \pm 6,5$	$16,5 \pm 0,6$	diese Arbeit
17.09.01	$7,9 \pm 0,1$	$163,4 \pm 6,9$	$185,8 \pm 7,8$	diese Arbeit
10.12.01	$3,7 \pm 0,1$	$133,9 \pm 11,4$	$35,6 \pm 3,0$	diese Arbeit
Geom. Mittel	$7,1 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$113 \cdot 1,9^{\pm 1}$	$15,7 \cdot 2,1^{\pm 1}$	

Tabelle III.22:  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in niedersächsischen Grundwässern unterschiedlicher Filtrationstiefen  $h_f$

Gebiet	Rhauderfehn $h_f = 10\text{ m}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Quelle
I	Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$	
	31.03.98	$3,37 \pm 0,80$	$29,03 \pm 3,16$	$84,8 \pm 21,0$	Szidat (2000)
	07.10.98	$5,65 \pm 1,10$	$41,69 \pm 4,93$	$72,7 \pm 17,0$	Szidat (2000)
	08.04.99	$4,00 \pm 0,90$	$64,39 \pm 5,98$	$158,4 \pm 38,0$	Szidat (2000)
	19.08.99	$1,98 \pm 0,45$	$2,39 \pm 0,50$	$11,9 \pm 3,7$	diese Arbeit
	21.01.00	$1,98 \pm 0,45$	$4,99 \pm 0,49$	$24,7 \pm 6,1$	diese Arbeit
	31.07.00	$2,59 \pm 0,46$	$4,89 \pm 0,39$	$18,6 \pm 3,6$	diese Arbeit
	08.05.01	$8,35 \pm 1,51$	$3,67 \pm 0,20$	$4,3 \pm 0,8$	diese Arbeit
	29.11.01	$8,67 \pm 0,12$	$2,54 \pm 0,28$	$2,9 \pm 0,3$	diese Arbeit
II	Woltrup-Wehbergen $h_f = 8\text{ m}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis	Quelle
	Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$	
	19.11.97	$5,42 \pm 1,20$	$63,66 \pm 8,66$	$115,7 \pm 31,0$	Szidat (2000)
	31.03.98	$3,66 \pm 0,80$	$89,55 \pm 10,16$	$240,8 \pm 61,0$	Szidat (2000)
	07.10.98	$3,15 \pm 0,60$	$96,61 \pm 8,16$	$302,1 \pm 67,0$	Szidat (2000)
	08.04.99	$3,70 \pm 0,70$	$107,70 \pm 8,22$	$286,9 \pm 60,0$	Szidat (2000)
	19.08.99	$3,42 \pm 0,48$	$120,77 \pm 4,15$	$347,5 \pm 50,2$	diese Arbeit
	21.01.00	$2,66 \pm 0,56$	$113,71 \pm 4,62$	$420,8 \pm 89,4$	diese Arbeit
	31.07.00	$2,97 \pm 0,53$	$131,36 \pm 6,07$	$434,9 \pm 79,9$	diese Arbeit
III	Lamspringe $h_f = 3\text{ m}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Quelle
	Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$	
	28.10.97	$1,78 \pm 0,40$	$4,02 \pm 1,51$	$22,3 \pm 10,0$	Szidat (2000)
	08.04.98	$14,22 \pm 3,40$	$20,38 \pm 4,09$	$14,1 \pm 4,0$	Szidat (2000)
	14.10.98	$0,64 \pm 0,10$	$3,85 \pm 1,37$	$59,3 \pm 25,0$	Szidat (2000)
	15.04.99	$0,69 \pm 0,20$	$3,16 \pm 0,46$	$45,2 \pm 12,0$	Szidat (2000)
	20.10.99	$1,05 \pm 0,36$	$4,22 \pm 0,19$	$39,7 \pm 13,6$	diese Arbeit
	17.05.00	$1,46 \pm 0,37$	$3,94 \pm 0,24$	$26,5 \pm 6,8$	diese Arbeit
	11.10.00	$1,60 \pm 0,49$	$2,92 \pm 0,16$	$18,0 \pm 5,6$	diese Arbeit
IV	Breetze $h_f = 5\text{ m}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis	Quelle
	Probennahme	in $\text{ng g}^{-1}$	in $\text{fg kg}^{-1}$	in $10^{-10}$	
	12.02.97	$5,10 \pm 1,18$	$0,06 \pm 0,06$	$0,1 \pm 0,1$	Szidat (2000)
	17.09.97	$6,44 \pm 1,30$	$4,12 \pm 0,58$	$6,3 \pm 1,5$	Szidat (2000)
	07.07.98	$5,10 \pm 1,00$	$1,02 \pm 0,31$	$2,0 \pm 0,7$	Szidat (2000)
	29.09.98	$4,84 \pm 1,00$	$1,08 \pm 0,30$	$2,2 \pm 0,8$	Szidat (2000)
	04.05.99	$3,78 \pm 0,70$	$3,89 \pm 0,46$	$10,1 \pm 2,3$	Szidat (2000)
	06.10.99	$4,53 \pm 0,59$	$3,12 \pm 0,14$	$6,8 \pm 0,9$	diese Arbeit
	07.06.00	$4,75 \pm 0,56$	$3,29 \pm 0,19$	$6,8 \pm 0,9$	diese Arbeit
	22.08.00	$4,00 \pm 0,47$	$24,40 \pm 1,02$	$60,1 \pm 7,4$	diese Arbeit
	04.04.01	$4,41 \pm 1,07$	$1,65 \pm 0,09$	$3,7 \pm 0,9$	diese Arbeit
	22.08.01	$5,45 \pm 0,09$	$2,45 \pm 0,06$	$4,4 \pm 0,1$	diese Arbeit

Tabelle III.23: Vergleich der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im und außerhalb eines Oberflächeneinzugsgebietes in Böden

Böden	Wassereinzugs- gebiet	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{nBq g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-8}$
Acker Groß Lobke	-	$3,4 \pm 0,2$	$268 \pm 11$	$1,2 \pm 0,1$
Acker Barum	-	$3,4 \pm 0,2$	$306 \pm 8$	$1,4 \pm 0,1$
Acker Adenstedt	-	$3,9 \pm 0,3$	$380 \pm 17$	$1,5 \pm 0,1$
Acker Twenge	-	$3,2 \pm 0,2$	$331 \pm 12$	$1,5 \pm 0,1$
Rasen Ricklingen	-	$2,5 \pm 0,1$	$489 \pm 19$	$3,0 \pm 0,2$
Weide Vestrup	-	$5,6 \pm 0,4$	$1413 \pm 46$	$3,8 \pm 0,3$
Wald Eilenriede	-	$3,2 \pm 0,2$	$1117 \pm 36$	$5,2 \pm 0,3$
Acker 1 Wendland 1998	Elbe	$0,68 \pm 0,12$	$460 \pm 70$	$10,2 \pm 0,3$
Acker 1 Wendland 1999	Elbe	$0,60 \pm 0,11$	$336 \pm 43$	$8,6 \pm 1,9$
Acker 1 Wendland 2000	Elbe	$1,96 \pm 0,20$	$310 \pm 26$	$2,4 \pm 0,3$
Acker 1 Wendland 2001	Elbe	$0,54 \pm 0,16$	$735 \pm 101$	$20,5 \pm 6,5$
Acker 2 Wendland 1998	Elbe	$0,71 \pm 0,07$	$1000 \pm 70$	$21,3 \pm 2,2$
Acker 2 Wendland 1999	Elbe	$0,49 \pm 0,11$	$644 \pm 83$	$20,2 \pm 5,4$
Acker 2 Wendland 2000	Elbe	$0,85 \pm 0,19$	$589 \pm 49$	$10,4 \pm 2,4$
Acker 2 Wendland 2001	Elbe	$0,85 \pm 0,10$	$825 \pm 80$	$14,5 \pm 2,2$
Acker 2 Wendland 2001	Elbe	$1,18 \pm 0,18$	$877 \pm 85$	$11,2 \pm 2,0$

Tabelle III.24: Analysenergebnisse für Boden, Bewuchs, und Nahrungsmittel geordnet nach Probennahmeorten.

Ergebnisse unter der Erkennungsgrenze sind als < EKG angegeben. Die Konzentrationsangaben dieser Tabelle beziehen sich bei Boden, Gras/Heu/Stroh, Getreide und Pilzen auf die Trockenmasse der Proben. Bei Gemüse, Obst, Fleisch, Schilddrüsen und Milch sind die Konzentrationen auf das Frischgewicht bezogen.

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$u_{rel}$ in %	$C(^{127}I)$ in g/g	$u_{rel}$ in %	$C(^{129}I)$ in g/g	$A_m(^{127}I)$ in Bq/g	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$	$u_{rel}$ in %
10.04.03	BuZiEPRi01	Buntenbock	III	Ziegenfleisch	27.05.2002	74,1	0,6	2,80E-07	5,3	1,09E-14	7,13E-08	4,7	3,84E-08	7,1
08.07.03	BuMPGr01	Buntenbock	III	Gras / Ziegenstandort	27.05.2002	72,7	0,6	8,08E-07	3,7	5,12E-14	3,35E-07	7,9	6,24E-08	8,7
22.01.03	GeKoMPWe01	Gestorf	III	Weizen	15.08.2001	79,8	1,2	7,20E-09	8,5	< 1,32E-15	< 8,62E-09	-	< 1,81E-07	-
31.10.02	GeBoMPWe01	Gestorf	III	Boden zu Weizen	15.08.2001	64,5	1,3	2,82E-06	10,2	6,15E-14	4,02E-07	2,5	2,15E-08	10,5
29.08.02	GeStMPWe01	Gestorf	III	Weizenstroh	15.08.2001	96,1	1,7	9,67E-07	2,2	9,72E-14	6,35E-07	2,2	9,89E-08	3,2
18.06.03	GeGeEPKa01	Gestorf	III	Kartoffeln	15.08.2001	82,3	0,6	2,45E-08	12,7	< 4,06E-16	< 2,65E-09	-	< 1,63E-08	-
15.10.02	GeBoEPKa01	Gestorf	III	Boden zu Kartoffeln	15.08.2001	52,3	2,8	4,11E-06	6,5	7,21E-14	4,71E-07	1,7	1,73E-08	6,7
13.08.03	GIObMPBb01	Gleidingen	III	Brombeeren	13.08.2002	90,1	0,4	1,35E-08	2,6	1,05E-15	6,88E-09	11,4	7,68E-08	11,7
10.07.03	GIBoMPBb01	Gleidingen	III	Boden zu Brombeeren	13.08.2002	79,1	0,6	4,22E-06	10,8	5,32E-14	3,48E-07	10,1	1,24E-08	14,8
09.09.03	GIObMPHb01	Gleidingen	III	Himbeeren	13.08.2002	68,6	0,6	1,21E-08	20,3	7,30E-16	4,77E-09	18,7	5,93E-08	27,6
21.07.03	GIBoMPHb01	Gleidingen	III	Boden zu Himbeeren	13.08.2002	89,5	0,7	1,04E-06	14,7	6,55E-14	4,28E-07	6,1	6,22E-08	15,9
28.08.03	GrGeEPBk01	Gründeich	I	Blumenkohl	02.10.2002	66,8	0,5	< 6,6E-09	-	< 3,91E-16	< 2,55E-09	-	-	-
08.09.03	GrBoEPBk01	Gründeich	I	Boden zu Blumenkohl	02.10.2002	95,6	0,6	n.a.						
10.02.03	GrGeEPKa01	Gründeich	I	Kartoffeln	02.10.2002	63,1	1,0	1,29E-08	4,1	4,22E-16	2,75E-09	39,5	3,23E-08	39,8
20.02.03	GrGeEPKr01	Gründeich	I	Kohlrabi	03.09.2002	95,5	0,9	5,92E-09	5,4	1,73E-16	1,13E-09	41,8	2,87E-08	42,2
13.02.03	GrBoEPKr01	Gründeich	I	Boden zu Kohlrabi	03.09.2002	89,3	0,9	1,54E-06	4,6	1,44E-13	9,40E-07	2,2	9,21E-08	5,1
10.03.03	GrGeEPKs01	Gründeich	I	Kopfsalat	03.09.2002	74,3	0,5	2,41E-08	4,9	9,44E-15	6,17E-08	5,5	3,85E-07	7,4
28.01.03	GrBoEPKs01	Gründeich	I	Boden zu Kopfsalat	03.09.2002	96,1	1,1	6,37E-06	2,2	1,20E-13	7,81E-07	2,1	1,85E-08	3,1
29.08.03	GrGeEPLa01	Gründeich	I	Lauch	02.10.2002	80,7	0,5	4,88E-08	6,6	8,36E-15	5,46E-08	4,8	1,69E-07	8,1
02.09.03	GrBoEPLa01	Gründeich	I	Boden zu Lauch	02.10.2002	94,7	0,5	6,42E-06	1,7	9,88E-14	6,45E-07	3,2	1,51E-08	3,6
26.08.03	GrGeEPRd01	Gründeich	I	Radieschen	03.09.2002	69,8	0,5	1,82E-08	11,2	1,60E-15	1,04E-08	9,4	8,62E-08	14,6

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$u_{rel}$ in %	$C(^{127}I)$ in g/g	$u_{rel}$ in %	$C(^{129}I)$ in g/g	$A_m(^{127}I)$ in Bq/g	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$	$u_{rel}$ in %
05.09.03	GrBoEPRd01	Gründeich	I	Boden zu Radieschen	03.09.2002	91,2	0,6	6,59E-06	3,2	1,43E-13	9,37E-07	2,2	2,14E-08	3,9
27.08.03	GrGeEPWeK01	Gründeich	I	Weißkohl	03.09.2002	72,7	0,5	< 5,1E-09	-	< 2,95E-16	< 1,93E-09	-	-	-
25.08.03	GrBoEPWek01	Gründeich	I	Boden zu Weißkohl	03.09.2002	89,9	0,5	6,62E-06	1,3	1,24E-13	8,11E-07	7,1	1,85E-08	7,2
18.02.03	GrGeEPWk01	Gründeich	I	Wirsingkohl	02.10.2002	82,1	0,9	1,16E-08	7,0	< 4,76E-16	< 3,11E-09	-	< 4,04E-08	-
09.04.03	GrBoEPWk01	Gründeich	I	Boden zu Wirsingkohl	02.10.2002	98,8	0,6	4,66E-06	3,3	8,49E-14	5,54E-07	3,2	1,79E-08	4,5
29.10.02	GES080402	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	08.04.2002	51,2	2,1	4,85E-07	8,6	< 5,58E-15	< 3,64E-08	-	< 1,13E-08	-
14.11.02	GES090402	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	09.04.2002	83,6	0,8	1,92E-07	5,5	< 7,80E-16	< 5,09E-09	-	< 4,00E-09	-
21.11.02	GES100402	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	10.04.2002	69,7	0,9	1,17E-07	5,4	< 5,47E-16	< 3,57E-09	-	< 4,62E-09	-
25.11.02	GES110402	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	11.04.2002	76,3	0,9	1,96E-07	5,3	< 8,17E-16	< 5,34E-09	-	< 4,10E-09	-
27.11.02	GES120402	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	12.04.2002	71,2	0,9	1,21E-07	5,3	< 7,16E-16	< 4,68E-09	-	< 5,80E-09	-
11.11.02	GES120802	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	12.08.2002	106,1	0,7	9,15E-08	5,2	< 7,72E-16	< 5,04E-09	-	< 8,30E-09	-
03.12.02	GES130802	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	13.08.2002	85,9	0,9	1,57E-07	5,1	< 6,92E-16	< 4,52E-09	-	< 4,35E-09	-
17.12.02	GES140802	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	14.08.2002	89,8	0,9	1,11E-07	5,6	< 6,60E-16	< 4,31E-09	-	< 5,83E-09	-
07.01.03	GES150802	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	15.08.2002	55,3	1,2	1,19E-07	5,3	< 1,43E-15	< 9,34E-09	-	< 1,19E-08	-
09.01.03	GES160802	Hannover	III	Gesamtnahrung Mensa	16.08.2002	66,9	1,1	8,97E-08	5,2	9,58E-15	6,26E-08	6,7	1,05E-07	8,5
14.05.03	HLWSaeF01	HLW	III	Schafffleisch	09.09.2002	81,8	1,0	2,68E-08	21,1	1,19E-15	7,80E-09	24,3	4,39E-08	32,2
22.05.03	HLWSaSd01	HLW	III	Schaf-Schilddrüse	09.09.2002	20,9	1,1	2,21E-05	11,7	9,00E-12	5,88E-05	1,4	4,01E-07	11,8
19.05.03	HLWSweF01	HLW	III	Schweinefleisch	09.09.2002	28,4	1,0	< 3,7E-08	-	< 2,16E-15	< 1,41E-08	-	-	-
23.06.03	HLWSwSd01	HLW	III	Schweine-Schilddrüse	09.09.2002	63,7	0,6	6,50E-05	7,1	9,69E-13	6,33E-06	3,2	1,47E-08	7,8
19.11.03	HLWRiEPSd01	HLW	III	Rinder-Schilddrüse	04.09.2001	26,2	0,7	3,10E-04	4,9	5,56E-11	3,63E-04	5,9	1,79E-07	7,7
15.09.03	HLWMPGr01	HLW	III	Gras	24.05.2002	88,0	0,6	1,14E-06	1,6	3,40E-14	2,22E-07	4,9	2,94E-08	5,1
05.08.03	HLWBoMPGr01	HLW	III	Boden zu Gras	24.05.2002	96,2	0,8	1,35E-05	10,3	8,17E-14	5,33E-07	5,2	5,95E-09	11,5
19.08.03	HLWBoMPGr02	HLW	III	Boden zu Gras	01.11.2002	98,8	0,4	6,17E-06	8,6	4,78E-14	3,12E-07	5,1	7,62E-09	10,0
17.09.03	HLWMPHe01	HLW	III	Heu	03.09.2001	55,4	0,7	9,21E-07	3,8	1,69E-13	1,10E-06	4,3	1,80E-07	5,7
10.09.03	HLWBoEPHe01	HLW	III	Boden zu Heu	03.09.2001	98,6	0,6	6,31E-06	2,2	7,14E-14	4,67E-07	2,2	1,11E-08	3,1
06.02.03	HLWMPMi01	HLW	III	Milch	03.09.2001	68,2	0,3	7,79E-09	1,5	2,35E-15	1,53E-08	2,1	2,97E-07	2,6
06.02.03	HLWMPMI06	HLW	III	Milch	12.03.2002	71,4	0,3	1,58E-08	3,5	5,14E-15	3,36E-08	1,8	3,21E-07	3,9

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	u <sub>rel</sub> in %	C( <sup>127</sup> I) in g/g	u <sub>rel</sub> in %	C( <sup>129</sup> I) in g/g	A <sub>m</sub> ( <sup>127</sup> I) in Bq/g	u <sub>rel</sub> in %	Isotopenverhältnis <sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I	u <sub>rel</sub> in %
05.11.03	HLWMPMi11	HLW	III	Milch	25.04.2003	73,1	0,50	6,59E-09	2,2	1,07E-15	6,99E-09	5,0	1,59E-07	5,5
31.07.03	JeGeEPKr01	Jeinsen	III	Kohlrabi	14.08.2001	68,1	0,8	4,89E-08	5,4	7,98E-16	5,21E-09	20,2	1,61E-08	20,9
30.01.03	JeBoEPKr01	Jeinsen	III	Boden zu Kohlrabi	14.08.2001	86,1	1,1	3,11E-06	9,5	5,33E-14	3,48E-07	2,4	1,69E-08	9,8
04.11.02	JeBoEPKs01	Jeinsen	III	Boden zu Kopfsalat	14.08.2001	92,6	1,3	3,27E-06	19,5	3,90E-14	2,55E-07	2,3	1,17E-08	19,7
19.01.04	JeGeEPWk01	Jeinsen	III	Wirsingkohl	13.09.2001	65,2	1,0	1,95E-08	64,8	2,77E-14	1,81E-07	3,1	1,40E-06	64,9
23.01.03	JeBoEPWk01	Jeinsen	III	Boden zu Wirsingkohl	13.09.2001	68,7	1,0	2,29E-06	6,8	5,31E-14	3,47E-07	4,5	2,28E-08	8,1
26.09.03	JeGeEPLa01	Jeinsen	III	Lauch	13.09.2001	45,3	0,7	1,59E-08	23,8	1,31E-15	8,57E-09	17,0	8,14E-08	29,3
04.02.04	JeBoEPLa01	Jeinsen	III	Boden zu Lauch	13.09.2001	96,9	0,8	3,54E-06	5,0	4,96E-14	3,24E-07	3,2	1,38E-08	5,9
03.02.03	PoKoMPGe01	Neßmerpolder	I	Gerste	27.08.2001	84,0	1,2	9,61E-08	6,3	4,93E-14	3,22E-07	4,5	5,05E-07	7,8
25.02.03	PoBoMPGe01	Neßmerpolder	I	Boden zu Gerste	05.12.2001	101,2	0,9	1,55E-05	11,4	9,57E-14	6,25E-07	4,5	6,09E-09	12,3
25.07.03	PoKoMPHa01	Neßmerpolder	I	Hafer	27.08.2001	74,3	0,8	1,38E-07	8,0	3,29E-14	2,15E-07	7,5	2,35E-07	10,9
09.07.03	PoBoMPHa01	Neßmerpolder	I	Boden zu Hafer	27.08.2001	100,3	0,6	9,40E-06	10,7	8,33E-14	5,44E-07	10,1	8,72E-09	14,7
15.07.03	PoBoMPHa03	Neßmerpolder	I	Boden zu Hafer 0-30cm	01.10.2002	96,2	0,6	1,51E-05	8,5	8,79E-14	5,74E-07	6,2	5,73E-09	10,5
14.07.03	PoBoMPHa04	Neßmerpolder	I	Boden zu Hafer 30-60cm	01.10.2002	76,8	0,6	1,95E-05	7,5	3,33E-14	2,17E-07	6,2	1,68E-09	9,8
17.09.03	PoMPHe01	Neßmerpolder	I	Heu Wiese 17-19	25.05.2001	64,5	0,7	9,21E-07	3,8	1,69E-13	1,10E-06	4,3	1,80E-07	5,7
30.07.03	PoBoMPHe01	Neßmerpolder	I	Boden zu Heu Wiese 17-19	25.05.2001	97,0	0,8	9,07E-06	13,9	1,16E-13	7,57E-07	6,2	1,26E-08	15,2
21.08.03	PoMPHe02	Neßmerpolder	I	Heu Wiese 17-19	15.08.2001	91,8	0,5	2,26E-06	1,3	2,26E-13	1,48E-06	2,4	9,85E-08	2,7
01.08.03	PoBoMPHe02	Neßmerpolder	I	Boden zu Heu Wiese 17-19	27.08.2001	92,9	0,8	7,51E-06	1,4	1,18E-13	7,68E-07	3,2	1,54E-08	3,5
11.09.03	PoMPHe03	Neßmerpolder	I	Heu Wiese 17-19	01.10.2002	79,5	0,6	1,21E-06	2,9	3,51E-13	2,30E-06	2,3	2,86E-07	3,7
24.07.03	PoBoMPHe03	Neßmerpolder	I	Boden zu Heu Wiese 17-19	17.07.2002	76,8	0,8	9,98E-06	11,2	1,12E-13	7,33E-07	3,2	1,11E-08	11,6
03.09.03	PoBoMPHe04	Neßmerpolder	I	Boden zu Heu Wiese 17-19	01.10.2002	94,9	0,6	1,06E-05	1,4	1,44E-13	9,38E-07	4,1	1,33E-08	4,3
07.05.02	PoKoMPWe01	Neßmerpolder	I	Weizen	27.08.2001	58,5	1,1	1,23E-07	9,5	8,45E-15	5,52E-08	13,8	6,75E-08	16,7
14.03.02	PoBoMPWe01	Neßmerpolder	I	Boden zu Weizen	27.08.2001	84,7	0,5	1,47E-05	37,0	1,16E-13	7,59E-07	4,0	7,79E-09	37,2
25.03.02	PoStMPWe01	Neßmerpolder	I	Weizenstroh	27.08.2001	35,6	0,6	3,96E-07	13,1	n.a.	-	-	-	-
02.04.02	PoStMPWe01	Neßmerpolder	I	Weizenstroh	27.08.2001	Probleme bei der Verbrennung der Probe – Auswertung nicht möglich								
14.04.03	PoRiEPHF01	Neßmerpolder	I	Rinderfleisch	19.09.2001	84,9	0,7	1,47E-07	3,4	4,60E-15	3,01E-08	8,9	3,07E-08	9,5
27.02.03	PoMPMi02	Neßmerpolder	I	Milch	27.08.2001	78,1	0,4	2,07E-08	2,6	4,28E-15	2,80E-08	1,2	2,04E-07	2,9

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	u <sub>rel</sub> in %	C( <sup>127</sup> I) in g/g	u <sub>rel</sub> in %	C( <sup>129</sup> I) in g/g	A <sub>m</sub> ( <sup>127</sup> I) in Bq/g	u <sub>rel</sub> in %	Isotopenverhältnis <sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I	u <sub>rel</sub> in %
27.02.03	PoMPMi09	Neßmerpolder	I	Milch	30.03.2002	66,8	0,4	4,00E-08	2,1	8,83E-15	5,77E-08	0,9	2,17E-07	2,3
04.11.03	PoMPMi12	Neßmerpolder	I	Milch	15.07.2002	62,8	0,5	1,23E-08	1,8	3,68E-15	2,40E-08	4,0	2,94E-07	4,4
04.11.03	PoMPMi14	Neßmerpolder	I	Milch	15.11.2002	56,7	0,5	1,73E-08	1,1	4,20E-15	2,74E-08	4,0	2,38E-07	4,1
11.03.03	RhPiMPSc02	Rheinhausen	III	Pilze/Schirmlinge	04.10.2002	69,7	0,6	1,22E-07	21,7	2,99E-14	1,95E-07	6,2	2,41E-07	22,6
22.04.03	RhPiMPSp01	Rheinhausen	III	Pilze/Steinpilze	04.10.2002	80,8	0,7	2,43E-07	5,2	8,59E-15	5,61E-08	18,3	3,48E-08	19,0
08.05.03	RhPiMPMr02	Rheinhausen	III	Pilze/Maronen-Röhl.	04.10.2002	59,9	1,0	1,86E-06	2,1	2,80E-14	1,83E-07	6,9	1,49E-08	7,2
22.07.03	RhBoEPAu01	Rheinhausen	III	Bodenaufgabe zu Pilzen	04.10.2002	98,2	0,7	1,25E-06	35,4	2,54E-13	1,66E-06	5,1	2,01E-07	35,8
23.07.03	RhBoEPWa01	Rheinhausen	III	Boden zu Pilzen	01.10.2001	97,6	0,8	6,70E-07	24,3	3,24E-13	2,12E-06	6,1	4,77E-07	25,1
29.07.03	RhBoEPPi01	Rheinhausen	III	Boden zu Pilzen	04.10.2002	90,0	0,8	1,03E-06	1,0	5,75E-14	3,75E-07	7,1	5,49E-08	7,2
01.09.03	RhBoEPSp01	Rheinhausen	III	Spreu zu Pilzen	04.10.2002	99,6	0,5	2,09E-06	1,5	6,39E-13	4,17E-06	4,1	3,01E-07	4,4
13.05.03	RhRe4awBl	Rheinhausen	III	Rehfleisch	13.08.2002	72,1	1,0	< 1,4E-08	-	1,33E-15	8,66E-09	26,4	> 9,35E-08	-
15.01.04	RhRe8mmSd	Rheinhausen	III	Rehschilddrüse	13.08.2002	99,0	0,9	1,82E-03	10,9	8,43E-10	5,51E-03	10,1%	4,57E-07	14,8
16.01.04	RhRe4awSd	Rheinhausen	III	Rehschilddrüse	13.08.2002	93,0	0,9	1,49E-03	8,2	3,85E-10	2,51E-03	10,1%	2,54E-07	13,0
07.08.02	ScKoMPWe01	Schessingshausen	III	Weizen	11.09.2001	31,2	2,0	Probleme wegen zu geringer Ausbeute, daher wiederholt.						
20.01.03	ScKoMPWe01	Schessingshausen	III	Weizen	11.09.2001	76,2	0,8	8,83E-08	5,7	< 1,39E-15	< 9,08E-09	-	< 1,55E-08	-
22.04.02	ScBoMPWe01	Schessingshausen	III	Boden zu Weizen	11.09.2001	97,0	0,6	2,10E-06	10,0	5,76E-14	3,76E-07	2,8	2,70E-08	10,4
19.08.02	ScKoMPWe02	Schessingshausen	III	Weizen	11.09.2001	56,7	1,8	1,98E-07	4,4	< 2,06E-15	< 1,35E-08	-	< 1,02E-08	-
24.04.02	ScBoMPWe02	Schessingshausen	III	Boden zu Weizen	27.09.2001	92,6	0,9	1,46E-06	44,6	5,70E-14	3,72E-07	2,9	3,85E-08	44,7
30.10.02	ScBoEPKa01	Schessingshausen	III	Boden zu Kartoffeln	11.09.2001	79,7	1,0	2,27E-06	12,8	5,59E-14	3,65E-07	2,6	2,43E-08	13,1
16.07.03	ScBoMPBi01	Schessingshausen	III	Boden zur Birke	05.08.2002	79,8	0,7	1,11E-06	16,5	1,09E-13	7,10E-07	7,1	9,62E-08	17,9
10.02.04	ScBaEPBi01-R	Schessingshausen	III	Birke Rinde	05.08.2002	41,6	1,1	2,18E-07	56,3	9,85E-14	6,43E-07	7,4	4,45E-07	56,8
17.02.04	ScBaEPBi01-H	Schessingshausen	III	Birke Holz	05.08.2002	37,7	1,2	< 9,20E-9	-	< 6,05E-15	< 3,95E-08	-	-	-
10.04.02	SIKoMPWe01	Schleweke	III	Weizen	06.08.2001	43,4	1,0	1,82E-07	7,7	6,67E-15	4,35E-08	14,4	3,61E-08	16,3
21.01.03	SIKoMPWe01	Schleweke	III	Weizen	06.08.2001	86,2	0,8	2,34E-09	20,8	< 1,23E-15	< 8,03E-09	-	< 5,15E-07	-
13.03.02	SIBoMPWe01	Schleweke	III	Boden zu Weizen	06.08.2001	67,3	0,5	Probleme						
12.09.02	SIBoMPWe01	Schleweke	III	Boden zu Weizen	06.08.2001	88,0	1,3	6,94E-07	12,6	4,29E-14	2,80E-07	1,9	6,09E-08	12,7

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$u_{rel}$ in %	$C(^{127}I)$ in g/g	$u_{rel}$ in %	$C(^{129}I)$ in g/g	$A_m(^{127}I)$ in Bq/g	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$	$u_{rel}$ in %
19.03.02	SIStMPWe01	Schleweke	III	Weizenstroh	06.08.2001	32,3	1,0	Probleme wegen zu geringer Ausbeute, daher wiederholt.						
21.03.02	SIStMPWe01	Schleweke	III	Weizenstroh	06.08.2001	88,8	0,7	2,07E-07	3,9	4,68E-14	3,06E-07	4,3	2,23E-07	5,8
27.08.02	SIKoMPWe02	Schleweke	III	Weizen	20.08.2001	64,6	1,8	1,13E-07	9,4	< 1,71E-15	< 1,12E-08	-	< 1,49E-08	-
11.07.03	SIBoMPWe02	Schleweke	III	Boden zu Weizen	20.08.2001	91,2	0,6	3,14E-06	1,3	4,02E-14	2,62E-07	6,1	1,26E-08	6,3
04.02.03	SIKoMPGe01	Schleweke	III	Gerste	21.07.2001	81,7	1,3	2,03E-08	9,2	4,59E-15	3,00E-08	14,3	2,23E-07	17,0
11.02.03	SIBoMPGe01	Schleweke	III	Boden zu Gerste	21.07.2001	96,5	0,9	2,87E-06	11,0	4,24E-14	2,77E-07	1,9	1,45E-08	11,2
05.02.03	SIKoMPGe02	Schleweke	III	Gerste	21.07.2001	68,1	1,4	1,95E-07	5,4	6,66E-15	4,35E-08	10,7	3,36E-08	12,0
17.03.03	SIBoMPGe02	Schleweke	III	Boden zu Gerste	21.07.2001	97,3	0,5	2,58E-06	4,3	2,99E-14	1,95E-07	3,2	1,14E-08	5,4

Tabelle III.25: Ergebnisse der RNAA von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Schilddrüsen Verstorbener aus Niedersachsen und Hamburg.  
Gehalte und spezifische Aktivitäten sind auf Frischgewicht gezogen.

Bez.(Nr.)	m/w	Todesdatum	Alter	Wohnort	FG in g	TG in g	FG/TG	$C_{I-127}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$u_{\text{rel}}$ in %	$C_{I-129}$ in $\text{pg g}^{-1}$	$A_{s,I-129}$ in $\mu\text{Bq g}^{-1}$	$u_{\text{rel}}$ in %	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-9}$	$u_{\text{rel}}$ in %
ZSR 1130		1998		Hannover				100		0,721	4,71		7,12	
ZSR 1131		1998		Hannover				168		2,36	15,43		14,0	
ZSR 1132		1998		Hannover				706		9,38	61,31		13,3	
ZSR 1133		1998		Hannover				183		2,61	17,06		14,3	
ZSR 1134		1999		Hannover				369		2,67	17,45		7,25	
ZSR 1135		1999		Hannover				573		6,66	43,53		11,6	
ZSR 1138		1999		Hannover				571		1,39	9,09		24,4	
ZSR 1139		1999		Hannover	23,3	7,5	3,1	495	2,8	6,77	44,3	4,5	13,7	5,3
ZSR 1140		2000	35	Hannover	34,8	10,6	3,3	218	3,1	2,35	15,3	7,4	10,8	8,0
ZSR 1141		2000	32	Hannover	40,4	16,7	2,4	52,7	3,1	0,811	5,30	14	15,4	14,5
ZSR 1142		2000	25	Hannover	13,1	3,4	3,9	895	3,1	4,48	29,2	6,0	4,99	6,8
ZSR 1143	m	1987	26	Hannover	46,0	11,4	4,0	288	3,4	5,95	38,9	7,1	20,6	7,9
ZSR 1144	m	1987	53	Hannover	59,5	15,4	3,9	556	2,9	10,7	70,0	3,7	19,3	4,7
ZSR 1145		2001	59	Hannover	15,4	4,1	3,8	294	3,2	4,39	28,7	5,6	14,9	6,4
ZSR 1146		2001	51	Hannover	45,0	10,8	4,2	176	3,0	0,854	5,58	22	4,86	22
ZSR 1147		2001	82	Hannover	8,3	1,8	4,6	248	4,5	1,65	10,8	13	6,65	14,5
ZSR 1148		2001	70	Hannover	45,1	11,7	3,9	330	2,7	3,83	25,0	4,5	11,6	5,2
ZSR 1149		2001	32	Hannover	18,2	4,7	3,9	437	3,2	5,11	33,4	9,3	11,7	9,8
ZSR 1150		2001	92	Hannover	14,5	2,8	5,2	202	3,0	6,04	39,5	5,7	29,9	6,4
ZSR 1151		2001	59	Hannover	23,0	6,1	3,8	448	3,2	5,17	33,8	5,8	11,6	6,7
ZSR 1152	w	2001	72	Hannover	134,6	29,3	4,6	149	2,7	0,77	5,04	12,8	5,17	13,1
ZSR 1153	w	2001	74	Hannover	21,1	5,5	3,8	350	3,2	2,89	18,89	6,5	8,27	7,2
ZSR 1154		2001	74	Hannover	57,1	13,1	4,4	403	3,5	3,31	21,61	8,5	8,20	9,2
ZSR 1155	m	2001	64	Hannover	24,1	5,7	4,2	207	3,6	2,27	14,83	15,4	11,0	15,8
ZSR 1158	w	Juni 01	72	Hannover	134,6	29,3	4,6	131	3,0	0,83	5,42	13,0	6,31	13,4
ZSR 1159	w	Juni 01	72	Hannover	134,6	29,3	4,6	143	2,8	0,446	2,91	71,7	3,13	71,7
ZSR 1160	m	Juli 01	35	Hannover	18,7	4,2	4,5	317	3,1	1,74	14,77	16,3	5,49	16,6
ZSR 1161		Juli 01	36	Hannover	31,8	7,8	4,1	626	2,7	6,29	50,47	6,8	10,0	7,3

Bez.(Nr.)	m/w	Todesdatum	Alter	Wohnort	FG in g	TG in g	FG/TG	C <sub>I-127</sub> in µg g <sup>-1</sup>	u <sub>rel</sub> in %	C <sub>I-129</sub> in pg g <sup>-1</sup>	A <sub>s,I-129</sub> in µBq g <sup>-1</sup>	u <sub>rel</sub> in %	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-9</sup>	u <sub>rel</sub> in %
ZSR 1162		Juli 01		Hannover	7,7	3,0	2,6	1260	3,5	18,0	140,34	5,0	14,3	6,1
ZSR 1163	m	Oktober 01	81	Hannover	26,1	8,1	3,2	694	3,1	1,60	12,43	6,3	2,31	7,1
ZSR 1164	m	Oktober 01	54	Hannover	16,5	3,9	4,2	440	3,0	10,6	89,88	5,0	24,2	5,8
ZSR 1165	w	Oktober 01	59	Hannover	22,4	5,6	4,0	496	6,2	3,72	31,70	54,3	7,50	54,7
ZSR 1166	m	Februar 02	64	Hannover	19,8	6,3	3,1	336	4,0	2,85	24,11	8,7	8,46	9,6
ZSR 1167	w	März 02	86	Hannover	25,3	5,0	5,1	502	3,5	6,46	54,74	5,0	12,9	6,1
ZSR 1168	w	Februar 02	78	Hannover	16,0	4,7	3,4	500	4,2	4,18	35,92	7,3	8,36	8,4
ZSR 1169	w	März 02	81	Hannover	40,5	8,2	4,94	261	5,7	3,19	27,39	10,0	12,2	11,5
ZSR 1170	m	Februar 02	36	Hannover	36,5	9,9	3,7	480	2,3	1,83	11,94	4,7	3,81	5,2
ZSR 1171	m	Februar 02	68	Hannover	23,6	4,1	5,8	170	3,5	0,96	6,28	41,1	5,67	41,2
ZSR 1176	m	März 02	40	Hannover	10,6	3,4	3,1	1023	3,0	10,37	67,78	5,2	10,1	6,0
ZSR 1177		März 02		Hannover	14,5	4,3	3,4	297	4,6	3,00	19,64	10,6	10,1	11,6
ZSR 1178	m	März 02	29	Hannover	27,7	8,6	3,2	641	7,3	6,11	39,96	14,3	9,54	16,1
SD HH 436	m	24.04.2003	35	Bremen	31,3	8,1	3,86	474	2,9	4,63	30,24	5,0	9,75	5,8
SD HH 443	w	27.04.2003	35	Hamburg	24,9	5,8	4,29	327	3,5	8,00	52,29	5,3	24,5	6,4
SD HH 446	m	29.04.2003	77	Wedel b.HH	48,3	11,5	4,20	262	2,9	6,46	42,23	5,0	24,7	5,8
SD HH 448	m	29.04.2003	72	Hamburg	36,0	10,0	3,60	495	3,4	6,33	41,35	5,7	12,8	6,6
SD HH 455	w	05.05.2003	75	Hamburg	18,2	4,7	3,87	546	4,0	2,93	19,17	6,5	5,37	7,6
SD HH 458	m	30.04.2003	61	Hamburg	27,3	6,5	4,20	215	2,7	2,48	16,18	6,6	11,5	7,1
SD HH 474	w	05.05.2003	30	Hamburg	21,8	5,8	3,76	287	2,8	2,10	13,75	8,9	7,32	9,3
SD HH 487	w	07.05.2003	82	Hamburg	41,3	10,1	4,09	178	3,4	2,92	19,09	7,3	16,4	8,1
SD HH 494	m	09.05.2003	52	Hamburg	32,4	7,6	4,26	344	2,7	4,27	27,91	6,7	12,4	7,2
SD HH 527	m	16.05.2003	40	Hamburg	36,0	9,1	3,96	428	3,4	5,40	35,29	6,1	12,6	7,0
Von einer Schilddrüse konnten drei Aliquots separat als die Proben 1152, 1158 und 1159 bestimmt werden. In der folgenden Zeile sind die arithmetischen Mittelwerte angegeben. Als relative Unsicherheit ist hier die Standardabweichung der Mittelwertbildung angegeben.														
Mittelwerte aus ZSR 1152, 1158, 1159	w	Juni 2001	72	Hannover	134,6	29,3	4,6	141	6,4	0,68	4,46	30,3	4,87	33,1

Tabelle III.26: Transferfaktoren für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Pflanzen für die Regionen I, III und IV.

Probenkürzel (Datenbank)	Region	Probenart	$^{127}\text{I}$	$u_{\text{rel}}$	$^{129}\text{I}$	$u_{\text{rel}}$	Einheit
HLWMPGr01	III	Gras	0,084	10	0,42	7,1	kg (TM) Gras / kg (TM) Boden
	III	Gras	0,017	17	0,082	15,4	kg (FM) Gras / kg (TM) Boden
4 Jahre; gemittelt <sup>a</sup>	IV	Bewuchs	1,9	-	1,3	-	kg (TM) Bewuchs / kg (TM) Boden
PoMPHe01	I	Heu Wiese 17-19	0,10	14	1,5	7,5	kg (TM) Heu / kg (TM) Boden
	I	Heu Wiese 17-19	0,087	14	1,3	7,5	kg (FM) Heu / kg (TM) Boden
PoMPHe02	I	Heu Wiese 17-19	0,30	2,0	1,9	3,9	kg (TM) Heu / kg (TM) Boden
	I	Heu Wiese 17-19	0,26	2,0	1,7	3,9	kg (FM) Heu / kg (TM) Boden
PoMPHe03	I	Heu Wiese 17-19	0,11	3,2	2,5	4,7	kg (TM) Heu / kg (TM) Boden
	I	Heu Wiese 17-19	0,098	3,2	2,1	4,7	kg (FM) Heu / kg (TM) Boden
HLWMPHe01	III	Heu	0,15	4,4	2,4	4,9	kg (TM) Heu / kg (TM) Boden
	III	Heu	0,13	4,4	2,0	4,9	kg (FM) Heu / kg (TM) Boden
PoKoMPGe01	I	Gerste	0,0062	13	0,52	6,4	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
SIKoMPGe01	III	Gerste	0,0071	14	0,11	14	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
SIKoMPGe02	III	Gerste	0,076	6,9	0,22	11	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
PoKoMPHa01	I	Hafer	0,015	13	0,40	13	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
PoKoMPWe01	I	Weizen	0,0084	38	0,073	14	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
GeKoMPWe01	III	Weizen	0,0026	13	-	-	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
ScKoMPWe01	III	Weizen	0,042	12	-	-	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
ScKoMPWe02	III	Weizen	0,136	45	-	-	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
SIKoMPWe01	III	Weizen	0,26	15	0,16	15	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
SIKoMPWe02	III	Weizen	0,036	9,5	-	-	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden

Probenkürzel (Datenbank)	Region	Probenart	<sup>127</sup> I	u <sub>rel</sub>	<sup>129</sup> I	u <sub>rel</sub>	Einheit
GeStMPWe01	III	Weizenstroh	0,343	10	-	-	kg (TM) Korn / kg (TM) Boden
SIStMPWe01	III	Weizenstroh	0,30	13	1,1	4,7	kg (TM) Stroh / kg (TM) Boden
GrGeEPKs01	I	Kopfsalat	0,0038	5,4	0,079	5,9	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
GrGeEPLa01	I	Lauch	0,0076	6,8	0,085	5,7	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
GrGeEPRd01	I	Radieschen	0,0028	12	0,011	9,6	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
GrGeEPWk01	I	Wirsingkohl	0,0025	7,7	-	-	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
GrGeEPKr01	I	Kohlrabi	0,0039	7,1	0,0012	42	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
JeGeEPKr01	III	Kohlrabi	0,016	11	0,015	20	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
GeGeEPKa01	III	Kartoffeln	0,0060	14	-	-	kg (FM) Kartoffeln / kg (TM) Boden
JeGeEPWk01	III	Wirsingkohl	0,0085	65	0,52	5,4	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
JeBoEPLa01	III	Lauch	0,0045	24	0,026	17	kg (FM) Gemüse / kg (TM) Boden
RhPiMPMr02	III	Pilze/Maronen-Röhrlinge	1,8	2,3	0,487	9,9	kg (TM) Pilze / kg (TM) Boden
RhPiMPMr02	III	Pilze/Maronen-Röhrlinge	1,5	36	0,11	8,6	kg (TM) Pilze / kg (TM) Bodenauflage
RhPiMPMr02	III	Pilze/Maronen-Röhrlinge	0,89	2,5	0,044	8,0	kg (TM) Pilz / kg (TM) Spreu
RhPiMPSc02	III	Pilze/Schirmlinge	0,12	22	0,52	9,4	kg (TM) Pilze / kg (TM) Boden
RhPiMPSc02	III	Pilze/Schirmlinge	0,098	42	0,12	8,0	kg (TM) Pilze / kg (TM) Bodenauflage
RhPiMPSc02	III	Pilze/Schirmlinge	0,058	22	0,047	7,4	kg (TM) Pilz / kg (TM) Spreu
RhPiMPSp01	III	Pilze/Steinpilze	0,24	5,2	0,15	20	kg (TM) Pilze / kg (TM) Boden
RhPiMPSp01	III	Pilze/Steinpilze	0,19	36	0,034	19	kg (TM) Pilze / kg (TM) Bodenauflage
RhPiMPSp01	III	Pilze/Steinpilze	0,12	5,4	0,014	19	kg (TM) Pilz / kg (TM) Spreu
GIObMPBb01	III	Brombeeren	0,0032	11	0,020	15	kg (FM) Beeren / kg (TM) Boden
GIObMPHb01	III	Himbeeren	0,012	25	0,011	20	kg (FM) Beeren / kg (TM) Boden

<sup>a</sup> geometrische Mittelung; vgl. Tab. III.27 und III.28.

Tabelle III.27: Transferfaktoren für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Bewuchs und in Milch in Regionen IV.

Probe	Datum	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$
		in $\text{g g}^{-1}$	in $\text{g g}^{-1}$		Boden/Bewuchs in kg (FM) pro kg (TM)	Boden/Bewuchs in kg (FM) pro kg (TM)	Boden/Milch in kg (FM) pro kg (TM)	Boden/Milch in kg (FM) pro kg (TM)
Milch, ZSR1, Region IV	1998	$1,10 \cdot 10^{-7}$	$2,23 \cdot 10^{-15}$	$2,00 \cdot 10^{-8}$			0,15	0,015
Bewuchs, ZSR1	1998	$2,00 \cdot 10^{-6}$	$1,85 \cdot 10^{-13}$	$9,10 \cdot 10^{-8}$	2,8	1,2		
Boden, ZSR1	1998	$7,10 \cdot 10^{-7}$	$1,54 \cdot 10^{-13}$	$2,13 \cdot 10^{-7}$				
Milch, ZSR1	1999	$4,00 \cdot 10^{-8}$	$4,47 \cdot 10^{-15}$	$1,10 \cdot 10^{-7}$			0,081	0,045
Bewuchs, ZSR1	1999	$2,00 \cdot 10^{-6}$	$1,07 \cdot 10^{-13}$	$5,25 \cdot 10^{-8}$	4,1	1,1		
Boden, ZSR1	1999	$4,90 \cdot 10^{-7}$	$1,00 \cdot 10^{-13}$	$2,02 \cdot 10^{-7}$				
Milch, ZSR1	2000	$5,30 \cdot 10^{-8}$	$1,89 \cdot 10^{-15}$	$3,52 \cdot 10^{-8}$			0,062	0,021
Bewuchs, ZSR1	2000	$1,40 \cdot 10^{-6}$	$1,03 \cdot 10^{-13}$	$7,23 \cdot 10^{-8}$	1,6	1,1		
Boden, ZSR1	2000	$8,50 \cdot 10^{-7}$	$8,96 \cdot 10^{-14}$	$1,04 \cdot 10^{-7}$				
Milch, ZSR1	2001	$4,44 \cdot 10^{-7}$	$3,47 \cdot 10^{-15}$	$7,70 \cdot 10^{-9}$			0,52	0,028
Bewuchs, ZSR1	2001	$4,00 \cdot 10^{-7}$	$1,09 \cdot 10^{-13}$	$2,69 \cdot 10^{-7}$	0,47	0,87		
Boden, ZSR1	2001	$8,50 \cdot 10^{-7}$	$1,25 \cdot 10^{-13}$	$1,45 \cdot 10^{-7}$				
Boden, ZSR1	2001	$1,18 \cdot 10^{-6}$	$1,34 \cdot 10^{-13}$	$1,12 \cdot 10^{-7}$				
Milch, ZSR2, Region IV	1998	$1,70 \cdot 10^{-8}$	$1,42 \cdot 10^{-15}$	$8,20 \cdot 10^{-8}$			0,025	0,020
Bewuchs, ZSR2	1998	$2,80 \cdot 10^{-6}$	$1,37 \cdot 10^{-13}$	$4,80 \cdot 10^{-8}$	4,1	1,9		
Boden, ZSR2	1998	$6,80 \cdot 10^{-7}$	$7,05 \cdot 10^{-14}$	$1,02 \cdot 10^{-7}$				
Milch, ZSR2	1999	$1,20 \cdot 10^{-8}$	$2,32 \cdot 10^{-15}$	$1,90 \cdot 10^{-7}$			0,020	0,044
Bewuchs, ZSR2	1999	$2,10 \cdot 10^{-6}$	$1,14 \cdot 10^{-13}$	$5,36 \cdot 10^{-8}$	3,5	2,2		
Boden, ZSR2	1999	$6,00 \cdot 10^{-7}$	$5,22 \cdot 10^{-14}$	$8,56 \cdot 10^{-8}$				
Milch, ZSR2	2000	$4,70 \cdot 10^{-8}$	$1,35 \cdot 10^{-15}$	$2,83 \cdot 10^{-8}$			0,024	0,029
Bewuchs, ZSR2	2000	$1,00 \cdot 10^{-6}$	$9,25 \cdot 10^{-14}$	$9,11 \cdot 10^{-8}$	0,51	2,0		
Bewuchs, ZSR2	2001	$1,40 \cdot 10^{-6}$	$7,58 \cdot 10^{-14}$	$5,33 \cdot 10^{-8}$	2,6	0,67		

Tabelle III.28: Geometrische Mittelwerte und geometrische Standardabweichungen von Transferfaktoren für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden und Bewuchs in Milch und Fleisch in den Regionen I, III und IV.

Region	Probenart	<i>n</i>	$^{127}\text{I}$ Bewuchs/Boden	Geometrische Standardabw.	$^{129}\text{I}$ Bewuchs/Boden	Geometrische Standardabw.	bezogen auf
I	Bewuchs	3	0,15	1,6	2,0	1,5	kg TM Bewuchs / kg TM Boden
IV	Bewuchs	8	1,90	2,1	1,9	1,6	kg TM Bewuchs / kg TM Boden
Region	Probenart	<i>n</i>	$^{127}\text{I}$ Milch/Futter	Geometrische Standardabw.	$^{129}\text{I}$ Milch/Futter	Geometrische Standardabw.	bezogen auf
I	Milch		0,00090	2,0	0,0012	1,8	d/kg FM
III	Milch		0,00054	1,7	0,0019	4,0	d/kg FM
IV	Milch	7	0,0021	3,9	0,0012	1,7	d/kg FM
Region	Probenart	<i>n</i>	$^{127}\text{I}$ Milch/Boden	Geometrische Standardabw.	$^{129}\text{I}$ Milch/Boden	Geometrische Standardabw.	bezogen auf
I	Milch		0,0022	1,7	0,040	1,5	kg FM Milch / kg TM Boden
III	Milch		0,0012	1,9	0,036	2,3	kg FM Milch / kg TM Boden
IV	Milch	7	0,068	3,6	0,026	1,8	kg FM Milch / kg TM Boden
Region	Probenart	<i>n</i>	$^{127}\text{I}$ Fleisch/Futter	Geometrische Standardabw.	$^{129}\text{I}$ Fleisch/Futter	Geometrische Standardabw.	bezogen auf
I	Rind		0,0065	2,3	0,0012	2,2	d/kg FM
III	Schaf		0,026	2,9	0,031	2,4	d/kg FM
IV	Ziege		0,19	2,8	0,12	2,8	d/kg FM
Region	Probenart	<i>n</i>	$^{127}\text{I}$ Fleisch/Boden	Geometrische Standardabw.	$^{129}\text{I}$ Fleisch/Boden	Geometrische Standardabw.	bezogen auf
I	Rind		0,017	2,0	0,036	2,0	kg FM Fleisch / kg TM Boden
III	Schaf		0,0033	2,3	0,018	2,1	kg FM Fleisch / kg TM Boden

## Literaturnachweis und Zusammenstellung unzitierter Literatur zum Thema „Radioökologie von Iod-Isotopen“

- Aarkrog, A.: Radioecology, development and trends. Proceedings of the 11<sup>th</sup> Ordinary Meeting of the 'Nordic Society for Radiation Protection', Reykjavik (1996).
- Alexakhin, R. M.: Agricultural Radioecology: Results, currently central tasks and prospects. *Radiation & Risk* 9 (1997) 7-9.
- Alexander, J.; Brooks, B.; Erwin, P.; Hamilton, J.; Holloway, J.; Lipford, P.; Morin, N.; Peelle, R.; Smith, J.; Voillequé, P.; Zawia, N.: Releases of Contaminants from Oak Ridge Facilities and Risk to Public Health. Final Report of the Oak Ridge Health Agreement Steering Panel (1999).
- Alfimov V.; Aldahan, A.; Possnert, G.; Meili, M.; Kekli, A.: Iodine-129 in seawater along a transect from the North Atlantic to the Baltic Sea, 9<sup>th</sup> Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Nagoya, Japan, September 9-13, 2002; Online im Internet: <http://www.teknik.uu.se/jonfysik/reprints.html> [Stand: 13.07.2004].
- Alvarado-Quiroz, N.; Kotzer, T.; Milton, G.; Clark, I.; Bottomley, D.: Partitioning of <sup>127</sup>I and <sup>129</sup>I in an unconfined glaciofluvial aquifer on the Canadian Shield. *Radiochimica Acta* 90 (2002) 469-478.
- Anderson, T.: Methodology for determination of environmental I-129 and Tc-99. Conf. of the Am. Soc. for Testing and Materials on Effluent Monitoring in Environm. Rad. Surveillance, Hrsg: Johnson, Vermont (1978).
- Apostoaie A. I.; Miller L. F.: Uncertainties in dose coefficients from ingestion of <sup>131</sup>I, <sup>137</sup>Cs, and <sup>90</sup>Sr. *Health Physics* 86(5) (2004) 460-482.
- Ashworth, D.; Shaw, G.; Butler, A.; Ciciani, L.: Soil transport and plant uptake of radio-iodine from near surface groundwater. *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003) 99-114.
- Atwood, C.; Titley, J.; Simmonds, J.; Rodinson, C.: Revised generalised derived limits for radioisotopes of strontium, iodine, caesium, plutonium, americium and curium. *Docs. of the Nuclear Radiological Protection Board* Vol. 9 (Nr. 1) (1998) HMSO, London.
- Aumann, D. C.: Radioökologie des Iods-129. *Schlußbericht Nr. BMFT FB TU München* (1983).
- Aumann, D. C.; Faleschini, H.; Friedmann, L.: Determination of <sup>129</sup>I and <sup>127</sup>I at natural levels by neutron activation analysis. *Radiochimica Acta* 29 (1981) 209 - 215.
- Aumann, D. C.; Buheitel, F.; Faleschini, H.; Friedmann, L.; Mullan, G.: Iodine-<sup>129</sup>I in mammalian thyroids in the Federal Republic of Germany. *Health Physics* 49 (3) (1985) 495-498.
- Aumann, D. C.; Buheitel, F.; Hauschild, J.; Robens, E.; Wershofen, H.: Chemical and nuclear interferences in neutron activation of <sup>129</sup>I and <sup>127</sup>I in environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 109 (2) (1987) 261.
- Aurand, K.; Gans, I.; Rühle, H.: Modellstudie Radioökologie Biblis. Erich Schmidt Verlag, (1981).
- Bachhuber, H.; Bunzel, K.: Background levels of atmospheric deposition to ground and temporal variation of <sup>129</sup>I, <sup>127</sup>I, <sup>137</sup>Cs and <sup>7</sup>Be in a rural area of Germany. *Journal of Environmental Radioactivity* 16 (1992) 77-89.

- Baldwin, R. M.: Chemistry of radioiodine. *Applied Radiation and Isotopes* 37 (8) (1986) 817-821.
- Ballad, R.; Holman, D.; Hennecke, E.; Johnson, J.; Manuel, O.; Nicholson, L.: Iodine-<sup>129</sup>I in thyroids of grazing animals. *Health Physics* 30 (1976) 345-350.
- Ballad, R.; Tan, S.; Johnson, J.; Holmman, D.; Hennecke, E.; Manuel, O.: Iodine-<sup>129</sup>I in man, cow and deer. *Health Physics* 34 (691) (1978) 691.
- Baraket, M.: Das dynamische Verhalten von Faserfiltern für feste und flüssige Aerosole, Forschungsbericht Nr. 12, Laboratorium für Energiesysteme ETH Zürich, Juris Druck + Verlag Dietikon (1992).
- Baratta, E. J.; Easterly, D. G.: Determination of iodine-131 at low levels in milk: Collaborative study. *Journal Of AOAC International* 84 (2) (2001) 507-511.
- Baumgärtner, F.: Chemie der Nuklearen Entsorgung. Karl Thiemig, München, (1978).
- Baumgärtner, W.: Einfache Methoden zur Simultanbestimmung von Bromid und Iodid bzw. Quecksilber, Cadmium und Blei aus wässrigen Lösungen im Spurenbereich. Universität Erlangen-Nürnberg (Diss.) (1988).
- Beck, J. W.; Richards, D. A.; Edwards, R. L.; Silverman, B. W.; Smart, P. L.; Donahue, D. J.; Herrera-Osterheld, S.; Burr, G. S.; Calsoyas, L.; Jull, A. J. T.; Biddulph, D.: Extremely Large Variations of Atmospheric <sup>14</sup>C Concentrations During the Last Glacial Period. *Science* 292 (2001) 2453-2458.
- Behrens, H.: New insights into the chemical behaviour of radioiodine in aquatic environments. Bericht Nr. GSF R 313 der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH München, München (1982).
- Behrens, H.: Influence of microbial activity on migration of radioiodine in geomed. In: Proceedings of an NEA Workshop: The effects of natural organic compounds and of microorganisms on radionuclide transport. Radioactive Waste Management Committee – OECD Nuclear Energy Agency (Hrsg.), Paris (1985a) 5-18.
- Behrens, H.: Speciation of Fission and activation products in the environment, Kapitel: Speciation of Radioiodine in aquatic and terrestrial systems under the influence of biogeochemical processes. Elsevier Applied Science Publishers, London, New York, (1985b).
- Benzler, J.-H.; Boess, J.; Capelle, A.: Böden in Niedersachsen. (1997).
- Berner, A.; Lürzer, Ch.: Mass size distributions of traffic aerosols at Vienna, *J. Physical Chemistry* 84 (1980) 2079-2083.
- Biddulph, D. L.; Beck, J. W.; Burr, G. S.; Donahue, D. J.; Hatheway, A. L.; Jull, A. J. T.: Measurement of the radioisotope <sup>129</sup>I at the NSF-Arizona AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 693-698.
- BIOMASS (the IAEA Programme on Biospheric Modelling and Assessment Methods). Model testing using data on iodine-131 released from Hanford. BIOMASS Theme 2, Environmental releases, Dose reconstruction Working Group, IAEA, Vienna, BIOMASS/T2DR/WD01 (1999).
- BIOMOVS II: Uncertainty and validation. (Technical report No. 7), IAEA, Vienna (1996).

- Birch, C.P. et. al.:  $^{129}\text{I}$  in the vicinity of the Sellafield reprocessing plant: The development of an Experimental method to examine the atmospheric behavior of  $^{129}\text{I}$ , Portsmouth 1994 proceedings of the 17<sup>th</sup> IRPA Regional Congress, Nuclear Technology Publishing (1994) 265-268.
- Bishop G. P.; Beetham C. J.; Cuff, Y. S.: Review of literature for chlorine, technetium, iodine and neptunium. Nirex Radioactive Waste Disposal Safety Studies, Report NSS/R193, UK Nirex Ltd., Harwell, England (1989).
- Bittermann, H.: Jodversorgung deutscher Wehrpflichtiger im Alter von 17,5 bis 21 Jahren. Humboldt-Universität Berlin (Diss.) (1999).
- Bittner, U. I. J.: Über radiometrische und nicht-radiometrische Bestimmungsverfahren für die umweltrelevanten Radionuklide Iod-129 und Strontium-90. TU München (Diss.) (1992).
- Bittner, S.; Edelhäuser, H. G.: Duties of the Federal Ministry of Environment, Nature Conservation and Nuclear Safety in the event of a nuclear accident. *Kerntechnik* 64 (3) (1999) 118-123.
- BMI: Rahmenempfehlungen für den Katastrophenschutz in der Umgebung kerntechnischer Anlagen (Störfallberechnungsgrundlage) vom Oktober 1977 GMBI. (Federal Ministry for the Interior), (1977).
- BMI: Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Bestimmung der Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer. (Richtlinien zu § 45 StrlSchV). GMBI. (German Federal Ministry for the Interior), (1979).
- BMU: Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.), Urban & Fischer, München, Jena, (2000).
- BMU: Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2001. Paralelentsbericht zur Unterrichtung durch die Bundesregierung, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung im Jahr 2001 (2002)
- BMU: Entwurf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift (AVV) zu § 47 StrlSchV. Stand 01.07.2003. (2003).
- BNFL: Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment. (British Nuclear Fuel, R.), (1999).
- Boaretto, E.; Berkovits, G.; Hollos, P. M.: Measurement of natural concentrations of  $^{129}\text{I}$  in uranium ores by AMS. *Nuclear instruments & methods in physics research* 50 (1990) 280-285.
- Boaretto, E.; Berkovits, D.; Delmas, R.; Johnson, R. R.; Kaufmann, A.; Magaritz, M.; Paul, M.; Pourchet, M.: Measurement of anthropogenic radionuclides in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994) 350-356.
- Bonka, H.: Strahlenexposition durch radioaktive Emission aus kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb. Verlag TÜV Rheinland (1982).
- Bonka, H.: Fallout- und Washoutfaktor für Aerosole und Iod für einen Vergleich der Strahlenexposition durch radioaktive Emissionen aus Kernkraft- und Kohlekraftwerken. Bericht des Lehrstuhls für Reaktortechnik der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen (1989).
- Boone, F. W.; Kantelo, M. V.; Mayer, P. G.; Palms, J. M.: Residence half-times of  $^{129}\text{I}$  in undis-

- turbed surface soils based on measured soil concentration profiles. *Health Physics* 48 (4) (1985) 401-413.
- Born, A.; Stärk, H.: Quantitative Bestimmung von Jod und jodhaltigen Verbindungen auf Papierchromatogrammen durch Neutronenaktivierung. *Atomkernenergie* 4. Jg. (1959) 286-289.
- Bors, J.; Martens, R.; Kühn, W.: Untersuchungen über den Einfluß von Mikroorganismen auf die Verlagerung von Radioiod im Boden. *Atomkernenergie, Kerntechnik* 44 (1984) 87-88.
- Bors, J.; Martens, R.: Investigations on the role of soil organic components in the sorption of radioiodine. Proceedings of the XIXth ESNA-Conference, Hrsg: Gerzabek, M. H., Wien (1988) 98-112.
- Bors, J.; Martens, R.; Kühn, W.: Studies on the role of natural and anthropogenic organic substances in the mobility of radioiodine in soils. *Radiochimica Acta* 44/45 (1988) 201-206.
- Bors, J.: Sorption of radioiodine in organo-clays and -soils. *Radiochimica Acta* 51 (1990) 139-143.
- Bostock, A. C.; Shaw, G.; Bell, J. N. B.: The volatilisation and sorption of  $^{129}\text{I}$  in coniferous forest, grassland and frozen soils. *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003) 29-42.
- Bouisset, P.; Lefevre, O.; Cagnat, X.; Kerlau, G.; Ugron, A.; Calmet, D.: Direct gamma-X spectrometry measurement of  $^{129}\text{I}$  in environmental samples using experimental self-absorption corrections. *Nuclear instruments & methods in physics research A* 437 (1999) 114-127.
- Boulyga, S. F.; Becker, J. S.: ICP-MS with hexapole collision cell for isotope ratio measurements of Ca, Fe, and Se. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* 370 (2001) 618-623.
- Boulyga, S. F.; Becker, J. S.: Improvement of abundance sensitivity in a quadrupole-based ICP-MS instrument with a hexapole collision cell. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 17 (2002) 1-6.
- Bowen, H.: The Determination of Chlorine, Bromine and Iodine in Biological Material by Activation Analysis. *Biochemical Journal* 73 (1959) 381-384.
- Bowen, H.: Environmental Chemistry of the Elements. Academic Press, New York, San Francisco, London, (1979).
- Bowlt, C.; Tiplady, P.: Radioiodine in human thyroid glands and incidence of thyroid cancer in Cumbria. *British Medical Journal* 299 (1989) 301-302.
- Braker, A. H.; Moet, F. P.; van der Zwart, R. E.; Eersels, J. L. T.; Herscheid, J. D. M.: Adsorption of radioiodine on platinum: a fast and simple column method to obtain concentrated and pure radioiodine in either water or anhydrous solvent. *Applied Radiation and Isotopes* 57 (2002) 475-482.
- Brauer, F.; Rieck, H. G. J.:  $^{129}\text{I}$ ,  $^{60}\text{Co}$  and  $^{106}\text{Ru}$  Measurement on water samples from the Hanford Project Environs. Bericht Nr. BNWL-SA-4478, Batelle Pacific Northwestern Laboratories, Richland (USA) (1973a).
- Brauer, F.; Soldat, J.; Tenny, H.; Strebin jr., R.: Natural iodine and  $^{129}\text{I}$  in mammalian thyroids and environmental samples taken from sites in the USA. (1973b).
- Brauer, F.: Environmental  $^{129}\text{I}$  Measurements. Proceedings 2<sup>nd</sup> International Conference on Nuclear

- Methods in Environmental Research, Columbia, Missouri (1974).
- Brauer, F.; Strebin jr., R.: Environmental concentration and migration of  $^{129}\text{I}$ . (1982).
- Brauer, F.: Measurement methods for low-level  $^{129}\text{I}$  determinations. (1989).
- Breder, R.: Probennahme und Aufschluss - Basis der Spurenanalytik. In: Stoeppler, M. (Hrsg.), Springer Labormanual, Springer-Verlag, Berlin, (1994) 31-40.
- Brown, J.; Simmonds, J.: Farmland: A dynamic model for the transfer of radionuclides through terrestrial foodchain. Chilton, (1995).
- Brücher, H.: Behandlung und Beseitigung der flüchtigen Radionuklide Tritium, Kohlenstoff-14, Krypton-85 und Iod-129 bei der Wiederaufarbeitung. *Atomkernenergie, Kerntechnik* 44 (1984) 111-114.
- Buraglio, N.: Accelerator mass spectrometry of  $^{129}\text{I}$  and its applications in natural water systems. Dissertation. University of Uppsala. Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology 570 (2000).
- Buraglio, N.; Aldahan, A.; Possnert, G.:  $^{129}\text{I}$  measurement at the Uppsala tandem accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 161-163 (2000a) 240-244.
- Buraglio, N.; Aldahan, A.; Possnert, G.: Analytical techniques and applications of  $^{129}\text{I}$  in natural water. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000b) 518-523.
- Buraglio, N.; Aldahan, A.; Possnert, G.:  $^{129}\text{I}$  in lakes of the Chernobyl fallout region and its environmental implications. *Applied Radiation and Isotopes* 55 (2001a) 715-720.
- Buraglio, N.; Aldahan, A.; Possnert, G.; Vintersved, I.:  $^{129}\text{I}$  from the Nuclear Reprocessing Facilities Traced in Precipitation. *Environmental Science & Technology* 35 (8) (2001b) 1579-1586.
- Burger, L.L.: Determining criteria for the disposal of  $^{129}\text{I}$ . Report Nr. PNL-3496, Pacific Northwest Laboratory, Richland, WA. (undatiert).
- Bustad, L. K.; Wood, D. H.; Elefson, E. E.; Ragan, H. A.; McClellan, R. O.: I-131 in milk and thyroid of dairy cattle following a single contamination event and prolonged daily administration. *Health Physics* 9 (1963) 1231-1234.
- Carter, M.; Moghissi, A.: Three decades of nuclear testing. *Health Physics* 33 (1977) 55-71.
- CEC: Certificate of analysis: Certified reference material BCR No 279, trace elements in sea lettuce (*Ulva Lactuca*); Commission of the European Communities, Community, Bureau of Reference, Brüssel (1987).
- CEC: Council Directive 96/29/ EURATOM of 13 May 1996 laying down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation. OJ 1-159 of 29.06.1996, (1996).
- Centrale Marketing Gesellschaft der deutschen Agrarwirtschaft mbH, CMA: Essen und Trinken in Deutschland. (1999).
- Chameides, W.L.; Davis, D.D.: Iodine: its possible role in tropospheric photochemistry, *Journal of Geophysical Research*, 85, C12, (1980) 7383.

- Chamberlain, A.: Radioactive Aerosols. Cambridge University Press, (1991).
- Chant, L. A.; Andrews, H. R.; Cornett, R. J.; Koslowsky, V. T.; Milton, J. C. D.; Van den Berg, G. J.; Verburg, T. G.; Wolterbeek, H. T.:  $^{129}\text{I}$  and  $^{36}\text{Cl}$  concentrations in lichens collected in 1990 from three regions around Chernobyl. *Applied Radiation and Isotopes* 47 (9/10) (1996) 933-937.
- Chao, J.; Tseng, C.: Concentrations of mammalian thyroids in Taiwan. *Science of the Total Environment* 193 (1996) 111-119.
- Chao, J.; Tseng, C. L.; Lee, C. J.; Hsia, C. C.; Teng, S. P.: Analysis of  $^{129}\text{I}$  in radwastes by neutron activation. *Applied Radiation and Isotopes* 51 (1999) 137-143.
- Cierjacks, A.; Albers B.: Zusammenstellung und Auswertung von radioökologischen Messdaten zum Transfer Boden/Pflanze unter Berücksichtigung der lokalen Variabilität in Deutschland, Zwischenbericht zum Vorhaben St.Sch.-Nr. 4222, in: I. Bergler, C. Bernhard, R. Gödde, A. Löbke-Reinl, A. Schmitt-Hannig (Hrsg.), Strahlenforschung Programmbericht 2002, BfS (2004), 81 – 86.
- Cochran, J. K.; Moran, S. B.; Fisher, N. S.; Beasley, T. M.; Kelley, J. M.: Source and transport of anthropogenic radionuclides in the Ob River system, Siberia. *Earth Planets Space* 179 (2000) 125-137.
- Cogema (2003) [www.cogemalahague.com](http://www.cogemalahague.com) [Stand 10.04.2003].
- Cohen, B. L.: The origin of Iodine in soil and the  $^{129}\text{I}$  problem. *Health Physics* 49 (2) (1985) 279-285.
- Cornett, R. J.; Chant, H. R.; Andrews, H. R.; Davies, W.; Greiner, B. F.; Imahori, Y.; Koslowsky, V. T.; Kotzer, T.; Milton, J. C. D.; Milton, G. M.:  $^{36}\text{Cl}$  and  $^{129}\text{I}$  in teeth and bones. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 249-253.
- Coughtrey, P. J.; Jackson, D.; Thorne, M. C.: Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems. A.A. Balkema, Rotterdam (1983).
- Coughtrey, P.J.: Radioactivity transfer to animal products. Report Nr. EUR 12608 EN, CEC, Luxembourg (1990).
- Crout, N. M. J.; Voigt, G.: Modelling the dynamics of radioiodine in dairy cows. *Journal of Dairy Science* 79 (1996) 254-259.
- Degushi, T.; Tanaka, A.; Sanemasa, I.; Nagai, H.: Flow injection analysis of trace amounts of iodide ion using a catalytic method. *Bunseki Kagaku* 32 (1983) 23-28.
- Deitmann, W.; Hauschild, J.; Robens, E.; Aumann, D.: Soil-to-Vegetation transfer of natural  $^{127}\text{I}$ , and  $^{129}\text{I}$  from global fallout, as revealed by field measurements on permanent pastures. *Journal of Environmental Radioactivity* 10 (1989) 79-88.
- Dermelj, M.; Slejkovec, Z.; Byrne, A.; Stegnar, P.; Stibilj, V.; Rossbach, M.: Iodine in different food articles and standard reference materials. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* 338 (1990) 559-561.
- Dertinger, H.; Müller, A.; Nagel, A.; Riedl, A.; Strack, S.: Fixierung von radioaktivem Iod im Boden. Bericht Nr. KfK 3916, Kernforschungszentrums Karlsruhe (1986).

- DeSantis, D. M.; Chabot, G. E.: An alternative method for the release criteria and calculations of the total dose equivalent to another individual from a patient treated with a therapeutic dose of  $^{131}\text{I}$ . *Health Physics* 81 (1) (2001) 15-26.
- Deuber, H.: Iodine-131 species in the stack exhaust air of light water reactors. *Nuclear Technology* 72 (1985) 39-43.
- Deutsche Chemische Gesellschaft (ed.): Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie. 8. Aufl., Verlag Chemie, Berlin, (1933).
- Deutschen Gesellschaft für Ernährung e. V. (DGE): Ernährungsbericht 2000. Frankfurt am Main, (2000).
- DIN 13 005: Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim Messen. (1999).
- DIN 25 482 Part 5: Nachweis- und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen, Zählende hochauflösende gammaspektroskopische Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses. (Deutsches Institut für Normung e.V.), (Juni 1993).
- DIN 25 482 Part 6: Nachweis- und Erkennungsgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen, Zählende Messungen mit Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses. (Deutsches Institut für Normung e.V.), (Februar 1993).
- DIN 25482-10: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen: Allgemeine Anwendungen. Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin (2000).
- DIN 32 645: Chemische Analytik: Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenze - Ermittlung unter Wiederholbedingungen, Begriffe, Verfahren, Auswertung. Deutsches Institut für Normung e.V., Beuth Verlag, Berlin (1994).
- Doshi, G.; Joshi, S.; Pillai, K.:  $^{129}\text{I}$  in soil and grass samples around a nuclear reprocessing plant. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* 155 (1991) 115-127.
- Dowd, C. D.; Jimenez, J. L.; Bahreini, R.; Flagan, R. C.; Seinfeld, J. H.; Hämerl, K.; Pirjola, L.; Kulmala, M.; Jennings, S. G.; Hoffmann, T.: Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions. *Nature* 417 (2002) 632-636.
- Drath, P.: Leitfaden für den Gebrauch des Internationalen Einheitensystems. Physikalisch-Technische Bundesanstalt (Hrsg.) (1998).
- Duce, R.; Winchester, J.; van Nahl, T.: Iodine, bromine and chlorine in winter aerosols and snow from Barrow, Alaska. *Tellus* 18 (1966) 238-248.
- Edelhäuser, H.; Barthel, R.; Hornung-Lauxmann, L.; Michel, R.: Sachstand und weitere Entwicklung der Programme zur Überwachung der Umweltradioaktivität unter Berücksichtigung der Anforderungen aus dem EURATOM-Vertrag. Fachgespräch Überwachung der bergbaubedingten Umweltradioaktivität, 28./29.03.00, Schlema 2000, BMU (2000) 2 – 10.
- Edwards, R.: Iodine-129: Its occurrence in nature and its utility as a tracer. *Science* 137 (1962) 851-853.
- Edwards, R.; Rey, P.: Terrestrial occurrence and distribution of  $^{129}\text{I}$ . Atomic Energy Commission, Report No. NYO-3624-3, (1968).

- Eisenbud M.: Environmental Radioactivity, 3. Aufl., Academic Press, San Diego (1987).
- Eisenbud, M.; Gesell, T.: Environmental Radioactivity. 4. Aufl., Academic Press, San Diego (1997).
- Elmore, D.; Gove, H. E.; Ferraro, R.; Kilius, L. R.; Lee, H. W.; Chang, K. H.; Beukens, R.; Litherland, A. E.; Russo, C. J.; Purser, K. H.; Murrel, M. T.; Finkel, R. C.: Determination of  $^{129}\text{I}$  using tandem accelerator mass spectrometry. *Nature* 286 (1980) 138-140.
- El-Shaboury, G.; Farah, K.; El-Tawoosy, M.: Nucleophilic radioiodination of 6-bromocholesterol via non-isotopic exchange reaction in molten state. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (3) (2001a) 535-540.
- El-Shaboury, G.; El-Tawousy, M.: Synthesis of radioiodinated 4-[ $^{129}\text{I}$ ]iodoantipyrine via isotopic exchange. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 252 (1) (2001b) 109-114.
- Elsholz, M.; Berger, H.: Oberirdische Gewässer Nr. 6/98 Hydrologische Landschaften im Raum Niedersachsen, Veröffentlichung des Niedersächsischen Landesamt für Ökologie (1998): Online im Internet: [www.nloe.de](http://www.nloe.de) und [http://193.218.216.17/crome/projekt6/downloads/D619194\\_1.pdf](http://193.218.216.17/crome/projekt6/downloads/D619194_1.pdf) [Stand: 13.07.04]
- Engel, U.: Anwendung und Entwicklung von Mikrowelleninduzierten Plasmen für die Analytische Atomspektrometrie, Dissertation, Universität Dortmund (2000).
- England, T. R.; Rider, B. F.: Evaluation and Compilation of Fission Product Yields. Los Alamos National Laboratory, Report No. LA-UR-94-3106 (1994).
- Ennis, M. E. Jr.; Johnson, J. E.; Ward, G. M.; Voigt, G.: A specific activity effect in the metabolism of Tc. *Health Physics* 54 (1988a) 157-160.
- Ennis, M. E. Jr.; Ward, G. M.; Johnson, J. E.; Boamah, K. N.: Transfer coefficients of selected radionuclides to animal products, II. Hen and eggs meat. *Health Physics* 54 (1988b) 167-170.
- Ermilov, A.; Makarenkova, I.; Melekhin, Y.: Research of neutron activation measurement of iodine in biological samples applying to the problem of the Chernobyl iodine reconstruction. All-Russian Scientific Institute of Physical-Technical and Radiotechnical Measurements, Medelevo, Moscow Region (1993). in Russian.
- Ernst T.: Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse: Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport. Universität Hannover (Diss.) (2003). Online im Internet: <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/37628126X.pdf> [Stand 13.07.04]
- Ernst, T.; Szidat, S.; Handl, J.; Jakob, D.; Michel, R.; Schnabel, C.; Synal, H.; Santos Arevalo, F. J.; Benne, I.; Boese, J.; Böttcher, J.; Gehrt, E.; Capelle, A.; Schneider, J.; Schäfer, W.:  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in europäischen Böden. in: Michel R, Täschner M, Bayer A (eds). Praxis des Strahlenschutzes: - Messen, Modellieren, Dokumentieren -, Tagungsband der 34. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V., Kloster Seeon, 21. 25. April 2002, TÜV-Verlag, Köln (2002) 167-174.
- Ernst, T.; Szidat, S.; Handl, J.; Jakob, D.; Michel, R.; Schnabel, C.; Synal, H.; Santos Arevalo, F. J.; Benne, I.; Boess, J.; Gehrt, E.; Capelle, A.; Schneider, J.; Schäfer, W.; Böttcher, J.: Migration of iodine-129 and iodine-127 in soils. *Kerntechnik* 68 (4) (2003) 155-167.

- Fabryka-Martin, J. T.: Natural Iodine-129 as a Ground-Water Tracer. Master of Science Thesis, The University of Arizona, Department of Hydrology and Water Resources (1984)
- Fabryka-Martin, J. T.; Bentley, H.; Elmore, D.; Airey, P.: Natural iodine-129 as an environmental tracer. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 49 (1984) 337-347.
- Fabryka-Martin, J. T.; Davis, S.; Elmore, D.: Applications of I-129 and Cl-36 in Hydrology. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 29 (1987) 361-371.
- Fabryka-Martin, J. T.; Davis, S.; Elmore, D.; Kubik, P.: In situ production and migration of  $^{129}\text{I}$  in the Stripa Granite, Sweden. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 53 (1989) 1817-1823.
- Faghihian, H.; Rahbarnia, H.: Determination of trace elements in hair of some local population in Iran by instrumental neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 251 (3) (2002) 427-430.
- Farries, E.: Faustzahlen für Landwirtschaft und Gartenbau: Tierernährung. 11. Aufl., Verlagsunion Agrar (1988).
- Fassett, J.; Walker, R.; Travis, J.; Ruegg, F.: Measurement of low abundance isotopes by laser resonance ionization mass spectrometry (RIMS). *Analytical Instrumentation* 17 (1988) 69-86.
- Fehn, U.; Holdren, G.; Elmore, D.; Brunelle, T.; Teng, R.; Kubik, P.: Determination of natural and anthropogenic  $^{129}\text{I}$  in marine sediments. *Geophysical Research Letters* 13 (1986) 137-139.
- Fehn, U.; Tullai, S.; Teng, R. T. D.; Elmore, D.; Kubik, P. W.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in heavy residues of two crude oils. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 29 (1987) 380-382.
- Fehn, U.; Peters, E.; Tulli-Fitzpatrick, S.; Kubik, P.; Sharma, P.; Teng, R.; Gove, H.; Elmore, D.: Iodine-129 and Cl-36 concentrations in water of the eastern Clear Lake area, California: Residence times and source ages of hydrothermal fluids. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 56 (1992) 2069-2079.
- Fehn, U.; Moran, J.; Teng, R.; Rao, U.: Dating and tracing of fluids using I-129 and Cl-36: results from geothermal fluids, oil fields brine and formation waters. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994) 380-384.
- Fehn, U.; Snyder, G.:  $^{129}\text{I}$  in the Southern Hemisphere: Global redistribution of an anthropogenic isotope. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 366-371.
- Fehn, U.; Snyder, G. T.; Varekamp, J. C.: Detection of recycled marine sediment components in crater lake fluid using  $^{129}\text{I}$ . *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 115 (3-4) (2002) 451-460.
- Fetter, C. W.: Applied Hydrogeology. 3. Aufl., Prentice-Hall, London, (1994) 31-39.
- Filss, M.; Botsch, W.; Handl, J.; Michel, R.; Slavov, V. P.; Borschtschenko, V. V.: A fast method for the determination of Strontium-89 and Strontium-90 in environmental samples and its application to the analysis of Strontium-90 in Ukrainian soils. *Radiochimica Acta* 83 (1998) 81-92.
- Finkel, R.; Suter, M.: AMS in the earth sciences: techniques and applications. *Advances in Analytical Geochemistry* 1 (1993) 1-114.

- Fontes, J.; Andrews, J.: Accelerator mass spectrometry in hydrology. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 94 (1994) 367-375.
- Fournier-Bidoz, V.; Foster, P.; Quinault, J.: Détermination de l'iode inorganique dans eaux de pluie. *Analisis* 20 (1992) 627-631.
- Fowler, E. B.: Radioactive Fallout, Soils, Plants, Foods, Man. Elsevier Publishing Company, Amsterdam, London, New York (1965).
- Fréchou C.: Optimisation des protocoles de mesurage de  $^{129}\text{I}$  et  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ . Etablissement d'une méthodologie aux échantillons de l'environnement. Université de Paris XI-Orsay (Diss.) CEA-R-5947/ISSN 0429-3460 (2000)
- Fréchou, C.; Calmet, D.; Bouisset, P.; Piccot, D.; Gaudry, A.; Yiou, F.; Raisbeck, G. M.:  $^{129}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio determination in environmental biological samples by RNAA, AMS and direct gamma-X spectrometry measurements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (1) (2001) 133-138.
- Fréchou, C.; Calmet, D.; Bertho, X.; Gaudry, A.:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio measurement in bovine thyroids from the North Cotentin area. *The Science of the Total Environment* 293 (2002) 59-67.
- Fréchou, C.; Calmet, D.:  $^{129}\text{I}$  in the environment of the La Hague nuclear fuel reprocessing plant - from sea to land. *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003) 43-59.
- Fuge, R.: Geochemistry of iodine in relation to iodine deficiency diseases, in *Environmental Geochemistry and Health*, Geological Society Special Publication, Appleton, Fuge J. D. & McCall G. J. H. editors, 113 (1996) 201.
- Fuge, R.; Johnson, C.: The geochemistry of iodine - a review, *Environmental Geochemistry and Health*, 8(2) (1986) 31.
- Funke, F.: Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Verhalten des Iods bei auslegungsüberschreitenden Ereignissen: Flüchtiges Iod. Abschlussbericht Reaktorsicherheitsforschung - Vorhaben-Nr. 150 1023, Siemens Bereich Energieerzeugung (1999).
- Gabay, J.; Paperiello, C.; Goodyear, S.; Daly, J.; Matuszek, J.: A method for determining Iodine-129 in milk and water. *Health Physics* 26 (1974) 89-96.
- Gäbler, H.-E.; Heumann, K.G.: Determination of atmospheric iodine species using a system of specifically prepared filters and IDMS, *Fresenius J. Analytica. Chemistry* 345 (1993a) 53-59.
- Gäbler, H.-E.; Heumann, K.G.: Determination of particulate iodine in aerosols from different regions by size fractionating impactor sampling and IDMS, *Intern. J. Analytica. Chemistry* 50 (1993b) 129-146.
- Garner, R. J.; Sansom, B. F.; Jones, H. G.: Fission products and the dairy cow: III. Transfer of  $^{131}\text{I}$  to milk following single and daily dosing. *Journal of Agricultural Science* 55 (2) (1960) 283-286.
- Gavrilin, Y.; Khrouch, V.; Shinkarev, S.; Drozdovitch, V.; Minenko, V.; Shemiakina, E.; Ulanovsky, A.; Bouville, A.; Anspaugh, L.; Voillequé, P.; Luckyanov, N.: Individual Thyroid Dose Estimation for a case-control Study of Chernobyl-related thyroid cancer among children of Belarus - Part I:  $^{131}\text{I}$ , short-lived radioiodines ( $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$ ), and short-lived radiotelluriums ( $^{131\text{m}}\text{Te}$  and  $^{132}\text{Te}$ ). *Health Physics* 86 (6) (2004) 565-585.

- Gendenin, L.; Metcalf, R.: Radiochemical studies: The fission products. MacGraw Hill, New York (1951).
- Gerzabek, M. H.; Muramatsu, Y.; Strebl, F.; Yoshida, S.: Iodine and bromine contents of some Austrian soils and relations to soil characteristics. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* 162 (1999) 415-419.
- Gilbert, R.: Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring. (1987).
- Gills, T.: Certificate of analysis, standard reference material 2709, San Joaquin soil. (National Institute of Standards & Technology (1993).
- Goles, R. W.; Fukuda, R. C.; Cole, M. W.; Brauer, F. P.: Detection of  $^{129}\text{I}$  by laser-induced fluorescence spectrometry. *Analytical Chemistry* 53(6) (1981) 776-778.
- Gottdang, A.; Mous, D. J. W.: The novel HVEE multi-element AMS system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 163-166.
- Gravenhorst, G.: The sulphate component in aerosol samples over North Atlantic, *Meteor Forsch.-Ergebnisse Reihe B* No. 10 (1975) 22-31.
- Gray, J.; Jones, S.; Smith, A.: Discharges to the environment from the Sellafield Site 1951 - 1992. *Journal of Radiological Protection* 15(2) (1995) 99-131.
- Green, N.; Woodman, R.F.M.: Recommended transfer factors from feed to animal products, NRPB-W40, NRPB, Chilton (2003).
- Green, J. R.; De Wayne, C.L.; Synal, H.; Kreutz, K. J.; Wake, C. P.; Naftz, D. L.; Frape, S. K.: chlorine-36 and cesium-137 in ice-core samples from mid-latitude glacial sites in the Northern Hemisphere. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 812-816.
- Greenberg, R.R. ; Fleming, R.F.; Zeisler, R.: High sensitive neutron activation analysis of environmental and biological standard reference materials; *Environ. Int.* 10 (1984) 129-134.
- Groupe Radioécologie Nord-Cotentin: Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires, Volume 1: Historique des rejets (1999).
- Gros, R.; Cappellini, L.; Goujon de Beauvievier, M.; Jeanmarie, L.; Patti, F. : Dosage de l'iode 129 dans les thyroïdes. CEA-R-4691 (1975).
- Grüner, D.; Krupp, G.; Aumann, D.:  $^{129}\text{I}$  and natural  $^{127}\text{I}$  in deer thyroids from the environment of a small nuclear fuel reprocessing plant and from sites remote from nuclear facilities. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* 188 (1994) 401-408.
- Guderian, R. (Hrsg.): Handbuch der Umweltveränderungen und Ökotoxikologie, Band 1A: Atmosphäre, Springer-verlag (2000) 76 - 82, 365.
- Gvardjancic, L.; Kosta, L.; Dermelj, M.: Determination of iodine in reference materials by activation analysis. *Journal of Radioanalytical Chemistry* 58 (1980) 359-365.
- Haisch, A.; Capriel, P.; Stärk, H.: Boden-Pflanze-Transfer des Iod - Transferfaktoren für verschiedene Pflanzen. *Zeitschrift für Umweltchemie und Ökotoxikologie* 1 (1989) 10-12.

- Haisch, A.; Schüttelkopf, H.: Transferfaktoren Boden-Pflanze für I-129 und Weidebewuchs. Bericht Nr. KfK 5119, Kernforschungszentrum Karlsruhe (1993).
- Hamby, D. M.: Credibility of uncertainty analyses for  $^{131}\text{I}$  pathway assessments. *Health Physics* Vol. 86 (Nr.5) (2004) 536-539.
- Hamby, D. M.; Benke, R. R.: Uncertainty of the iodine-131 ingestion dose conversion factor. *Radiation Protection Dosimetry* 82 (4) (1999) 245-256.
- Hampel, R.; Beyersdorf-Radeck, B.; Below, H.; Demuth, M.; Seelig, K.: Jodidurie bei Schulkindern in Deutschland 1999 im Normbereich. *Medizinische Klinik* 96 (3) (2001) 125-128.
- Handl, J.: Concentration of Iod- $^{129}\text{I}$  in the biosphere. *Radiochimica Acta* 72 (1996) 33-38.
- Handl, J.; Pfau, A.: Bestandsaufnahme und Transfer von  $^{129}\text{I}$  in der Nahrungskette und Spaltprodukt-Transfer auf dem Weide-Kuh-Milch-Pfad nach dem Tschernobyl Unfall. Bericht Nr. NIR 2/1986, Niedersächsisches Institut für Radioökologie, (1986).
- Handl, J.; Pfau, A.: Feed-milk transfer of fission products following the Chernobyl accident. *Atomenergie Kerntechnik* 49 (3) (1987) 171-173.
- Handl, J.; Pfau, A.: Transfer of some Chernobyl fallout nuclides in the animal-product food chain. Proc. IV<sup>th</sup> Int. Symp. of Radioecology: The Impact of Nuclear Accidents on Environment, Vol. 2, Cadarache (France) (1988) E-92 - E-97.
- Handl, J.; Pfau, A.: Long-term transfer of  $^{129}\text{I}$  into the food chain. *Science of the Total Environment* 85 (1989) 245-252.
- Handl, J.; Kühn, W.; Hensch, R. D.: Content and heterogeneity of distribution of iodine in human and bovine thyroid glands determined by neutron activation analyses. *Journal of Endocrinological Investigations* 7 (1984) 97-101.
- Handl, J.; Pfau, A.; Huth, F. W.: Measurement of  $^{129}\text{I}$  in human and bovine thyroids in Europe - transfer of  $^{129}\text{I}$  into the food chain. *Health Physics* 58 (5) (1990) 609-618.
- Handl, J.; Oliver, E.; Jakob, D.; Johanson, K.; Schuller, P.: Errata zu: Biospheric I-129 Concentration in the pre-nuclear and nuclear age. *Health Physics* 65 (3) (1993) 265-271.
- Harb S.: On the human radiation exposure as derived from the analysis of natural and man-made radionuclides in soils. Universität Hannover (Diss.) (2004). Online im Internet: <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/379542617.pdf> [Stand 15.07.04]
- Harvey, R. P.; Hamby, D. M.; Benke, R. R.: Age-specific uncertainty of the 131-I ingestion dose conversion factor. *Health Physics* 84 (3) (2003) 334-343.
- Hatori, S.; Ohseki, M.; Nawata, H.; Matsuzaki, H.: TOF system at MALT - measurement of  $^{129}\text{I}$ . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 299-304.
- Hauschild, J.; Aumann, D.:  $^{129}\text{I}$  and natural iodine in tree rings in the vicinity of a small nuclear fuels reprocessing plant. *Naturwissenschaften* 72 (1985) 270-271.
- Hauschild, J.; Aumann, D.: Iodine- $^{129}\text{I}$  in the Environment of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant: V. The transfer of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in the soil-pasture-cow-milk/meat pathway, as obtained by field measurement. *Journal of Environmental Radioactivity* 9 (1989) 145-162.

- Heinemann, K.; Vogt, K.: Measurements of the deposition of iodine onto and of the biological half-life of iodine on vegetation. *Health Physics* 39 (1980) 463-474.
- Heinemann, K.; Kukla, W.; Steinkopff, T.; Wershofen, H.: Überwachung der Radioaktivität von gasförmig vorliegenden gamma-strahlenden Iodisotopen in der Luft. Loseblattsammlung FS-78-15-AKU - Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, (2001).
- Henkelmann, G.: Bodenschutz und Strahlenschutzvorsorge in der Landwirtschaft - Rückstände von PSM und radioaktiven Stoffen in Böden. Vortragsfolien (17.04.2000) zur Fortbildungsmaßnahme 'Grundsätze der guten fachlichen Praxis in der landwirtschaftlichen Bodennutzung', München (2000).
- Henrichs, K.; Müller-Brunecker, G.; Paretzke, H. G.: Zur Strahlenexposition der Schilddrüse bei Inkorporation von Iod-Isotopen. Bericht Nr. S-960, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München (1983).
- Herrmann, G.: Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt. *Chemie in unserer Zeit* 5 (1988) 172-182.
- Herzog, H.; Tellmann, L.; Qaim, S. M.; Spellerberg, S.; Schmid, A.; Coenen, H. H.: PET Quantitation and imaging of the non-pure positron emitting iodine isotope  $^{124}\text{I}$ . *Applied Radiation and Isotopes* 56 (2002) 673-679.
- Heumann, K.; Neubauer, J.; Reifenhäuser, W.: Iodine overabundances measured in the surface layers of an Antarctic stony and iron meteorite. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 54 (1990) 2503-2506.
- Hindie, E.; Petiet, A.; Bourahla, K.; Colas-Linhart, N.: Microscopic distribution of iodine radioisotopes in the thyroid of the iodine deficient new-born rat: insight concerning the Chernobyl accident. *Cellular and molecular biology* 47 (3) (2001) 403-410.
- Hirota, M.; Saze, T.; Nishizawa, K.: Characterization of an in vivo thyroid  $^{131}\text{I}$  monitoring system using an imaging plate. *Applied Radiation and Isotopes* 60 (2004) 733-740.
- Hoffman, F. O.; Amaral, E.; Mohrbacher, D. A.; Deming, E. J.: The comparison of generic model predictions with Chernobyl fallout data on the transfer of radioiodine over the air-pasture-cow-milk pathway. *Journal of Environmental Radioactivity* 8 (1988) 53-71.
- Hoffmann, F. O.; Apostoaei, A.; Thomas, B.: The public health implications of combined exposure to multiple sources of  $^{131}\text{I}$  during the Cold War Area: Extension of dose reconstruction to risk analysis and beyond. *Radioprotection - Colloques C1* (2002) 147-152.
- Hoffman, F. O.; Anspaugh, L. R.; Apostoaei, A. I.; Beck, H. L.; Bouville, A.; Napier, B.; Simon, S. L.: Credibility of uncertainty analysis for  $^{131}\text{I}$  pathway assessments. *Health Physics* 86(5) (2004) 536-538.
- Hoshi, M.; Yamamoto, M.; Kawamura, H.: Fallout radioactivity in soil and food samples in the Ukraine: Measurement of Iodine, Plutonium, Caesium and Strontium isotopes. *Health Physics* 67 (2) (1994) 187-191.
- Hotchkis, M.; Fink, D.; Tuniz, C.; Vogt, S.: Accelerator mass spectrometry analysis of environmental radionuclides: sensitivity, precision and standardisation. *Applied Radiation and Isotopes* 53 (2000) 31-37.

- Hou, X. L.; Dahlggaard, H.; Rietz, B.; Jacobsen, U.; Nielsen, S. P.; Aarkrog, A.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in seawater and some environmental materials by neutron activation analysis. *Analyst* 124 (1999) 1109-1114.
- Hou, X. L.; Dahlggaard, H.; Nielsen, S. P.: Iodine-129 time series in Danish, Norwegian and north-west Greenland coast and the Baltic Sea by seaweed. *Estuarine and Coastal Shelf Science* 51 (5) (2000a) 571-584.
- Hou, X. L.; Yan, X.; Chai, C.: Chemical species of iodine in some seaweeds - II. Iodine-bound biological macromolecules. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 245 (3) (2000b) 461-467.
- Hou, X. L.; Dahlggaard, H.; Nielsen, S. P.: Chemical speciation analysis of  $^{129}\text{I}$  in seawater and a preliminary investigation to use it as a tracer for geochemical cycle study of stable iodine. *Marine Chemistry* 74 (2-3) (2001) 145-155.
- Hou, X. L.; Dahlggaard, H.; Nielsen, S. P.; Kucera, J.: Level and origin of Iodine-129 in the Baltic Sea. *Journal of Environmental Radioactivity* 61 (2002) 331-343.
- Hou, X. L.; Melencheko, A. F.; Kucera, J.; Dahlggaard, H.; Nielsen, S. P.: Iodine-129 in thyroid and urine in Ukraine and Denmark. *The Science of the Total Environment* 302 (2003a) 63-73.
- Hou, X. L.; Fogh, C. L.; Kucera, K. G.; Andersson, K. G.; Dahlggaard, H.; Nielsen, S. P.: Iodine-129 and Caesium-137 in Chernobyl contaminated soil and their chemical fractionation. *The Science of the Total Environment* 308 (2003b) 97-109.
- Houk, R.S.: Mass Spectrometry of Inductively Coupled Plasmas, *Analytical Chemistry* 58 (1986) 97A-105A
- Howard, B. J.; Berensford, N. A.; Voigt, G.: Recent advances in animal radioecology and mitigation of animal product contamination after accidents. Report of the Centre for Ecology and Hydrology, Merlewood, Grange-over-Sands, Cumbria, UK. Online im Internet: [http://www.strategy-ec.org.uk/output/euro2\\_4\\_4\\_animal\\_radioecology.pdf](http://www.strategy-ec.org.uk/output/euro2_4_4_animal_radioecology.pdf) [Stand 13.07.04].
- IAEA: Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental transfer of Radionuclides from Routine Releases - Exposures of Critical groups. IAEA Safety Series No. 57. IAEA, Vienna (1982).
- IAEA: (1986) Summary Report on the Post-Accident Review Meeting on the Chernobyl Accident, International Nuclear Safety Advisory Group (INSAG), Safety Series No. 75-INSAG-1, IAEA, Vienna.
- IAEA: International Atomic Energy Agency, Reference sheet IAEA-375, Th, U, and radionuclides in soil. Vienna (1991).
- IAEA: Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. IAEA Technical Report Series No. 364. IAEA, Vienna (1994).
- IAEA: Protection of the environment from the effects of ionizing radiation: a report for discussion. IAEA-TECDOC-1091, Wien (1999).
- IAEA: Generic Models for the Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment. IAEA Safety Report Series No. 19. IAEA, Vienna (2001).

- IAEA: Testing of environmental transfer models using data from the atmospheric release of Iodine-131 from the Hanford site, USA, in 1963. IAEA-BIOMASS-2. IAEA, Vienna (2003).
- ICRP: Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Report No. 23. Pergamon Press, Oxford (1981, 1st print 1971).
- Ikeda, N.: Inverse-square areal distribution of  $^{129}\text{I}$  in Soil. *Radioisotopes* 38 (1989) 267-268.
- Inn, K. G. W.; Lin, Z.; Liggett, W. S.; et. al.: Low-level radioactivity ocean sediment standard reference material. *Applied Radiation and Isotopes* 47 (9/10) (1996) 967-970.
- Inoue, H.: Transport of  $^{125}\text{I}$  and  $^{36}\text{Cl}$  across an anion-exchange paper membrane transport of  $^{125}\text{I}$  and  $^{35}\text{Cl}$  across an anion-exchange paper membrane. *Applied Radiation and Isotopes* 56 (2002) 659-665.
- ISO: International Organization for Standardization; Guide to the expression of uncertainty in measurement, corrected and reprinted. ISO, Genf (1995).
- ISO/FDIS 11929-7: Determination of detection limit decision threshold for ionizing radiation measurements. Part 7: Fundamentals and general applications, ISO. Geneva (2004).
- Iyengar, G. V.; Kawamura, H.; Dang, H. S.; Parr, R. M.; Wang, J.; Akhter, P.; Cho, S. Y.; Natera, E.; Miah, F. K.; Dojosubroto, J.; Nguyen, M. S.: Dietary intake of seven elements of importance in radiological protection by Asian population: Comparison with ICRP data. *Health Physics* 86 (6) (2004) 557-564.
- Jackson, D.; Lambers, B.; Gray, J.: Radiation doses to the members of the public near to Sellafield, Cumbria, from liquid discharges 1952-98. *Journal of Radiological Protection / Society for Radiological Protection (UK)* 20 (2000) 139-167.
- Jacobi, W.; Paretzke, H.; Friedland, W.; Müller, H.; Pröhl, G.: Transport von Radionukliden über Nahrungsketten. Abschlußbericht (Teil1) zum Vorhaben: 'Entwicklung und Verbesserung von vier Teilmodellen für Unfallfolgerechnungen (Phase B der DRS)' (1989).
- Jacobsen, G. E.; Hotchkis, M. A. C.; Fink, D.; Child, D. P.; Tuniz, C.; Sacchi, E.; Levins, D. M.; Povinec, P. P.; Mulsow, S.: AMS measurement of  $^{129}\text{I}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  and  $^{14}\text{C}$  in underground waters from Mururoa and Fangataufa atolls. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 666-671.
- Johansen, O.; Steinnes, E.: Determination of iodine in plant material by a neutron-activation method. *Analyst* 101 (1976) 455-457.
- Johnson, J. E.; Ward, G. M.; Ennis, M. E. Jr.; Boamah, K. N.: Transfer coefficients of selected radionuclides to animal products, I. Comparison of milk and meat from dairy cows and goats. *Health Physics* 54 (1988) 161-166.
- Jopke, P.; Fleeckenstein, J.; Schnug, E.; Bahadir, M.: Spurenanalytik von Iod in Böden und Pflanzen. Analytiker Taschenbuch Bd. 15. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1997).
- Kantelo, M. V.; Tiffany, B.; Anderson, T. J.: Iodine-129 distribution in the terrestrial environment surrounding a nuclear fuel reprocessing plant after 25 years of operation. Report No. IAEA-SM-257/53P (Date not available).
- Karg, V.; Schönfeld, T.: Bestimmung von Iod- $^{129}\text{I}$  in Umweltproben aus Österreich mittels Neutro-

nenaktivierungsanalyse. Bericht Nr. OEFZS -4278 ST -141/86 des Österreichischen Forschungszentrums Seibersdorf (1986).

Karl, H.; Münkner, W.: Iodbestimmung in Fischen und Fischerzeugnissen. *Lebensmittelchemie* 51 (1997) 89.

Karl, H.; Münkner, W.: Iod in Fischen und Fischerzeugnissen. *Informationen für die Fischwirtschaft aus der Fischereiforschung* 45 (3) (1998) 115-118.

Karl, H.; Münkner, W.: Jod in marinen Lebensmitteln. *Ernährungs-Umschau* 46 (8) (1999) 288-291.

Katagiri, H.; Narita, O.; Yamato, A.; Kinoshita, M.: Low level measurements of  $^{129}\text{I}$  in environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 138 (1) (1990) 187-192.

Kaufholz, H.; Nielsen, N. E.: Kinetics of iodide uptake by plants from soil. Bericht des 'Department of Soil Fertility and Plant Nutrition', The Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen, Denmark (ca. 1982).

Kazakov, V.S.; Demidchik, E.P.; Astakhova, L.N.: Thyroid cancer after Chernobyl; *Nature* 359 (1992) 21-22.

Keisch, B.; Koch, R.; Levine, A.: Determination of biospheric levels of  $^{129}\text{I}$  by neutron activation analysis. *Modern Trends in Activation Analysis*. College Station, Texas A&M University, (1965) 284-290.

Kekli, A.; Aldahan, A.; Meili, M.; Possnert, G.; Buraglio, N.; Stepanauskaus, R.:  $^{129}\text{I}$  in Swedish rivers: distribution and sources. *The Science of the Total Environment* 309 (2003) 161-172.

Kelleher, W. J.; Michael, E. J.:  $^{129}\text{I}$  in milk. *Report, New York State Department of Environmental Conservation, Albany, New York, USA* (1973).

Keller, C.: Vorkommen und Radioökologie des langlebigen Isotops Iod-129. *Naturwissenschaftliche Rundschau* 30 (8) (1977) 293-296.

Kessel, W.: Meßunsicherheit, ein wichtiges Element der Qualitätssicherung. *PTB Mitteilungen* 108 (1998) 377-382.

Kessler, C.: Radiojod in der Kerntechnik und Nuklearmedizin, Teil I: Bedeutung in der Kerntechnik. *Chemiker Zeitung* 107 (5) (1983).

Kilius, L.; Litherland A.E.; Rucklidge, J.; Rucklidge, J.; Baba, N.: Accelerator mass spectrometric measurements of heavy long-lived elements. *Applied Radiation and Isotopes* (1992) 279-287.

Kilius, L.; Rucklidge, J.; Soto, C.: The dispersal  $^{129}\text{I}$  from the Columbia River estuary. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994) 393-397.

Kilius, L. R.; Zhao, X.; Litherland, A. E.; Purser, K. H.: Molecular fragment problems in heavy element AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 10-17.

Kirchgeßner, M.: Tierernährung. Leitfaden für Studium, Beratung und Praxis. 10. Aufl., DLG Deutsche Landwirtschaftsgesellschaft, Frankfurt (1997).

Kirchner, D.: Transportprozesse von Spurenstoffen in terrestrischen Ökosystemen. Universität

Bremen (1997).

- Kirchner, G.: Transport of iodine and caesium via the grass-cow-milk pathway after the Chernobyl accident. *Health Physics* 66 (6) (1994) 653-665.
- Kirchner, S.; Stelz, A.; Muskat, E.: Beitrag natürlicher Mineralwässer zur Iodidversorgung der Bevölkerung. *Zeitschrift für Lebensmittel-Untersuchung und -Forschung* 203 (1996) 311-315.
- Kireev, S. V.; Shnyrev, S. L.: Laser technology in global  $^{129}\text{I}$  radionuclide measurements. *Instruments and Experimental Techniques* 43 (6) (2000) 818-825.
- Koch, H.: Nachweis von Iod-129 mit Neutronenaktivierungsanalyse und Gamma-Spektrometrie. Diplomarbeit am Labor für Isotopentechnik und Strahlenschutz, Fachhochschule Hannover (1989).
- Kocher, D. C.: On the long-term-behaviour of Iodine-129 in the terrestrial environment. Report IAEA-SM-257/56 (1981).
- Kocher, D. C.: A validation test of a model for long-term retention of  $^{129}\text{I}$  in surface soils. *Health Physics* 60 (4) (1991) 523-531.
- Koch-Steindl, H.; Pröhl, G.: Considerations on the behaviour of long-lived radionuclides in the soil. *Radiation and Environmental Biophysics* 40 (2001) 93-104.
- Kohman, T.P.; Edwards, R. R.:  $^{129}\text{I}$  as a geochemical and ecological tracer. Report NYO-3624-1, Department of Chemistry, Carnegie Institute of Technology (1966).
- Kolb, C. E.: Iodine's air of importance. *Nature* 417 (2002) 597-598.
- Korde, A.; Venkatesh, M.; Sarma, H. D.; Pillai, M. R. A.: Preparation and pharmacokinetic evaluation of iodine-125 labeled alphanmethyl-L-tyrosine. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 246 (1) (2000) 173-178.
- Korzh, V. D.: Ocean as a source of atmospheric iodine. *Atmospheric Environment* 18 (12) (1984) 2707-2710.
- Koslowsky, V. T.; Andrews, H. R.; Davies, W.; Murnaghan, K.: The Chalk River AMS time-of-flight detection system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 144-147.
- Kozar, A. A.: Increasing  $^{129}\text{I}$  transmutation efficiency. *Atomic Energy* 91(2) (2001) 667-675.
- Krajewski, P.: CLRP version 4.2 manual, Concentration levels rapid prediction. In: Working Group of the BIOMOVS II study. Uncertainty and validation – Effect of user interpretation on uncertainty estimates, BIOMOVS II, Technical report No. 7, November 1996, Appendix F.
- Krajewski, P.: Evaluation and verification of dose assessment model for radioiodine and radiocaesium environmental releases. Universität Warschau (Diss.) (1999) (in Polish).
- Krajewski, P.: Ocena równowaznikow dawek obciazajacych w tarczycy dla ludnosci polski w wyniku wchlonec  $^{131}\text{I}$  po awarii w czarnobyly. Okreslenie efektu blokady tarczycy jodkiem potasu.
- Kriews, M.: Charakterisierung mariner Aerosole in der Deutschen Bucht sowie Prozessstudien zum

Verhalten von Spurenmetallen beim Übergang Atmosphäre/ Meerwasser, Dissertation, Schriftenreihe Angewandte Analytik, Institut für Anorganische und Angewandte Chemie der Universität Hamburg Nr.15 (1992) 4-6.

Kritidis, P.; Florou, H.: Radiological impact in Greece of the Chernobyl accident - a 10 year retrospective synopsis. *Health Physics* 80 (5) (2001) 440-446.

Krupp, G.; Aumann, D.: Iodine-129 in rainfall over Germany. *Journal of Environmental Radioactivity* 46 (1999) 287-299.

Kucera, J.; Randa, Z.; Soukal, L.: A comparison of three activation analysis methods for iodine determination in foodstuff. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (1) (2001) 61-65.

Kümmel, R.; Worch, E.: Adsorption aus wässrigen Lösungen, 1. Auflage, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig (1990) 18 ff.

Kulmala, M.: How particles nucleate and grow. *Science* 302 (2003) 1000-1001.

Kutschera, W.; Fink, D.; Paul, M.; Hollos, G.; Kaufman, A.: Measurement of the I-129/I-131 ratio in Chernobyl fallout. *Physica Scripta* 37 (1988) 310-313.

Landsberger, S.; Basuani, M. S.; Iskander, F.: Halogen determination in Arctic aerosols by neutron activation analysis with Compton suppression methods. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (2) (2001) 303-305.

Laßmann, M.; Schelper, L. F.; Hänscheid, H.; Biko, J.; Reiners, C.; Friedland, W.; Zankl, M.; Paretzke, H.; Hoefnagel, C.; Allen, S.; Clarke, S.; Demidchik, E. P.: Improvement of dosimetry for I-131 therapy of lung metastases with special regard to children with thyroid cancer from Belarus following the Chernobyl accident. Report, Clinic and Policlinic for Nuclear Medicine, University of Würzburg (1999).

Lefèvre, G.; Bessière, J.; Ehrhardt, J.; Walcarius, A.: Immobilization of iodide on copper(I) sulfide minerals. *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003) 73-83.

Leitner, M.; Truckenbrodt, D.; Franke, K.: Determination of iodine species in milk using ion chromatographic separation and ICP-MS detection. *European Food Research and Technology* 213 (2001) 150-153.

Lengemann, F. W.; Wentworth, R. A.: Extremes of the environmental temperature and the transfer of radioiodine into milk. *Health Physics* 36 (1979) 267-271.

Leonhardt, K.: Unser Trinkwasser - Wasserversorgung in Hamburg (2003).

Levin, I.; Münnich, K.; Weiss, W.: The effect of anthropogenic CO<sub>2</sub> and <sup>14</sup>C: sources and distribution of <sup>14</sup>C in the atmosphere, Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Radiocarbon Conference. *Radiocarbon* 22 (2) (1980) 379-391.

Lieser, K. H.: Radionuclides in the Geosphere: Sources, Mobility, Reactions in Natural Water and Interaction with Soils. *Radiochimica Acta* 70/71 (1995) 355-375.

Likhtarev, I. A.; Gulko, G. M.; Kairo, I. A.; Los, I. P.; Henrichs, K.; Paretzke, H. G.: Thyroid doses resulting from the Ukraine Chernobyl accident - Part 1: Dose estimates for the population of Kiev. *Health Physics* 66 (2) (1994) 137-146.

- Likhtarev, I.; Sobolev, B.; Kairo, I.; Tabachny, L.; Jacob, P.; Pröhl, G.; Goulko, G.: Results of large scale thyroid dose reconstruction in Ukraine. The radiological consequences of the Chernobyl accident, Hrsg: Karaoglou, A., Minsk (1996).
- Linsley, G.: The International Biosphere Modelling and Assessment programme (BIOMASS): an overview. Int. Conf. Radioactivity in the Environment, Monaco, September 1-5, 2002 (CD ROM).
- Liu Yuangfang; Guo Zhiyu; Liu Xinqi; Qu Tong; Xie Jinglin: Application of accelerator mass spectrometry in analysis of trace isotopes and elements. *Pure and Applied Chemistry* 66 (305-334) (1994).
- Liu, X.; Fhen, U.; Teng, R.: Oil formation and fluid convection in Railroad Valley, NV: a study using cosmogenic isotopes to determine the onset of hydrocarbon migration. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (356-360) (1997) 356-360.
- Lodge, J.P.; Chan, T.L.: Cascade Impactor Sampling & Data Analysis, American Industrial Hygiene Association (1986).
- Lopez-Gutierrez, J. M.; Garcia-Leon, M.; Schnabel, C.; Schmidt, A.; Michel, R.; Synal, H.; Suter, M.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in atmospheric samples by accelerator mass spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 51 (1999) 315-322.
- Lopez-Gutierrez, J. M.; Garcia-Leon, M.; Garcia-Tenorio, R.; Schnabel, C.; Suter, M.; Synal, H.; Szidat, S.:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios and  $^{129}\text{I}$  concentrations in a recent sea sediment core and in rainwater from Sevilla (Spain) by AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000a) 574-578.
- Lopez-Gutierrez, J. M.; Synal, H.; Suter, M.; Schnabel, C.; Garcia-Leon, M.: Accelerator mass spectrometry as a powerful tool for the determination of  $^{129}\text{I}$  in rainwater. *Applied Radiation and Isotopes* 53 (2000b) 81-85.
- López-Gutiérrez, J. M.; García-León, M.; Schnabel, C.; Suter, M.; Synal, H.; Szidat, S.; García-Tenorio, R.: Relative influence of  $^{129}\text{I}$  sources in a core from the Kattegat area. *Science of the Total Environment* 323 (2004) 195-210.
- Lowe, D.: Applications of AMS in the atmospheric and oceanographic sciences. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 29 (1987) 291-296.
- Machado, E. C.; Bellido, L. F.; Bellido Jr., A. V.: Separation of iodine species by adsorption chromatography. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (3) (2001) 653-656.
- Magno, P.; Reavey, T.; Apitianakis, J.: Iodine-129 in the environment around a nuclear fuel reprocessing plant. U.S. Environmental Protection Agency, Report Nr. ORP/SID 72-5.
- Maqsood, M.: In vitro  $^{131}\text{I}$  uptake by tissues. *The Medicus* 26 (6) (1963) 265-284.
- Marchetti, A. A.; Gu, F.; Robl, R.; Straume, T.: Determination of total iodine and sample preparation for AMS measurement of  $^{129}\text{I}$  in environmental matrices. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 352-355.
- Markham, O. D.; Hakonson, T. E.; Whicker, F. W.; Morton, J. S.: Iodine- $^{129}\text{I}$  in mule deer thyroids in the rocky mountain west. *Health Physics* 45 (1) (1983) 31-37.

- Martin, F. X.; Raisbeck, G. M.; Yiou, F.: Measurement of carrier free  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  in environmental samples by Accelerator Mass Spectrometry. *Mineralogical Magazine* 62A (1998) 953-954.
- Meili, M.:  $^{129}\text{I}$  in arctic freshwaters: local or global sources? Konferenzband: The 5<sup>th</sup> International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic, St. Petersburg, Russia (2002).
- Melchert, H.; Görsch, B.; Thierfelder, W.: Gebrauch von Schilddrüsentherapeutika und Schilddrüsenhormon-Status. Eine vergleichende Auswertung von Verwendern und Nicht-Verwendern von Schilddrüsentherapeutika unter den Probanden der drei Nationalen Surveys (NUS T0, T1, T2, sowie des Survey-Ost). Robert Koch Institut Berlin (2002).
- Melick, R.; Van Middlesworth, L.: Thyroid I-131 content of Victorian lambs in relation to nuclear weapon tests. *The Medical Journal of Australia* (1959) 664-665.
- Melick, R.; Van Middlesworth, L.: Radio-Iodine fallout in Australian sheep. *The Medical Journal of Australia* 2 (1966) 930.
- Melick, R.; Van Middlesworth, L.: Radioiodine in animal thyroid glands from 1966-1972. *The Medical Journal of Australia* 1 (1974) 289-301.
- Meloni, S.; Nogara, G.; Queirazza, G.: Iodine radionuclides in environmental samples: a procedure for their assay. *Journal of Trace and Microprobe Techniques* 3 (1985) 221-235.
- Melquiades, F. L.; Appoloni, C. R.: Self-absorption correction for gamma spectrometry of powdered milk samples using Marinelli beaker. *Applied Radiation and Isotopes* 55 (2001) 697-700.
- Michalke, B.; Schramel, P.; Hasse, S.: Separation of free iodine from other iodine-species in human serum - Quantification in serum pools and individual samples. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* 354 (1996) 576-579.
- Michel, R.: Actual Problems of Radioecology: Long-lived radionuclides - natural and man-made tracers in the environment. Report, Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover (1996).
- Michel, R.: Long-lived radionuclides as tracers in terrestrial and extraterrestrial Matter. *Radiochimica Acta* 87 (1999) 47-73.
- Michel, R.: Was ist und wofür benötigt man die realistische Ermittlung der Strahlenexposition? Klausurtagung des Radioökologieausschusses der SSK, 25./26.11.2003, Eltville (2003).
- Michel, R.; Kirchhoff, K.: Quantifying Uncertainty and Calculation of Detection Limits, Decision Thresholds and Confidence Limits in Nuclear Analytical Techniques. *IAEA Regional Advanced Training Course on Quality Management in Environmental Applications of Nuclear Analytical Techniques*, FTU Karlsruhe (1999).
- Michel, R.; Szidat, S.; Handl, J.; Jakob, D.; Synal, H.; Suter, M.: Status and trends of iodine-129 abundances in the European environment. Proceedings IRPA10, CD-ROM, Code P-4a-229, Hiroshima, May 14-19 (2000).
- Michel, R.; Ernst, T.; Jakob, D.; Klipsch, K.; Szidat, S.; Synal, H.; Schnabel, C.: Long-lived radionuclides in the environment: The case of iodine-129. Konferenzband: EUROSAFE 2002, Berlin (2002a).

- Michel, R.; Ernst, T.; Szidat, S.; Schnabel, C.; Synal, H.: Iodine-129 as a long-lived tracer in the environment. Proceedings Int. Conf. on the Study of Environmental Change using Isotope Techniques, Wien, 23.-27.4 2001, IAEA-CSP 13/P, IAEA, Wien (2002b) 336-345.
- Michel, R.; Handl, J.; Ernst, T.; Botsch, W.; Szidat, S.; Schmidt, A.; Jakob, D.; Beltz, D.; Romantschuk, L.; Synal, H.; Schnabel, C.; López-Gutiérrez, J.: Fallout and migration of iodine-<sup>129</sup>I in contaminated areas of Northern Ukraine (extended abstract). Int. Conf. Radiactivity in the Environment, Monaco, September, 1-5, 2002 (CD-ROM), (2002c).
- Michel, R.; Ernst, T.; Szidat, S.; Schnabel, C.; Synal, H.: Langfristige Entwicklung vom Iod-129 in der Umwelt. Klausurtagung der Strahlenschutzkommission 2001, 49 (BMU), München (2003a) 26-56.
- Michel, R.; Handl, J.; Ernst, T.; Botsch, W.; Szidat, S.; Schmidt, A.; Jakob, D.; Beltz, D.; Romantschuk, L. D.; Synal, H.; Schnabel, C.; Lopez-Gutierrez, J. M.: Iodine-129 in soils from Northern Ukraine and the retrospective dosimetry of the iodine-131 exposure after the Chernobyl accident. *Science of the Total Environment* (2003b) im Druck.
- Michel, R.; Huthmacher, K.-E.; Landfermann, H.-H.: Assessment of the human impact on the abiotic environment - indicators for a sustainable development. International Conference on Protection of the Environment from the Effects of Ionizing Radiation. Stockholm, 6-10 October 2003, Contributed papers, IAEA-CN-109, IAEA, Vienna (2003c) p. 263 – 266.
- Michel, R.; Huthmacher, K.-E.; Landfermann, H.-H.: Protection of the abiotic environment. Proceedings IRPA 11, 23.-28.05.2004, Proceedings CD (2004) paper 2h10.
- Michels, K.; Siegfried, R.; Jensen, D.: Iod-Bestimmung in Futtermitteln mit Ionenchromatographie nach oxidativem Druckaufschluss. Konferenzband: Goldschmidt Conference, Toulouse (1998).
- Mironov, V.; Kudriaschov, V.; Krivomas, M.; Drugatschenok, M.; Schmura, G.; Yiou, F.; Raisbek, G.; Gall, P.: Application of <sup>129</sup>I as indicator for the reconstruction of the <sup>131</sup>I content in human thyroid glands as a consequence of the Chernobyl accident, ed. IRP-2 (in Russian). Minsk (1999).
- Mironov, V.; Kudrjashov, V.; Yiou, F.; Raisbeck, G. M.: Use of <sup>129</sup>I and <sup>137</sup>Cs in soils for the estimation of <sup>131</sup>I deposition in Belarus as a result of the Chernobyl accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 59 (2002) 293-307.
- Miyake, Y.; Tsunogai, S.: Evaporation of iodine from the ocean. *Journal of Geophysical Research* 68 (1963) 3989-3993.
- Moeller, D. W.; Ryan, M. T.: Limitations on upper bound dose to adults due to intake of <sup>129</sup>I in drinking water and a total diet - implications relative to the proposed Yucca Mountain high level radioactive waste repository. *Health Physics* 86 (6) (2004) 586-589.
- Mölders, N.: Einfache und akkumulierte Landnutzungsänderungen und ihre Auswirkungen auf Evapotranspiration, Wolken- und Niederschlagsbildung. Wissenschaftliche Mitteilungen aus dem Institut für Meteorologie der Universität Leipzig und dem Institut für Troposphärenforschung e. V. Leipzig, Band 15 (1999).
- Monte, L.: Evaluation of the environmental transfer parameters for <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs using the contamination produced by the Chernobyl accident at a site in central Italy. *J. Environmental Radioactivity* 12 (1990) 13-22.

- Monte, L.: A general methodology for structuring models to predict the long-term migration of radionuclides from catchments. *Journal of Environmental Radioactivity* 59 (2002) 153-168.
- Moran, J.; Fehn, U.; Hanor, J.: Determination of source ages and migration patterns of brines from the US Gulf Coast Basin using I-129. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 59(24) (1995) 5055-5069.
- Moran, J. E.: Origin of Iodine in the Anadarko Basin, Oklahoma: an I-129 Study. *AAPG Bulletin* 80(5) (1996) 685-694.
- Moran, J. E.; Fehn, U.; Teng, R. T. D.: Variations in  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component. *Chemical Geology* 152 (1998) 193-203.
- Moran, J. E.; Oktay, S.; Santschi, P. H.; Schink, D. R.: Atmospheric Dispersal of  $^{129}\text{I}$  from nuclear reprocessing facilities. *Environmental Science and Technology* 33(15) (1999) 2536-2542.
- Morell, W.; Neeb, K. H.: Behaviour of fission-product iodine under severe accident conditions. *Kerntechnik* 53 (1988) 69-74.
- Müller, H.; Pröhl, G.: ECOSYS-87: A dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents. *Health Physics* 64 (1993) 232-252.
- Müller-Brunecker, G.: Zum Verhalten von Cäsium, Strontium, Iod und einiger Transurane in Nutztieren. Bericht Nr. GSF S-935 der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München (1982).
- Muramatsu, Y.; Christoffers, D.; Ohmomo, Y.: Influence of chemical forms on iodine uptake by plant. *Journal of Radiation Research* 24 (1983a) 326-338.
- Muramatsu, Y.; Sumiya, M.; Ohmomo, Y.: Stable iodine contents in human milk related to dietary algae consumption. *Hoken Butsuri* 18 (1983b) 113-117.
- Muramatsu, Y.; Ohmomo, Y.; Christoffers, D.: Neutron activation analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 83(2) (1984) 353-361.
- Muramatsu, Y.; Uchida, S.; Sumiya, M.; Ohmomo, Y.: Iodine separation procedure for the determination of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in soil by neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 94 (5) (1985) 329.
- Muramatsu, Y.; Ohmomo, Y.: Iodine-129 and Iodine-127 in environmental samples collected from Tokaimura/Ibaraki, Japan. *The Science of the Total Environment* 48 (1986) 33-43.
- Muramatsu, Y.; Ohmomo, Y.; Sumiya, M.: Determination of Iodine-129 and Iodine-127 in environmental samples collected in Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 123 (1) (1988) 181.
- Muramatsu, Y.; Sumiya, M.; Yanagisawa, K.; Ohmomo, Y.: Toxic and trace elements in foodstuff in Japan. Working paper prepared for the third IAEA RCM on 'Nuclear Techniques for Toxic Elements in Foodstuffs' Jakarta (Indonesien) (1989a).
- Muramatsu, Y.; Uchida, S.; Sumiya, M.; Ohmomo, Y.; Obata, H.: Tracer Experiments on Transfer of radio-iodine in the soil-rice plant system. *Water, Air and Soil Pollution* 45 (1989b) 157-

- Muramatsu, Y.; Uchida, S.; Ohmomo, Y.: Determination of I-129 and I-127 in soil and tracer experiments on the adsorption of iodine on soil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 138 (2) (1990a) 377-384.
- Muramatsu, Y.; Uchida, S.; Sriyotha, P.; Sriyotha, K.: Some considerations on the sorption and desorption phenomena of iodine and iodate on soil. *Water, Air, and Soil Pollution* 49 (1990b) 125-138.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Simple separation method for the determination of iodine in environmental samples by neutron activation analysis. *Konferenzband: International Trace Analysis Symposium, Sendai and Kiryu (Japan) (1990c) 23-28.*
- Muramatsu, Y.; Uchida, S.; Yoshida, S.: Radiotracer experiments on the desorption of iodine from paddy soil with and without rice plants. *Radioisotopes* 40 (1991a) 440-443.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Neutron activation analysis of iodine in soil. *Konferenzband: 8th international conference on modern trends in activation analysis, Wien (1991b).*
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Neutron activation analysis of iodine in soil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 169 (1) (1993) 73-80.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.; Ban-Nai, T.: Tracer experiments on the behaviour of radioiodine in the soil-plant-atmosphere system. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 194 (2) (1995a) 303-310.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Determination of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in environmental samples by neutron activation analysis (NAA) and inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 197 (1) (1995b) 149-159.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Volatilization of methyl iodide from The Soil-Plant System. *Atmospheric Environment* 29 (1) (1995c) 21-25.
- Muramatsu, Y.; Uchida, S.; Sumiya, M.; Ohmomo, Y.: Deposition velocity of gaseous organic iodine from the atmosphere to rice plants. *Health Physics* 71 (5) (1996a) 757-762.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.; Uchida, S.: Iodine Desorption From Rice Paddy Soil. *Water, Air, and Soil Pollution* 86 (1996b) 359-371.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Behaviour of Iodine- $^{129}\text{I}$  in the soil-plant-system. *Mitteilungen der Österreichischen Bodenkundlichen Gesellschaft* 53 (1996c) 207-214.
- Muramatsu, Y.; Wedepohl, K.: The distribution of iodine in the earth's crust. *Chemical Geology* 147 (1998) 201.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.: Effects of microorganisms on the fate of iodine in the soil environment. *Geomicrobiology Journal* 16 (1999) 85-93.
- Muramatsu, Y.; Rühm, W.; Yoshida, S.; Tagami, K.; Uchida, S.; Wirth, E.: Concentrations of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30-Km zone. *Environmental science & technology* 34 (2000) 2913-2917.
- Muramatsu, Y.; Fehn, U.; Yoshida, S.: Recycling of iodine in fore-arc areas: evidence from the io-

- dine brines in Chiba, Japan. *Earth and Planetary Science Letters* 5985 (2001a) 1-11.
- Muramatsu, Y.; Yoshida, S.; Fehn, U.; Amachi, S.; Ohmomo, Y.: Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment. *Journal of Environmental Radioactivity* 74 (2004) 221-232.
- Myasoedov, B. F.: Century of Radiochemistry: History and Future. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences* 1 (1) (2000) 23-26.
- Napier, B. A.; Peloquin, R. A.; Streng, D. L.; Ramsdell, J. V.: GENII – The Hanford Environment Radiation Dosimetry Software System, Report PNL-6584, Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington (1988).
- Navarrete, M.; Gaudry, A.; Cabrera, L.; Martinez, T.: Concentration of iodine traces in solution by filtering through activated carbon. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 251 (2) (2002) 297-298.
- Nazari, K.; Ghannadi-Maragheh, M.; Shamsaii, M.; Khalafi, H.: A new method for separation of  $^{131}\text{I}$ , produced by irradiation of natural uranium. *Applied Radiation and Isotopes* 55 (2001) 605-608.
- NCRP: A guide for uncertainty analysis in dose and risk assessments related to environmental contamination. NCRP Bethesda (1996).
- NEA: Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, NEA/OECD, Paris (1999).
- NEA: GEOTRAP: Radionuclide Migration in Geologic, Heterogeneous Media. Summary of Accomplishments. NEA/OECD, Paris (2002).
- Neck, C.: Der Transfer von stabilem Iod über den Weide-Kuh-Milch-Pfad. Universität Karlsruhe (Diss.) (1989).
- Nedveckaitė, T.; Motiejunas, S.; Kucinskas, V.; Mazeika, J.; Filistovic, V.; Jusciene, D.; Maceika, E.; Morkeliunas, L.; Hamby, D. M.: Environmental releases of radioactivity and the incidence of thyroid disease at the Ignalina nuclear power plant. *Health Physics* 79 (6) (2000) 666-674.
- Nemeth, J.; Oroszi, G.; Jakab, B.; Magyarlaki, M.; Szilvassy, Z.; Röth, E.; Farkas, B.:  $^{125}\text{I}$ -labeling and purification of peptide hormones and bovine serum albumin. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 251 (1) (2002) 129-133.
- Ng, Y.C.; Colsher, C.S.; Thompson, S.E.: Transfer coefficients for assessing the dose from radionuclides in meat and eggs. Final report to USNRC, NUREG/CR-2976, UICD-19464, Lawrence Livermore National Lab., CA (1982).
- Nishizawa, K.; Takata, K.; Hamada, N.; Ogata, Y.; Kojima, S.; Takeshima, K.: Monitoring of  $^{131}\text{I}$  in milk and rain water in Japan following the reactor accident at Chernobyl and estimates of human thyroidal dose equivalents. *Health Physics* 55 (5) (1988) 773-777.
- NLÖ, Webseite des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie, [www.nloe.de](http://www.nloe.de), [Stand 01.07.2004].
- North, D. L.; Shearer, S. R.; Hennessey, J. V.; Donovan, G. L.: Effective Half-Life of  $^{131}\text{I}$  in thyroid cancer patients. *Health Physics* 81 (3) (2001) 325-329.
- Nyarko, B. J. B.; Serfor-Armah, Y.; Osae, S.; Akaho, E. H. K.; Anim-Sampong, B.; Maakuu, B. T.:

- Epiboron instrumental neutron activation analysis for the determination of iodine in various salt samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 251 (2) (2002) 281-284.
- O'Dowd, C. D.; Jimenez, J. L.; Bahreini, R.; Flagan, R. C.; Seinfeld, J. H.; Hämeri, K.; Pirjola, L.; Kulmala, M.; Jennings, S. G.; Hoffmann, T.: Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions. *Nature* 417 (2002) 632-636.
- Ohno, S.: Simple and rapid determination of iodine in milk by radioactivation analysis. *Analyst* 105 (1980) 246-250.
- Oliver, L. L.; Ballad, R. V.; Manuel, O. K.:  $^{129}\text{I}$  in Missouri thyroids. *Health Physics* 42 (4) (1982) 425-432.
- OSPAR: OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic (1992).
- Papadopoulus, D.; Thomas, P.: Verhältnis der Dosisfaktoren der Iodisotope. Bericht Nr. KfK-2544, Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe (1977).
- Parker, T.: (BNFL), priv. comm. with C. Schnabel, May 11, 2001.
- Parry, S. J.: Determination of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios in environmental samples using neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 248 (1) (2001) 137-141.
- Parry, S. J.; Bennett, B.; Benzing, R.; Lally, A.; Birch, C.; Fulker, M.: The determination of  $^{129}\text{I}$  in milk and vegetation using neutron activation analysis. *The Science of the Total Environment* 173/174 (1995) 351.
- Paul, M.; Fink, D.; Hollos, G.; Kaufman, A.; Kutschera, W.; Mararitz, M.: measurement of iod-129 concentration in the environment after the Chernobyl reactor accident. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 29 (1987) 341-345.
- Pel, E.: Zum Verhalten von Iod im System Boden-Pflanze-Luft. Bericht Nr. KfK 5118, Kernforschungszentrums Karlsruhe, Karlsruhe (1993).
- Peterson, S.; Hoffman, F. O.; Köhler, H.: Summary of the BIOMOVs A4 Scenario: Testing models of the air-pasture-cow milk pathway using Chernobyl fallout data. *Health Physics* 71 (2) (1996) 149-159.
- Pietrzak-Flis, Z.; Krajewski, P.; Radwan, I.; Muramatsu, Y.: Retrospective evaluation of  $^{131}\text{I}$  deposition density and thyroid dose in Poland after the Chernobyl accident. *Health Physics* 84 (6) (2003) 698-708.
- Povinec, P. P.: AMS measurement of  $^{14}\text{C}$  and  $^{129}\text{I}$  in seawater around radioactive waste dump sites. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 672-678.
- Povinec, P. P.; La Rosa, J. J.; Lee, S. H.; Mulsow, S.; Osvath, I.; Wyse, E.: Recent developments in radiometric and mass spectrometry methods for marine radioactivity measurements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 248 (3) (2001) 713-718.
- Proctor, I.; Southon, J.; Roberts, M.: Development of  $^{129}\text{I}$  AMS for the LLNL spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994) 92-95.
- Pröhl, G.: Modellierung der Radionuklidverbreitung in Nahrungsketten nach Deposition von Stron-

tium-90, Cäsium-137 und Iod-131 auf landwirtschaftlich genutzten Flächen. Bericht Nr. 29/90 des Instituts für Strahlenschutz, Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Neuherberg (1991).

- Quintana, E. E.; Thyssen, S. M.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in conifer samples around nuclear facilities in Argentina. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 245 (3) (2000a) 545-550.
- Quintana, E. E.; Thyssen, S. M.: Determination of iodine-129 samples of conifers collected in Argentina. Konferenzband: IRPA 10, Hiroshima, Japan (2000b).
- Rahn, K.A. et. al. : Tropospheric halogen gases: inorganic and organic components, *Science* 192 (1976) 549-550.
- Rädlinger, G.; Heumann, K. G.: Determination of halogene species of humic substances using HPLC/ICP-MS coupling. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* 359 (1997) 430-433.
- Raisbeck, G. M.: Use of  $^{129}\text{I}$  as an oceanographic tracer in the Nordic Seas. Konferenzband: The 5th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic, St. Petersburg (Russia) (2002).
- Raisbeck, G.; Yiou, F.; Zhou, Z.; Kilius, L.:  $^{129}\text{I}$  from nuclear fuel facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer. *Journal of Marine Systems* 6 (1995) 561-570.
- Raisbeck, G.; Yiou, F.; Eymas, C.; Lestringuez, J.: The new heavy ion at Gif-sur-Yvette AMS facility. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 170-176.
- Raja, E.; Babcock, K. L.: On the soil chemistry of radio-iodine. *Soil Science* 91 (1961) 1-5.
- Rancon, D.: Comparative Study of Radioactive Iodine Behavior in Soils under Various Experimental and Natural Conditions. *Radiochimica Acta* 44/46 (1988) 187-193.
- Rao, R. R.; Chatt, A.: Microwave acid digestion and preconcentration neutron activation analysis of biological and diet samples of iodine. *Analytical Chemistry* 63 (1991) 1298-1303.
- Rao, R. R.; Chatt, A.: Determination of nanogram amounts of iodine in foods by radiochemical neutron activation analysis. *Analyst* 118 (1993) 1247-1251.
- Rao, R. R.; Holzbecher, J.; Chatt, A.: Epithermal instrumental neutron activation analysis of biological reference materials for iodine. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* 352 (1995) 53-57.
- Rao, U.; Fehn, U.: The distribution of I-129 around West-Valley, an inactive nuclear fuel reprocessing facility in Western New York. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 361-366.
- Rao, U.; Fehn, U.: Sources and reservoirs of anthropogenic iodine-129 in Western New York. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 63 (1999) 1927-1938.
- Rao, U.; Fehn, U.; Muramatsu, Y.; McNeil, H.; Sharma, P.; Elmore, D.: Tracing the history of nuclear releases: Determination of  $^{129}\text{I}$  in tree rings. *Environmental Science and Technology* 36(6) (2002) 1271-1275.
- Reithmeier, H.; Lazarev, V.; Rühm, W.; Blinov, W.; Huber, T.; Kubo, T.; Nolte, E.: I-131 dose

- reconstruction in the former Soviet-Union (FSU) by measurement of I-129. Im Jahresbericht des Beschleunigerlaboratoriums der Universität und der Technischen Universität München (2001).
- Robens, E.: Zum Verhalten des langlebigen Spaltprodukts Iod-<sup>129</sup>I in der Biosphäre und die Strahlenbelastung des Menschen. Rheinische Friedrich-Wilhelms Universität Bonn (Diss.) (1986).
- Robens, E.; Aumann, D.: Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: I. <sup>129</sup>I and <sup>127</sup>I contents of soils, food crops and animal products. *Journal of Environmental Radioactivity* 7 (1988) 159.
- Robens, E.; Hauschild, J.; Aumann, D.: Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: II. Iodine-129 and iodine-127 contents of soils, forage plants and deer thyroids. *Journal of Environmental Radioactivity* 7 (1988a) 265-274.
- Robens, E.; Hauschild, J.; Aumann, D.: Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: III. Soil-to-plant concentration factors for iodine-129 and iodine-127 and their transfer factors to milk, eggs and pork. *Journal of Environmental Radioactivity* 8 (1988b) 37-52.
- Robens-Palavinskas, E.; Hauschild, J.; Aumann, D. C.: Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VI. Comparison of measurements of <sup>129</sup>I concentrations in soil and vegetation with predictions from a radiological assessment model. *Journal of Environmental Radioactivity* 10 (1989) 67-78.
- Roberts, M. L.; Caffee, M. W.; Proctor, I. D.: <sup>129</sup>I interlaboratory comparison. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 367-370.
- Roberts, M.; Caffee, M. W.: <sup>129</sup>I interlaboratory comparison: Phase II results. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 388-394.
- Robertson, D. E.; Cataldo, D. A.; Napier, B. A.; Krupka, K. M.; Sasser, L. B.: Literature Review and Assessment of Plant and Animal Transfer Factors Used in Performance Assessment Modeling. Richland, (2003).
- Robl, R.; Voigt, G.; Paretzke, H. G.: Rekonstruktion der Schilddrüsenedosis für Kinder mit Schilddrüsenkrebs in Weißrussland. Bericht Nr. 24/97 des Instituts für Strahlenschutz, GSF Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg (1997).
- Rucklidge, J.; Kilius, L.; Fuge, R.: <sup>129</sup>I in moss down-wind from the Sellafield nuclear fuel reprocessing plant. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994) 417-420.
- Saas, A.: Iodkreislauf in der Umwelt - Versuchseinrichtungen zur Untersuchung des Kreislaufs von Iod-129 aus einer Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe - Teilbilanz für Boden und Pflanzen. Karlsruhe (1978).
- Saas, A.; Grauby, A.: An approach to investigations of the behaviour of iodine-129 in the atmosphere-soil-plant system. *Health Physics* 31 (1976) 21-26.
- Salbu, B.; Skipperud, L.; Germain, P.; Guéguéniat, P.; Strand, P.; Lind, O. C.; Christensen, G.: Radionuclide speciation in effluent from La Hague Reprocessing Plant in France. *Health Physics* 85 (3) (2003) 311-322.
- Santschi, P. H.; Schink, D. R.; Corapcioglu, O.; Oktay-Marshall, S.; Fehn, U.; Sharma, P.: Evidence

for elevated levels of iodine-129 in the Deep Western Boundary Current in the Middle Atlantic Bight. *Deep-Sea Research I* 43 (2) (1996) 259-265.

Santschi, P. H.; Schwehr, K. A.:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  as a new environmental tracer or geochronometer for biogeochemical or hydrodynamic processes in the hydrosphere and geosphere: the central role of organo-iodine. *Science of the Total Environment* 321 (2004) 257-271.

Sattler, B.: Zur Messung der Aktivitätsverteilung bei der Radioiodtherapie der Schilddrüse. Technische Universität Ilmenau (Diss.) (1999).

Schäfer, M.: Iod-Dynamik im Boden. Technische Universität München (Diss.) (1994).

Scheffer, F.; Schachtschnabel, P.: Lehrbuch der Bodenkunde, 14., neu bearbeitete und erweiterte Auflage, Ferdinand Enke Verlag (1998).

Schink, D. R.; Santschi, P. H.; Corapcioglu, O.; Fehn, U.: Prospects for "iodine-129 dating" of marine organic matter using AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 99 (1995a) 524-527.

Schink, D. R.; Santschi, P. H.; Corapcioglu, O.; Sharma, P.; Fehn, U.:  $^{129}\text{I}$  in Gulf of Mexico waters. *Earth and Planetary Science Letters* 135 (1995b) 131-138.

Schmidt, A.: Iod-129 und stabiles Iod in Umweltproben - Qualitätskontrolle von Analysemethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie. Universität Hannover (Diss.) (1998).

Schmidt, A.; Schnabel, C.; Handl, J.; Jakob, D.; Michel, R.; Synal, H.; Lopez, J.; Suter, M.: On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography. *The Science of the Total Environment* 233 (1998) 131-156.

Schmitz, K.; Aumann, D. C.: Why are the soil-to-pasture transfer factors, as determined by field measurement, for  $^{127}\text{I}$  Lower than for  $^{129}\text{I}$ . *Journal of Environmental Radioactivity* 24 (1994) 91-100.

Schmitz, K.; Aumann, D. C.: A Study on the association of two iodine isotopes, of natural  $^{127}\text{I}$  and of the fission product  $^{129}\text{I}$ , with soil components using a sequential extraction procedure. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 198 (1) (1995) 229-236.

Schnabel, C.; Leya, I.; Michel, R.; Csikai, J.; Dezso, Z.; Lopez-Gutierrez, J. M.; Synal, H.: Non-destructive and radiochemical determination of the neutron-induced production cross section of I-129 from Te and other neutron-induced cross sections on Te at 14.7 MeV. *Radiochimica Acta* 88 (8) (2000) 439-443.

Schnabel, C.; Lopez-Gutierrez, J. M.; Szidat, S.; Sprenger, M.; Wernli, H.; Beer, J.; Synal, H.: On the origin of  $^{129}\text{I}$  in rain water near Zürich. *Radiochimica Acta* 89 (2001a) 815-822.

Schnabel, C.; Lopez-Gutierrez, M.; Szidat, S.; Beer, J.; Synal, H.: Iod-129 in der Hydrosphäre und speziell im Niederschlag in Mitteleuropa, Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz: Jahresbericht 2000. (2001b).

Schnell, D.: Stabiles Iod und das langlebige radioaktive Spaltprodukt Iod- $^{129}\text{I}$  in Böden in Deutschland (Diss.). Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (Diss.) (1997).

Schnetger, B.; Muramatsu, Y.: Determination of halogens, with special reference to iodine, in geo-

- logical and biological samples using pyrohydrolysis for preparation and inductively coupled plasma mass spectrometry and ion chromatography for measurement. *Analyst* 121 (1996) 1627-1631.
- Schüttelkopf, H.: Die Radioökologie von Iod-129. *KFK Nachrichten* 7 (4) (1975) 14-20.
- Schüttelkopf, H.: Der Iodtransfer Boden/Pflanze. Der Bundesminister des Inneren (Hrsg.): Statusbericht über den Transfer von Radionukliden. (1980).
- Schwarz, G.; Hoffmann, F.: Impression of dose prediction for radionuclides released to the environment: An application of a Monte Carlo simulation technique. *Environment International* 4 (1980) 289-297.
- Schwehr, K. A.; Santschi, P. H.: Sensitive determination of iodine species, including organo-iodine, for freshwater and seawater samples using high performance liquid chromatography and spectrophotometric detection. *Analytica Chimica Acta* 224361 (2003) 1-13.
- Seewald, H.: Gleichzeitige Bestimmung von Chlorid-, Bromid-, Iodid- und Borspuren sowie Iodspeziesanalytik in Wässern durch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse. Universität Regensburg (Diss.) (1986).
- Seki, R.; Hatano, T.: Isotopic ratios of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  in mammalian thyroid glands in Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 182 (1994) 157-163.
- Serfor-Armah, Y.; Nyarko, B. J. B.; Carboo, D.; Osa, E. K.; Anim-Sampong, S.; Akaho, E. H. K.: Instrumental neutron activation analysis of iodine levels in fourteen seaweed species from the coastal belt of Ghana. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 245 (2) (2000) 443-446.
- Shaeffer, D. L.: A two-compartment model for transport of  $^{131}\text{I}$  via the pasture-cow-milk pathway. *Health Physics* 41 (1981) 155-164.
- Sharma, P.; Elmore, D.; Miller, T.; Vogt, S.: The  $^{129}\text{I}$  AMS program at PRIME Lab. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997) 347-351.
- Sheppard, M. I.; Thibault, D. H.: Chemical behaviour of iodine in organic and mineral soils. *Applied Geochemistry* 7 (1992) 265-272.
- Sheppard, S. C.: An index of radioecology, what has been important? *Journal of Environmental Radioactivity* 69 (2003a) 1-10.
- Sheppard, S. C.: Interpolation of solid/liquid partition coefficients,  $K_d$ , for iodine in soils. *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003b) 21-27.
- Shi, J.; Gäggeler, H. W.; Görlich, W.; Wagner, M.; Synal, H.; Suter, M.:  $^{129}\text{I}$  determination in primary reactor water. Bericht Nr. TM-32-92-31 des PSI Paul Scherrer Institutes (1992).
- Shinonaga, T.; Gerzabek, M. H.; Strebl, F.; Muramatsu, Y.: Transfer of iodine from soil to cereal grains in agricultural areas of Austria. *The Science of the Total Environment* 267 (2001) 33-40.
- Shiraishi, K.; Muramatsu, Y.; Los, I. P.; Korzun, V. N.; Tsigankov, N. Y.; Zamostyan, P. V.: Estimation of dietary iodine and bromine intakes of Ukrainians. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 242 (1) (1999) 199-202.

- Simon, R.; Tietge, J. E.; Michalke, B.; Degits, S.; Schramm, K.: Iodine species and the endocrine system: thyroid hormone levels in adult *Danio rerio* and developing *Xenopus laevis*. *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 372 (2002) 481-485.
- Simpkins, A. A.; Hamby, D. M.: Uncertainty in transport factors used to calculate historical dose from I-131 releases at the Savannah River site. *Health Physics* 85 (2) (2003) 194-203.
- Simpkins, A. A.; Hamby, D. M.: Reply to Hoffman et al. (2004). *Health Physics* 86(5) (2004) 538-539.
- Simpson, K.; Parry, S. J.; Fulker, M.: Determination of the loss of  $^{129}\text{I}$  from milk during storage using neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (1) (2001) 89-94.
- Slavov, V. P.; Didukh, M. I.; Borshenko, V. V.; Malarchiuk, P. M.; Michel, R.; Handl, J.: Vertical migration of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{129}\text{I}$  Chernobyl's origin in turf-podsol soils of Ukrainian Polissya. *News of Agrarian Sciences - Kiev: Agrarna nauka, Special issue, August 1997, 27 - 30* (in Ukrainian). (1999).
- Snyder, S.F.; Farris, W.T.; Napier, B.A.; Ikenberry, T.A.; Gilbert, R.O.: Parameters used in the environmental pathways and radiological dose modules (DESCARTES, CIDER and CRD Codes) of the Hanford Environmentatl Dose Reconstruction Integrated Codes (HEDRIC). PNWD-2033 HEDR, Rev. 1, Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington (1994).
- Snyder, G. T.; Fehn, U.:  $^{129}\text{I}$  in volcanic fluids: Testing for the presence of marine sediments in the Central American volcanic arc. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 568-573.
- Snyder, G. T.; Fehn, U.; Goff, F.: Iodine isotope ratios and halide concentrations in fluids of the Satsuma-Iwojima Volcano, Japan. *Earth Planets Space* 54 (2002) 265-273.
- Soldat, J. K.: The relationship between  $^{131}\text{I}$  concentrations in various environmental samples. *Health Physics* 9 (1963) 1167-1171.
- Soldat, J. K.: Radiation doses from iodine-129 in the environment. *Health Physics* 30 (1976) 61-70.
- Stärk, H.; Mattusch, J.; Wennrich, R.; Mroczek, A.: Investigations on the IC-ICP-MS determination of iodine species with reference to sample digestion procedures. *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* 359 (1997) 371-374.
- Staven, L.H.; Rhoads, K.; Napier, B.A.; Strenge, D.L.: A compendium of transfer factors for agricultural and animal products. PNNL-13421, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington (2003).
- Steier, P.; Puchegger, S.; Golser, R.; Kutschera, W.; Priller, A.; Rom, W.; Wallner, A.; Wild, E.: Developments towards a fully automated AMS system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 161-163 (2000) 250-254.
- Stewart, S. P.; Wilkins, B. T.: Areal distribution of  $^{129}\text{I}$  in West Cumbrian soils. Report of the 'National Radiological Protection Board', Chilton, Didcot, Oxon, OX11 ORQ (United Kingdom) (Date not available).
- Strachnov, V.; Valkovich, V.; Danesi, P. R.; Larosa, J.; Dekner, R.; Zeisler, R.: Intercomparison run IAEA-375: Determination of radionuclides in soil sample IAEA-375. Preliminary report. Vi-

enna, Dec. 1993 (1993).

- Straume, T.; Marchetti, A.; Anspaugh, L.; Khrouch, V.; Gavrilin, Y.; Shinkarev, S.; Drozdovitch, V.; Ulanovsky, A.; Korneev, S.; Brekeshev, M.; Leonov, E.; Voigt, G.; Panchenko, S.; Mimenko, V.: The feasibility of using  $^{129}\text{I}$  to reconstruct  $^{131}\text{I}$  deposition from the Chernobyl reactor accident. *Health Physics* 71 (5) (1996) 733-740.
- Strebin, R. S. j.; Brauer, F.; Kaye, J. H.; Rapids, M. S.; Stoffels, J. J.: Neutron activation and mass spectrometric measurement of  $^{129}\text{I}$ . *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* 127 (1988) 59-73.
- Studier, M. H.; Postmus Jr., C.; Mech, J.; Walters, R. R.; Sloth, E. N.: The use of  $^{129}\text{I}$  as an isotopic tracer and its determination along with normal  $^{127}\text{I}$  by neutron activation analysis - the isolation of iodine from a variety of materials. *Journal of Inorganic Nuclear Chemistry* 24 (1962) 755-761.
- Svancara, I.; Ogoreve, B.; Novic, M.; Vytras, K.: Simple and rapid determination of iodine in table salt by stripping potentiometry at a carbon-paste electrode. *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 372 (2002) 795-80.
- Synal, H. A.; Beer, J.; Bonani, G.; Suter, M.; Wölfli, W.: Atmospheric transport of bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$ . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 52 (1990) 483.
- Szidat, S.: Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien. Universität Hannover (Diss.) (2000). Online im Internet: <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e002/32217211X.pdf> [Stand 14.7.04].
- Szidat, S.; Michel, R.; Handl, J.; Jakob, D.; Synal, H.; Suter, M.: Status and trends of iodine-129 abundances in the European environment. Konferenzband: IRPA 10, Hiroshima (Japan) (2000a).
- Szidat, S.; Schmidt, A.; Handl, J.; Jakob, D.; Botsch, W.; Michel, R.; Synal, H.; Schnabel, C.; Suter, M.; Lopez-Gutierrez, J. M.; Städe, W.: Iodine-129: Sample preparation, quality control and analyses of pre-nuclear materials and of natural waters from Lower Saxony, Germany. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000b) 699-710.
- Szidat, S.; Schmidt, A.; Handl, J.; Jakob, D.; Michel, R.; Synal, H.; Suter, M.: Analysis of iodine- $^{129}\text{I}$  in environmental materials: Quality assurance and applications. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 244 (1) (2000c) 45-50.
- Szidat, S.; Schmidt, A.; Handl, J.; Jakob, D.; Michel, R.; Synal, H.; Schnabel, C.; Suter, M.; Lopez-Gutierrez, J. M.: RNAA and AMS of iodine-129 in environmental materials - comparison of analytical methods and quality assurance. *Kerntechnik* 65 (2000d) 160-167.
- Szidat, S.; Michel, R.; Schnabel, C.; Synal, H. L. J. M.: Prospects of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer. *PSI Scientific Report 2000* Vol. 1 (2001) 187.
- Taghipour, F.; Evans, G. J.: Modelling of iodine radiation chemistry in the presence of organic compounds. *Radiation Physics and Chemistry* 64 (2002) 203-213.
- Takaianagi, K.; Wong, G.T.F.: The oxidation of iodide to iodate for the polarographic determination of total iodine in natural waters, *Talanta*, 33, 5 (1986) 451.
- Thorne, M. C.: Estimation of animal transfer factors for radioactive isotopes of iodine, technetium,

- selenium and uranium. *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003) 3-20.
- Tölgyessy, J.; Kyrs, M.: Radioanalytical Chemistry. John Wiley & Sons, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, (1989).
- Tolmachev, V.; Orlova, A.; Lundqvist, H.: Optimization of iodination of  $^{125}\text{I}$ -N-succinimidyl-para-iodobenzoate using Chloramin-T for labeling proteins. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 246 (1) (2000) 207-213.
- Tracy, B.; Walker, W. B.; McGregor, R. G.: Transfer to milk of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  releases during the Chernobyl reactor accident. *Health Physics* 56 (2) (1989) 239-243.
- Tracy, B.: Long range atmospheric transport of iodine-129 from nuclear facilities in Eurasia to the Canadian arctic. Konferenzband: The 5<sup>th</sup> International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & and Antarctic, St. Petersburg (Russia) (2002).
- Trapeznikov, A. V.; Pozolotina, V. N.; Chebotina, M. Y.; Chukanov, V. N.; Trapeznikovina, V. N.; Kulikov, N. V.; Niesen, S. P.; Aarkrog, A.: Radioactive contamination of the Techa River, the Urals. *Health Physics* 65 (1993) 481-488.
- Tsai, J.; Prestwich, W. V.; Kennett, T. J.: Study of the  $^{127}\text{I}(\gamma, n)^{126}\text{I}$  reaction. *Canadian Journal of Physics* 64 (1986) 1569-1571.
- Tschiersch, J.; Shinonaga, T.; Heuberger, H.; Bunzl, K.; Pliml, A.; Dietl, F.; Keusch, M.: Unterschiede bei der Ablagerung von Radionukliden auf verschiedenen Blattgemüsen. GSF-Berichte 11/3 (2003).
- Tseng, C. L.; Chao, J. H.: Low-level determination of  $^{129}\text{I}$  in environmental samples by neutron activation. *Applied Radiation and Isotopes* 47 (8) (1996) 723-726.
- Tsunogai, S.; Sase, T.: Formation of iodide-iodine in the ocean, *Deep Sea Research*, 16 (1969) 489.
- Tullai, S.; Tubbs, L. E.; Fehn, U.: Iodine extraction from petroleum for analysis of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios by AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 29 (1987) 383-386.
- Tunali, N. K.; Erten, H. N.; Kinikoglu, S.; Gümüs, S.: Solvent extraction behaviour of iodine and bromine in aqueous-organic systems, analogy with radioactive decay. *Journal of Radioanalytical Chemistry* 49 (1979) 225-237.
- Tuniz, C.: Accelerator mass spectrometry: ultra-sensitive analysis for global science. *Radiation Physics and Chemistry* 61 (2001) 317-322.
- U.S. Nuclear Regulatory Commission: Literature review and assessment of plant and animal transfer factors used in performance assessment modelling, NUREG/CR-6825; PNNL-14321. (2003).
- Uchida, S.; Sumiya, M.; Ohmomo, Y.: Transfer of radionuclides to crop plants through roots. *Radioisotopes* 36 (1987) 332-339.
- Uchida, S.; Sumiya, M.; Muramatsu, Y.; Ohmomo, Y.; Yamagushi, S.; Obata, H.; Umebayashi, M.: Deposition velocity of gaseous Iodine to rice grains. *Health Physics* 55 (5) (1988) 779-782.
- Uchida, S.; Muramatsu, Y.; Sumiya, M.; Ohmomo, Y.: Biological half-life of gaseous elemental iodine deposited onto rice grains. *Health Physics* 60 (5) (1991) 675-679.

- Ünak, P.; Yurt, F.; Zümüt Biber, F.: Labeling of chlorodiazepoxide with  $^{131}\text{I}$  and biodistribution studies on rats. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 251 (2) (2002) 253-256.
- Underwood, E. J.: Trace Elements in Human and Animal Nutrition. 4. Aufl., Academic Press, New York, San Francisco, London, (1977).
- UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly of the United Nations. (1982).
- UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Ionizing Radiation: sources and biological effects. (1988).
- UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Sources and Effects of Ionizing Radiation, 2000 Report to the General Assembly, United Nations, New York. (2000).
- UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Radioecology and Methodologies for dose assessment. 52. Session, Vienna, 26-30 April 2004. (2004).
- Vahlbruch, J.: Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Deutschland. Universität Hannover (Diss.) (2004).
- vanMiddlesworth, L.: Factors influencing the thyroid uptake of iodine isotopes from nuclear fission - a review. Konferenzband: Hanford Symposium on the Biology of Radioiodine, Hanford (1964).
- vanMiddlesworth, L.: Radioiodine ( $^{131}\text{I}$ ) in animal thyroids during nuclear tests in both hemispheres. *Health Physics* 29 (1975) 861-863.
- vanMiddlesworth, L.: Iodine-129 in bovine thyroids from England. *Health Physics* 47 (3) (1984) 488-490.
- vanMiddlesworth, L.: Effects of radiation on the thyroid gland. *Advances in Internal Medicine* 34 (1989) 265-284.
- vanMiddlesworth, L.: I-129 and Cs-137 fission products in thyroids of animals. *Health Physics* 64 (1) (1993) 52-58.
- vanMiddlesworth, L.; Loos, U.: Cs-137 and I-131 in thyroids of cattle and sheep after nuclear accidents and weapon tests. *Health Physics* 55 (5) (1988) 809-811.
- vanMiddlesworth, L.; Handl, J.: Titel. Proc. Int. Conf. on Health Consequences of the Chernobyl and other Radiological Accidents, WHO. Geneve, 22-23 Nov. 1995, (1996).
- vanMiddlesworth, L.; Handl, J.:  $^{129}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in animal thyroids after the Chernobyl nuclear accident. *Health Physics* 73 (1997) 647-650.
- vanMiddlesworth, L.; Handl, J.; Johns, P.: Iodine-129 in thyroid glands: A sensitive biological marker of fission product exposure. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 245 (2) (2000) 447-453.
- Verger, P.; Catelinois, O.; Tirmarche, M.; Chérié-Challine, L.; Pirard, P.; Colonna, M.; Hubert, P.: Thyroid cancers in France and the Chernobyl Accident: Risk assessment and recommenda-

- tions for improving epidemiological knowledge. *Health Physics* 85 (3) (2003) 323-329.
- Vinogradov B.P.; Lapp M.A.: Vestnik Leningradskii Universitet *Seriia Geologii i Geografii*: 24, 1971, 70.
- Vogt, R.; Sander, R.; von Glasow, R.; Crutzen, P. J.: Iodine chemistry and its role in halogen activation and ozone loss in the marine boundary layer: A Model Study. *Journal of Atmospheric Chemistry* 32 (1999) 375-395.
- Voigt, G.; Henrichs, K.; Pröhl, G.; Paretzle, H. G.: Experimentelle Bestimmung von Transferfunktionen Futter/Rindfleisch, Futter/Schweinefleisch und Futter/Milch für Cs-137, Co-60, Mn-54, Na-22, I-131 und Tc-95m. GSF-Bericht 2/87 (1987).
- Voigt, G.; Pröhl, G.; Müller, H.; Bauer, T.; Lindner, J. P.; Probstmeier, G.; Röhrmoser, G.: Determination of the transfer of caesium and iodine from feed into domestic animals. *The Science of the Total Environment* 85 (1989) 329-338.
- Voigt, G.; Probstmeier, G.; Röhrmoser, G.: Untersuchungen zum Einfluss der Versorgung von Milchkühen mit stabilem Iod auf den Transfer von I-131 vom Futter in die Milch. Bericht Nr. 8/93 des Instituts für Strahlenschutz, GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg (1993).
- Wagner, M.: Mittelschwere Radionuklide: Neue Nachweismethoden und Anwendungen von Nickel-59, Zinn-126 und Iod-129. Eidgenössische Technische Hochschule Zürich (Diss.) (1995).
- Wagner, M.; Dittrich-Hannen, B.; Synal, H.; Suter, M.; Schotterer, U.: Increase of  $^{129}\text{I}$  in the environment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 113 (1996) 490-494.
- Webmaster Cogema: priv. comm. with C. Schnabel, Feb. 1, 2001.
- Weiß, J.: Ionenchromatographie. 2. Aufl., VCH, Weinheim u.a. (1991).
- Wellner, U.; Schicha, H.: Der Einfluß physiologischer und pharmakologischer Iodmengen auf den Iod-131-Uptake der Schilddrüse - Eine Modellrechnung. Bericht an der Klinik und Poliklinik für Nuklearmedizin der Universität zu Köln (1996).
- Wellner, U.; Eschner, W.; Hillger, H. W.; Schicha, H.: Strahlenexposition Angehöriger von Patienten nach stationärer Radioiodtherapie durch Inhalation von  $^{131}\text{I}$  in der Wohnung. *Nuklearmedizin* 37 (1998) 113-119.
- Wendel, J.: Markierung von Radiopharmaka für die nuklearmedizinische Diagnostik mit Fluor-18 und Iod-123 durch heterogene Katalyse. Universität Karlsruhe (Diss.) (1994).
- Wershofen, H.: Die Bestimmung von Konzentration und chemischer Form der Iodisotope I-129 und I-127 in der Luft der Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe. Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn (Diss.) (1988).
- Wershofen, H.; Aumann, D.: Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VII. Concentration and chemical forms of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in the atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity* 10 (1989) 141-156.
- Whicker, K.; Kirchner, T. B.: Pathway: A dynamic food-chain model to predict radionuclide ingestion after fallout deposition. *Health Physics* 52 (1987) 717-737.

- Whitehead, D. C.: The Sorption of iodine by soils as influenced by equilibrium conditions and soil properties. *Journal of the Science of Food and Agriculture* 24 (1973) 547-556.
- Whitehead, D. C.: The sorption of iodine by soil components. *Journal of the Science of Food and Agriculture* 25 (1974) 73-79.
- Whitehead, D. C.: The distribution and transformation of iodine in the environment. *Environment International* 10 (1984) 321.
- Wilkins, B. T.: A study of transfer coefficients for iodine-<sup>129</sup>I in the grass-cow-milk pathway. Interim Report (Date not available).
- Wilkins, B. T.; Stewart, S. P.: An application of neutron activation analysis to facilitate studies of iodine-129 in the environment. Report of the National Radiological Protection Board, Chilton, Didcot, Oxon OX11 0RQ (UK) (Date not available).
- Wilkins, B. T.; Stewart, S. P.: A sensitive method for the determination of iodine-129 in environmental materials. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 33 (1982) 1385-1388.
- Wilkins, B. T.; Stewart, S. P.: Field studies of iodine-129 and their implications. Konferenzband: Seminar on the cycling of long-lived radionuclides in the biosphere: observations and models, Madrid (1986).
- Winkelmann, I.; Endrulat, H.; Fouasnon, S.; Gesewsky, P.; Haubelt, R.; Klopfer, P.; Köhler, H.; Kohl, R.; Kucheida, D.; Müller, M.; Schmidt, H.; Vogl, K.; Weimer, S.; Wildermuth, H.; Winkler, S.; Wirth, E.; Wolff, S.: Ergebnisse von Radioaktivitätsmessungen nach dem Reaktorunfall von Chernobyl. Forschungsbericht des Instituts für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes, Neuherberg (1986).
- Wollenweber, D.: Instrumentelle Leistungssteigerungen der ICP-MS Ultraspurenanalytik durch neue Zerstäuber oder Kaltplasma und Einsatz der Isotopenverdünnung. Universität Hannover (Diss.) (2000).
- Wong, G.T.F.: The marine geochemistry of iodine, *Reviews in Aquatic Sciences*, 4(1) (1991) 45.
- Yasuyuki, M.; Satoshi, Y.: Behaviour of iodine-129 in the soil-plant system. *Mitteilungen Der Österreichischen Bodenkundlichen Gesellschaft* 53 (1996) 207-214.
- Yiou, F.; Raisbeck, G. M.; Zhou, Z. Q.; Kilius, L. R.: <sup>129</sup>I from nuclear fuel reprocessing, potential as an oceanographic tracer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994) 436-439.
- Yiou, F.; Diel, K.; Martin, F.; Raisbeck, G.: Preparation of microgram quantities of carrier-free iodine for AMS analysis. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172 (2000) 395-398.
- Yiou, F.: Temporal and spatial records of <sup>129</sup>I input into the Arctic from the nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (UK) and La Hague (France). Konferenzband: The 5<sup>th</sup> International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & and Antarctic, St. Petersburg (Russia) (2002).
- Yiou, F.; Raisbeck, G. M.; Christensen, G. C.; Holm, E.: <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I, <sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs and <sup>129</sup>I/<sup>99</sup>Tc in the Norwegian coastal current from 1980 to 1998. *Journal of Environmental Radioactivity* 60

(2002) 61-71.

Yoshida, S.; Muramatsu, Y.; Uchida, S.: Studies on the sorption of iodide and iodate onto andosols. *Water, Air, and Soil Pollution* 63 (1992) 321-329.

Yoshida, S.; Muramatsu, Y.: Determination of organic, inorganic and particulate iodine in the coastal atmosphere of Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 196 (2) (1995) 295-302.

Zaduban, M.; Liptakova, G.; Horak, J.: Preparation of biological samples containing radioiodine for radioactivity measurement. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 19 (1968) 327-331.

Zuber, A.: Mathematical models for the interpretation of environmental radioisotopes in groundwater systems. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, Vol. 2B. Elsevier, Amsterdam, (1986) 1-59.