

**Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Umweltproben  
zwecks der Ermittlung radioökologischer  
Parameter des  $^{129}\text{I}$  auf seinem Weg von Quellen  
durch die Nahrungskette bis zum Menschen**

Von der Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Universität Hannover  
zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften  
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation  
von

Dipl. Chem. Kevin Klipsch  
geboren am 26.04.1975 in Hannover

2005

Referentin: Frau Prof. Dr. Carla Vogt  
Korreferent: Herr Prof. Dr. Rolf Michel  
Tag der Promotion: 11.05.2005

---

## Zusammenfassung

Die natürlichen Vorkommen des langlebigen Radionuklids  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7$  a) wurden durch den Menschen weltweit nachhaltig verändert. Obwohl es radiologisch derzeit nicht relevant ist, ist vor allem im Hinblick auf andauernde Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen eine umfassende Untersuchung der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  wünschenswert.

Diese Arbeit leistet einen Beitrag dazu, indem sie die aktuelle radioökologische Situation des  $^{129}\text{I}$  in Norddeutschland beschreibt. Die beiden Iod-Isotope  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  und das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis wurden mittels radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse, Beschleunigermassenspektrometrie, Ionenchromatographie und Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma in den folgenden Umweltprobenarten bestimmt: Niederschlagswasser, Oberflächenwasser, Grundwasser, Böden, Pflanzen (Gemüse, Getreide, Gras), Milch, Fleisch (Rind, Schwein, Schaf, Ziege, Reh) sowie tierische und menschliche Schilddrüsen. Detailliert wurde der Transfer beider Isotope vom Boden in Pflanzen und von Futterpflanzen in Milch und Fleisch von Tieren betrachtet. Für beide Isotope wurden *in-situ* Transferfaktoren bestimmt. Des Weiteren wurden  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Gesamtnahrungsproben, iodierten Speisesalzen, Trinkwasser und medizinischen Iodpräparaten quantifiziert.

Die Ergebnisse zeigen, dass die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den unterschiedlichen Proben zwischen  $10^{-10}$  und  $10^{-6}$  und damit um zwei bis sechs Größenordnungen über dem prä-nuklearen natürlichen Verhältnis liegen. In den untersuchten Kompartimenten liegen stark variierende Isotopenverhältnisse vor. Die beiden Isotope stehen nicht im Gleichgewicht miteinander. Der Iod-Transfer zwischen den Umweltkompartimenten, bei dem der Boden eine entscheidende Rolle spielt, ist äußerst komplex.

Die Iodaufnahme des Menschen ist von den natürlichen Pfaden weitgehend entkoppelt. Dies zeigt sich im  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in der Schilddrüse, das beim Menschen derzeit im Mittel bei  $1 \cdot 10^{-8}$  liegt. Bei Tieren, von denen das Iod aus der Umwelt auf direkterem Weg aufgenommen wird, liegt es mit durchschnittlich  $3 \cdot 10^{-7}$  um mehr als eine Größenordnung höher.

Iodierte Speisesalze und medizinische Iodpräparate tragen signifikant zur Gesamtiodaufnahme bei, weisen aber sehr niedrige Isotopenverhältnisse auf und führen somit nicht zur Aufnahme nennenswerter Mengen von  $^{129}\text{I}$  mit der Nahrung.

### Schlagworte

Radioökologie,  $^{129}\text{I}$ , Transfer

---

## Abstract

The natural abundances of the long-lived radionuclide  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7$  a) have been substantially increased worldwide by mankind. Though radiologically not relevant at present, an extensive investigation of this nuclide's radioecology is desirable, particularly with regard to the continuing emissions from nuclear reprocessing plants. This thesis describes the actual radioecologic situation of  $^{129}\text{I}$  in Northern Germany. The iodine isotopes  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  and their isotopic ratio were determined in several environmental samples using radiochemical neutron activation analysis, accelerator mass spectrometry, ion chromatography and mass spectrometry with inductively coupled plasma. The following types of samples were investigated: precipitation water, surface water, groundwater, soil, plants (vegetables, cereals, grass), milk, meat (cattle, pig, sheep, goat, deer) and human and animal thyroid glands. The transfer of both iodine isotopes from soil to plant and from feed to milk and meat was investigated in detail. *In-situ* transfer factors for  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  were determined based on the concentrations actually observed in the environment. In addition, both isotopes were quantified in samples of total diet, iodinated salts, tap-water and medical iodine tablets.

$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  isotopic ratios were found to be between  $10^{-10}$  and  $10^{-6}$  in the environmental samples. Thus, they are higher than the pre-nuclear isotopic ratio by two to six orders of magnitude. The isotopic ratios vary substantially between different environmental compartments.  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  are not in a state of equilibrium in the investigated environment. The transfer between these environmental compartments is complex, with the soil playing an important role.

The comparison of isotopic ratios in human (average  $1 \cdot 10^{-8}$ ) and animal thyroid glands (average  $3 \cdot 10^{-7}$ ) shows, that in animals iodine uptake occurs more directly from natural sources.

Iodinated salts and medical iodine tablets contribute largely to the uptake of total iodine but show very low isotopic ratios and add very little  $^{129}\text{I}$  to the total diet.

### keywords

radioecology,  $^{129}\text{I}$ , transfer

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1	Charakterisierung des Iod-Isotops $^{129}\text{I}$	1
1.2	Natürliche Vorkommen von $^{129}\text{I}$	2
1.3	Erhöhung der natürlichen Vorkommen durch anthropogenes $^{129}\text{I}$	3
1.4	Die Bedeutung der Radioökologie des $^{129}\text{I}$	4
<b>2</b>	<b>Aufgabenstellung</b>	<b>7</b>
<b>3</b>	<b>Vorkommen und Verhalten von <math>^{127}\text{I}</math> und <math>^{129}\text{I}</math> in der Umwelt</b>	<b>9</b>
3.1	Der allgemeine Iodkreislauf in der Umwelt	9
3.2	Die Situation in der Nordsee und angrenzenden Meeren	13
3.3	Eintrag von $^{129}\text{I}$ mit dem Niederschlag	17
3.4	$^{129}\text{I}$ in Böden	19
<b>4</b>	<b>Radioökologische Modelle und Parameter</b>	<b>23</b>
4.1	Überblick	23
4.2	Das „AVV-Modell“	25
4.3	Transferfaktoren für Iod-Isotope	28
4.4	Variabilität und Unsicherheit radioökologischer Parameter	30
<b>5</b>	<b>Herkunft der Proben und Probenahme</b>	<b>33</b>
5.1	Herkunft der Proben	33
5.2	Probenahme und Lagerung	37
<b>6</b>	<b>Die experimentelle Quantifizierung von <math>^{129}\text{I}</math> und <math>^{127}\text{I}</math></b>	<b>43</b>
6.1	Einleitung	43
6.2	Methodenübersicht: Bestimmung von $^{129}\text{I}$	44
6.3	Methodenübersicht: Bestimmung von $^{127}\text{I}$	50
6.4	Probenaufbereitung	52
6.4.1	Aufbereitung fester Proben	52
6.4.2	Aufbereitung flüssiger Proben	56
6.5	Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse	59
6.6	Beschleunigermassenspektrometrie	62
6.6.1	Einleitung	62
6.6.2	Prinzipien und Aufbau der AMS	63

6.6.3	Experimentelle Details und Auswertung der Daten . . . . .	68
6.7	Ionenchromatographie . . . . .	72
6.7.1	Grundlagen der Ionenchromatographie . . . . .	72
6.7.2	Experimentelles zur Ionenchromatographie . . . . .	74
6.7.3	Auswertung . . . . .	76
6.8	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma . . . . .	77
6.8.1	Grundlagen der ICP-MS . . . . .	77
6.8.2	Experimentelles . . . . .	80
6.8.3	Auswertung . . . . .	83
6.9	Abschließende Berechnungen . . . . .	86
<b>7</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>89</b>
7.1	Allgemeines . . . . .	89
7.2	<sup>129</sup> I- und <sup>127</sup> I-Konzentrationen in Umweltproben . . . . .	91
7.2.1	Niederschlag . . . . .	91
7.2.2	Oberflächen- und Grundwasser . . . . .	94
7.2.3	Boden . . . . .	99
7.2.4	Bewuchs und pflanzliche Nahrungsmittel . . . . .	103
7.2.5	Tierische Nahrungsmittel und tierische Schilddrüsen . . . . .	105
7.2.6	Gesamtnahrung, iodierte Speisesalze, medizinische Iodpräparate und Trinkwasser . . . . .	107
7.2.7	Menschliche Schilddrüsen . . . . .	112
7.3	Transfer von <sup>127</sup> I und <sup>129</sup> I durch die Nahrungskette . . . . .	114
7.3.1	Transferfaktoren für den Transfer Boden–Pflanze . . . . .	114
7.3.2	Transferfaktoren für den Transfer in tierische Nahrungsmittel . . . . .	121
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>129</b>
<b>A</b>	<b>Tabellenanhang: Literaturdaten</b>	<b>135</b>
<b>B</b>	<b>Tabellenanhang: Probenherkunft und Probenahme</b>	<b>141</b>
<b>C</b>	<b>Tabellenanhang: Ergebnisse</b>	<b>147</b>
<b>D</b>	<b>Abkürzungen</b>	<b>165</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>167</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>179</b>
	<b>Publikationen</b>	<b>181</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>182</b>

# Abbildungsverzeichnis

3.1	Kompartiment-Modell nach Bonka [1982] . . . . .	10
3.2	Modell zum Iodaustausch zwischen Atmosphäre, Pedosphäre und Bewuchs nach Bonka [1982] . . . . .	11
3.3	Kompartimente-Modell nach Fabryka-Martin [1984] . . . . .	12
3.4	Probenahmeorte der am ZSR untersuchten Nordseewasserproben . . . . .	14
3.5	Sellafield/La Hague und Probenahmeorte von Algen/Seetang der Arbeitsgruppe Hou . . . . .	15
3.6	Gegenüberstellung von $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in Algen/Seetang und den $^{129}\text{I}$ -Emissionen von Sellafield und La Hague . . . . .	15
5.1	Probenahmeorte der Wasserproben . . . . .	34
5.2	Probenahmeorte in Niedersachsen . . . . .	35
5.3	Eh-pH-Diagramm für Iod . . . . .	37
6.1	Probenaufbereitung fester Proben . . . . .	54
6.2	Anionenaustauscher Dowex®1X8 . . . . .	57
6.3	Schematischer Aufbau einer AMS-Anlage . . . . .	64
6.4	Presse und Pressbesteck für AMS-Proben . . . . .	68
6.5	Normierung auf den mitlaufenden Standard bei der AMS . . . . .	70
6.6	Aufbau eines Latex-Anionentauschers . . . . .	73
6.7	Reales Ionenchromatogramm . . . . .	75
6.8	Auswertung der IC mittels Standardaddition . . . . .	76
6.9	schematischer Aufbau eines ICP-MS Geräts . . . . .	78
6.10	Normierung im Rahmen der ICP-MS-Messung . . . . .	84
6.11	Kalibration einer ICP-MS-Messung . . . . .	85
7.1	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Grundwasserproben . . . . .	96
7.2	$^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Wasserproben . . . . .	98
7.3	Zusammenfassende Darstellung der Bodenproben . . . . .	102
7.4	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen aus Niedersachsen aus den Jahren 1979–1990 und 1999–2003 . . . . .	113
7.5	Transferfaktoren Boden–Gras/Heu für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	115
7.6	Transferfaktoren Boden–Gemüse für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	117
7.7	Transferfaktoren Boden–Getreide für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	118
7.8	Transferfaktoren Boden–Pilze für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	120

7.9	Berechnung von Transferfaktoren mit Crytal-Ball® . . . . .	123
7.10	Transferfaktoren Futter–Milch für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	125
7.11	Transferfaktoren Boden–Milch für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	126
7.12	Transferfaktoren Futter–Fleisch für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ . . . . .	128
8.1	Übersicht der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältniss in Umweltproben . . . . .	131



# Tabellenverzeichnis

1.1	$^{129}\text{I}$ -Emissionen der WAA La Hague und Sellafield (2000-2003) . . . . .	4
3.1	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Nordseewasser . . . . .	14
6.1	Nachweisgrenzen der Bestimmung von $^{129}\text{I}$ mit verschiedenen Methoden .	49
6.2	Einige Beispiele für Aktivierungsreaktionen . . . . .	60
6.3	Kernreaktionen zur Bestimmung von $^{129}\text{I}$ und $^{127}\text{I}$ mittels RNAA . . . . .	61
6.4	Ionen mit ähnlichem $m/z$ wie $^{129}\text{I}^{5+}$ . . . . .	66
6.5	Beispielaufstockung bei der Ionenchromatographie . . . . .	75
6.6	Verdünnung der Aliquote vor der ICP-MS Messung . . . . .	82
7.1	$^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Niederschlagsmessreihen . . . . .	92
7.2	Depositionsdichten für $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Niedersachsen . . . . .	93
7.3	$^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Oberflächenwässern . . . . .	94
7.4	$^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Böden . . . . .	99
7.5	Zusammenfassung der Analysenergebnisse von pflanzlichen Nahrungsmitteln	104
7.6	Zusammenfassung der Analysenergebnisse von Kuhmilch . . . . .	105
7.7	Zusammenfassung der Analysenergebnisse von tierischem Muskelfleisch und Schilddrüsen . . . . .	106
7.8	$^{129}\text{I}$ in iodierten Speisesalzen . . . . .	109
7.9	$^{129}\text{I}$ in Iod-Tabletten . . . . .	110
7.10	$^{129}\text{I}$ und $^{127}\text{I}$ in Trinkwasser . . . . .	110
7.11	Transferfaktoren für den Transfer in Milch . . . . .	125
7.12	Transferfaktoren für den Transfer in Fleisch . . . . .	126
A.1	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Algen bzw. Seetang und $^{129}\text{I}$ -Emissionen von La Hague und Sellafield . . . . .	136
A.2	Transferfaktoren aus der Literatur: Boden–Pflanze . . . . .	137
A.3	Transferfaktoren aus der Literatur: Futter–Milch . . . . .	138
A.4	Transferfaktoren aus der Literatur: Futter–Fleisch . . . . .	139
A.5	Gemittelte Transferfaktoren nach Green und Woodman [2003]: Futter–Milch	140
B.1	Probenahmeorte für Boden, pflanzliche und tierische Produkte und Gesamt- nahrung . . . . .	142
B.2	Abkürzungen im Identifikationscode der einzelnen Proben . . . . .	143
B.3	Zusammensetzung der untersuchten Gesamtnahrung . . . . .	144

C.1	Zeitreihe Freilandniederschlag „Norderney“ . . . . .	148
C.2	Zeitreihe Freilandniederschlag „Buer-Ostenwalde“ . . . . .	149
C.3	Zeitreihe Bestandsniederschlag „Buer-Ostenwalde“ . . . . .	150
C.4	Zeitreihe Freilandniederschlag „Seesen“ . . . . .	151
C.5	Zeitreihe Bestandsniederschlag „Seesen“ . . . . .	152
C.6	Zeitreihe Freilandniederschlag „Siemen“ . . . . .	153
C.7	Zeitreihe Oberflächenwasser „Großes Meer“ . . . . .	154
C.8	Zeitreihe Oberflächenwasser „Bokeloh“ . . . . .	155
C.9	Zeitreihe Oberflächenwasser „Leineturm“ . . . . .	156
C.10	Zeitreihe Oberflächenwasser „Meetschow“ . . . . .	157
C.11	Zeitreihen Grundwasser . . . . .	158
C.12	$^{129}\text{I}$ - und $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Umweltproben aus Niedersachsen . . . . .	159
C.13	Transferfaktoren für den Transfer Boden–Pflanzen . . . . .	163
C.14	Ergebnisse der Untersuchung menschlicher Schilddrüsen . . . . .	164

# 1 Einleitung

## 1.1 Charakterisierung des Iod-Isotops $^{129}\text{I}$

Von dem chemischen Element Iod (Ordnungszahl  $Z = 53$ ) sind 37 Isotope mit den Massenzahlen 108 bis 144 bekannt. Einzig das Isotop  $^{127}\text{I}$  ist stabil, alle anderen hingegen sind radioaktiv. Die Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  dieser Isotope liegen zwischen  $100\ \mu\text{s}$  ( $^{109}\text{I}$ ) und  $1,57 \cdot 10^7\ \text{a}$  ( $^{129}\text{I}$ ). Die Isotope  $^{123}\text{I}$  und  $^{125}\text{I}$ , die, wie auch die anderen protonenreichen Iod-Isotope, durch Kernreaktionen in Teilchenbeschleunigern künstlich hergestellt werden können, finden vielfältige Anwendungen in der medizinischen Diagnostik und Therapie, sowie für Markierungszwecke bei der Aufklärung chemischer Reaktionsmechanismen.  $^{124}\text{I}$  wird zur Positronenemissionstomographie (PET) genutzt. Das neutronenreiche Isotop  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 8,02\ \text{d}$ ) wurde in der Schilddrüsendiagnostik vom  $^{123}\text{I}$  weitgehend abgelöst, spielt aber im Rahmen der so genannten Radioiodtherapie weiterhin eine große Rolle bei der Behandlung von Schilddrüsentumoren.  $^{131}\text{I}$  entsteht in Kernreaktoren bei der neutroneninduzierten Kernspaltung. Bei der Reaktion von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen bildet sich  $^{131}\text{I}$  mit einer Spaltausbeute von 2,368 %. Aufgrund der Flüchtigkeit von Iod und der kurzen Halbwertszeit ist  $^{131}\text{I}$  im Hinblick auf die Strahlenexposition eines der kritischen Nuklide bei einer unfallbedingten Freisetzung von Spaltprodukten. Neben der Produktion im Kernreaktor kann es auch durch die Kernreaktion  $^{130}\text{Te}(n,\gamma)^{131}\text{Te}(\beta^-)^{131}\text{I}$  hergestellt werden. Von den weiteren neutronenreichen Iod-Isotopen, die bis auf  $^{128}\text{I}$  und  $^{130}\text{I}$  alle bei der spontanen oder induzierten Kernspaltung entstehen können, sind nur noch  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$  und  $^{135}\text{I}$  im Bezug auf die Strahlenexposition kurz nach einer unfallbedingten Emission von Bedeutung.

Das langlebigste Iod-Isotop  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7\ \text{a}$ ) ist ein reiner  $\beta^-$ -Strahler ( $\beta$ -Maximalenergie 150 keV). Es zerfällt zum metastabilen  $^{129\text{m}}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 8,9\ \text{d}$ ). Dieses Tochternuklid emittiert beim Übergang in den Grundzustand  $\gamma$ -Quanten der Energie 39,58 keV (Entkommenswahrscheinlichkeit 7,52 %). Zudem besteht für das  $^{129\text{m}}\text{Xe}$  die Möglichkeit der inneren Konversion, nach der eine Reihe von Röntgenquanten mit Energien zwischen 3,6 keV und 34,6 keV abgegeben werden. Sowohl zum Nachweis als auch zur Quantifizierung von  $^{129}\text{I}$  stehen zahlreiche Verfahren zur Verfügung, die in Kapitel 6 ausführlich beschrieben werden.

## 1.2 Natürliche Vorkommen von $^{129}\text{I}$

In der Umwelt entsteht  $^{129}\text{I}$  durch zwei Prozesse: Bei der Spontanspaltung von Actinoiden, vor allem von  $^{238}\text{U}$  (sog. fissiogenes  $^{129}\text{I}$ ), und bei der Reaktion von Partikeln der galaktisch kosmischen Strahlung mit Xenon-Atomen in der Erdatmosphäre (sog. kosmogenes  $^{129}\text{I}$ ). Reaktionen dieser Art, bei denen durch das Auftreffen der Partikel einzelne Neutronen aus den getroffenen Atomen herausgelöst werden, nennt man Spallationsreaktionen.

Vor der Nutzung der Kernspaltung durch den Menschen in den 1940er Jahren stammte das in der Umwelt vorkommende  $^{129}\text{I}$  ausschließlich aus den beiden genannten natürlichen Quellen. Aus den Produktionsraten der fissiogenen und kosmogenen Bildung des  $^{129}\text{I}$  kann man das Gleichgewichtsinventar auf der Erde abschätzen. Ausgehend von den Berechnungen von Kohman und Edwards [1966] sowie von Fabryka-Martin [1984] ergibt sich eine  $^{129}\text{I}$ -Menge von etwa 260 kg in den austauschenden Umweltkompartimenten Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre. Dabei stammen etwa 45 % aus der Produktion durch Spallationsreaktionen in der Atmosphäre und 55 % aus der Spontanspaltung der Actinoiden [siehe auch Ernst 2003; Szidat 2000; Buraglio 2000; Schmidt 1998; Whitehead 1984; Kocher 1981].

Das Isotop  $^{129}\text{I}$  vermischt sich in den genannten Umweltkompartimenten mit dem allgegenwärtigen, stabilen  $^{127}\text{I}$ . Da die Gesamtiodkonzentrationen in Umweltproben sehr unterschiedlich sind, hat es sich als zweckmäßig erwiesen, die  $^{129}\text{I}$ -Vorkommen nicht nur anhand von Konzentrationen, sondern auch in Form des Stoffmengenverhältnisses  $n(^{129}\text{I})/n(^{127}\text{I})$  zu diskutieren. Für dieses Verhältnis hat sich die Bezeichnung „Isotopenverhältnis“ durchgesetzt. Abschätzungen des natürlichen Gleichgewichtsisotopenverhältnisses von Edwards [1962], Edwards und Rey [1968] sowie Kohman und Edwards [1966] ergaben  $4 \cdot 10^{-14}$  bis  $3 \cdot 10^{-12}$ . Fabryka-Martin u. a. [1985] berechneten dieses Verhältnis mit Hilfe eines globalen geochemischen Modells zu etwa  $6 \cdot 10^{-13}$  in der marinen und terrestrischen Umwelt.

Erst in den letzten Jahren gelang die Messung dieser prä nuklearen Isotopenverhältnisse mit der nun auf  $^{129}\text{I}$  anwendbaren Beschleuniger massenspektrometrie (siehe Kapitel 6). Da die natürlichen Vorkommen seit Anfang der 1940er Jahre vom Menschen verändert wurden (s. u.), ist dabei zwischen zwei Arten von Proben zu unterscheiden. Einerseits können rezente Proben genommen werden, die in den letzten gut 60 Jahren nicht am globalen Iodkreislauf teilgenommen haben. Andererseits können auch Proben untersucht werden, die schon vor etwa 1940 genommen und seitdem konserviert wurden.

Ernst [2003] gibt eine umfangreiche Übersicht der bisher verfügbaren Messungen prä nuklearer Isotopenverhältnisse. Ihm gelang zudem die Untersuchung medizinischer Iodpräparate aus den Jahren 1918 und 1935, in denen das Isotopenverhältnis bei etwa  $2 \cdot 10^{-13}$  liegt.

Unter Berücksichtigung der Herkunft dieser Proben aus maritimen Quellen wird dieses Isotopenverhältnis vom Autor als prä nukleares natürliches Gleichgewichts isotopenverhältnis der Hydrosphäre und Biosphäre diskutiert.

### 1.3 Erhöhung der natürlichen Vorkommen durch anthropogenes $^{129}\text{I}$

Seit Beginn der technischen Nutzung der induzierten Kernspaltung wird dabei auch auf künstlichem Wege  $^{129}\text{I}$  produziert. Die Menge an  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt wird seitdem kontinuierlich erhöht. So wurden z. B. bei den oberirdischen Kernwaffentests insgesamt zwischen 43 kg und 150 kg  $^{129}\text{I}$  freigesetzt und in der Umwelt verteilt. Die große Spanne zwischen diesen Werten ist auf die nur ungenau bekannte Gesamtsprengkraft der gezündeten Kernwaffen zurückzuführen [Carter und Moghissi 1977; UNSCEAR 1982; Chamberlain 1991; Eisenbud und Gesell 1997]. Durch dem Unfall von Tschernobyl wurden weniger als 2 kg  $^{129}\text{I}$  emittiert [Paul u. a. 1987; Schmidt 1998]. Der Eintrag aus diesen beiden Quellen ist jedoch klein gegenüber den Mengen, die von militärischen und zivilen Wiederaufarbeitungsanlagen abgegeben worden sind und werden. Aus den beiden im Rückbau befindlichen Anlagen in Hanford und West Valley (beide USA) wurden bis Mitte der 1960er Jahre etwa 290 kg freigesetzt [Szidat 2000, und dort angegebene Referenzen]. Weitere Informationen über Emissionen aus westlichen militärischen Anlagen und allgemein aus kerntechnischen Anlagen der ehemaligen UdSSR sind bisher sehr lückenhaft. Den wichtigsten Quellterm für  $^{129}\text{I}$  stellen derzeit die beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (Großbritannien) und La Hague (Frankreich) dar. Bis zum Jahr 2000 emittierten diese beiden Anlagen 3 200 kg  $^{129}\text{I}$ . Eine ausführliche Darstellung zum zeitlichen Verlauf der Emissionen findet sich u.a. bei Ernst [2003] und Michel u. a. [2004]. In Tabelle 1.1 sind die aktuell verfügbaren Daten seit dem Jahr 2000 zusammengefasst. Die flüssigen Emissionen dieser beiden Wiederaufarbeitungsanlagen in die Irische See bzw. in den Ärmelkanal machen den überwiegenden Anteil der insgesamt freigesetzten Aktivität aus.

Anthropogen eingetragenes  $^{129}\text{I}$  folgt dem globalen Kreislauf des stabilen Iods und wird so in den Umweltkompartimenten verteilt. Die dabei zu berücksichtigenden Pfade werden in den Kapiteln 3 und 4 näher erläutert. Durch den anthropogenen Eintrag wurde das natürliche, prä nukleare Isotopenverhältnis in nahezu allen Umweltkompartimenten substantiell erhöht. Schmidt [1998] und Szidat [2000] geben umfangreiche Übersichten zu den weltweit in verschiedensten Umweltproben gemessenen Isotopenverhältnissen. In der unmittelbaren Nähe von aktuellen Emittenten wurden Werte bis zur Größenordnung  $10^{-3}$  gemessen (Fisch

**Tabelle 1.1:** Flüssige und gasförmige  $^{129}\text{I}$ -Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield (2000-2003).

Jahr	La Hague				Sellafield				Gesamt			
	flüssig <sup>1)</sup>		gasförmig <sup>2)</sup>		flüssig <sup>3)</sup>		gasförmig <sup>3)</sup>		flüssig		gasförmig	
	TBq	kg	GBq	kg	TBq	kg	GBq	kg	TBq	kg	GBq	kg
2000	1,4	214	6,8	1,0	0,47	72	25	3,8	1,87	286	31,8	4,9
2001	1,2	184	3,7	0,6	0,63	96	20	3,1	1,83	280	23,7	3,6
2002	1,3	199	6,5	1,0	0,73	112	21	3,2	2,03	311	27,5	4,2
2003					0,55	84	17	2,6	0,55	84	17	2,6

Referenzen: <sup>1)</sup> [OSPAR Commission 2004]      <sup>2)</sup> [Cogema]      <sup>3)</sup> [BNFL]

bzw. Algen in der Nähe der Anlage in West Valley, USA, [Magno u. a. 1972]). Für in den Jahren 1998 und 1999 beprobte Algen und Flechten aus der Küstenumgebung der Anlage in La Hague berichten Fréchou und Calmet [2003] von Isotopenverhältnissen von  $7 \cdot 10^{-7}$  bis  $3 \cdot 10^{-5}$ .

Auch in weiter Entfernung von den Anlagen in La Hague und Sellafield ist der Einfluss durch ihre  $^{129}\text{I}$ -Emissionen messbar. Hier nur einige Beispiele: In Niederschlagsproben aus Norddeutschland wird seit Ende der 1980er Jahre ein Isotopenverhältnis von etwa  $5 \cdot 10^{-7}$  gemessen [Szidat 2000; Michel u. a. 2004]. In einer Reihe von menschlichen Schilddrüsen aus Hannover (1999–2001) finden sich Isotopenverhältnisse von  $5 \cdot 10^{-9}$  bis  $3 \cdot 10^{-8}$  [Klipsch 2002]. Moran u. a. [1999] berichten ein mittleres Isotopenverhältnis von  $2,1 \cdot 10^{-9}$  in 14 Niederschlagsproben aus den USA.

## 1.4 Die Bedeutung der Radioökologie des $^{129}\text{I}$

Um die radiologische Relevanz von  $^{129}\text{I}$  für den Menschen zu veranschaulichen, hat Schmidt [1998] auf der Grundlage eines spezifischen Aktivitätsmodells verschiedene dosimetrische Größen, darunter die Schilddrüsenorgandosis für Kleinkinder und Erwachsene berechnet. In spezifischen Aktivitätsmodellen wird davon ausgegangen, dass das Isotopenverhältnis eines interessierenden Radionuklids ( $^{129}\text{I}$ ) zu einem stabilen Isotop ( $^{127}\text{I}$ ) im Körper des Menschen nicht höher sein kann, als in der Nahrung und in der Atemluft. Umgekehrt lässt sich dasjenige Isotopenverhältnis in der Nahrung oder der Atemluft abschätzen, das zu einer vorgegebenen Dosis führen würde. In Deutschland gilt für die Schilddrüsenorgandosis ein jährlicher Grenzwert von 0,9 mSv, der bei Einzelpersonen der Bevölkerung durch Ableitun-

gen radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen nicht überschritten werden darf. Nach den Berechnungen von Schmidt [1998] müsste zum Erreichen dieser Organdosis bei einem Erwachsenen ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $1,2 \cdot 10^{-3}$  in Nahrung oder Atemluft vorliegen. Mit Ausnahme der direkten Umgebung von Emittenten, wo die Umgebung diesbezüglich sorgfältig überwacht wird, sind derartig hohe Isotopenverhältnisse in der Umwelt noch nicht beobachtet worden.  $^{129}\text{I}$  ist derzeit also radiologisch nicht relevant.

Das Nuklid eignet sich jedoch als Tracer für langfristige und großräumige Umweltprozesse, wie sie in der Ozeanographie und Hydrologie untersucht werden. Zahlreiche Veröffentlichungen beschäftigen sich mit dem Potential des  $^{129}\text{I}$  als Umweltracer: Edwards [1962]; Kohman und Edwards [1966]; Fabryka-Martin [1984]; Yiou u. a. [1994]; Raisbeck u. a. [1995]; Raisbeck [2002]; Michel u. a. [2002]; Santschi und Schwehr [2004].

Bei der möglichen Freisetzung im Rahmen der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente und der Konditionierung radioaktiver Abfälle ist  $^{129}\text{I}$  im Hinblick auf die Strahlenexposition eines der kritischen Radionuklide aufgrund seiner Langlebigkeit und der Akkumulationsmöglichkeiten in der Umwelt. Im Rahmen der Endlagerung radioaktiver Abfälle hat es sich wegen seiner hohen Mobilität ebenfalls als eines der dosisrelevanten Nuklide erwiesen [NEA 1999].

Als langlebigstes Iod-Isotop bildet  $^{129}\text{I}$  auch die Grundlage der retrospektiven Ermittlung der Strahlenexposition durch kurzlebige Iod-Isotope nach deren Freisetzung. Eine besondere Bedeutung kommt dabei der nachträglichen Ermittlung der Schilddrüsendosis durch  $^{131}\text{I}$  nach dem Unfall von Tschernobyl zu. Da das Verhältnis  $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ , das zum Zeitpunkt der Freisetzung vorgelegen hat, bekannt ist, können aus aktuellen Messungen von  $^{129}\text{I}$ -Gehalten in Böden die seinerzeit abgelagerte  $^{131}\text{I}$ -Aktivität und damit auch die Schilddrüsendosis betroffener Personen rekonstruiert werden [Straume u. a. 1996; Pietrzak-Flis u. a. 2003; Michel u. a. 2005].

Die künstliche Produktion und die Erhöhung der natürlichen Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  können also zur Klärung wichtiger wissenschaftlicher Fragestellungen dienen. Andererseits kann dieses Nuklid möglicherweise in Zukunft, bei weiter anhaltender Freisetzung und Akkumulation in der Umwelt, aus Gründen des Strahlenschutzes nicht mehr außer Acht gelassen werden. Daher ist ein umfassendes Wissen über die Radioökologie, die sich allgemein mit dem Verhalten von radioaktiven Stoffen in der Umwelt befasst, des  $^{129}\text{I}$  notwendig. Eine ihrer wesentlichen Aufgaben ist es, kritische Expositionspfade zu erkennen und die resultierende Strahlenexposition des Menschen zuverlässig abzuschätzen. Die Radioökologie beinhaltet dabei Kenntnisse über die Herkunft und Eigenschaften von Nukliden, über ihre Vorkommen in verschiedenen Umweltkompartimenten und über die Transportprozesse in

der Umwelt, die bis zum Menschen führen. Auf den radioökologischen Parametern eines Nuklids beruht auch die Festlegung von Grenzwerten für die Ableitungen aus kerntechnischen Anlagen (siehe dazu auch Abschnitt 4).

Das Verhalten von radioaktiven Iod-Isotopen in der Umwelt wurde umfassend am Beispiel von  $^{131}\text{I}$  untersucht. Wegen seiner kurzen Halbwertszeit (8,02 d) ist man dabei allerdings auf kurzfristige Transportprozesse beschränkt. Vorgänge, die sich über Jahre oder Jahrzehnte erstrecken und teils über große Entfernungen ablaufen, können mit Hilfe des  $^{129}\text{I}$  untersucht werden. Viele bisherige Arbeiten beschränken sich dabei auf die Beschreibung aktueller oder vergangener Zustände in bestimmten Umweltbereichen. Untersuchungen zu radioökologischen Parametern, die den Transfer zwischen den Umweltkompartimenten beschreiben, sind noch unzureichend für ein umfassendes Verständnis der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$ .



## 2 Aufgabenstellung

In dieser Arbeit soll die gegenwärtige Situation des Eintrags und der Verteilung von  $^{129}\text{I}$  in der norddeutschen Umwelt beschrieben werden. Exemplarische Umweltproben von küstennahen und küstenfernen Standorten in Norddeutschland sollen ausgewählt werden und auf ihren  $^{129}\text{I}$ -Gehalt hin analysiert werden. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Untersuchung von Böden, pflanzlichen Nahrungs- und Futtermitteln sowie tierischen Nahrungsmitteln (Fleisch, Milch). Diese Umweltbereiche spielen eine wichtige Rolle auf dem Transferpfad von  $^{129}\text{I}$  zum Menschen. Um die Aufnahme dieses Nuklids durch den Menschen abschätzen zu können, soll es auch in Gesamtnahrungsproben bestimmt werden. Als Endpunkt des Weges von Iod durch die Nahrungskette zum Menschen kann die Schilddrüse angesehen werden. Aufbauend auf vorangegangenen Untersuchungen von menschlichen Schilddrüsen, soll eine Zeitreihe des Zentrums für Strahlenschutz fortgesetzt werden. Die Ende der 1990er Jahre am Institut begonnenen Reihen von Niederschlags-, Oberflächen- und Grundwässern sollen ebenfalls weitergeführt werden. Die Untersuchungen an Niederschlagsproben ermöglicht dabei die Erfassung des aktuellen Eintrags an  $^{129}\text{I}$  in die terrestrische Umwelt.

Das Verhalten von  $^{129}\text{I}$  kann nicht unabhängig von dem des  $^{127}\text{I}$  betrachtet werden. Da die Gesamtiodkonzentration in verschiedenen Umweltbereichen großen Variationen unterliegt, ist das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis die entscheidende Größe bei der Beurteilung der radioökologischen Situation. Daher sollen, wo möglich, beide Nuklide in den Proben quantifiziert und das Isotopenverhältnis berechnet werden.

Die Quantifizierung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  erfolgt mit den Methoden Beschleunigermassenspektrometrie (AMS), radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA), Massenspektrometrie mit induziert gekoppeltem Plasma (ICP-MS) sowie Ionenchromatographie (IC). Für alle Methoden muss das Iod zuvor aus der Probenmatrix extrahiert werden. Die bestehenden Aufschluss- und Trennverfahren sind gegebenenfalls zu modifizieren oder neu zu erarbeiten.

Um die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit in das wissenschaftliche Umfeld einordnen zu können, soll zunächst eine Literaturrecherche die Darstellung des wissenschaftlichen Kenntnisstandes im Bereich der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  mit Bezug auf die hier untersuchten Umweltbereiche ermöglichen. Anschließend sollen radioökologische Modelle vorge-

stellt werden, mit denen der Weg von Radionukliden durch die Umwelt zum Menschen beschrieben wird, um die Abschätzung einer möglichen Strahlenexposition vorzunehmen. Ein wichtiger Parameter in radioökologischen Modellen ist der Transferfaktor, der, basierend auf experimentellen Daten, den Transfer eines Nuklids zwischen verschiedenen Umweltbereichen beschreibt. Es ist geplant, die Transferfaktoren der beiden betrachteten Iod-Isotope zwischen verschiedenen Umweltkompartimenten zu bestimmen und mit den in der Literatur verfügbaren Werten zu vergleichen.

Diese Arbeit soll so einen Beitrag zum weiteren Verständnis der Radioökologie des Radionuklids  $^{129}\text{I}$  liefern. Sie ist eingebunden in ein langfristiges Projekt, das die vollständige Untersuchung des Pfades des  $^{129}\text{I}$  von seinen Quellen durch die verschiedenen Umweltkompartimente (Hydrosphäre, Atmosphäre, Biosphäre) bis zum Menschen zum Ziel hat. Das Zentrum für Strahlenschutz der Universität Hannover führte dazu das Vorhaben StSch 4285 des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) mit dem Titel „Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129“ durch. Die fachliche Betreuung des Vorhabens erfolgt durch das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS). Teile dieser Dissertationsschrift sind im Abschlussbericht zu diesem Vorhaben bereits veröffentlicht worden [Michel u. a. 2004].

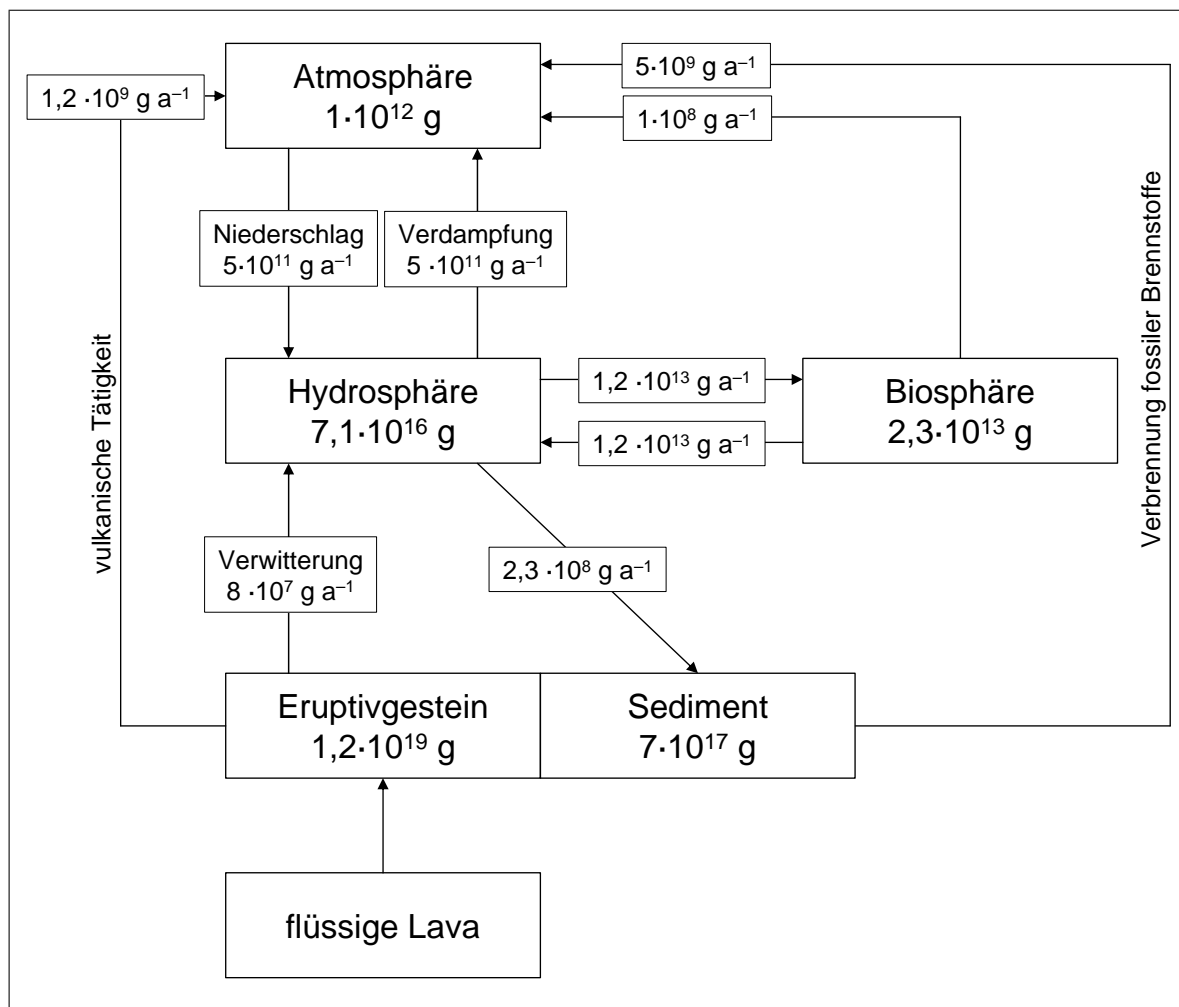
# 3 Vorkommen und Verhalten von $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in der Umwelt

In diesem Kapitel sollen die aktuell in der Umwelt zu beobachtenden Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  betrachtet werden. Zunächst wird der globale Iodkreislauf in der Umwelt beschrieben. Für den Weg des Nuklids  $^{129}\text{I}$  zum Menschen ist derzeit in Niedersachsen der Pfad Meer–Atmosphäre/Niederschlag–Boden–Pflanze besonders wichtig. Es folgt daher die Beschreibung des derzeitigen Zustands in diesen Kompartimenten anhand von aktuell verfügbarer Literatur. Dabei beschränkt sich diese Zusammenstellung im Wesentlichen auf Deutschland bzw. Mitteleuropa, um eine Vergleichbarkeit mit den in dieser Arbeit ermittelten Werten zu gewährleisten.

## 3.1 Der allgemeine Iodkreislauf in der Umwelt

Bei den hier vorgestellten Konzepten handelt es sich um Modelle, die das komplexe, tatsächliche Verhalten der betrachteten Stoffe nur unvollständig beschreiben können. Ihre Betrachtung ermöglicht aber ein grundlegendes Verständnis der zu berücksichtigenden Transportvorgänge in der Umwelt.

Den damaligen Wissensstand zum globalen Iod-Kreislauf fasste Bonka [1982] zusammen. Er entwickelte ein Kompartiment-Modell für den Austausch von Iod zwischen Geosphäre, Hydrosphäre, Atmosphäre und Biosphäre (Abbildung 3.1). In den Boxen sind die Inventare der einzelnen Kompartimente an stabilem Iod in  $\text{g}$  angegeben. Die Pfeile bezeichnen die Stoffflüsse in  $\text{g a}^{-1}$ . Das Modell vermittelt bereits einen ersten Eindruck der relevanten Umweltkompartimente und der wichtigsten Austauschprozesse. Der überwiegende Teil des terrestrischen Iods befindet sich in Gesteinen und Sedimenten. Deutlich geringere Mengen Iod nehmen an den schnelleren Austauschprozessen zwischen Hydro-, Atmo- und Biosphäre teil. Die Pedosphäre, die in Wechselwirkung mit der Hydrosphäre und Biosphäre steht, wird von Bonka in diesem globalen Modell nicht berücksichtigt. Die gesonderte Betrachtung dieser Bereiche führte Bonka jedoch zu einem weiteren einfachen Modell, dass in

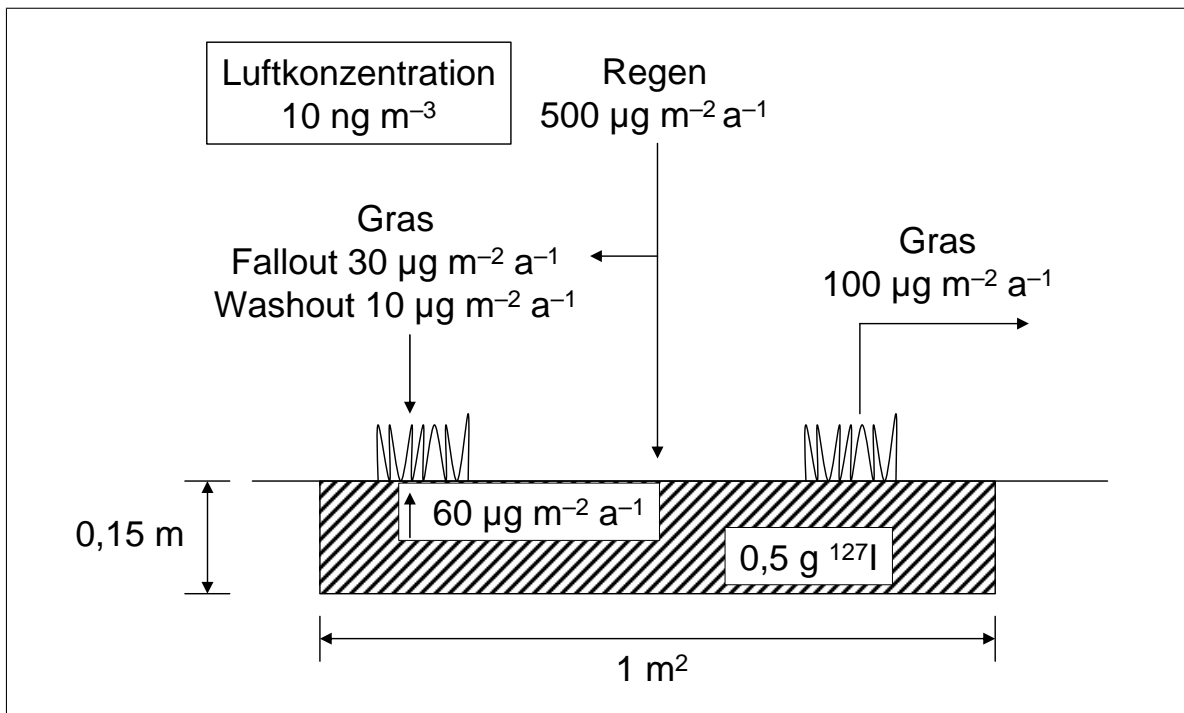


**Abbildung 3.1:** Kompartiment-Modell für den Austausch von Iod zwischen Geosphäre (Gestein und Sediment), Hydrosphäre, Atmosphäre und Biosphäre nach Bonka [1982]

Abbildung 3.2 wiedergegeben ist. Dabei wird ein gewisses mit Gras bewachsenes Bodenvolumen betrachtet. Der Eintrag von Iod durch Fallout (trockene Deposition) und Washout (nasse Deposition) sowie die Evaporation vom Gras zurück in die Luft sind dargestellt.

Ein bereits komplexeres Modell stellte Fabryka-Martin [1984] vor (siehe Abb. 3.3). Die Autorin betrachtete dabei die Atmosphäre getrennt über dem Ozean und über Landmassen und teilte den Ozean in die Mischungsschicht, die Tiefsee und junge Sedimente. Beim Grundwasser wird oberflächennahes und tiefes Grundwasser unterschieden.

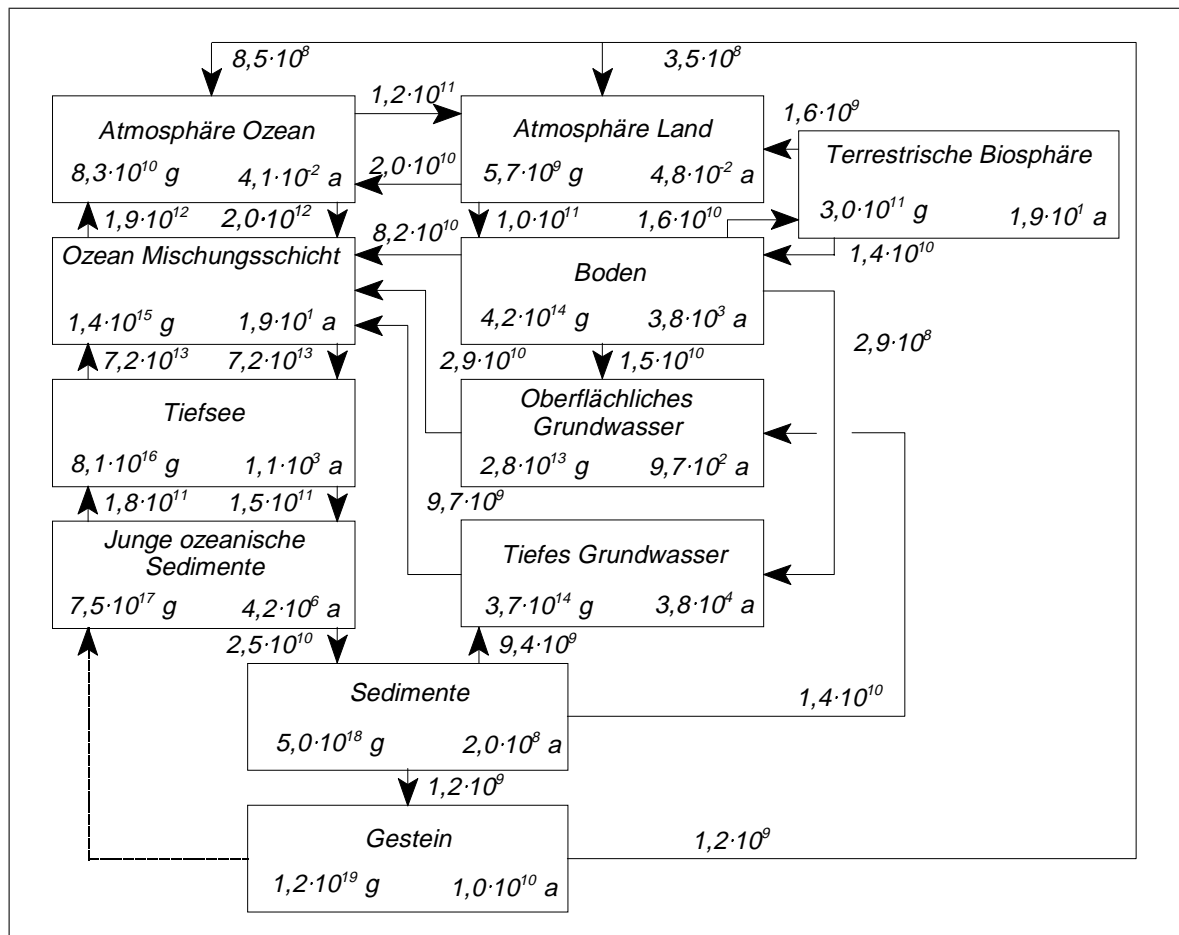
Die beiden vorgestellten Modelle von Bonka und Fabryka-Martin stimmen generell überein. Sie sollen an dieser Stelle verdeutlichen, welche Bereiche und welche Transportprozesse bei der Betrachtung des Verhaltens eines einzelnen Stoffes in der Umwelt zu berücksichtigen sind. Es wird deutlich, dass man solche Modelle beliebig komplex gestalten kann. Unter-



**Abbildung 3.2:** Modell zum Iodaustausch zwischen Atmosphäre, Pedosphäre und Bewuchs nach Bonka [1982]

schiede zwischen den Modellen sollen in dieser Arbeit ebensowenig betrachtet werden wie die einzelnen Angaben zu Inventaren oder Stoffflüssen.

Dem vorgestellten Iodkreislauf folgen die natürlichen Vorkommen ebenso, wie das künstlich eingetragene Iod. Für die radioökologische Betrachtung des Weges des Iods zum Menschen spielen vor allem die aktuellen Vorkommen in der Pedosphäre und der terrestrischen Biosphäre eine Rolle. Da das Iod dieser Kompartimente überwiegend aus dem Meer stammt, soll die Darstellung der aktuellen Situation und des wissenschaftlichen Kenntnisstandes im Hinblick auf  $^{129}\text{I}$  dem Pfad Meer–Atmosphäre/Niederschlag–Pedosphäre/Biosphäre folgen.



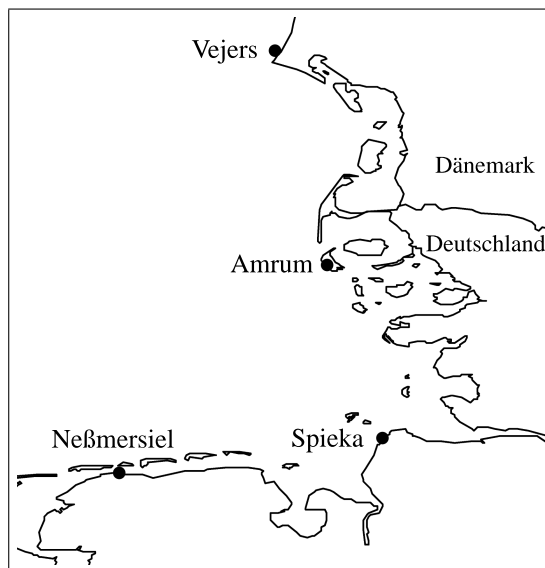
**Abbildung 3.3:** Globales Kompartiment-Modell für stabiles Iod nach Fabryka-Martin [1984]. Gezeigt ist die von Schmidt [1998] übersetzte und modifizierte Darstellung. In den Kompartimenten sind die Inventare in g sowie die mittleren Verweilzeiten in a dargestellt. Die Flüsse zwischen den Kompartimenten sind in  $\text{g a}^{-1}$  angegeben.

## 3.2 Die Situation in der Nordsee und angrenzenden Meeren

Für den Eintrag von  $^{129}\text{I}$  auf das europäische Festland sind die flüssigen und gasförmigen Emissionen der beiden Wiederaufarbeitungsanlagen in Frankreich (La Hague) und Großbritannien (Sellafield) verantwortlich. Ihre jeweilige geographische Lage ist aus Abbildung 3.5 auf Seite 15 ersichtlich. Die flüssigen Einleitungen aus Sellafield gelangen in die Irische See, die von La Hague werden in den Ärmelkanal abgegeben. Aus beiden Quellen gelangt  $^{129}\text{I}$  in die Nordsee und in den Nordostatlantik. Zahlreiche Messungen in den letzten Jahrzehnten haben eine deutliche Erhöhung des natürlichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses, das in der ozeanischen Mischungsschicht bei  $\sim 1,5 \cdot 10^{-12}$  liegt [Moran u. a. 1997], gezeigt. Yiou u. a. [1994] sowie Raisbeck u. a. [1995] bestimmten das Isotopenverhältnis in den Jahren 1984 bis 1992 in Seewasser und Seetang. Vor der Küste des Nord-Cotentin fanden sie maximale Isotopenverhältnisse von  $7,6 \cdot 10^{-7}$  bis  $3,7 \cdot 10^{-6}$ . Vor Sellafield in der Irischen See wurden Isotopenverhältnisse zwischen  $5,1 \cdot 10^{-7}$  und  $8,9 \cdot 10^{-7}$  gemessen. Für die Nordsee geben die Autoren ein Isotopenverhältnis von  $4,6 \cdot 10^{-8}$  an. Durch die Verdünnung beim Weitertransport des  $^{129}\text{I}$  mit der Meeresströmung findet man in weiterer Entfernung von den Emittenten geringer Isotopenverhältnisse. Vor der norwegischen Küste konnten die selben Autoren das Isotopenverhältnis in Meerwasser zu  $1,1 \cdot 10^{-8}$  bestimmen. Bei den Färöer-Inseln wurden Isotopenverhältnisse zwischen  $3,2 \cdot 10^{-9}$  und  $3,7 \cdot 10^{-9}$  gemessen, bei Island solche von  $2,4 \cdot 10^{-10}$  bis  $2,9 \cdot 10^{-10}$ . Von der kalifornischen Küste werden von Kilius u. a. [1994] Isotopenverhältnisse im Bereich  $0,86 \cdot 10^{-10}$  bis  $1,5 \cdot 10^{-10}$  berichtet. Messungen an frischen Sedimenten aus dem Golf von Mexiko zeigen ein Isotopenverhältnis von etwa  $7 \cdot 10^{-11}$  [Schink u. a. 1995].

Am ZSR wurde küstennahes Nordseewasser aus den Jahren 1999 bis 2002 auf  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  untersucht [Michel u. a. 2004; Ernst 2003]. Die Probenahmeorte und die Ergebnisse sind in Abbildung 3.4 bzw. Tabelle 3.1 dargestellt. Die gemessenen Isotopenverhältnisse liegen zwischen  $9,2 \cdot 10^{-7}$  und  $2,7 \cdot 10^{-6}$ . Ein Vergleich mit den oben vorgestellten Daten von Yiou u. a. [1994] und Raisbeck u. a. [1995] zeigt, dass das aktuelle Isotopenverhältnis in der Nordsee um mehr als eine Größenordnung höher liegen als noch Anfang der 1990er Jahre.

In umfangreichen Messreihen, die teilweise bis 1980 zurückreichen, hat die Gruppe um Hou das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in Seetang und Algen an der dänischen und der norwegischen Küste bestimmt [Hou u. a. 1999]. Eine Zusammenstellung dieser Daten findet sich in Tabelle A.1 im Anhang. Abbildung 3.5 zeigt die Probenahmeorte und die geographische Lage der beiden Emittenten in La Hague und Sellafield. Eine Gegenüberstellung der Iso-



**Abbildung 3.4:** Ausschnitt aus der deutschen und dänischen Nordseeküste mit Probenahmeorten der am ZSR untersuchten Nordseewasserproben

**Tabelle 3.1:** Am ZSR gemessene  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Nordseewasser. Die einzelnen Konzentration von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sowie die Messunsicherheiten können der Originalliteratur entnommen werden.

Ort	Datum	Isotopenverhältnis	Quelle
Vejers	Juni 1999	$1,41 \cdot 10^{-6}$	[Szidat 2000]
Spieka	Juli 1999	$1,53 \cdot 10^{-6}$	[Szidat 2000]
Spieka	Januar 2000	$1,54 \cdot 10^{-6}$	[Szidat 2000]
Amrum Wattseite	Juli 2000	$1,82 \cdot 10^{-6}$	[Ernst 2003]
Amrum Meerseite	Juli 2000	$2,71 \cdot 10^{-6}$	[Ernst 2003]
Amrum Wattseite	April 2002	$1,55 \cdot 10^{-6}$	[Ernst 2003]
Amrum Meerseite	April 2002	$9,90 \cdot 10^{-7}$	[Ernst 2003]
Neßmersiel	Dezember 2001	$9,20 \cdot 10^{-7}$	[Ernst 2003]
Neßmersiel	März 2002	$1,18 \cdot 10^{-6}$	[Ernst 2003]



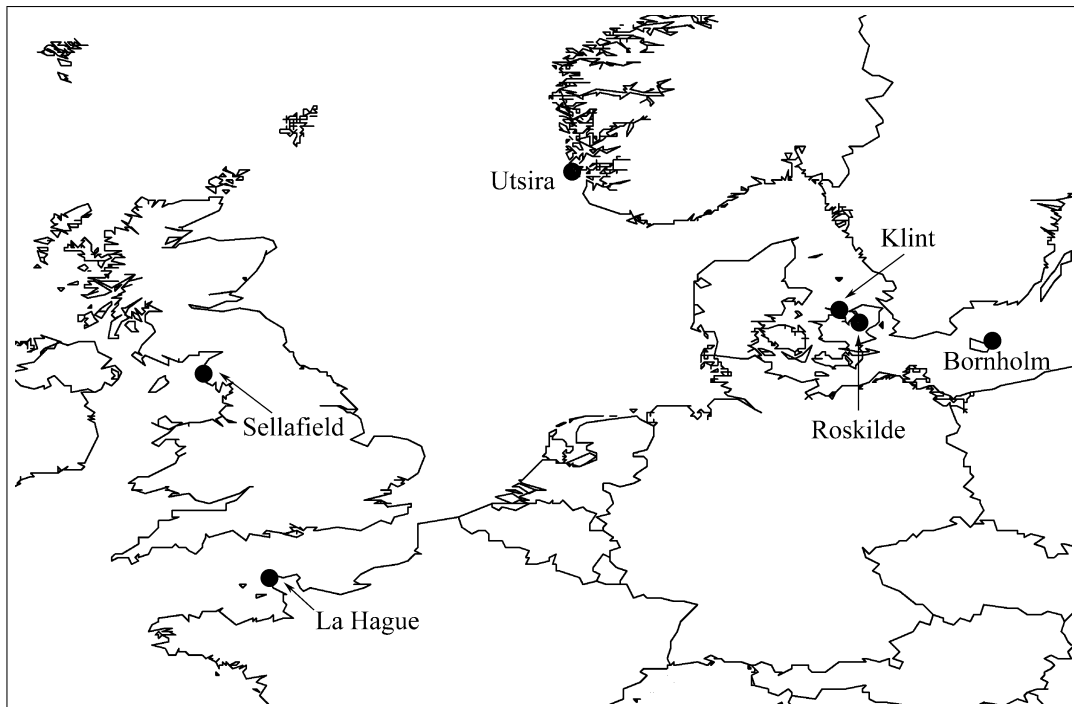


Abbildung 3.5: Lagen der Probenahmeorte von Algen und Seetang aus der Arbeit von Hou u. a. [1999] und der beiden Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield

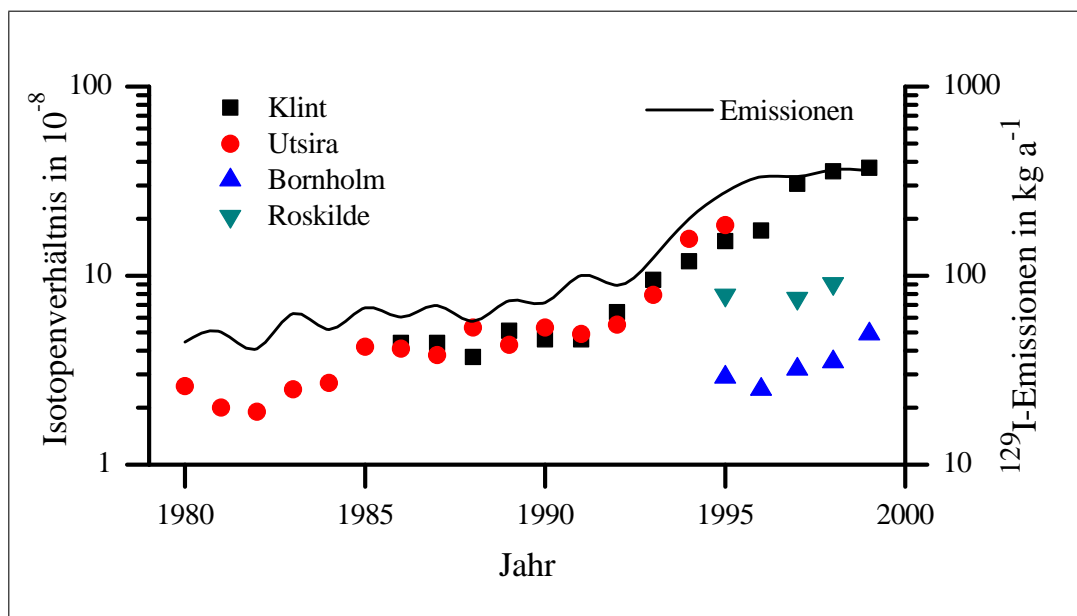


Abbildung 3.6: Gegenüberstellung von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in Algen und Seetang von der norwegischen und dänischen Küste und den flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen von Sellafield und La Hague nach Hou u. a. [1999, 2000b].

topenverhältnisse und der flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen zeigt deutlich den zeitlichen Zusammenhang zwischen steigenden Emissionen und steigenden Isotopenverhältnissen in Umweltproben (siehe Abb. 3.6). Als Folge der andauernden Emissionen ist das Isotopenverhältnis in den letzten 20 Jahren um mehr als eine Zehnerpotenz angestiegen.

In oberflächennahen Seewasserproben aus dem Jahr 1999 bestimmten Alfimov u. a. [2004a] die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte entlang einer Route vom Atlantik, über die Nordsee und das Skagerrak, bis in die Ostsee. Das Skagerrak ist ein Teil der Nordsee und liegt zwischen Norwegen und Dänemark. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden basierend auf durchschnittlichen  $^{127}\text{I}$ -Gehalten abgeschätzt. Fernab von den Emittenten liegt das Isotopenverhältnis im Nordostatlantik bei etwa  $10^{-10}$ . An der Nordspitze Großbritanniens wurde ein Isotopenverhältnis von ca.  $10^{-8}$  gemessen. Bei der Südspitze Norwegens, sowie im Skagerrak, wurden die höchsten Isotopenverhältnisse mit etwa  $2 \cdot 10^{-7}$  registriert. In der östlichen Ostsee liegen diese mit etwa  $2 \cdot 10^{-8}$  wieder deutlich niedriger.

Im Jahr 2001 nahmen Alfimov u. a. [2004b] Meerwasserproben entlang einer Route von der norwegischen Westküste über das Nordmeer bis zum Nordpol. Neben Oberflächenwasser wurden auch drei Tiefenprofile im Polarmeer genommen. Während in zwei Oberflächenwasserproben von der norwegischen Westküste etwa  $3 \cdot 10^{10}$   $^{129}\text{I}$ -Atome pro Liter ( $0,39 \text{ pg kg}^{-1}$ ) gemessen wurden, finden sich im Arktischen Ozean noch  $1,2 \cdot 10^9$  bis  $1,9 \cdot 10^9$   $^{129}\text{I}$ -Atome pro Liter ( $0,016 \text{ pg kg}^{-1}$  bis  $0,025 \text{ pg kg}^{-1}$ ). Dies ist nach Ansicht der Autoren zum einen auf die lange Transportzeit des Wassers von 6 Jahren von Südnorwegen ins Polarmeer zurückzuführen. Zum anderen seien die Vermischung mit  $^{129}\text{I}$ -armen Wasser und das Absinken der Oberflächenwässer des Atlantiks in tiefere Schichten des Polarmeeres für diese deutliche Abnahme der  $^{129}\text{I}$ -Gehalte verantwortlich.

Ein Sedimentprofil vom Meeresboden des Kattegat, das 1984 bei 96 m Wassertiefe genommen wurde, untersuchten López-Gutiérrez u. a. [2004]. Das Kattegat ist Teil der Ostsee und liegt zwischen Norwegen, Schweden und Dänemark. Es grenzt im Westen an das Skagerrak. In der oberen Schicht (bis 2 cm) fanden die Autoren ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa  $3 \cdot 10^{-8}$ . In den tieferen Schichten zwischen 3 cm und 16 cm sinken die Isotopenverhältnisse kontinuierlich von ca.  $1,5 \cdot 10^{-8}$  auf etwa  $1 \cdot 10^{-9}$ . Die Autoren führten Modellrechnungen für den Transport von  $^{129}\text{I}$  von den Emittenten Sellafield und La Hague bis in das Kattegat durch und konnten einen Großteil des dort registrierten  $^{129}\text{I}$  den flüssigen Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield zuweisen. Die Transportzeiten von diesen beiden Emittenten bis in das Kattegat wurden mit einem bzw. drei Jahren abgeschätzt.

Der Transport von Iod aus dem Meer in die Atmosphäre und weiter mit dem Niederschlag ist sehr komplex. Anorganische und organische gasförmige Iodverbindungen sind daran ebenso beteiligt wie partikelgebundenes Iod in Form von Aerosolen. Ernst [2003] hat einen umfangreichen Beitrag zum Verständnis der Iodchemie und des Iodtransports in der Atmosphäre geleistet. Auf Details dieser Arbeit und anderer Untersuchungen zum Iodtransport in der Atmosphäre kann an dieser Stelle nicht näher eingegangen werden. Vielmehr sollen die bisher verfügbaren Daten zur Immission von  $^{129}\text{I}$  mit dem Niederschlag dargestellt werden.

### 3.3 Eintrag von $^{129}\text{I}$ mit dem Niederschlag

Eine Messung von  $^{129}\text{I}$  in Niederschlag aus Deutschland wurde erstmals von Paul u. a. [1987] publiziert. Anlässlich des Unfalls von Tschernobyl hatten diese Autoren eine einzelne Probe aus Deutschland (München), eine Probe aus Griechenland und wenige weitere aus Israel per AMS auf  $^{129}\text{I}$  und per  $\gamma$ -Spektrometrie auf  $^{131}\text{I}$  untersucht. Für die Regenwasserprobe aus München wird ein  $^{129}\text{I}$ -Gehalt von  $(260 \pm 38) \cdot 10^8$  Atomen pro Liter berichtet, entsprechend etwa  $(5,5 \pm 0,8) \cdot 10^{-12}$  g L<sup>-1</sup>. Der Gesamtiod- bzw.  $^{127}\text{I}$ -Gehalt dieser Probe wurde nicht ermittelt.

Nimmt man die von Paul u. a. [1987] ermittelte  $^{129}\text{I}$ -Konzentration und die am ZSR seit 1997 gemessenen  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in norddeutschen Regenwässern als Anhaltspunkt, so kann das Isotopenverhältnis der Münchener Probe von 1986 abgeschätzt werden. Um dabei den direkten Einfluss der Nordsee und die Erhöhung des Iod-Gehaltes beim Durchfallen durch die Vegetation unberücksichtigt zu lassen, werden dazu nur die Freilandniederschläge aus den Regionen II bis IV verwendet. Die Messung des Freilandregens aus Buer-Ostenwalde vom 3. Quartal 2003 ( $19,9 \text{ ng g}^{-1} \text{ }^{127}\text{I}$ ) wurde dabei als Ausreißer verworfen (Test nach Graf und Henning [Graf u. a. 1987]). Die restlichen 63 Proben weisen für die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration einen geometrischen Mittelwert von  $1,68 \text{ ng g}^{-1}$  bei einer geometrischen Standardabweichung von 1,5 auf. Die Einzelwerte finden sich in den Tabellen C.2, C.4 und C.6 im Anhang. Da nur eine grobe Abschätzung vorgenommen wird, soll auf die weitere Betrachtung der Unsicherheiten hier verzichtet werden. Mit dem  $^{129}\text{I}$ -Gehalt von Paul u. a. [1987] und den mittleren  $^{127}\text{I}$ -Gehalt der ZSR-Regenproben ergibt sich für die Münchener Probe von 1986 ein Isotopenverhältnis von  $3,3 \cdot 10^{-6}$ . Unter der Annahme, dass der Regen in Süddeutschland wegen der großen Entfernung zum Meer eventuell eine noch geringere  $^{127}\text{I}$ -Konzentration aufweist, liegt das reale Isotopenverhältnis dieser Probe wahrscheinlich noch über diesem Wert.

Bachhuber und Bunzel [1992] bestimmten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in monatlich genommenen Niederschlagsproben aus der Nähe von Regensburg in den Jahren 1988 und 1989. Das mittlere Isotopenverhältnis wird von diesen Autoren für das erste bzw. zweite Jahr mit  $6,2 \cdot 10^{-7}$  und  $9,6 \cdot 10^{-7}$  angegeben. Starke monatliche Schwankungen spiegeln sich in den ermittelten Depositionsdichten wider. Sie liegen für  $^{129}\text{I}$  bei  $0,083 \text{ mBq m}^{-2}$  bis  $1,3 \text{ mBq m}^{-2}$  und für  $^{127}\text{I}$  bei  $0,031 \text{ mg m}^{-2}$  bis  $0,18 \text{ mg m}^{-2}$ .

Für die Jahre 1994 und 1995 ermittelten Krupp und Aumann [1999] in umfangreichen Untersuchungen von Niederschlagsproben aus Deutschland die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis. Durchschnittliche  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen lagen in dieser Zeit zwischen  $(0,8 \pm 0,2) \cdot 10^{-12} \text{ g L}^{-1}$  und  $(3,2 \pm 0,9) \cdot 10^{-12} \text{ g L}^{-1}$ . Aus geringfügig höheren Absolutkonzentrationen von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Meeresnähe wird in dieser Arbeit der Einfluss des Meeres auf Iod-Gehalte im Niederschlag deutlich. Das Isotopenverhältnis in den Proben von 1995 liegt zwischen  $(6,0 \pm 2,5) \cdot 10^{-7}$  und  $(9,7 \pm 3,9) \cdot 10^{-7}$ . Eine Abnahme der Isotopenverhältnisse mit der Entfernung vom Meer wird in dieser Arbeit nicht beobachtet. Die Autoren schließen daraus, dass in ganz Deutschland das Iod im Niederschlag demselben Pfad Meer–Atmosphäre–Niederschlag folgt.

Schnabel u. a. [2001] stellten in ihrer Arbeit  $^{129}\text{I}$ -Daten für Niederschlagsproben aus Europa zusammen, darunter auch einige aus den zuvor genannten Publikationen. In eigenen Messungen haben diese Autoren  $^{129}\text{I}$  für die Jahre 1994 bis 1997 mit monatlicher Auflösung in Niederschlagsproben von einem Standort nahe Zürich in der Schweiz bestimmt. Es wurden starke monatliche Schwankungen in den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen festgestellt. Die niedrigste Konzentration in diesem Zeitraum wird mit  $(2,16 \pm 0,11) \cdot 10^8$  Atomen pro Kilogramm (ca.  $0,05 \cdot 10^{-12} \text{ g kg}^{-1}$ ), die höchste mit  $(445 \pm 13) \cdot 10^8$  Atomen pro Kilogramm (ca.  $9,4 \cdot 10^{-12} \text{ g kg}^{-1}$ ) angegeben. Die mittleren jährlichen Isotopenverhältnisse wurden unter Annahme einer mittleren  $^{127}\text{I}$ -Konzentration im Niederschlag von  $1,75 \mu\text{g kg}^{-1}$  berechnet. Sie liegen bei  $3,8 \cdot 10^{-7}$  für 1994,  $3,2 \cdot 10^{-7}$  für 1995 und  $4,0 \cdot 10^{-7}$  für 1996/97. Die Autoren vergleichen diese zwischen 1988 und 1999 beobachteten Immissionen mit den zeitlichen Verlauf der flüssigen und gasförmigen Emissionen der beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen. Während die jährlichen flüssigen Emissionen deutlich ansteigen, wird bei den gasförmigen Emissionen und den Immissionen eine gewisse Konstanz beobachtet. Daraus ließe sich ein deutlicher Einfluss der gasförmigen Emissionen auf die Immissionen ableiten. Die Datenbasis ist jedoch klein und es konnte noch nicht geklärt werden, zu welchem Anteil das  $^{129}\text{I}$  der flüssigen Ableitungen in die Atmosphäre gelangt. Daher bleibt die Frage, ob die flüssigen oder die gasförmigen Emissionen hauptverantwortlich für den Eintrag auf das europäische Festland sind, vorerst offen.

Einen wichtigen Beitrag zur Betrachtung der zeitlichen Entwicklung der  $^{129}\text{I}$ -Immissionen lieferten Wagner u. a. [1996]. In Schichten eines Eisbohrkerns vom Fiescherhorn in der Schweiz konnten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag rückwirkend für die Jahre 1950 bis 1986 bestimmt werden. Dabei zeigt sich in diesem Zeitraum ein kontinuierlicher Anstieg der Isotopenverhältnisse von ca.  $2 \cdot 10^{-9}$  auf etwa  $1 \cdot 10^{-7}$ .

Mit dem Niederschlag werden also „frisches“  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  kontinuierlich in die belebte Umwelt auf dem Festland eingetragen. Den resultierenden Iodvorkommen in der Pedosphäre widmet sich der folgende Abschnitt.

### 3.4 $^{129}\text{I}$ in Böden

Bei der Betrachtung des Verhaltens von anthropogenen Radionukliden auf ihrem Weg von Quellen bis zum Menschen spielen Böden eine große Rolle, da sie im ständigen Kontakt mit weiteren Umweltkompartimenten stehen. Je nach chemischen und physikalischen Eigenschaften werden die Nuklide unterschiedlich stark vom Boden akkumuliert oder weiterverteilt. In der Ökologie der Iod-Isotope, die in der Umwelt sehr mobil sind, nimmt der Boden eine Schlüsselrolle ein. Hier findet ein Stoffaustausch zwischen Niederschlag, Bodenmatrix, Bodenwasser, Oberflächenwasser, Grundwasser und Pflanzen statt. Durch nasse und auch trockene Deposition wird der Boden mit Iod-Isotopen beaufschlagt, durch Evapotranspiration gelangen flüchtige Iodverbindungen zurück in die Atmosphäre. Über Wurzeln kann Iod von Pflanzen aufgenommen werden und bei deren Verzehr auch zum Menschen gelangen. Durch Migration in tiefere Bodenschichten gelangen Iodverbindungen ins Grundwasser und werden zudem aus dem Wurzelbereich von Pflanzen entfernt. Diese zahlreichen Transport- und Austauschprozesse sind sehr komplex und hängen von vielen Faktoren ab. So sind z. B. die chemischen Eigenschaften des Bodens, sein Wasserhaushalt und die chemische Form (Speziation) des Iods zu berücksichtigen. Bei der Bindung von Iod in Böden sowie bei der Wiederfreisetzung spielen Mikroorganismen und Enzyme eine große Rolle. Zum Thema „Einfluss von Bodeneigenschaften auf den Iodgehalt“ haben Whitehead [1984] und Johanson [2000] jeweils einige vorangehende Publikationen zusammengefasst. In der hier vorliegenden Arbeit kann auf die Bodencharakteristika und die damit zusammenhängenden Bindungsformen des Iod in den untersuchten Böden nicht eingegangen werden. Daher soll im Folgenden nur ein kurzer Einblick in typische Iodkonzentrationen in Böden gegeben werden.

Whitehead [1984] zitiert hierzu einige Übersichtsartikel und nimmt  $5 \text{ mg kg}^{-1}$  ( $= \mu\text{g g}^{-1}$  = ppm) als weltweiten durchschnittlichen Iodgehalt in Oberböden an. Dabei unterliegt der

Iodgehalt in Böden einer großen Schwankungsbreite, die vor allem auf unterschiedliche Bodeneigenschaften und unterschiedliche Eintragungsmengen zurückzuführen ist. So fand der Autor in einer eigenen Studie alleine in Großbritannien in unterschiedlichsten Böden Iodkonzentrationen zwischen  $0,5 \text{ mg kg}^{-1}$  und  $98,2 \text{ mg kg}^{-1}$  mit einem Mittelwert von  $9,2 \text{ mg kg}^{-1}$  [Whitehead 1979]. Iodkonzentrationen in Böden aus ganz Deutschland hat Schnell [1997] bestimmt. In Oberbodenmischproben bis 15 cm Tiefe von 27 Orten in ganz Deutschland wurden zwischen  $0,012 \text{ mg kg}^{-1}$  und  $6,52 \text{ mg kg}^{-1}$  Iod gefunden.

Eine Arbeit von Gerzabek u. a. [1999] stellt ebenfalls den Einfluss von Bodeneigenschaften auf Iod- und auch Bromgehalte von Böden heraus. Iodkonzentrationen von 40 untersuchten österreichischen Böden liegen zwischen  $1,1 \text{ mg kg}^{-1}$  und  $5,6 \text{ mg kg}^{-1}$  mit einem Median von  $3,2 \text{ mg kg}^{-1}$ . Dabei weisen carbonatfreie Böden signifikant weniger Iod auf als carbonathaltige. Eine Korrelationsanalyse ergab zudem eine positive Beziehung zwischen Iod- und Tongehalt und eine negative zwischen Iod- und Sandgehalt der Böden. Auch die Entstehung von Böden hat einen Einfluss auf ihren Gesamtiodgehalt. Gerzabek zitiert hierzu Muramatsu und Wedepohl [1998], die über sehr niedrige Iodkonzentrationen in Eruptivgestein berichten ( $0,005 \text{ mg kg}^{-1}$  bis  $0,03 \text{ mg kg}^{-1}$ ), während sie für Sedimentgestein deutlich höhere Konzentrationen von  $1 \text{ mg kg}^{-1}$  bis  $30 \text{ mg kg}^{-1}$  angeben.

Hauptziel der oben genannten Arbeit von Schnell [1997] war die Bestimmung des Radionuklids  $^{129}\text{I}$  in einzelnen Schichten von Bodenprofilen. In den obersten Schichten (0 cm bis 5 cm) liegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen  $0,3 \text{ } \mu\text{Bq g}^{-1}$  und  $6,3 \text{ } \mu\text{Bq g}^{-1}$ , entsprechend etwa  $4,6 \cdot 10^{-14} \text{ g g}^{-1}$  bzw.  $9,6 \cdot 10^{-13} \text{ g g}^{-1}$ .

Mit  $^{129}\text{I}$  in Böden beschäftigt sich seit langem auch das ZSR. In den letzten Jahren wurden Untersuchungen zur Migration der Iod-Isotope  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Böden durchgeführt [Ernst 2003; Ernst u. a. 2003, 2002]. An fünf bodenkundlich vollständig charakterisierten Bodenprofilen aus Niedersachsen wurden die beiden Nuklide bis in eine Tiefe von 1,5 m, bei zwei weiteren bis in eine Tiefe von 2,5 m quantifiziert. In der jeweils oberen Bodenschicht, die je nach Profil bis zu einer Tiefe von 10 cm, 15 cm oder 20 cm reicht, wurden  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen  $2,4 \text{ } \mu\text{g g}^{-1}$  und  $5,6 \text{ } \mu\text{g g}^{-1}$  gefunden.

Für  $^{127}\text{I}$  kann der Verlauf der tiefenabhängigen Konzentrationen in erster Näherung mit einer fallenden Exponentialfunktion beschrieben werden. Dieser Verlauf belegt, dass das im Boden vorhandene  $^{127}\text{I}$  das Ergebnis atmosphärischen Eintrags ist. Dieser Eintrag erfolgt seit dem Schmelzen der Eismassen der letzten Eiszeit (Weichsel-Eiszeit) vor etwa 10 000 Jahren. Dagegen erfolgt der Eintrag von anthropogenem  $^{129}\text{I}$  erst seit den 1940er Jahren.

Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen der oberen Schichten der von Ernst untersuchten Bodenprofile liegen zwischen  $0,27 \mu\text{Bq g}^{-1}$  und  $1,4 \mu\text{Bq g}^{-1}$ , entsprechend etwa  $4,1 \cdot 10^{-14} \text{ g g}^{-1}$  bzw.  $2,2 \cdot 10^{-13} \text{ g g}^{-1}$ .

In den Profilen zeigt sich ein unterschiedliches Migrationsverhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ . Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Eintragszeiträume konnte Ernst die Dynamik der Sorptionsprozesse, welche die Migration und die Akkumulation bestimmen, beurteilen. Die getrennte Betrachtung der oberen wasserungesättigten und der tieferen wassergesättigten Bodenzone sowie die Berücksichtigung der bodenkundlichen Charakteristika ermöglichte es dem Autor, das unterschiedliche Verhalten der beiden Iod-Isotope zu deuten. Da  $^{127}\text{I}$  über einen langen Zeitraum eingetragen wurde und nur langsam austauschbar ist, kann die derzeitige Migration von Iod nicht allein anhand der Konzentrationsänderung des stabilen Iod-Isotops mit der Tiefe verfolgt werden. Dazu wäre eine Unterscheidung zwischen aktuell eingetragenen  $^{127}\text{I}$  und „altem“  $^{127}\text{I}$  nötig, die analytisch nicht möglich ist. Das rezente  $^{129}\text{I}$  hingegen kann als Tracer für die derzeitige Migration von Iod in Böden dienen.

Die von Ernst ermittelten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Oberböden liegen im Bereich  $10^{-8}$  bis  $10^{-7}$ . Das niedrigste Isotopenverhältnis wurde in einer Schicht zwischen 1,5 m und 2 m mit  $5 \cdot 10^{-11}$  bestimmt. Ein Vergleich mit einem prä nuklearen Boden, in dem das Isotopenverhältnis von Szidat [2000] mit  $(5,7 \pm 1,1) \cdot 10^{-12}$  gemessen wurde, zeigt, dass in den niedersächsischen Böden anthropogenes  $^{129}\text{I}$  bis in eine Tiefe von mehr als 2 m nachweisbar ist. Die von Ernst bestimmten Isotopenverhältnisse in den tiefsten Bodenschichten liegen um eine bis drei Größenordnungen über dem prä nuklearen Verhältnis. Offenbar ist eine Migration von Iod bis in diese Tiefen in einem Zeitraum von einigen Jahrzehnten möglich. Das Ausmaß dieser „schnellen“ Migration von frisch eingetragenen Iod in tiefere Bodenschichten ist dabei immer abhängig vom Bodentyp, d. h. seinen chemischen, physikalischen und biologischen Eigenschaften sowie dem Wasserhaushalt. Dies muss auch bei der retrospektiven Dosimetrie von früheren Expositionen durch  $^{131}\text{I}$  berücksichtigt werden. Betrachtet man nur die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte der Oberböden als Maß für die damalige  $^{131}\text{I}$ -Immission, so würde die Strahlenexposition unterschätzt.

Zahlreiche weitere Publikationen, die sich mit dem Verhalten von Iod-Isotopen im Boden beschäftigen, haben als Hauptziel die Klärung des Transfers von Radioiod in Pflanzen. Auf die einzelnen Resultate hier im Detail einzugehen, würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen. Aus radioökologischer Sicht ist vor allem der Transfer in solche Pflanzen zu berücksichtigen, die vom Menschen verzehrt werden. Dieser Transfer ist auch Teil von radioökologischen Modellen, und seine Beschreibung mithilfe von Transferfaktoren wird daher in Kapitel 4 näher betrachtet.





# 4 Radioökologische Modelle und Parameter

## 4.1 Überblick

Radioökologische Modelle haben die Aufgabe, die Wege von Radionukliden von ihren Quellen durch die Umwelt zum Menschen und die dadurch verursachte Strahlenexposition zu beschreiben. Durch die Modellierung der Strahlenexposition, die durch eine hypothetisch freigesetzte Menge an Radionukliden erzeugt wird, kann man auf umgekehrtem Wege Grenzwerte für die Emissionen bestimmen, bei deren Einhaltung eine bestimmte Dosis nicht überschritten wird [z. B. Michel 2003]. Den ersten Anlass, sich mit diesem Thema zu beschäftigen, gab in den 1940er Jahren die Freisetzung künstlicher Radionuklide im Rahmen der Plutoniumproduktion für Kernwaffen und durch die darauf folgenden oberirdischen Kernwaffentests. Bonka [2000] gibt einen umfassenden Überblick über die historische Entwicklung radioökologischer Modelle.

Von der Methodik her sind Gleichgewichts- und dynamische Modelle zu unterscheiden. Ersterere modellieren die langfristigen Auswirkungen von kontinuierlichen Emissionen, während letztere das Verhalten der Radionuklide bei einmaliger, kurzzeitiger Freisetzung beschreiben. Je nach betrachtetem Szenario wurden Modelle zunächst nur für einzelne Radionuklide oder Nuklidgruppen und nicht für alle relevanten Nuklide entwickelt. Ob ein künstliches Radioisotop für die Strahlenexposition des Menschen als relevant zu betrachten ist, hängt von einer Vielzahl von Faktoren ab. Darunter sind die Art und die Energie der abgegebenen Strahlung, die Halbwertszeit, die erzeugten und freigesetzten Mengen und nicht zuletzt die Mobilität in der Umwelt, die auch von den chemischen Eigenschaften abhängt.

Unterschiede zwischen den Modellen sind auch im Grad der Konservativität der Abschätzung der Strahlenexposition zu finden. Unter Konservativität versteht man hier die Vorgehensweise, die in die Modellierung einfließenden Parameter im Zweifelsfall so zu wählen, dass die Strahlenexposition zu hoch abgeschätzt wird. Bei der Festlegung von Grenzwerten für zu erlaubende Emissionen ist man so auf der „sicheren Seite“. Die für den Grad der

Konservativität verantwortlichen Parameter betreffen dabei in der Regel nicht die Expositionspfade oder den Transfer der Nuklide durch die Nahrungskette, sondern die Festlegung der menschlichen Gewohnheiten, z. B. die Verzehrsmengen kontaminierter Nahrungsmittel oder die Aufenthaltszeiten in kontaminierten Gebieten.

Einige der bekanntesten radioökologischen Modelle, in denen auch iodspezifische Parameter Anwendung finden, sollen hier kurz vorgestellt werden. Diese Übersicht erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Ebenso stellt die Reihenfolge keine Form der Wertung dar.

- **Das AVV-Modell:** Dies ist das derzeit in Deutschland gültige Modell zur Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition bei der Freisetzung radioaktiver Stoffe bei dem Betrieb kerntechnischer Anlagen. Dieses Modell wird ausführlich im nächsten Abschnitt dargestellt.
- **ECOSYS-87:** Dieses zeitabhängige, dynamische Modell wurde von Müller und Pröhl [1993] nach dem Unfall in Tschernobyl entwickelt. Es beschreibt die radiologischen Konsequenzen nach kurzzeitiger Ausbreitung und Ablagerung von Radionukliden. Die äußere Strahlenexposition durch luftgetragene und am Boden abgelagerte Nuklide wird ebenso berücksichtigt, wie die innere Exposition durch Inhalation und Ingestion von Radionukliden.
- **FARMLAND:** Die britische Strahlenschutzbehörde (NRPB, National Radiological Protection Board) entwickelt dieses Modell seit Mitte der 1970er Jahre. Es beschreibt vor allem den Transfer von Radionukliden durch die Nahrungskette zum Menschen. Obwohl ursprünglich zur Betrachtung von kontinuierlichen Routineemissionen entworfen, kann inzwischen durch zeitabhängige Parameter auch eine einzelne, unfallbedingte Freisetzung beschrieben werden. Brown und Simmonds [1995] haben den Status des noch immer weiterentwickelten und verwendeten Modells zusammengefasst.
- **PATHWAY:** Anlass für die Entwicklung dieses Modells in den USA war eine wünschenswerte retrospektive Dosimetrie im Hinblick auf den Fallout der oberirdischen Kernwaffentest in Nevada (1951–1962). Es modelliert den Weg von 20 Radionukliden durch die Nahrungskette und liefert, ausgehend von der abgelagerten Aktivität in  $\text{Bq m}^{-2}$ , die vom Menschen aufgenommene Aktivität in Bq. PATHWAY wurde für die Modellierung der Exposition nach einmaliger Deposition von Aktivität entwickelt. Es kann deterministisch und stochastisch verwendet werden. Im ersten Fall wird ein Punktschätzer für die aufgenommene Aktivität geliefert, im zweiten erhält man eine Wahrscheinlichkeitsverteilung, in die die Unsicherheiten der diversen verwendeten Parameter eingehen [Whicker und Kirchner 1987].

Trotz der Vielfalt der Modelle sind die jeweils berücksichtigten Expositionsszenarien sehr ähnlich. Diese grundsätzlich zu beachtenden Pfade von Radionukliden auf ihrem Weg von der Quelle bis zum Menschen sollen im folgenden Abschnitt anhand des in Deutschland derzeit angewandten AVV-Modells erläutert werden. Die in diesem Modell enthaltenen radioökologischen Parameter werden vorgestellt.

## 4.2 Das „AVV-Modell“

In Deutschland regelt die „Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen“ [StrlSchV] den Umgang mit radioaktiven Stoffen. In § 47 StrlSchV werden die Grenzwerte für die potentielle Strahlenexposition von Einzelpersonen der Bevölkerung durch die Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Fortluft oder dem Abwasser von kerntechnischen Anlagen bei Planung, Errichtung, Betrieb, Stilllegung, sicherem Einschluss oder Abbau dieser Anlagen festgelegt. Die Ermittlung der Strahlenexposition erfolgt am Beispiel von Referenzpersonen an den ungünstigsten Einwirkungsstellen für eine Reihe festgelegter Expositionspfade, Lebens- und Verhaltensgewohnheiten, die in Anlage VII der StrlSchV vorgegeben werden. Die Berechnungsverfahren und weitere notwendige Annahmen und Daten sind in einer allgemeinen Verwaltungsvorschrift, kurz AVV, festgelegt [BMU 2003], deren vollständiger Titel „Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV): Ermittlung der Strahlenexposition durch Ableitung radioaktiver Stoffe aus kerntechnischen Anlagen oder Einrichtungen“ lautet. Gemäß AVV sind dabei die folgenden Expositionspfade zu berücksichtigen:

- bei Ableitung radioaktiver Stoffe über den 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

- bei Ableitung radioaktiver Stoffe über den 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

Dieses Schema von Expositionspfaden ist international akzeptiert und wird so oder in leicht abgewandelter Form in zahlreichen anderen radioökologischen Modellen angewandt.

Im Falle der kurzlebigen Iod-Isotope hat die Exposition durch Ingestion der über den Luftpfad verbreiteten Nuklide den größten Anteil an der Gesamtexposition. Die äußere Strahlenexposition hingegen ist, wie auch die Exposition durch Inhalation, zu vernachlässigen. Man geht davon aus, dass luftgetragene Radionuklide wegen ihres schnellen Weitertransports durch den Wind nur kurz an einem Ort auf den Menschen einwirken können. Erfolgt jedoch die Ablagerung auf Pflanzen, so finden die Nuklide relativ schnell ihren Weg in die Nahrungskette und tragen zur Exposition bei. Bei Ableitungen über den Wasserpfad sind die zu berücksichtigenden Zeiten groß gegenüber den Halbwertszeiten kurzlebiger Iod-Isotope. Sie spielen daher bei der Exposition des Menschen keine große Rolle.

Als Beispiel für die komplexen Berechnungen gemäß AVV und die Vielzahl zu berücksichtigender Parameter soll die Modellierung der Ingestionsdosis  $H_{T,g,r}$ , die in einem Gewebe  $T$  durch ein Radionuklid  $r$  verursacht wird, dargestellt werden. Folgende Formel gilt für Emissionen über den Luftpfad und für Referenzpersonen, die älter als 1 Jahr sind. Sie berücksichtigt nicht die Dekontaminationseffekte bei der lebensmitteltechnologischen und haushaltsmäßigen Zubereitung (konservativer Ansatz!).

$$H_{T,g,r} = (U^{Pf} \cdot C_r^{Pf} + U^{Bl} \cdot C_r^{Bl} + U^{Mi} \cdot C_r^{Mi} + U^{Fl} \cdot C_r^{Fl}) \cdot g_{g,r,T} \quad (4.1)$$

mit:

$H_{T,g,r}$	Jahresdosis im Organ oder Gewebe T durch Ingestion des Radionuklids r in Sievert. Der Index g steht für Ingestion – im Gegensatz zu Inhalation.
$U^n$	Jährliche Verzehrsmenge des Nahrungsmittels n in kg; $n = Pf$ (pflanzliche Produkte außer Blattgemüse), $Bl$ (Blattgemüse), $Mi$ (Milch), $Fl$ (Fleisch)
$C_r^n$	spezifische Aktivität des Nahrungsmittels n in $Bq\ kg^{-1}$
$g_{g,r,T}$	Ingestionsdosiskoeffizient für T und r in $Sv\ Bq^{-1}$

Ein Sonderfall, auf den hier nicht weiter eingegangen werden soll, ist die Berechnung der Ingestionsdosis für Kleinkinder unter einem Alter von einem Jahr. Gleichung 4.1 wird dann um einen Summanden für die mit der Muttermilch aufgenommene Aktivität erweitert.

Die spezifischen Aktivitäten (Aktivitätskonzentrationen)  $C_r^n$  in Blattgemüse ( $n = Bl$ ) und in sonstigen pflanzlichen Nahrungsmitteln ( $n = Pf$ ) berechnet man gemäß

$$C_r^n = a_p \cdot A_r \cdot \left[ \left( \bar{F}_r^S + f_W \cdot \bar{W}_r^S \right) \cdot \frac{1 - \exp(-\lambda_{eff,r}^{Pf} \cdot t_e^n)}{Y^n \cdot \lambda_{eff,r}^{Pf}} + \left( \bar{F}_r^G + \bar{W}_r^G \right) \cdot \frac{T_r^n \cdot \left( 1 - \exp(-\lambda_{eff,r}^{Bo} \cdot t_b) \right)}{p_m \cdot \lambda_{eff,r}^{Bo}} \right] \cdot \exp(-\lambda_r \cdot t_n^n) \quad (4.2)$$

mit:

$a_p$	Umrechnungsfaktor $1/(3,15 \cdot 10^7\ s) = 3,2 \cdot 10^{-8}\ s^{-1}$
$A_r$	jährliche Ableitungsmenge des Radionuklids r in Bq
$\bar{F}_r^S$	Langzeitfalloutfaktor für das Sommerhalbjahr in $m^{-2}$
$\bar{W}_r^S$	Langzeitwashoutfaktor für das Sommerhalbjahr in $m^{-2}$
$f_W$	Anteil der durch Niederschlag oder Beregnung auf der Pflanze abgelagerten Aktivität
$\lambda_{eff,r}^{Pf}$	effektive Verweilkonstante für das Verbleiben des Radionuklids r auf der Pflanze in $s^{-1}$ ; $\lambda_{eff,r}^{Pf} = \lambda_V + \lambda_r$
$\lambda_V$	Verweilkonstante für das Verbleiben des Radionuklids r auf der Pflanze in s
$\lambda_r$	physikalische Zerfallskonstante des Nuklids r in $s^{-1}$
$t_e^n$	Kontaminationszeit während der Wachstumsperiode
$Y^n$	Ertrag bzw. Bewuchsdichte der Pflanze n in $kg\ m^{-2}$ (Feuchtmasse)
$\bar{F}_r^G$	Langzeitfalloutfaktor für das gesamte Jahr in $m^{-2}$
$\bar{W}_r^G$	Langzeitwashoutfaktor für das gesamte Jahr in $m^{-2}$
$T_r^n$	Transferfaktor Boden-Pflanze
$\lambda_{eff,r}^{Bo}$	effektive Verweilkonstanten für das Verbleiben des Radionuklids r im Wurzelbereich der Pflanzen in $s^{-1}$ ; $\lambda_{eff,r}^{Bo} = \lambda_{M,r} + \lambda_r$
$\lambda_{M,r}$	Verweilkonstante des Radionuklids r aufgrund des Transports in tiefere Bodenschichten
$t_b$	Zeit, in der sich das Radionuklid auf dem Boden ablagert und anreichert in s
$t_n^n$	Zeit zwischen Ernte und Verbrauch in s

Zur Berechnung der spezifischen Aktivitäten  $C_r^{Mi}$  in Milch und  $C_r^{Fl}$  in Fleisch stellt die AVV weitere Formeln zur Verfügung:

$$C_r^{Mi} = C_r^{Fu} \cdot \dot{M}_{Fu} \cdot T_r^{Mi} \quad (4.3)$$

$$C_r^{Fl} = C_r^{Fu} \cdot \dot{M}_{Fu} \cdot T_r^{Fl} \cdot \exp(-\lambda_r \cdot t_V^{Fl}) \quad (4.4)$$

mit:

$C_r^{Fu}$  spezifische Aktivität des Radionuklids  $r$  im Futter der Tiere in  $\text{Bq kg}^{-1}$ . Diese wird im Prinzip wie in Gl. 4.2 berechnet, ggf. unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Tiere nur einen Teil des Jahres auf der Weide grasen und sonst gelagertes Futter bekommen.

$\dot{M}_{Fu}$  tägliche Aufnahme von Futter in  $\text{kg d}^{-1}$

$T_r^{Mi}$  Transferfaktor des Radionuklids  $r$  vom Futter in die Milch in  $\text{d kg}^{-1}$

$T_r^{Fl}$  Transferfaktor des Radionuklids  $r$  vom Futter in das Fleisch in  $\text{d kg}^{-1}$

$t_V^{Fl}$  Zeit zwischen Schlachten und Fleischverzehr in s

Die diversen in den Gleichungen 4.1 bis 4.4 verwendeten, so genannten radioökologischen Parameter werden im Anhang der AVV zur Verfügung gestellt. Einige Parameter sind bei der Modellierung aller Nuklide anzuwenden, für andere werden nuklidspezifische Werte geliefert. Die Verzehrsmengen verschiedener Nahrungsmitteln sind nach Altersklassen aufgeschlüsselt.

Alle Parameter sind „expert-guess“. Sie basieren z. B. auf meteorologischen Kenntnissen oder auf einer Vielzahl von experimentellen Untersuchungen zum Verhalten einzelner Nuklide. Dabei überwiegen die Arbeiten zu  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$ . Für radioaktive Iod-Isotope wurden die meisten Parameter durch Untersuchungen mit  $^{131}\text{I}$  und  $^{125}\text{I}$  gewonnen.

### 4.3 Transferfaktoren für Iod-Isotope

Für den Weg der radioaktiven Iod-Isotope zum Menschen sind die Transferfaktoren  $T_r$  für die Übergänge Boden–Pflanze, Futter–Milch und Futter–Fleisch die kritischen Parameter. Um eine mögliche Strahlenexposition gut abschätzen zu können, müssen sie genau bekannt sein. Zur Verwendung von Transferfaktoren sind einige Anmerkungen nötig. Die in der AVV und vielen anderen radioökologischen Modellen verwendeten Transferfaktoren basieren auf der Annahme eines linearen Zusammenhangs zwischen den Aktivitätskonzentrationen  $C_r$  eines Radionuklids in zwei Kompartimenten. Eine Änderung der Aktivitätskonzentration in einem Kompartiment hat die proportionale Änderung der Aktivitätskonzentration im Folgekompartiment zur Folge. Das Verhältnis dieser beiden Aktivitätskonzentrationen

ist dann konstant und wird als Transferfaktor bezeichnet. Am häufigsten werden Transferfaktoren für das Verhältnis der Aktivitätskonzentrationen in einem Boden und der darauf wachsenden Pflanzen verwendet.

$$T_r^{Pf} = \frac{C_r^{Pf}}{C_r^{Bo}} \quad (4.5)$$

Die Aktivitätskonzentrationen beider Kompartimente werden dabei üblicherweise in  $\text{Bq kg}^{-1}$  angegeben, sodass der Transferfaktor  $T_r^{Pf}$  einheitenlos ist. Es ist jedoch wichtig anzugeben, ob sich die Aktivitätskonzentrationen auf Frisch- oder Trockenmasse z. B. der Pflanze beziehen. Als Kompartimente können beispielsweise auch Tierfleisch und Milch betrachtet werden (siehe Formel 4.3 und 4.4). Man beschreibt dann den Transfer von Nukliden vom Futter der Tiere in Milch oder Fleisch. Dabei bezieht man die Aktivitätskonzentration in Milch oder Fleisch ( $C_r^{Mi/Fl}$ , in  $\text{Bq kg}^{-1}$ ) auf die täglich mit dem Futter insgesamt aufgenommene Aktivität ( $A_{T\ddot{a}gl.}$ , in  $\text{Bq d}^{-1}$ ):

$$T_r^{Mi/Fl} = \frac{C_r^{Mi/Fl}}{A_{T\ddot{a}gl.}} \quad (4.6)$$

Die Einheit dieser Transferfaktoren ergibt sich dann zu  $\text{d kg}^{-1}$  bzw. bei Milch auch zu  $\text{d L}^{-1}$ . Die täglich mit dem Futter aufgenommene Aktivität berechnet sich durch Multiplikation der Aktivitätskonzentration im Futter mit der Verzehrsmenge (siehe dazu auch Abschnitt 7.3.2).

Es wurden mehrfach Zusammenstellungen von Literaturdaten erarbeitet mit dem Ziel, „beste“ oder „empfohlene“ Transferfaktoren zu erhalten. Dies betrifft ebenfalls die zahlreichen weiteren notwendigen radioökologischen Parameter. In folgenden Publikationen wurden jeweils verschiedene Originalarbeiten ausgewertet und empfohlene Parameter publiziert: IAEA [1982, 1994, 2001]; Green und Woodman [2003]; Coughtrey u. a. [1993]; Staven u. a. [2003]; Cierjacks und Albers [2004]; Robertson u. a. [2003]; Thorne [2003]. Eine umfangreiche Zusammenstellung radioökologischer Parameter aus diesen Publikationen wird von Michel u. a. [2004] gegeben. Im Bezug auf Transferfaktoren sind dabei einige Arbeiten hervorzuheben:

Staven u. a. [2003] erstellten ein Kompendium, welches auf der Zusammenstellung von Robertson u. a. [2003] basiert. Diese Autoren legen besonderen Wert darauf, die Bezüge der Transferfaktoren bzgl. Frisch- oder Trockenmasse zu verdeutlichen. Staven u. a. [2003] geben in ihrer Arbeit auch an, ob und wo die Daten zuvor schon zusammengestellt wurden und verweisen zusätzlich auf die Originalliteratur.

Eine andere aktuelle Zusammenstellung empfohlener Transferfaktoren für den Übergang verschiedener künstlicher Radionuklide vom Futter in Tierprodukte ist die von Green und Woodman [2003]. Sie bearbeiteten 292 Literaturstellen mit 991 Einzelwerten, von denen

77 nach kritischer Beurteilung verworfen wurden. 60 % der Angaben bezogen sich auf den Transfer vom Futter in Kuhmilch, davon etwa 1/6 auf Iod-Isotope. Diese große Datenbasis konnte statistisch ausgewertet werden. Die in dieser Arbeit für den Transfer Futter–Kuhmilch angegebenen Daten sind daher separat in Tabelle A.5 aufgeführt.

Die neuste deutsche Auswertung von radioökologischen Parametern zum Transfer Boden–Pflanze ist die von Cierjacks und Albers [2004]. Von 344 hier zusammengefassten Datensätzen zu  $^{129}\text{I}$  stammen 330 aus Untersuchungen, in denen im Hinblick auf die geplante Wiederaufarbeitungsanlage in Wackersdorf umfangreiche Lysimeterexperimente unter Treibhaus- und Freilandbedingungen durchgeführt wurden [Haisch und Schüttelkopf 1993; Pel 1993]. 320 Datensätze, von denen sich 310 auf den Transfer Boden–Gras beziehen, wurden von Cierjacks und Albers [2004] ausgewertet. Sie geben für den Transferfaktor Boden–Gras einen geometrischen Mittelwert von 0,014 an, bezogen auf jeweils die Trockenmasse von Boden und Gras.

In den Tabellen A.2 bis A.4 im Anhang sind Transferfaktoren für Iod-Isotope bei den Transfers Boden–Pflanze, Futter–Milch und Futter–Fleisch aus diesen und einigen weiteren Publikationen zusammengestellt. Dabei werden die Originalbezeichnungen beibehalten, da sich daraus teilweise weitere Informationen, wie der Bezug auf Trockenmasse (TM) oder Frischmasse (FM), beziehen lassen. Zudem lassen sich einige Begriffe nicht eindeutig übersetzen. Gleichbedeutend mit „Transferfaktor“ sind die englischen Begriffe „transfer factor“, „concentration factor“ oder auch „concentration ratio“.

## 4.4 Variabilität und Unsicherheit radioökologischer Parameter

Die Literatur zu Transferfaktoren ist umfangreich und die Daten sind oft schlecht vergleichbar. Die Transferfaktoren für Iod-Isotope (Tab. A.2 bis A.5) aus verschiedenen Veröffentlichungen und radioökologischen Modellen zeigen teilweise gute Übereinstimmung, teilweise aber auch große Unterschiede. So liegen alleine beim Transfer Futter–Kuhmilch zwischen einzelnen publizierten Werten bis zu zwei Größenordnungen. Dies lässt sich nicht allein auf teilweise fehlende Angaben bzgl. Frisch- oder Trockengewicht des Futters zurückführen. Auch andere Transferfaktoren und radioökologische Parameter weisen eine z. T. große Variabilität auf, da sich die experimentellen Bedingungen, unter denen die Parameter ermittelt wurden, unterscheiden. So werden beispielsweise Untersuchungen zum Transfer Boden–Pflanze teils als Freilandversuche, teils in geschlossenen Gewächshäusern durchgeführt. Es spielt außerdem eine Rolle, ob einmalige, kurzzeitige Beaufschlagungen oder längerfristige



Untersuchungen durchgeführt wurden. Es werden mitunter hohe Aktivitäten an Radionukliden für Transferexperimente eingesetzt, die aber nicht einer realistischen Immissionsituation entsprechen. In diesem Zusammenhang wird vielfach auch die Frage diskutiert, ob das lineare Transferfaktormodel überhaupt universell anwendbar ist. Zahlreiche Untersuchungen weisen darauf hin, dass ein linearer Zusammenhang zwischen zur Verfügung stehender und tatsächlich transferierter Nuklidmenge nicht in allen Fällen gegeben ist. Vahlbruch [2004], der in seiner Arbeit den Transfer natürlicher Radionuklide betrachtet, gibt dort eine Übersicht zu dieser Diskussion und zu alternativen Transfermodellen.

Die genannten Probleme betreffen nicht nur Transferfaktoren, sondern auch andere radioökologische Parameter und alle Radionuklide. Dennoch sind radioökologische Modelle mit entsprechenden Parametern sinnvoll. Auch wenn dabei meist mit Punktschätzern gearbeitet wird und die Variabilität und die Unsicherheit von Parametern unberücksichtigt bleiben, kann eine mögliche Strahlenexposition – zumindest grob und konservativ – abgeschätzt werden. Dies ist z. B. bei der Planung und Genehmigung von kerntechnischen Anlagen sinnvoll.

Bei der Modellierung der tatsächlich entstehenden Strahlendosen bei Tätigkeiten mit radioaktiven Stoffen ist hingegen möglichst realistisch vorzugehen. Diese Forderung wird auch in Artikel 45 der Richtlinie 96/29/Euratom festgehalten [Rat der Europäischen Union 1996]. Diese Richtlinie regelt in der Europäischen Union die Festlegung der grundlegenden Sicherheitsnormen für den Schutz der Gesundheit der Arbeitskräfte und der Bevölkerung gegen die Gefahren durch ionisierende Strahlungen. Ein sinnvoller Ansatz, die Strahlenexposition realistischer zu berechnen, ist die Verwendung von probabilistischen Rechenmethoden in radioökologischen Modellen. Dabei werden einzelne Parameter nicht als Punktschätzer betrachtet, sondern man ordnet ihnen Verteilungen zu. Die letztendlich berechnete Dosis erhält man ebenfalls in Form einer Häufigkeitsverteilung und nicht als Einzelwert. Durch eine so genannte Sensitivitätsanalyse lässt sich zudem ermitteln, welche Parameter den größten Einfluss auf das Berechnungsergebnis haben. Diese können dann gesondert betrachtet und ggf. genauer bestimmt werden. Das radioökologische Modell PATHWAY berücksichtigt diesen Ansatz bereits. Auf dem Gebiet der retrospektiven Dosimetrie nach  $^{131}\text{I}$ -Emission wurden mit diesen Verfahren bereits Berechnungen durchgeführt [Hamby und Benke 1999; Simpkins und Hamby 2003, 2004; Hoffman u. a. 2004].



# 5 Herkunft der Proben und Probenahme

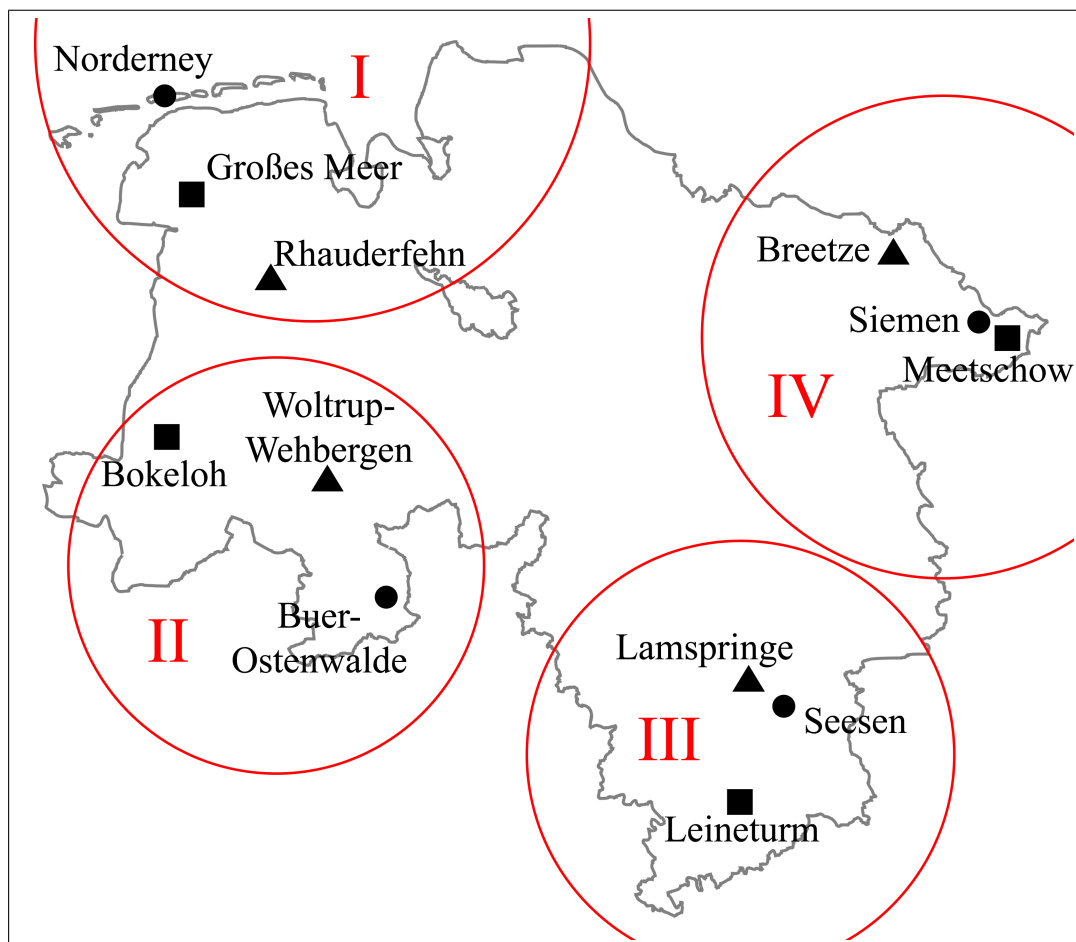
In diesem Kapitel wird die Herkunft der in dieser Arbeit untersuchten Proben und ihre Benennung beschrieben. Es folgen Details der durchgeführten Probenahme, der Konservierungsmaßnahmen und der Lagerung.

## 5.1 Herkunft der Proben

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

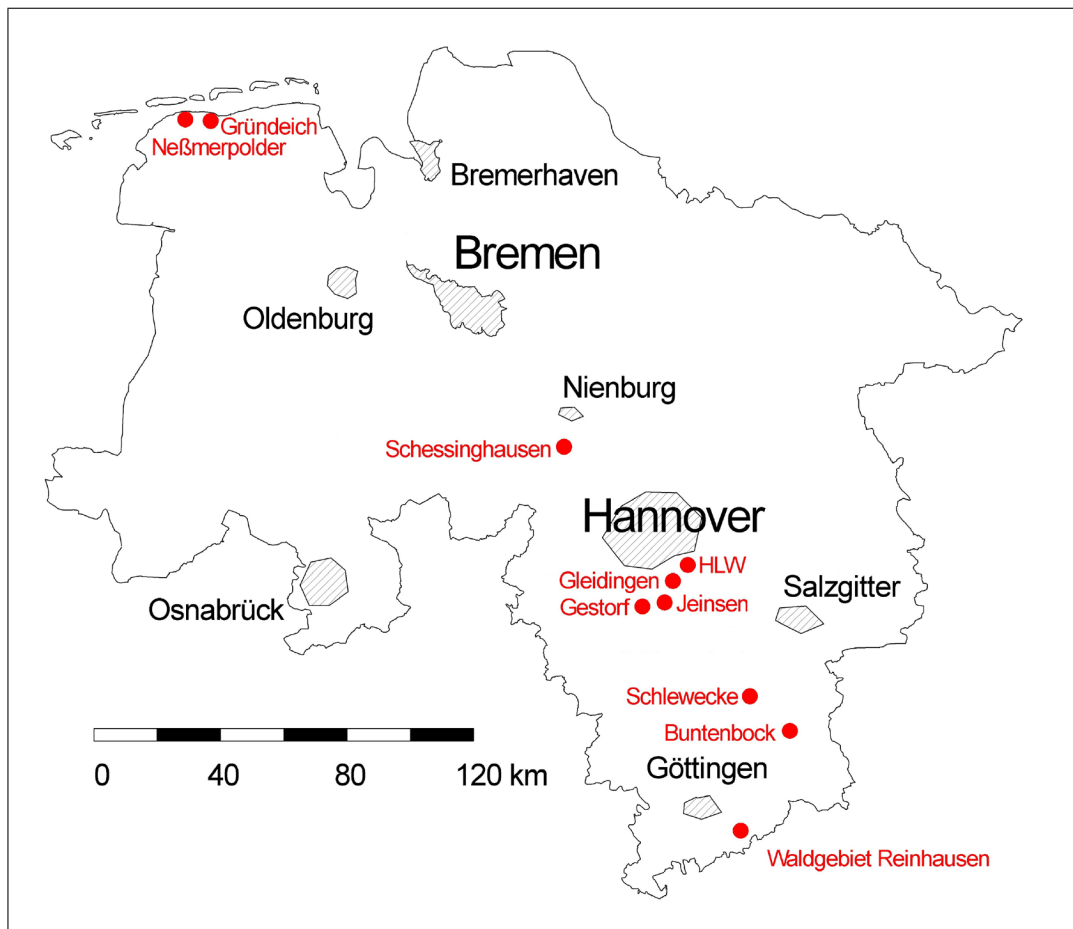
Am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie werden seit 1997 die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlagsproben, Oberflächen- und Grundwasser bestimmt. Die Niederschlagsproben entstammen dem Depositions-Messnetz Niedersachsen, das zur Überwachung der Belastung von Wasser und Boden durch Schadstoffe in Luft und Niederschlägen eingerichtet wurde [NLÖ 1993]. Seitdem konnten von vier Probenahmeorten, die in Abbildung 5.1 dargestellt sind, nahezu durchgängig Quartalsmischproben von Regenwasser genommen werden, die dem ZSR durch das Niedersächsische Landesamt für Ökologie (NLÖ) in Zusammenarbeit mit dem Landesbetrieb für Wasserwirtschaft und Küstenschutz (NLWK) zur Verfügung gestellt wurden. Beide Institutionen wurden am 01.01.2005 zum Niedersächsischen Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz (NLWKN) zusammengelegt. An zwei Messstellen, Buer-Ostenwalde und Seesen, konnte neben Freilandniederschlag auch Bestandsniederschlag beprobt werden, der vor dem Auffangen durch das Blattwerk von Bäumen fällt. Nach Änderungen im Niederschlagsmessnetz stehen die Proben aus Seesen seit Mitte 2000 nicht mehr zur Verfügung.

Die Probenahmeorte von Oberflächen- und Grundwasser sind Bestandteil des integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Umweltradioaktivität (IMIS). Die Probenahme erfolgte ebenfalls durch das NLÖ, das als Landesbehörde die Überwachung der Umweltradioaktivität im Rahmen des IMIS übernommen hatte. Oberflächenwasser wurde als Einzelprobe einmal im Quartal beprobt, Grundwasser einmal pro Halbjahr. Grundwasserproben aus Lamspringe stehen seit dem Jahr 2000 nicht mehr zur Verfügung.



**Abbildung 5.1:** Probenahmeorte für Niederschlag (Kreise), Oberflächenwasser (Quadrate) und Grundwasser (Dreiecke). Einteilung in Regionen nach Szidat [2000].

Um die Diskussion und die Zuordnung der Proben zu vereinfachen, wurde Niedersachsen von Szidat [2000] grob in vier Regionen unterteilt. Region I liegt nahe der Nordseeküste, Region II im Weser-Ems-Gebiet. Region III beinhaltet Südniedersachsen und das Harzvorland und Region IV im Nordosten Niedersachsens schließt das Elbetal und das Wendland ein. Diese Einteilung wird auch in dieser Arbeit weiter verwendet. In Abbildung 5.1 sind die Probenahmeorte der Wasserproben dargestellt. Die Probenahme von Oberflächenwasser erfolgte in der Region I aus einem Binnensee mit dem Namen „Großes Meer“. Bei den Orten Bokeloh, Leinerturm und Meetschow erfolgte die Entnahme aus den Flüssen Hase, Leine und Seege.



**Abbildung 5.2:** Probenahmeorte für Boden, Bewuchs, sowie pflanzliche und tierische Produkte.

### Böden, Bewuchs, pflanzliche und tierische Nahrungsmittel

In diese Kategorie fallen die folgenden Probenarten: Böden, Wiesen- und Weidebewuchs, verschiedene Gemüse, Pilze, Getreide, Milch sowie Fleisch und Schilddrüsen verschiedener Tiere. Die Probenahme erfolgte im Zusammenhang mit einem Projekt zur Untersuchung des Transfers natürlicher Radionuklide und zur realistischen Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland [Vahlbruch 2004]. Dabei wurden etwa 300 Proben genommen, weitaus mehr, als im Rahmen dieser Arbeit auf  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  untersucht werden konnten. Es bot sich dadurch aber die Möglichkeit, ausgehend von ersten Ergebnissen, nach und nach weitere interessante Proben für die aufwendige Iodanalytik auszuwählen.

Durch die Wahl der an der Probenahme beteiligten landwirtschaftlichen Betriebe sollte versucht werden, die unterschiedlichen Regionen in Niedersachsen repräsentativ zu vertreten. Dabei soll zwischen einem küstennahen und einem küstenfernen Gebiet unterschieden werden. Diese beiden Gebiete entsprechen in etwa den Regionen I und III in der o. g. Einteilung.

Region III ist dabei um den Großraum Hannover erweitert worden. In Abbildung 5.2 sind diese Probenahmeorte in Niedersachsen dargestellt. Eine tabellarische Zusammenstellung der Orte mit den geographischen Koordinaten sowie mit allen dort genommenen Probenarten findet sich im Anhang (Tab. B.1, S. 142).

Die Probenahme und Lagerung aller Proben wurde in einer Datenbank dokumentiert. Dort wurde der Ort und die Zeit der Probenahme ebenso festgehalten wie die Probenmenge, die gewählte Verpackung, der Ort und die Art der Lagerung. Zur eindeutigen Identifikation wurde eine eigene Probenomenklatur definiert. Der Code einer individuellen Probe setzt sich dabei wie folgt zusammen:

Beispielcode	Ort	Kategorie	EP/MP	Beschreibung	Nummerierung
<b>GrBoEPBk01</b>	<b>Gr</b>	<b>Bo</b>	<b>EP</b>	<b>Bk</b>	<b>01</b>
	Gründeich	Boden	Einzelprobe	Blumenkohl	1. Probe

„EP“ und „MP“ stehen für Einzel- bzw. Mischproben. Tabelle B.2 auf Seite 143 enthält die vorkommenden Abkürzungen für Orte, Kategorien und Beschreibungen. Erfasst sind dort nur die Abkürzungen zu solchen Proben, die auch tatsächlich der Iod-Analytik unterworfen wurden, und die sich in der Ergebnisübersicht (Tab. C.12) wiederfinden.

### **Menschliche Schilddrüsen**

Menschliche Schilddrüsen wurden dem ZSR vom Institut für Rechtsmedizin der Medizinischen Hochschule Hannover und vom Institut für Rechtsmedizin des Universitätsklinikums Hamburg-Eppendorf zur Verfügung gestellt. Es wurden Proben von solchen Verstorbenen ausgewählt, die vor ihrem Tod längere Zeit in Hannover bzw. Hamburg gelebt hatten, bei denen keine Erkrankung der Schilddrüse bekannt war, und die – soweit nachvollziehbar – keine den Iod-Stoffwechsel beeinflussenden Medikamente zu sich nahmen.

### **Gesamtnahrung und weitere Nahrungsmittel**

Um die Aufnahme der beiden betrachteten Iod-Isotope durch den Menschen mit der Nahrung abschätzen zu können, wurde an der Hauptmensa der Universität Hannover in drei Wochen des Jahres 2002 an je 5 Tagen das Mittagessen beprobt. Von den 15 Proben konnten schließlich aus Zeitgründen nur zehn, d. h. zwei komplette Wochenrationen, auf ihren Iodgehalt hin untersucht werden. Die Zusammensetzung der untersuchten Proben ist in Tabelle B.3, auf Seite 144 dargestellt. Zusätzlich wurden weitere Probenarten genommen, um

ihren Einfluss auf die Iodaufnahme des Menschen untersuchen zu können. Drei iodierte Speisesalze und drei Arten von iodhaltigen Tabletten werden im Zusammenhang mit den Analyseergebnissen in Abschnitt 7.2.6 näher beschrieben. Trinkwasser (Leitungswasser) wurde in Hamburg (eine Probe) und Hannover (zwei Proben) beprobt.

## 5.2 Probenahme und Lagerung

Für das Gelingen einer Analyse sind schon bei der Probennahme und bei der Lagerung einige wichtige Punkte zu beachten. So müssen Proben kontaminationsfrei genommen und gelagert werden. Dazu wurde durch sorgfältige Reinigung und Handhabung aller Probennahmewerkzeuge und -behälter beigetragen. Während der Probenahme und der folgenden Lagerung muss ein Verlust des Analyten verhindert oder quantifiziert werden. Dabei spielt in der Iod-Analytik das Vorliegen oder die mögliche Bildung flüchtiger Spezies eine besondere Rolle. Das Diagramm 5.3 zeigt die relevanten Iod-Spezies in Abhängigkeit vom Redoxpotential (Eh) und dem pH-Wert. Obwohl sich diese Darstellung auf wässrige Lösungen bezieht, und daher der inzwischen bekannte Einfluss von Mikroorganismen auf die Speziation von Iod in der Umwelt und auf die Bildung organischer Iodverbindungen außer Acht gelassen wird, wird die prinzipiell mögliche Bildung von flüchtigem  $I_2$  unter bestimmten Bedingungen deutlich.

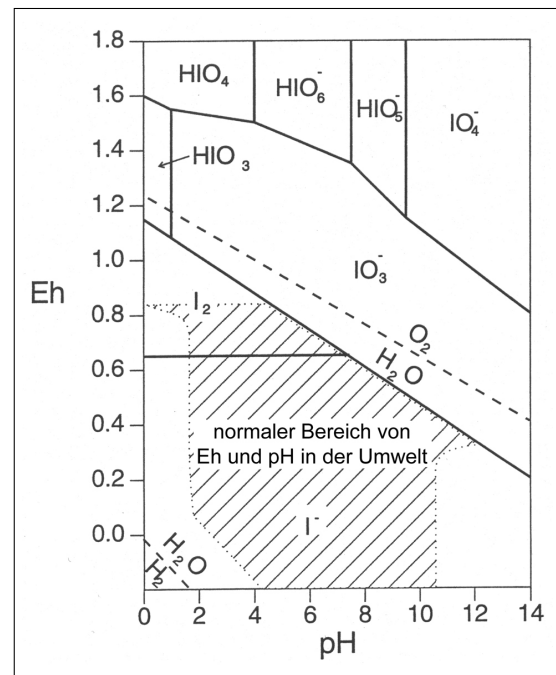


Abbildung 5.3: Eh-pH-Diagramm für Iod nach Rucklidge u. a. [1994]

Ernst [2003] hat in seiner Arbeit die möglichen Bereiche des Redoxpotentials und des pH-Wertes in Böden diskutiert. Demnach liegt das Redoxpotential zwischen  $-0,35$  V und  $0,8$  V, der pH-Wert zwischen 3 und 11. Nur in sauren Böden mit hohem Redoxpotential ist daher die Bildung von flüchtigem  $I_2$  denkbar, allgemein ist jedoch Iodid die dominierende Spezies. Zudem ist davon auszugehen, dass bei der Trocknung von Böden gelöstes Iod am Bodenkörper adsorbiert wird [Ernst 2005]. Die Bildung des flüchtigen Methyljodids ( $CH_3I$ ) hängt mit der biologischen Aktivität des Bodens zusammen, die mit sinkendem Wassergehalt abnimmt. In trockenen Böden ist dann wegen der kaum noch vorhandenen biologischen Ak-

tivität nicht mehr mit der Bildung und dem Entweichen von  $\text{CH}_3\text{I}$  zu rechnen. Ein geringer Verlust an Iod während der Trocknung und Lagerung betrifft beide in dieser Arbeit untersuchten Isotope und hat auf das Isotopenverhältnis, das im Rahmen der radioökologischen Diskussion bedeutsam ist, keinen Einfluss. Dies gilt auch für alle anderen Probenarten, bei denen versucht wurde, die Stabilität im Hinblick auf den Analyten Iod durch geeignete Konservierungsmaßnahmen sicherzustellen. Diese Maßnahmen sind bei der folgenden Beschreibung der einzelnen Probenarten aufgeführt. In der Regel erfolgte ein Einfrieren der Probe, was einen Iod-Verlust bis zur Analyse verhindern sollte. Eine Überprüfung der Konservierungsmaßnahmen konnte aufgrund der großen Anzahl sehr unterschiedlicher Proben nicht erfolgen.

Bei den zu nehmenden Probenmengen konnte bei den unterschiedlichen Matrices meist auf Erfahrungswerte zurückgegriffen werden. Die Probenahme der einzelnen Probenarten wird im Folgenden dargestellt. Weitere Vorbereitungsschritte, wie Trocknen, Einfrieren, Gefrier-trocknen, Zerkleinerung und die Lagerung, die bis zur Probenaufbereitung durchgeführt werden, sind ebenfalls bei der jeweiligen Probenart beschrieben.

### **Wasserproben**

Die Wasserproben erreichten das ZSR in Polyethylenflaschen mit einem Fassungsvermögen zwischen 2 L und 10 L. Zur Konservierung wurden den Proben von Mitarbeitern des NLÖ direkt nach der Probenahme 10 mL Natronlauge ( $7 \text{ mol L}^{-1}$ ) zugegeben. Aufgrund der großen Probenvolumina kann die dadurch erfolgende Verdünnung vernachlässigt werden. Durch das Anheben des pH-Wertes wurde die Bildung von flüchtigem, elementarem Iod verhindert. Die Proben wurden bis zur Aufbereitung im Dunkeln gelagert. Zwischen der Probenahme und der Aufbereitung vergingen in der Regel höchstens einige Monate. Die Stabilität der Proben war über diesen Zeitraum gewährleistet. Weitere Details hierzu finden sich bei Schmidt [1998] und Szidat [2000].

### **Bodenproben**

Bodenproben wurden in der Regel zusammen mit einer entsprechenden Bewuchsprobe entnommen. Es ist zwischen Mischproben und Einzelproben zu unterscheiden. Bodenmischproben wurden dann genommen, wenn der Bewuchs in Form von Gras, Heu, Stroh oder Getreide nicht einer speziellen Stelle, sondern einem ganzen Bereich, wie z. B. einem Feld oder einer Wiese, zugeordnet ist. In diesem Fall wurde in Anlehnung an das Probenahmeverfahren gearbeitet, das in den „Messanleitungen“ [BMU 2000] beschrieben wird. Der



zu beprobende Bereich wurde dabei in einem Zickzackkurs abgeschritten, um dabei mit einer Kernrammsonde an mindestens 20 Stellen eine Bodenprobe aus den oberen 30 cm zu entnehmen. Randbereiche zu Straßen oder Gebäuden wurden dabei ausgeschlossen. Die Proben wurden anschließend vereinigt und gründlich vermischt. Bodeneinzelproben wurden am Standort der direkt auf dem Feld beprobten Pflanzen genommen. Dies war bei vielen Gemüseproben der Fall. Mit einer Handschaufel wurden aus dem Wurzelbereich der Pflanze sorgfältig mehrere Portionen Boden entnommen. Dieser Bereich hatte in der Regel eine Tiefe von 20 cm bis 30 cm. Auch hier wurden die Portionen vereint. Für die Iodanalytik wurde ein Aliquot von etwa 1 kg bis 2 kg separiert, ein weiterer Teil wurde der Analytik von natürlichen Radionukliden zugeführt. Die Bodenproben für die Iodanalytik wurden in Polyethylenbeutel ins ZSR transportiert. In einem speziellen Lagerkeller, in dem nur natürliche Proben gehandhabt werden und der nur den wenigen beteiligten Personen zugänglich ist, wurden die Proben für einige Tage im Dunkeln zur Trocknung bei Zimmertemperatur ausgebreitet. Dabei wurde sorgfältig darauf geachtet, dass es nicht zu Kreuzkontaminationen mit anderen Proben kam. Die luftgetrockneten Proben wurden gesiebt (2 mm Maschenbreite) und in luftdicht verschlossenen 1-Liter-Polyethylenflaschen im Dunkeln gelagert.

### **Wiesen- und Weidenbewuchs**

Für diese Probenarten wurde die Probenahme in Anlehnung an das Verfahren bei den Bodenmischproben durchgeführt. Mit einer Sense wurden an einzelnen Stellen eines Feldes oder einer Wiese Proben genommen und diese vereinigt. Die Aliquote für die Iodanalytik wurden im oben genannten Lagerkeller ebenfalls für einige Tage zum Trocknen ausgelegt und dann in luftdicht verschlossenen Polyethylensäcken gelagert. Vor der Probenaufbereitung wurden Teilmengen der homogenisierten Proben mit einer Küchenmaschine (Firma Moulinex) gehäckselt. Teilweise wurden die Proben anschließend noch in einer Schwingmühle (Firma Retsch, Typ RS1) gemahlen, da sich in diesem Fall mehr Probenmaterial verbrennen lässt (siehe Abschnitt 6.4). Die Aufbewahrung der gehäckselten oder gemahlenden Proben erfolgte in verschlossenen Polyethylenflaschen (100 mL bis 500 mL).

### **Getreide**

Die zur Erntezeit genommenen Getreideproben konnten für jeweils ein Feld als Mischprobe angefertigt werden. Die Entnahme erfolgte bei der Ernte direkt vom Mähdrescher oder vom Anhänger. Zu den Getreideproben wurden Bodenmischproben, wie oben beschrieben, genommen. Dabei wurden an den Einstichstellen für die Bodenprobenahme auch Stroh aufgesammelt und dieses zu einer für das Feld repräsentativen Mischprobe vereinigt. Getreide

und Stroh wurden in Polyethylensäcken ins ZSR transportiert. Da die Ernte wie üblich nach einigen trockenen Tagen erfolgt, war eine zusätzliche Trocknung der Proben nicht erforderlich. Getreide und Stroh wurden ebenfalls gehäckselt und gemahlen und in verschlossenen Polyethylenflaschen gelagert. Die Lagerung erfolgte im Dunkeln bei Raumtemperatur. Ein Verrotten oder die Bildung von Schimmel konnte bei diesen Proben – wohl wegen des geringen Wassergehaltes – nicht beobachtet werden.

### **Gemüse**

Die Probenahme für Gemüse erfolgte in der Regel kurz vor oder zur Zeit der Erntereife. Die Gemüseproben wurden direkt vom Feld zusammen mit einer Bodeneinzelprobe genommen. Die Pflanzen wurden geerntet und ins ZSR gebracht. Die weitere Behandlung ist wieder an die Vorgaben der „Messanleitungen“ [BMU 2000] angelehnt. Die üblicherweise zum Verzehr geeigneten Pflanzenteile wurden abgetrennt und etwa drei Minuten in stehendem Leitungswasser gewaschen. Nach etwa zweiminütigem Abtropfen wurde das Gemüse klein geschnitten und in Polyethylenbeuteln eingefroren. Die Proben wurden anschließend gefriergetrocknet und das trockene Material bis zur Verbrennung in verschlossenen Polyethylenflaschen aufbewahrt.

### **Fleisch**

Die Schlachtung der Tiere wurde für das ZSR von den jeweils ortsansässigen Schlachtern durchgeführt. Für die Iodanalytik wurden essbare Teile von Schwein, Schaf, Rind und Ziege ausgewählt. Fleischproben erreichten das ZSR stets im gefrorenen Zustand. Nach dem Auftauen wurde das zum Verzehr geeignete Fleisch von noch vorhandenen Knochen abgetrennt, klein geschnitten und eingefroren. Es schloss sich wiederum eine Gefrietrocknung an. Das trockene Material wurde in Polyethylenflaschen gelagert.

### **Milch**

Die Entnahme der Milchproben erfolgte direkt aus dem Milchsammeltank des jeweiligen Betriebes. Die Proben wurden noch am selben Tag in 1-Liter-Polyethylenflaschen eingefroren und bis zur Aufbereitung gelagert.

### **Gesamtnahrung**

Vier der täglich von der Hauptmensa der Universität Hannover angebotenen fünf Gerichte wurden in verzehrfertigen Portionen für das ZSR bereitgestellt. Die vier Mahlzeiten eines Tages wurden zu Tagesgesamtproben vereinigt und mit einem Fleischwolf (Firma Krefft, Typ Kompaktwolf R 70) zerkleinert und homogenisiert. Gegebenenfalls vorhandene Knochen oder Gräten wurden vorher entfernt. Das Material wurde eingefroren und anschließend gefriergetrocknet. Die Lagerung der trockenen Proben erfolgte in Polyethylenflaschen.

### **Menschliche Schilddrüsen**

Diese Proben wurde vom Institut für Rechtsmedizin der Medizinischen Hochschule Hannover und vom Institut für Rechtsmedizin des Universitätsklinikums Hamburg-Eppendorf genommen und bis zur Abholung einzeln verpackt tiefgekühlt gelagert. Beim Transport ins ZSR wurden eine Tiefkühlbox verwendet. Im ZSR wurden die Schilddrüsen zunächst eingefroren und dann gefriergetrocknet. Die Gefriertrocknung wurde mit einer Anlage der Firma Christ (Typ Beta 1-16) durchgeführt. Durch den Entzug des Wassers bei der Gefriertrocknung ist eine langfristige Stabilität des Probenmaterials gewährleistet. Die nach der Gefriertrocknung noch ganze Schilddrüse wird in einer handelsüblichen Küchenmaschine zerkleinert. Die dabei erfolgende Homogenisierung ist wichtig, da es aufgrund der Physiologie der Schilddrüse zu Bereichen mit unterschiedlichen Iodkonzentrationen kommt [Handl u. a. 1984]. Zur Lagerung wird das trockene Material in Polyethylenbeuteln luftdicht eingeschweißt.



# 6 Die experimentelle Quantifizierung von $^{129}\text{I}$ und $^{127}\text{I}$

## 6.1 Einleitung

In dieser Arbeit wurden die Methoden Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA), Beschleunigermassenspektrometrie (AMS, *accelerator mass spectrometry*), Ionenchromatographie (IC) und Massenspektrometrie mit induziert gekoppeltem Plasma (ICP-MS) angewandt. Zum allgemeinen Verständnis folgen zunächst einige Vorbemerkungen, die Details werden später erläutert.

Mit Hilfe der RNAA lassen sich  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  simultan bis hinunter zu Isotopenverhältnissen von etwa  $1 \cdot 10^{-10}$  bestimmen. Dabei werden die Gehalte der beiden Nuklide direkt erhalten und daraus das Isotopenverhältnis berechnet. Ein geringeres Isotopenverhältnis erfordert den Einsatz der AMS. Mit dieser Methode kann das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis einer Probe bestimmt werden, nicht jedoch die einzelnen Gehalte an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ . Für die Messung wird das Iod aus dem Probenmaterial separiert und in Silberiodid (AgI) überführt. Da die Gehalte von Iod in den Umweltproben sehr gering sind, kann aus einer Probe in der Regel keine handhabbare Menge AgI gewonnen werden. Es ist daher notwendig, einige Milligramm  $^{127}\text{I}$  als Träger zu verwenden. Da isotoopenreines Iod in dieser Menge nicht herzustellen ist, wird als Träger das so genannte Woodward-Iod verwendet. Dieses wird aus einer 300 Millionen Jahre alten Sole gewonnen und sein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis liegt bei  $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-14}$  [Boaretto u. a. 1994]. Da dieses Isotopenverhältnis mindestens um den Faktor 100 unter demjenigen der zu messenden rezenten Umweltproben liegt, kann das Woodward-Iod für die nötigen Berechnungen als  $^{129}\text{I}$ -frei angesehen werden. Durch die Zugabe des Trägers erhält man mit der AMS-Messung nicht mehr das ursprüngliche, sondern ein verdünntes Isotopenverhältnis. Zusätzlich wird mittels IC oder ICP-MS der Gesamtiodgehalt der Probe bestimmt, der ja bei den vorliegenden Isotopenverhältnissen von  $< 10^{-6}$  mit dem  $^{127}\text{I}$ -Gehalt gleichzusetzen ist. Aus dem verdünnten Isotopenverhältnis (AMS) und dem  $^{127}\text{I}$ -Gehalt (IC

bzw. ICP-MS) wird der tatsächliche  $^{129}\text{I}$ -Gehalt und das tatsächliche Isotopenverhältnis der Probe berechnet.

In diesem Kapitel wird zunächst ein Überblick über verschiedene bekannte Methoden zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  (Abschnitt 6.2) und  $^{127}\text{I}$  gegeben (Abschnitt 6.3). Daran schließt sich die Beschreibung derjenigen Verfahren an, die die Abtrennung des Iods aus den Proben und die Herstellung der Messpräparate und -lösungen zum Ziel haben. Diese Verfahren werden unter dem Begriff Probenaufbereitung (Abschnitt 6.4) zusammengefasst. Schließlich werden die Messverfahren RNAA, AMS, IC und ICP-MS (Abschnitte 6.5 bis 6.8) beschrieben. Diese Abschnitte enthalten die Grundlagen der Methoden, die experimentellen Details und die Auswertung der Daten. Zum Ende dieses Kapitels wird in Abschnitt 6.9 dargestellt, wie aus den Ergebnissen der AMS und der IC bzw. ICP-MS die tatsächlichen Iodgehalte der Proben bestimmt werden.

## 6.2 Methodenübersicht: Bestimmung von $^{129}\text{I}$

Prinzipiell ist die Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mittels Kernstrahlungsmessmethoden oder Massenspektrometrie möglich. Eine Quantifizierung über chemische Methoden ist ausgeschlossen, da  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben immer neben dem stabilen  $^{127}\text{I}$  vorliegt und nicht von diesem getrennt werden kann. Im vorliegenden Abschnitt werden die bekannten Methoden zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mit ihren Anwendungsbereichen kurz dargestellt. Die in dieser Arbeit angewandten Verfahren RNAA und AMS werden dann in den Abschnitten 6.5 und 6.6 im Detail beschrieben.

### Betaspektrometrie

Zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  kann man sich den radioaktiven Zerfall dieses Isotops zunutze machen. Das Nuklid  $^{129}\text{I}$  ist ein reiner  $\beta^-$ -Strahler mit einer  $\beta$ -Maximalenergie von 154,4 keV. Um Betaspektrometrie betreiben zu können, ist es nötig,  $^{129}\text{I}$  vollständig von allen Störnukliden abzutrennen, deren Betaspektren sich mit dem des  $^{129}\text{I}$  überlagern. Alpha- und gammastrahlende Nuklide höherer Aktivitäten stören die Messung ebenfalls. Die lange Halbwertszeit und die damit verbundenen geringe spezifische Aktivität von  $6,5 \text{ Bq } \mu\text{g}^{-1}$  machen es erforderlich, dass  $^{129}\text{I}$  zur betaspektrometrischen Messung stark aufkonzentriert werden muss. Dies ist nur bei der direkten Bearbeitung von Spaltprodukten eines Kernreaktors möglich, nicht jedoch bei Umweltproben, die fernab von  $^{129}\text{I}$ -Emittenten genommen wurden. Eine wagen Angabe zur Nachweisgrenze für die  $\beta$ -Spektrometrie findet sich bei

Brauer [1989]: „Low-level beta counting can also be used to measure a few picocuries or more  $^{129}\text{I}$ “. Der Zusammenhang  $0,1 \text{ Bq} = 2,7 \text{ pCi} = 1,53 \cdot 10^{-8} \text{ g } ^{129}\text{I}$  gibt eine Vorstellung von der Größenordnung.

### Gammaspektrometrie

Das Tochternuklid des  $^{129}\text{I}$ ,  $^{129}\text{Xe}$ , entsteht beim  $\beta^-$ -Zerfall in einem angeregten Zustand ( $^{129\text{m}}\text{Xe}$ ), der mit einer Halbwertszeit von 8,9 d unter Emission eines Gammaquants der Energie 39,6 keV in den Grundzustand übergeht. Die Emissionswahrscheinlichkeit liegt bei 7,5 %. Zudem emittiert das  $^{129\text{m}}\text{Xe}$  charakteristische Röntgenstrahlung mit Energien zwischen 3,6 keV und 34,5 keV, die zur gammaspektrometrischen Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mittels der so genannten  $\gamma$ -X-Spektrometrie genutzt werden können. In Spaltprodukten ist dies nach einer relativ einfachen radiochemischen Abtrennung möglich [Szanto u. a. 2001]. Nachdem Bouisset u. a. [1999] ein Verfahren zur Korrektur der Selbstabsorption entwickelt hatten, gelang Fréchou und Mitarbeitern die Quantifizierung von  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben aus der Nähe der Wiederaufarbeitungsanlage La Hague mittels direkter  $\gamma$ -X-Spektrometrie ohne aufwendige radiochemische Trennung. Zur Auswertung der Spektren werden die beiden Röntgenlinien mit den höchsten Intensitäten herangezogen (29,5 keV,  $I = 36,6 \%$  und 29,8 keV,  $I = 67,7 \%$ ). Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der untersuchten Proben lagen bei  $10^{-6}$  bis  $10^{-5}$ . Die Nachweisgrenze dieses Verfahrens wird mit  $0,5 \text{ Bq kg}^{-1}$  ( $\sim 8 \cdot 10^{-11} \text{ g g}^{-1}$ ) angegeben, bezogen auf die Trockenmasse der Probe. [Fréchou u. a. 2001, 2002; Fréchou und Calmet 2003]

### RNAA

Unter der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) versteht man die Umwandlung langlebiger oder stabiler Kerne mittels Neutronen zu kurzlebigen, radioaktiven Produkten (Aktivierung), gefolgt von einer radiochemischen Reinigung und der meist gammaspektrometrischen Quantifizierung der Aktivierungsprodukte. Mit dieser Methode lassen sich  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  simultan bestimmen. Dabei werden die Aktivierungsreaktionen  $^{127}\text{I}(n,2n)^{126}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}(n,\gamma)^{130}\text{I}$  ausgenutzt. Vor oder nach der Bestrahlung mit Neutronen müssen störende Nuklide abgetrennt werden, deren Aktivierungsprodukte im  $\gamma$ -Spektrum zu Störungen führen oder die zu den selben Aktivierungsprodukten wie die zu bestimmenden Nuklide führen können. Weitere theoretische und praktische Details zu dieser Methode finden sich in Abschnitt 6.5. Mit der RNAA lassen sich  $^{129}\text{I}$ -Mengen bis hinunter zu etwa  $3,3 \cdot 10^{-7} \text{ Bq}$  ( $5 \cdot 10^{-14} \text{ g}$ ) nachweisen [Schmidt 1998].

## ICP-MS

Neben der Nutzung der Radioaktivität sind auch massenspektrometrische Methoden zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  verfügbar. Die Massenspektrometrie mit induziert gekoppeltem Plasma als Ionisierungsmethode (ICP-MS) ist die derzeit am weitesten verbreitete Methode zur Elementbestimmung im Spurenbereich (Konzentrationen im ppm-Bereich und darunter). Sie lässt sich zur Messung zahlreicher langlebiger Isotope und von Isotopenverhältnissen anwenden [Becker 2002b, 2003]. Die theoretischen Grundlagen und die Funktionsweise eines Massenspektrometers werden in Abschnitt 6.8 dargestellt. Das größte Problem der Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mittels ICP-MS liegt in isobaren Interferenzen beim Masse-Ladungsverhältnis  $m/z = 129$ .  $^{129}\text{I}$  liegt meist in Gegenwart viel größerer Mengen  $^{127}\text{I}$  vor, was bei unzureichender Auflösung zu einer Überlappung der Peaks führen kann. Es können sich auch  $^{127}\text{IH}_2^+$  Ionen bilden, die ebenfalls die Signalintensität bei  $m/z = 129$  erhöhen. Das bei der ICP-MS überwiegend als Plasmagas verwendete hoch reine Argon enthält zudem Verunreinigungen von Xenon, welches in der natürlichen Isotopenzusammensetzung zu 26,4 % aus  $^{129}\text{Xe}$  besteht. Im Massenspektrometer führen die gebildeten  $^{129}\text{Xe}^+$  Ionen ebenfalls zu einer Interferenz, die die Messung von  $^{129}\text{I}$  erschwert. Auch mit modernen, hochauflösenden Massenspektrometern ist es noch nicht möglich, die unterschiedlichen Massen von  $^{129}\text{I}^+$  (128,904988) und  $^{129}\text{Xe}^+$  (128,9047801) zu separieren. Die Massenauflösung müsste hierzu  $m/\Delta m = 620\,000$  betragen.

Für den Fall, dass eine Abtrennung der störenden Elemente im Zuge der Probenvorbereitung durch chemische Separation nicht möglich ist, wurde schon vor gut 20 Jahren die Möglichkeit in Erwägung gezogen, direkt vor der Massentrennung stoßinduzierte Gasphasenreaktionen ablaufen zu lassen, um nicht mehr interferierende Produkte zu erhalten [Becker und Dietze 1983]. Inzwischen hat sich dazu die Kollisions- bzw Reaktionszellentechnologie in der Massenspektrometrie etabliert. Je nach Analyt und entsprechenden störenden Elementen oder Molekülen wird ein Gas oder Gasgemisch in die Kollisionszelle eingeleitet und die gewünschten Reaktionen mit den zuvor ionisierten Probenbestandteilen finden statt. Aus den störenden Atomen oder Molekülen entstehen Produkte, die nicht mehr beim Masse-Ladungsverhältnis des Analyten detektiert werden. Zudem wird eine Kühlung des Ionenstroms erreicht, d. h. die kinetische Energie der Ionen wird durch Kollisionen herabgesetzt. Dies begünstigt die Transmission der Ionen und erhöht somit die Empfindlichkeit. Becker [2002a, 2003] entwickelte Systeme mit Helium, Wasserstoff sowie mit Sauerstoff als Kollisionszellengase, die die Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mittels ICP-MS ermöglichen. Sie griff dabei auf Ergebnisse von Eiden u. a. [1997] zurück, die die Gasphasenreaktionen von Xenon mit Sauerstoff untersucht haben. Inzwischen hat sich eine Mischung aus Helium und Sauerstoff als Kollisionszellengase als sehr effektiv erwiesen. Izmer u. a. [2003] entwickelten ein



Probenzuführungssystem, bei dem Boden- oder Sedimentproben in einem Ofen verbrannt werden und die Verbrennungsprodukte mittels eines Sauerstoffstroms direkt ins Plasma des Massenspektrometers gelangen. Durch den Einbau einer Kühlfalle zwischen Ofen und Massenspektrometer, die zu einer Anreicherung des Analyten vor der Zufuhr ins Plasma führt, konnte die Nachweisgrenze für  $^{129}\text{I}$  noch verbessert werden. Sie wird mit  $4 \cdot 10^{-13} \text{ g g}^{-1}$  angegeben [Izmer u. a. 2004]. Da parallel zum  $^{129}\text{I}$  auch das  $^{127}\text{I}$  erfasst wird, konnte das Isotopenverhältnis der Probe direkt bestimmt werden. Bei zwei beispielhaft untersuchten kontaminierten Bodenproben unbekannter Herkunft liegen die Isotopenverhältnisse bei  $2,1 \cdot 10^{-6}$  und  $6,9 \cdot 10^{-6}$ .

### RIMS

Eine ebenfalls massenspektrometrische Methode ist die Resonanz-Ionisations-Massenspektrometrie (RIMS). Sie nutzt ein anderes Verfahren zur Ionisation der Analytatomme vor der massenspektrometrischen Trennung und Detektion. Eine element- und isotopenspezifische Eigenschaft von Atomen sind die Energieniveaus der Elektronen. Gelingt es nun, in ein Gemisch aus Atomen verschiedener Elemente Photonen einzustrahlen, deren Energie genau der Differenz zweier Energieniveaus eines bestimmten Nuklids entspricht, so wird nur dieses Nuklid angeregt. Mit weiteren Photonen, deren Energie den Abständen der Energieniveaus des Analytatoms entspricht, ist es dann über mehrere Stufen möglich, nur dieses Nuklid zu ionisieren und damit massenspektrometrisch messbar zu machen. Die Anregung mit Photonen diskreter Energien erfolgt mittels Laser. Fasset u. a. [1988] beschrieben erstmalig die Bestimmung des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses mittels RIMS. Allerdings wurden nur zwei künstliche Standards mit den Isotopenverhältnissen  $10^{-3}$  und  $10^{-6}$  untersucht. Lu und Wendt [2003] geben einen Überblick über derzeit angewandte laserbasierte Methoden zur Analyse von Spurenisotopen. Als Beispiele werden hier die Bestimmungen von  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  sowie  $^{81}\text{Kr}$  und  $^{85}\text{Kr}$  genannt.

### NTIMS

Eine weitere Ionisationsart zur massenspektrometrischen Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  beschreiben Strebin u. a. [1988]. Die eingedampfte Probenlösung wird von einer beheizbaren Oberfläche verdampft. So werden Iodidionen erzeugt, die dem Massenspektrometer zugeführt werden. Diese Methode wird NTIMS (*negative thermal ionization mass spectrometry*) genannt. Die Nachweisgrenze wird mit  $2 \text{ fg } ^{129}\text{I}$  angegeben. Mit einer Kombination aus thermischer Ionisation und ICP-MS haben Farmer III u. a. [1998] experimentiert um  $^{129}\text{I}$  in Luft zu bestimmen. Nach Kondensation bzw. Ausfrieren der Luftfeuchtigkeit wurde die

erhaltene Lösung mit  $^{127}\text{I}$  als Träger versetzt und das Iod als Palladiumiodid ausgefällt. Das Palladiumiodid wurde in einem Argonstrom, der direkt in das Plasma führt, auf  $700\text{ }^\circ\text{C}$  aufgeheizt und so dem Massenspektrometer zugeführt. Anhand eines Standards ( $6\text{ pg }^{129}\text{I}$ ) und einer Realprobe ( $2,6\text{ pg }^{129}\text{I}$ ) wurde dieses Verfahren demonstriert und seine Weiterentwicklung in Aussicht gestellt. Bei der Realproben handelte es sich um außen an einer Flüssiggasanlage (Argon) auskondensierte Luftfeuchtigkeit.

### AMS

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS, accelerator mass spectrometry) ist die Methode der Wahl zur Messung langlebiger Radionuklide, die nicht mit konventioneller Massenspektrometrie oder aufgrund ihrer Zerfallseigenschaften spektrometrisch gemessen werden können. Der Begriff AMS fasst ein aufwendiges Analysenverfahren zusammen, in dem zunächst Analytatomer aus einer Probe extrahiert und ionisiert werden. Nachdem die Ionen auf hohe Energien beschleunigt wurden, erfolgt eine Trennung nach Impuls, Ladung und Energie, gefolgt von einer nuklidspezifischen Detektion. Der Unterschied zur konventionellen Massenspektrometrie liegt vor allem in den um drei Zehnerpotenzen größeren erreichten Energien. Dadurch wird es möglich, zwischen dem Analyten und anderen atomaren und molekularen Ionen gleicher Masse zu unterscheiden. Durch die Auswahl geeigneter Filter- und Detektionssysteme können so die langlebigen Radionuklide neben den um ein Vielfaches häufigeren stabilen Isotopen erfasst werden. Mithilfe der AMS ist  $^{129}\text{I}$  bei Isotopenverhältnissen bis zu  $10^{-15}$  bestimmbar, wie sie in alten geologischen Formationen vorliegen, die nicht mit der „aktuellen“ Umwelt im Austausch stehen. Da sich mit der AMS nur das Isotopenverhältnis bestimmen lässt, ist eine zusätzliche Quantifizierung des stabilen  $^{127}\text{I}$  notwendig. Eine detaillierte Beschreibung der AMS, wie sie in dieser Arbeit zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  durchgeführt wurde, folgt in Abschnitt 6.6.

### Methodenvergleich

Die erstgenannten Kernstrahlungsmessmethoden  $\beta$ - und  $\gamma$ -X-Spektrometrie lassen sich recht einfach zur Quantifizierung von  $^{129}\text{I}$  anwenden, wenn dieses z. B. direkt aus einem Kernreaktor stammt. Dort entsteht Iod bei der neutroneninduzierten Spaltung von Uran mit einem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa 6. Nach einer radiochemischen Reinigung und dem Abklingen der kurzlebigen Iodisotope, ist eine Messung des Zerfalls des  $^{129}\text{I}$  möglich. Mit einer rechnerisch aufwendigen Absorptionskorrektur ist die  $\gamma$ -X-Spektrometrie auch für die Untersuchung kontaminierte Umweltproben geeignet. Fernab von Emittenten, wo das natürliche Isotopenverhältnis in Umweltproben nicht oder nur um wenige Zehnerpotenzen

erhöht ist, sind derzeit die RNAA und vor allem die AMS die Methoden der Wahl. Bei den konventionellen massenspektrometrischen Methoden besteht weiterhin Forschungsbedarf, vor allem im Bezug auf die Unterdrückung von Interferenzen. Die Kollisionszellentechnologie (CC-MS) und die nuklidspezifische Resonanzionisation (RIMS) sind dazu vielversprechende Ansätze. In Tabelle 6.1 sind die derzeit niedrigsten publizierten Nachweisgrenzen der hier genannten Verfahren dargestellt.

**Tabelle 6.1:** Nachweisgrenzen der Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mit verschiedenen Methoden.

Methode	$^{129}\text{I}$	a)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Literatur
$\beta$ -Spektrometrie	0,1	Bq <sup>j)</sup>	$2 \cdot 10^{-6}$ <sup>b)</sup>	[Brauer 1989]
$\gamma$ -Spektrometrie	0,02	Bq	$1 \cdot 10^{-6}$ <sup>b)</sup>	[Brauer 1989]
	0,5	Bq kg <sup>-1</sup>		[Fréchou und Calmet 2003]
RNAA	$3,3 \cdot 10^{-7}$	Bq	$2 \cdot 10^{-10}$ <sup>b)</sup> $3 \cdot 10^{-12}$ <sup>c)</sup>	[Schmidt 1998] [Aumann u. a. 1981]
AMS	$1,2 \cdot 10^{-8}$	Bq <sup>e)</sup>	$2 \cdot 10^{-13}$ <sup>b)</sup>	[Schmidt 1998]
	$2 \cdot 10^{-9}$	Bq kg <sup>-1</sup> <sup>f) h)</sup>	$5 \cdot 10^{-12}$ – $5 \cdot 10^{-10}$	[Szidat 2000]
	$3 \cdot 10^{-7}$	Bq kg <sup>-1</sup> <sup>g) h)</sup>	$5 \cdot 10^{-12}$ – $1 \cdot 10^{-10}$ $1,8 \cdot 10^{-13}$ <sup>i)</sup> $\sim 10^{-14}$ <sup>k)</sup>	[Szidat 2000] [Ernst 2003] [Muramatsu u. a. 2003]
ICP-MS	$2,6 \cdot 10^{-3}$	Bq kg <sup>-1</sup> <sup>d)</sup>	$\sim 10^{-7}$	[Izmer u. a. 2004]
RIMS			$< 10^{-6}$	[Fasset u. a. 1988]
NTIMS	$1,5 \cdot 10^{-8}$	Bq	$\geq 1 \cdot 10^{-8}$	[Brauer 1989]

a)  $1 \text{ Bq } ^{129}\text{I} \cong 1,53 \cdot 10^{-7} \text{ g}$ .

b) In [Schmidt 1998] unter der Annahme berechnet, dass im Probenaliquot ein Gesamtiodgehalt von 3 mg vorliegt.

c) mit Koinzidenzmessung

d) entsprechend der Angabe  $0,4 \text{ pg g}^{-1}$  bei [Izmer u. a. 2004]

e) Nachweisgrenze nach DIN 25482 Teil 6 [Schmidt 1998]

f) in natürlichen Wasserproben

g) in Böden

h) als Anhaltswert auf Grundlage von DIN 25482 Teil 10, Angabe des Isotopenverhältnisses unter Annahme einer typischer  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen

i) Mittelwert einiger Proben historischer Iodpräparate, deren Messung ohne kontaminationsanfällige Probenvorbereitung und ohne Trägerzugabe möglich war.

j) Anhaltswert ( $0,1 \text{ Bq} = 2,7 \text{ pCi}$ ), bei [Brauer 1989] wird angegeben: „Low-level beta counting can also be used to measure a few picocuries or more  $^{129}\text{I}$ .“

k) Zitat aus [Muramatsu u. a. 2003]: „...with a detection limit close to  $10^{-14}$ “

### 6.3 Methodenübersicht: Bestimmung von $^{127}\text{I}$

Mittels der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse können  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  simultan bestimmt werden. Mit der AMS lässt sich nur das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis messen, so dass eine zusätzliche Quantifizierung von  $^{127}\text{I}$  nötig wird. In diesem Abschnitt wird zunächst eine Übersicht über einige mögliche Bestimmungsmethoden für Iod gegeben.

#### Ionenchromatographie

Alle chromatographischen Trennverfahren beruhen auf dem Übergang der zu trennenden Analyten zwischen zwei nicht mischbaren Phasen. Dabei befinden sich die zu trennenden Komponenten in der Regel in einer mobilen Phase (flüssig oder gasförmig), die über eine stationäre Phase (fest oder flüssig) bewegt wird. Unterschiedlich starke Wechselwirkungen der Komponenten mit der stationären Phase führen zur Trennung dieser Komponenten. Die wichtigsten Wechselwirkungen sind dabei die Adsorption, die Verteilung und der Ionenaustausch. Unter dem Begriff Ionenchromatographie (IC) fasst man alle schnellen, flüssigkeits-chromatographischen Systeme zur Trennung von Ionen auf Säulen, gekoppelt mit geeigneten Durchflussdetektoren, zusammen. Je nach Anwendungsbereich und den zu bestimmenden Ionen existieren eine Vielzahl kommerzieller Systeme mit unterschiedlichen Trennsäulen und Detektionssystemen. Iod lässt sich als Iodid oder Iodat in wässrigen Lösungen bis in den unteren ppm-Bereich gut mittels IC erfassen. Die nähere Darstellung des theoretischen Hintergrundes und der durchgeführten Analysen folgt in Abschnitt 6.7.

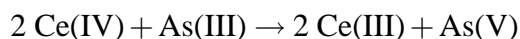
#### ICP-MS

Die Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS, *inductively coupled plasma - mass spectrometry*) eignet sich zur Quantifizierung von Iod aus wässrigen Lösungen bis in den ppb-Bereich. Für den größten Teil der in dieser Arbeit untersuchten Proben wurde der  $^{127}\text{I}$ -Gehalt auf diese Weise bestimmt (siehe Abschnitt 6.8).

#### Methode nach Sandell-Kolthoff

Für die Bestimmung von Iod gibt es eine Vielzahl weiterer Methoden, deren Einsatzgebiete von der Matrix und den zu ermittelnden Konzentrationen abhängt. Weit verbreitet sind pho-

tometrische bzw. kolorimetrische Methoden. Bei der Methode nach Sandell-Kolthoff macht man sich die katalytische Wirkung des Iods auf die Redoxreaktion



zu nutze. Mittels eines Photometers misst man die Entfärbung des gelben Ce(IV) zum farblosen Ce(III) über eine gewisse Zeit. Aus der Kinetik der Reaktion lässt es sich auf die Konzentration des Katalysators Iod schließen [Sandell und Kolthoff 1937]. Vor allem in der Wasseranalytik und in der Medizin (Bestimmung von Iod in Urin) findet dieses Verfahren verbreitet Anwendung [siehe z. B. Bittermann 1999]. Für die Bestimmung von Iod in Urin wird dort eine Nachweisgrenze von 2,5 µg pro 100 mL (25 ppb) angegeben.

### **DPD-Methode**

Zur Bestimmung von elementarem  $\text{I}_2$ , vor allem in Wässern, wird auch die DPD-Methode benutzt. Die Substanz N,N-Diethyl-1,4-phenylendiamin (DPD) bildet mit  $\text{I}_2$  einen roten Farbstoff, dessen Konzentration photometrisch bestimmt wird. Es sind Test-Sets im Handel, mit denen durch Vergleich mit einer Farbintensitätsskala eine sehr schnelle Bestimmung im Konzentrationsbereich von einigen  $\text{mg L}^{-1}$  möglich ist.

### **GC-ECD- und GC-MS-Kopplung**

Eine weitere Möglichkeit zur Iodbestimmung ist die Derivatisierung zu organischen Iodverbindungen, gefolgt von einer gaschromatographischen Trennung und Detektion mit einem Elektroneneinfangdetektor (ECD, *electron capture detector*) oder einem Massenspektrometer (GC-MS-Kopplung). Als generelles Problem dieser Methode ist anzumerken, dass die Derivatisierung stöchiometrisch und quantitativ ablaufen muss – eine Bedingung, die vielfach bei der Reaktion anorganischer Ionen mit organischen Molekülen nicht erfüllt ist. Mitsuhashi und Kaneda [1990] geben für die Quantifizierung von Iod in Lebensmittel mittels GC-ECD eine Nachweisgrenze von  $0,05 \mu\text{g g}^{-1}$  (50 ppb) an. Weitere Anwendungsbeispiele finden sich bei Schwarz und Heumann [2002]; Karl und Münkner [1997] sowie bei Karl und Münkner [1998].

### **Iodometrie**

Eher didaktischen Wert hat die Iodometrie, bei der man es mit Konzentrationen der beteiligten Lösungen von einigen  $\text{g L}^{-1}$  zu tun hat. Man nutzt das System  $\text{I}_2 + 2 \text{e}^- \rightleftharpoons 2 \text{I}^-$  zu Re-

doxtitrationen. Je nach Redoxpotential des Reaktionspartners tritt das Iod dabei als Oxidationsmittel ( $\text{I}_2$ ) oder als Reduktionsmittel ( $\text{I}^-$ ) auf. So kann beispielsweise Wasserstoffperoxid bestimmt werden. Es oxidiert Iodid zu elementarem Iod ( $\text{H}_2\text{O}_2 + 2 \text{I}^- \rightarrow \text{I}_2 + \text{H}_2\text{O}$ ). Das elementare Iod wird dann seinerseits mit einem Reduktionsmittel titriert. Weit verbreitet ist die Verwendung von Natriumthiosulfat ( $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$ ), wobei das Tetrathionation entsteht ( $\text{I}_2 + 2 \text{S}_2\text{O}_3^{2-} \rightleftharpoons 2 \text{I}^- + \text{S}_4\text{O}_6^{2-}$ ). Zur Indikation des Umschlagpunktes wird häufig die Färbung oder Entfärbung eines Iod-Stärke-Komplexes genutzt. Ein weiteres Anwendungsbeispiel ist die Quantifizierung von Arsen mittels Iodometrie gemäß der Gleichung  $\text{AsO}_3^{3-} + \text{I}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{AsO}_4^{3-} + 2 \text{I}^- + 2 \text{H}^+$ . Um dabei das pH-abhängige Gleichgewicht auf die rechte Seite zu verschieben, wird die Titration über einem Bodensatz von  $\text{NaHCO}_3$  durchgeführt.

## 6.4 Probenaufbereitung

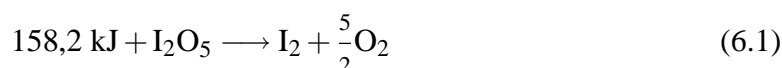
Bei allen hier beschriebenen Experimenten handelt es sich um Schritte in quantitativen analytischen Verfahren. Es ist daher notwendig, Größen wie Einwaagemengen und Massen von Lösungen, Aliquoten usw. genau zu bestimmen. Dies geschah im Rahmen dieser Arbeit durchgängig durch Auswiegen der jeweiligen Gefäße vor oder nach der Zugabe oder Entnahme von Material. Diese Wägungen und ihre Dokumentation werden im Folgenden nicht mehr speziell erwähnt.

Die im folgenden beschriebenen Verfahren sind in der Vergangenheit am ZSR bzw. dem Vorgängerinstitut NIR etabliert und validiert worden. Siehe dazu z. B. Ernst [2003]; Szidat [2000]; Schmidt [1998]; Handl [1996]; Handl u. a. [1990, 1984]. Aufgrund der vorhandenen Erfahrungen und Gerätschaften wurden sie im Rahmen dieser Arbeit weiter verwendet und nur teilweise an die Anforderungen neuer Probenarten angepasst. Zum Aufschluss von festen Umweltproben sind prinzipiell auch andere Methoden anwendbar. So wäre ein Aufschluss organischer Umweltproben für die Iodanalytik z. B. auch mit einem alkalischen Schmelzaufschluss, wie er von Muramatsu und Ohmomo [1986] beschrieben wird, möglich. Bei einer anderen geeigneten Methode, der Kaltplasmaveraschung, wird die Probe durch atomaren Sauerstoff, der in einem Hochfrequenzfeld erzeugt wird, zerstört. Die Erprobung dieser und anderer weiterer Aufschlussmethoden konnte im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht geleistet werden.

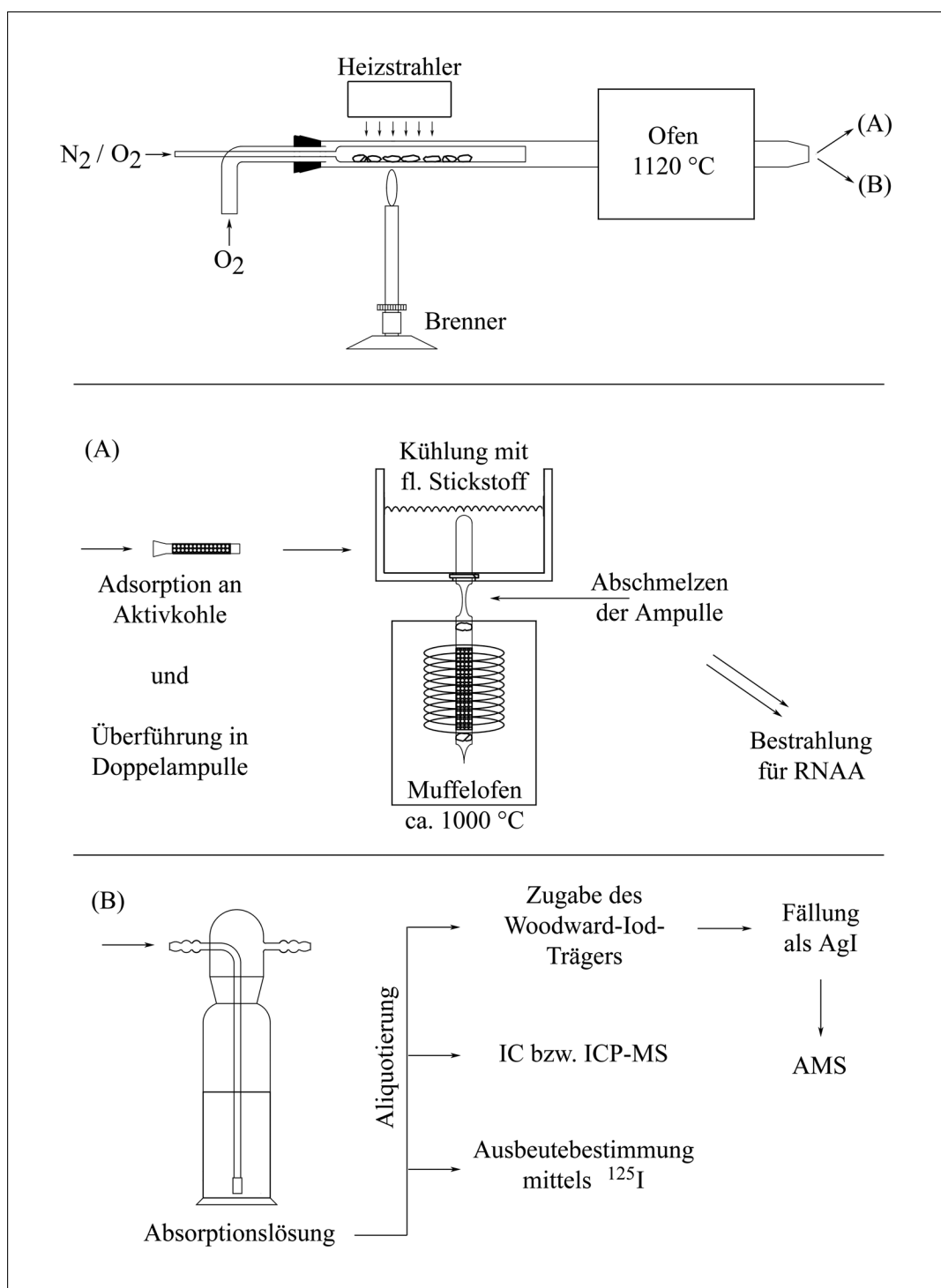
### 6.4.1 Aufbereitung fester Proben

Das Ziel der Probenaufbereitung ist die Abtrennung von Iod aus der jeweiligen Probenmatrix und die Überführung in eine Form, in der der Analyt den Messverfahren zugeführt werden kann. Für die Radioökologie sind dabei nur die Teile der Proben interessant, die in Austauschprozesse zwischen den Umweltkompartimenten eingebunden sind. So muss bei Böden der Iodgehalt von gegebenenfalls enthaltenen Gesteinen nicht berücksichtigt werden, da in diesen nur irreversibel gebundenes Iod vorliegt. Die sonstigen festen Proben, die in dieser Arbeit untersucht wurden, sind organischen Ursprungs. Das enthaltene Iod ist hier vollständig in die Transport- und Austauschprozesse der Umwelt eingebunden. Ein vollständiger Aufschluss wurde in diesem Fall durch das Aufbereitungsverfahren gewährleistet.

Zur Abtrennung von Iod aus festen Umweltproben wurde eine Verbrennungsmethode angewandt. Dabei soll die organische Matrix der Proben möglichst vollständig zu Kohlenstoffdioxid und Wasser oxidiert werden, während Iod zunächst in Form von Oxiden freigesetzt wird. Diese zerfallen bei höheren Temperaturen zu elementarem  $I_2$ . Das stabilste Iodoxid  $I_2O_5$  existiert nur bis etwa 300 °C:



Die Verbrennungsmethode wurde für alle festen Umweltproben angewandt. Dabei wurden Proben von Boden, Gras und Getreide luftgetrocknet eingesetzt, während Gemüse, Obst, Fleisch, Gesamtnahrung und Schilddrüsen zuvor durch Gefriertrocknung getrocknet wurden (siehe Abschnitt 5.2). Der Aufbau der Apparatur und die Abfolge weiterer Aufbereitungsschritte sind in Abbildung 6.1 schematisch dargestellt. Die Verbrennungsapparatur besteht aus zwei ineinander liegenden Quarzglasrohren mit Anschlüssen für Sauerstoff und Stickstoff. Im vorderen Teil wurde die Probe, die sich im inneren Quarzglasrohr befindet, zunächst mit einem Bunsenbrenner oder gegebenenfalls noch vorsichtiger mit einem regelbaren Heizstrahler erwärmt. Vorsichtiges Erwärmen und die Regulierung des Sauerstoffstroms im inneren Rohr gestatteten es, diese Vorverbrennung langsam und möglichst vollständig ablaufen zu lassen. Geschah dies nicht, so bildeten sich an der Innenseite der Apparatur Ablagerungen, die durch zusätzliches Ausheizen entfernt werden mussten. War das Ausmaß dieser Ablagerungen zu groß oder war gar die ganze Apparatur mit Ruß überzogen, so musste die Verbrennung abgebrochen und mit einem neuen Probenaliquot wiederholt werden. Im ungünstigsten Fall kam es zu kleinen Verpuffungen in der Probe, die z. T. einen solchen Druckanstieg in der der Apparatur bewirkten, dass Schlißverbindungen oder Gasanschlüsse aufgesprengt wurden. Bei der Vorverbrennung war großes Fingerspitzengefühl gefordert und für jede unterschiedliche Probenmatrix mussten neue Erfahrungswerte gesammelt werden. Der hintere Teil des äußeren Rohres lag in einem Ofen, der auf



**Abbildung 6.1:** Aufbereitung fester Proben. Verbrennungsapparatur (oben) und weiteres Vorgehen für RNAA-Proben (A) bzw. AMS-Proben (B).



1 120 °C aufgeheizt ist. Dort fand die Nachverbrennung der im inneren Rohr entstandenen Verbrennungsgase statt. Wenn die Vorverbrennung außerhalb des Ofens abgeschlossen war und die Probe nahezu vollständig mineralisiert war, wurde diese noch für einige Zeit in den Ofen geschoben, um die Verbrennung zu vervollständigen.

Das freigesetzte I<sub>2</sub> wurde alternativ auf zweierlei Weise fixiert. Bei der Verbrennung von Schilddrüsen für die RNAA wurde das I<sub>2</sub> an zuvor ausgeheizter Aktivkohle adsorbiert. Bei allen anderen festen Proben wurden die Verbrennungsgase durch eine alkalische Natriumhydrogensulfidlösung geleitet, in der I<sub>2</sub> zu I<sup>-</sup> reduziert wurde und so in der Lösung verblieb. Da ein vollständiger Transport des Iods aus der Probe auf die Aktivkohle oder in die Absorptionslösung nicht gewährleistet war, wurde das radioaktive Iodisotop <sup>125</sup>I (T<sub>1/2</sub> = 60 d) als Ausbeutetracer eingesetzt. Dazu wurden 100 µL einer K<sup>125</sup>I-Lösung (etwa 1 kBq) vor der Verbrennung auf die Probe getropft. Zu Beginn der Vorverbrennung wurde die Probe sehr vorsichtig erhitzt, wobei die Restfeuchtigkeit des zugegebenen Tracers verdampfte und dieser auf der Probe verblieb. Bei der Verbrennung gelangte der Tracer zum selben Anteil wie das Iod aus der Probe auf die Aktivkohle oder in die Absorptionslösung. Die Ermittlung der Ausbeute erfolgte durch Vergleich mit Standardproben, d. h. entweder mit einer mit der gleichen Ursprungsaktivität betropften Aktivkohleprobe oder mit einer damit versetzten Absorptionslösung. Die Messung der <sup>125</sup>I-Aktivität in Standards und Proben wurde mit einem NaI-Szintillationsdetektor (Firma Harshaw) durchgeführt.

Für die RNAA (Abb. 6.1, (A)) wurde die mit dem Iod beladene Aktivkohle in den unteren Teil einer Doppelampulle überführt und diese zugeschmolzen. Durch Aufheizen in einem Muffelofen wurde das Iod von der Aktivkohle desorbiert und im oberen, gekühlten Teil der Doppelampulle auskondensiert. Dieser Teil der Ampulle wurde durch Abschmelzen vom unteren Teil getrennt und dabei verschlossen. In dieser Ampulle erfolgte die Bestrahlung, auf die in Abschnitt 6.5 näher eingegangen wird. Die zuvor beschriebene Ausbeutebestimmung durch <sup>125</sup>I-Messung auf der Aktivkohle vor dieser sog. Austreibung hat hier nur eine Kontrollfunktion für den Verlauf der Verbrennung. Die chemische Ausbeute des gesamten Verfahrens, einschließlich der Austreibung und der radiochemischen Aufbereitung nach der Bestrahlung, erfolgt durch erneute Messung des <sup>125</sup>I nach der abschließenden Ausfällung des Iods als Silberiodid (siehe Abschnitt 6.5).

Aus der Absorptionslösung (Abb. 6.1, (B)), die bei der Verbrennung der anderen Probenmatrices zum Einsatz kam, wurden zunächst zwei Aliquote für die separate Bestimmung von <sup>127</sup>I mittels IC bzw. ICP-MS (Abschnitt 6.7 und 6.8) und die Ausbeutebestimmung mittels <sup>125</sup>I entnommen. Dem Rest der Lösung wurden 100 µL einer Woodward-Iod-Lösung, entsprechend etwa 3 mg Iod, als Träger zugesetzt. Die Woodward-Iod-Lösung wurde durch

Lösen des elementaren, festen Woodward-Iods in einer alkalischen Natriumhydrogensulfit-Lösung hergestellt.

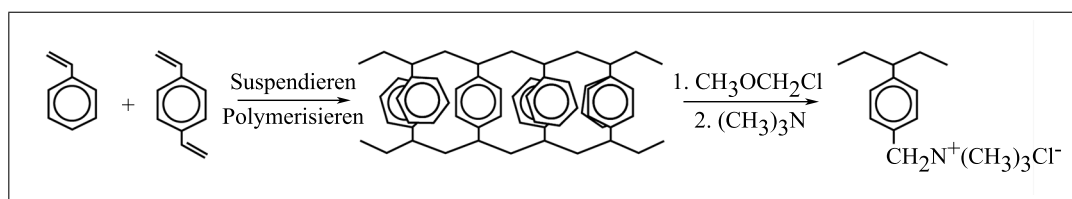
Bis hierher mussten alle Arbeitsschritte, wie die Entnahme von Aliquoten und die Zugabe des Trägers, durch Auswiegen der Lösungen auf das Genaueste nachvollzogen werden. Da hier die Verdünnung des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses stattfand, mussten auch vor diesem Zeitpunkt die Aliquote für die Gesamtiodbestimmung mittels IC oder ICP-MS genommen werden. Die Menge Iod aus der Probe, die zu diesem Zeitpunkt mit dem Träger versetzt wurde, konnte somit genau bestimmt werden. Nach der Zugabe des Woodward-Iod-Trägers war das per AMS zu messende Isotopenverhältnis festgelegt und die darauf folgenden Verluste mussten nicht mehr berücksichtigt werden. Die Lösung wurde dann angesäuert und das Iod durch Zugabe von Silbernitratlösung als Silberiodid ausgefällt. Dieses wurde abfiltriert, getrocknet und in verschlossenen Glasampullen bis zur AMS Messung (Abschnitt 6.6) im Dunkeln aufbewahrt.

Im Rahmen der Qualitätssicherung wurden in regelmäßigen Abständen Blindwertproben für das Verbrennungsverfahren angefertigt. Zur Ermittlung eines Blindwertes für  $^{127}\text{I}$  wurde dazu das komplette Verbrennungsverfahren ohne Probe durchgeführt. Sämtliche Geräte und Gefäße wurden wie üblich gereinigt und gehandhabt. Die Absorptionslösung wurde ebenfalls wie üblich vorgelegt und der Gasstrom für eine Zeit, die der einer durchschnittlichen Verbrennung entsprach, durch die Apparatur geleitet. Der Iodgehalt der Absorptionslösung wurde dann später als Blindwert per ICP-MS ermittelt.

$^{129}\text{I}$  liegt in so geringen Mengen an Apparaturteilen oder in den beteiligten Lösungen vor, dass ein Träger eingesetzt wurde, um auch für  $^{129}\text{I}$  einen Blindwert zu messen. Die Verbrennung wurde wie üblich durchgeführt, wobei als Probe ein Stück Filterpapier diente, das mit 100  $\mu\text{L}$  einer 1 : 1 000 verdünnten Woodward-Iod-Lösung betropft wurde. Dies entspricht etwa der Zugabe von 3  $\mu\text{g}$  Iod, die als Träger für in der Apparatur vorkommende  $^{129}\text{I}$ -Atome dienen. Zur Absorptionslösung werden dann, wie oben beschrieben, etwa 3 mg Woodward-Iod gegeben und das Iod als Silberiodid ausgefällt. Dieses wird dann als Blindwertprobe per AMS vermessen.

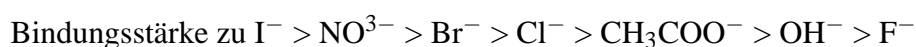
### 6.4.2 Aufbereitung flüssiger Proben

Zur Iod-Matrixtrennung flüssiger Proben wurde das von Szidat [2000] ausführlich beschriebene Verfahren der Festphasenextraktion verwendet. Es basiert auf der Anwendung eines Anionentauschers, der Iod in Form von Iodid stärker bindet als andere Anionen. Der Anionentauscher besteht aus einem Polymersubstrat, das mit einer quartären Ammoniumgruppe



**Abbildung 6.2:** Herstellung und Struktur des Anionenaustauschers Dowex®1X8. Das kommerzielle Produkt wird in der Chlorid-Form geliefert.

funktionalisiert ist und so Anionen binden kann (Abb. 6.2). Die Austauschergruppe bindet verschiedene Anionen mit unterschiedlicher Stärke:



Der Anionentauscher wurde in destilliertem Wasser aufgeschlämmt und in einer Glassäule vorgelegt. Durch Aufgabe verdünnter Kaliumnitratlösung ( $0,5 \text{ mol L}^{-1}$ ) wurde zunächst das Anion Chlorid durch Nitrat ausgetauscht. Damit wurde die Selektivität des Austauschers für Iodid erhöht, da nur dieses Anion in der Lage ist, Nitrat zu verdrängen. Anschließend wurde die Probe auf die Säule gegeben und das enthaltene Iodid gebunden, während andere Anionen und sonstige Matrixbestandteile durch die Säule gespült wurden. Durch Eluieren mit konzentrierter Kaliumnitratlösung ( $2,25 \text{ mol L}^{-1}$ ) konnte das Iodid anschließend getrennt von anderen Ionen aufgefangen werden. Zwischen der Aufbereitung von Wasserproben und Milch mit der Festphasenextraktion gab es einige Unterschiede, die im Folgenden beschrieben werden. Auch für die Iod-Matrixtrennung der untersuchten Iod-Tabletten und der iodierten Speisesalze wurde diese Verfahren angewandt.

### Wasserproben

In natürlichen Wässern ist nicht gewährleistet, dass Iod als Iodid vorliegt. Daher erfolgte zunächst eine Äquilibrierung der Iodspezies. Durch Zugabe von Calciumhypochlorid ( $\text{Ca}(\text{ClO})_2$ ) wurden zunächst alle Iodspezies zu Iodat oxidiert. Mit Hydroxylammoniumhydrochlorid ( $(\text{NH}_2\text{OH})\text{HCl}$ ) und Natriumhydrogensulfit ( $\text{NaHSO}_3$ ) wurde Iodat dann wieder zu Iodid reduziert. Dieses Verfahren wurde von Gabay u. a. [1974] entwickelt und von Szidat [2000] validiert. Je nach zu erwartendem Iodgehalt wurden unterschiedliche Volumina der Wasserproben aufbereitet. Bei Regenwässern wurden 0,5 L eingesetzt, bei Oberflächenwässern 0,5 L bis 1,2 L und bei Grundwässern 2 L bis 9,5 L. Aufgrund des geringen Iodgehalts der Wasserproben wurde der Woodward-Iod-Träger bereits vor diesem Oxidations-Reduktionsschritt zugegeben. Da hier das Isotopenverhältnis verändert wurde, musste vor der Zugabe des Trägers ein Aliquot der Probe zur Bestimmung des Gesamtiodgehalts per

ICP-MS entnommen werden. Zur Entfernung von Schwebstoffen wurde das Aliquot für die ICP-MS-Messung filtriert. Nach der Reduktion wurde die Probe auf die Säule gegeben und das Iod schließlich eluiert. Das Eluat wurde in mehreren Fraktionen aufgefangen, aus denen nach Ansäuern durch Zugabe von Silbernitrat Silberiodid ausgefällt wurde. Anhand der Färbung des Niederschlags konnte auf eventuelle Verunreinigungen geschlossen werden. War der Niederschlag nicht gelb, sondern eher weißlich, so wurde Silberchlorid mitgefällt. Färbte sich der Niederschlag nach einigen Minuten dunkel, so lag vermutlich eine Verunreinigung mit Schwefelverbindungen vor [Ernst 2003]. Da es dabei zu einer Mitfällung des homologen Tellurs kommen kann, dessen Isotop  $^{128}\text{Te}$  bei der AMS-Messung zu Problemen führt (siehe Abschnitt 6.6), wurden diese Fraktionen ausgeschlossen. Die ausgewählten, reinen Silberiodidfraktionen wurden vereint, das Silberiodid abfiltriert und nach dem Trocknen für die AMS-Messung aufbewahrt.

### Milch

Milch ist eine Emulsion sehr vieler Bestandteile und ihre Zusammensetzung kann sich bei Änderung der äußeren Bedingungen schnell ändern. Eine gleichmäßige Zerstäubung, Verdampfung, Atomisierung und Ionisation, die für die ICP-MS-Messung notwendig ist, ist nicht gewährleistet. Daher musste bei Milchproben die Abtrennung des Iods von der Matrix mittels Festphasenextraktion vor der Entnahme eines Aliquots für die ICP-MS-Messung erfolgen. Dies schließt wiederum die Zugabe des Woodward-Iod-Trägers vor der Festphasenextraktion aus. Da der Rückhalt von Iodid und die Elution von der Säule nicht vollständig sind, wurde  $^{125}\text{I}$  als Ausbeutetracer verwendet, um den Iodgehalt der ursprünglichen Milch bestimmen zu können. Die Aufbereitung einer Milchprobe läuft folgendermaßen ab: Nach dem Auftauen der Probe wurden etwa 180 mL Milch entnommen und mit 100  $\mu\text{L}$  einer  $\text{K}^{125}\text{I}$ -Lösung versetzt (etwa 1 kBq). Mit einem Dispergiergerät wurde die Probe für etwa 20 Minuten bei  $15\,800\text{ U min}^{-1}$  homogenisiert. Dies ermöglichte eine sehr gute Durchmischung der Probe mit dem Tracer. Zudem war es ohne diesen Schritt kaum möglich, die Milch gleichmäßig durch die Säule mit dem Ionentauscher fließen zu lassen, Verstopfungen der Säule wären die Folge gewesen. Ein Oxidations-Reduktions-Schritt war bei Milchproben nicht nötig, da Iod in Milch beinahe vollständig als Iodid vorliegt [Gabay u. a. 1974; Hou u. a. 2000a]. Nach dem Durchfließen der Milch durch die Säule wird zunächst mit etwa 45 mL  $\text{KNO}_3$  ( $0,5\text{ mol L}^{-1}$ ) und 50 mL dest. Wasser gespült. Anschließend wurde das Iodid in Fraktionen eluiert. Sonstige Bestandteile der Milch verbleiben entweder auf der Säule oder werden vor dem Eluieren heruntergespült. Durch Messung der  $^{125}\text{I}$ -Ausbeuten in den einzelnen Fraktionen konnte die Größe der Fraktionen so angepasst werden, dass die Hauptfraktion möglichst sauber war und eine hohe Ausbeute aufweist. Von der Haupt-

fraktion wurde ein Aliquot für die ICP-MS-Messung abgenommen und ein weiteres für die Ausbeutebestimmung mittels  $^{125}\text{I}$ . Die Messung der  $^{125}\text{I}$ -Aktivität erfolgt mit einem NaI-Szintillations-Bohrlochdetektor (Firma Berthold, Typ 8SF8/2E-X) im Vergleich zu einer Standardprobe. Zum Rest der Lösung erfolgte nun die Zugabe des Woodward-Iod-Trägers, gefolgt von Ansäuern und Ausfällung von Silberiodid durch Zugabe von Silbernitrat. Das Silberiodid wurde abfiltriert, getrocknet und für die AMS-Messung bereitgestellt.

### **Iod-Tabletten und iodierter Speisesalze**

Die Untersuchung von Iod-Tabletten und iodierten Speisesalzen im Rahmen dieser Arbeit hatten den Charakter von Vorexperimenten. Iod liegt in diesen Proben in fester, aber leicht löslicher Form als Kaliumiodid oder Kaliumiodat vor. Es sollte überprüft werden, ob das Verfahren der Festphasenextraktion mit entsprechenden Modifikationen für diese Proben geeignet ist. Iod-Tabletten bzw. der Inhalt der Iod-Kapseln wurden unter Zugabe von  $\text{NaHSO}_3$ -Lösung und  $^{125}\text{I}$  als Tracer zunächst in Wasser aufgeschlämmt und 20 Minuten gerührt. Der Tablettenfüllstoff wurde abfiltriert. Iodiertes Speisesalz wurde ebenfalls in einer  $\text{NaHSO}_3$ -Lösung gelöst und mit  $^{125}\text{I}$  versetzt. Da Iod in einigen Fällen in Form von Kaliumiodat in den Tabletten oder im Salz vorlag, wurde aus den Gehaltsangaben auf den Packungen und der jeweiligen Einwaage eine entsprechende Menge an  $\text{NaHSO}_3$  berechnet, und so eine möglichst vollständige Reduktion von Iodat zu Iodid angestrebt. Die Lösung wurde dann auf die vorbereitete, d. h. mit Nitrat belegte Säule gegeben und Iodid mit konzentrierter Kaliumnitratlösung eluiert. Das weitere Vorgehen entsprach dem bei den Milchproben.

Auch für die Aufbereitung mittels Festphasenextraktion wurden in regelmäßigen Abständen Blindwertproben angefertigt. Dazu wurde Reinstwasser auf die wie üblich vorbereitete Säule gegeben, eine Elution durchgeführt, Woodward-Iod zum Eluat gegeben und Silberiodid ausgefällt. Die so erstellte AMS-Probe stellt eine Blindwert dar, in dem das gegebenenfalls eingetragene  $^{129}\text{I}$  aus den beteiligten Geräten und Chemikalien berücksichtigt ist.

## **6.5 Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse**

In den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten menschlichen Schilddrüsen wurden  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  mittels radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse bestimmt. Details zur praktischen Durchführung und zur Auswertung der Messungen wurden in einer eigenen früheren Arbeit bereits ausführlich dargestellt [Klipsch 2002]. Daher wird an dieser Stelle nur ein

**Tabelle 6.2:** Einige Beispiele für Aktivierungsreaktionen [Lieser 1991]

$^{16}\text{O}(\text{n,p})^{16}\text{N}$	$^{23}\text{Na}(\text{n},\gamma)^{24}\text{Na}$	$^{208}\text{Pb}(\text{n},2\text{n})^{207\text{m}}\text{Pb}$	$^{65}\text{Cu}(\text{p,n})^{65}\text{Zn}$
$^{19}\text{F}(\text{p},\alpha)^{16}\text{O}$	$^{10}\text{B}(\text{d,n})^{11}\text{C}$	$^{24}\text{Mg}(\text{d},\alpha)^{22}\text{Na}$	$^{14}\text{N}(\text{t},2\text{n})^{15}\text{O}$
$^{95}\text{Mo}(\text{}^3\text{He,n})^{97}\text{Ru}$	$^{27}\text{Al}(\alpha,\text{n})^{30}\text{P}$	$^{16}\text{O}(\alpha,\text{d})^{18}\text{F}$	$^{12}\text{C}(\gamma,\text{n})^{11}\text{C}$

Überblick über das Verfahren der RNAA mit Schwerpunkt auf der Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  gegeben.

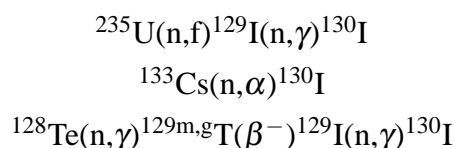
Die Aktivierungsanalyse ist ein weit verbreitetes Verfahren zur Elementbestimmung. Sie beruht auf der Nutzung von Kernreaktionen, durch die aus stabilen oder langlebigen radioaktiven Isotopen kurzlebige radioaktive Produkte erzeugt werden. Kernreaktionen werden allgemein in der Form  $A(x,y)B$  geschrieben, wobei ein Nuklid  $A$  mit einem Teilchen der Art  $x$  bestrahlt wird, und unter Aussendung von Teilchen  $y$  zu Produkt  $B$  reagiert. Tabelle 6.2 zeigt einige Beispiele möglicher Aktivierungsreaktionen. Die Kernreaktionen werden so ausgewählt, dass die Produkte  $B$  leicht gemessen werden können. Die Erzeugung von  $\gamma$ -Strahlern ist auf diese Art und Weise weit verbreitet, da diese spektrometrisch quantifiziert werden können. Wegen der relativ guten Verfügbarkeit in Forschungsreaktoren werden als Projektil  $x$  häufig Neutronen verwendet. Die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) ist das am weitesten verbreitete Aktivierungsverfahren. Auf die anderen Aktivierungsmethoden soll hier nicht weiter eingegangen werden.

Die Neutronenaktivierung ist ein sehr empfindliches, elementspezifisches Verfahren, das einen weiten Bereich der vorkommenden Elemente abdeckt. Oft können zahlreiche Elemente simultan bestimmt werden, ohne dass eine aufwendige Probenvorbereitung nötig ist. Schnier u. a. [2001] geben eine Übersicht zu dieser INAA (Instrumentelle Neutronenaktivierungsanalyse) genannten Methode. Wenn für die Messung bestimmter Nuklide vor oder nach der Bestrahlung noch eine chemische Trennung erforderlich ist, spricht man von der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA). Sind experimentelle Parameter, wie Neutronenflussdichte, Wirkungsquerschnitt der Aktivierungsreaktion, Bestrahlungs- und Abklingzeit, hinreichend genau bekannt, ist die Aktivierungsanalyse eine absolute Quantifizierungsmethode. Es ist dann keine Kalibration über Standards nötig. In dieser Arbeit wird die RNAA als relative Methode durchgeführt. Standardproben mit bekannten Gehalten an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  werden zusammen mit den Proben aktiviert und bei der Auswertung zur Kalibration herangezogen. Eine genaue Bestimmung der o. g. Parameter ist in diesem Fall nicht nötig.  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  können mit Hilfe der RNAA simultan erfasst werden – ein großer Vorteil im Vergleich zur AMS, bei der nur ein Isotopenverhältnis gemessen wird und eine separate Bestimmung von  $^{127}\text{I}$  nötig ist (siehe Kapitel 6.6).

**Tabelle 6.3:** Mögliche Kernreaktionen zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  mittels RNAA. Neben der Kernreaktion und dem Energiebereich der Neutronen sind der Neutroneneinfangquerschnitt  $\sigma$ , die Halbwertszeit des Produktnuklides  $T_{1/2}$ , die Energie der zur Auswertung herangezogenen Gammastrahlung  $E_\gamma$  und ihre Entkommwahrscheinlichkeit  $I_\gamma$  dargestellt.

Reaktion	Neutronenart	$\sigma$ in barn	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ in keV	$I_\gamma$ in %
$^{127}\text{I}(n,\gamma)^{128}\text{I}$	thermisch	6,15	25 min	442,9	16,0
$^{127}\text{I}(n,2n)^{126}\text{I}$	schnell	1,1	13,02 d	388,6	34,0
$^{129}\text{I}(n,\gamma)^{130}\text{I}$	thermisch	31,0	12,36 h	536,1	99,0

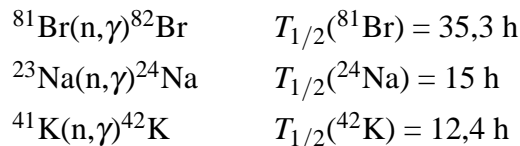
Für die Aktivierung von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  können die in Tabelle 6.3 dargestellten Kernreaktionen verwendet werden. Wegen des Zeitaufwandes für den Transport und die nach der Bestrahlung nötige radiochemische Reinigung wird nicht das kurzlebige Produkt  $^{128}\text{I}$  zur Messung von  $^{127}\text{I}$  herangezogen sondern  $^{126}\text{I}$ . Prinzipiell ist bei der RNAA mit zwei Arten von Störungen zu rechnen, die die Bestimmung eines Elementes erschweren oder gar verhindern können. Einerseits können die zu messenden Aktivierungsprodukte, hier  $^{126}\text{I}$  und  $^{130}\text{I}$ , aus anderen als den zu bestimmenden Nukliden entstehen. Man spricht von nukleogenen Interferenzen. Zu  $^{130}\text{I}$  führen z. B. auch die folgenden Reaktionen:



Sie spielen allerdings in der Praxis keine Rolle, da die Ausgangsnuklide in biologischen Matrices nur in sehr geringen Mengen vorkommen.

Andererseits können durch Aktivierungsreaktionen der Matrixbestandteile weitere radioaktive Kerne entstehen, deren Zerfall im Gammaskpektrum weitere Peaks erzeugt. Diese können entweder mit den Peaks des  $^{130}\text{I}$  und  $^{126}\text{I}$  überlagern oder den Untergrund bei der Messung soweit erhöhen, dass eine Quantifizierung der geringen Mengen  $^{130}\text{I}$  und  $^{126}\text{I}$  nicht mehr möglich ist. Diese Störungen werden spektroskopische Interferenzen genannt. Zudem ist man schon aus Strahlenschutzgründen bemüht, die Aktivität so gering wie möglich zu halten. Vor der Bestrahlung muss also zunächst eine Abtrennung der Probenmatrix erfolgen. Ausgehend von der von Studier u. a. [1962] beschriebenen und später von Anderson [1978] modifizierten Methode, wurde dazu am ZSR die schon in Abschnitt 6.4 beschriebene Methode zum Probenaufschluss durch Verbrennung entwickelt. Dabei wird das Iod aus der Probe abgetrennt und schließlich in eine Bestrahlungsampulle aus Quarzglas überführt. Die Bestrahlung mit Neutronen erfolgt, gemeinsam mit zwei Standardproben, im

Forschungsreaktor FRG-1 des Forschungszentrums GKSS in Geesthacht. Bei der Spuren-Matrix-Trennung können Brom sowie die allgegenwärtigen Elemente Natrium und Kalium nicht vollständig entfernt werden. Einige ihrer Isotope werden bei der Bestrahlung gemäß den folgenden Reaktionen ebenfalls aktiviert.



Die Produktnuklide  $^{82}\text{Br}$ ,  $^{24}\text{Na}$  und  $^{42}\text{K}$  führen im Gammaskpektrum zu den oben erwähnten spektroskopischen Interferenzen. Da die Halbwertszeiten der störenden Isotope der des zu messenden  $^{130}\text{I}$  ähneln, kann nicht bis zum Abklingen dieser Nuklide gewartet werden. Die Interferenzen lassen sich allerdings verringern, wenn man nach der Bestrahlung eine radiochemische Reinigung anschließt. Diese besteht aus einer Reihe von Oxidations- und Reduktionsschritten, in Verbindung mit flüssig-flüssig Extraktionen. Dabei werden die störenden Nuklide weitestgehend abgetrennt. Abschließend wird das aktivierte Iod als Silberiodid ausgefällt und auf einem Reinstgermanium-Halbleiterdetektor gammaspektrometrisch vermessen. Unter Berücksichtigung der chemischen Ausbeute, die mittels  $^{125}\text{I}$  als Tracer bestimmt wird, erhält man die Gehalte der Probe an  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  und somit das Isotopenverhältnis.

Mehrere Faktoren führen dazu, dass sich  $^{129}\text{I}$  mittels der RNAA nur bis hinunter zu  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von etwa  $2 \cdot 10^{-10}$  bestimmen lässt. Trotz der Spuren-Matrix-Trennung vor der Bestrahlung und der radiochemischen Reinigung danach, lassen sich einige Störnuklide nicht vollständig abtrennen. Sie wirken sich durch die erzeugten spektroskopischen Interferenzen negativ auf das Nachweisvermögen für  $^{129}\text{I}$  aus. Auch die zur Analyse zur Verfügung stehende Probenmenge und die damit extrahierbare Gesamtmenge an  $^{129}\text{I}$  kann beschränkt sein. Anders als bei der ICP-MS sind die um ein Vielfaches größeren Mengen  $^{127}\text{I}$  nicht limitierend für die Nachweisgrenze des  $^{129}\text{I}$ .

## 6.6 Beschleunigermassenspektrometrie

### 6.6.1 Einleitung

In der konventionellen Massenspektrometrie werden Ionen durch Kombinationen von magnetischen, elektrostatischen und ggf. Hochfrequenzfeldern nach ihrer Masse (genauer dem



Masse-Ladungsverhältnis  $m/z$ ) getrennt. Die Trennung von Isotopen eines Elements mit einer Massendifferenz von einer atomaren Masseneinheit ist leicht möglich. Problematisch ist, dass die Isotope eines Elements meist nicht zu gleichen Anteilen in den zu untersuchenden Proben vorliegen, sondern dass zwischen ihren Konzentrationen oft zahlreiche Größenordnungen liegen. Peaks der Isotope mit geringer Intensität können von denen mit weitaus höherer, wegen der Peakverbreiterung und -überlappung, nicht mehr hinreichend getrennt werden. Hinzu kommen Interferenzen durch Isotope gleicher Masse von anderen Elementen (Isobare) oder durch Moleküllionen mit gleichem  $m/z$ -Verhältnis. Bei der Bestimmung von  $^{129}\text{I}^+$  sind vor allem  $^{129}\text{Xe}^+$  und  $^{127}\text{IH}_2^+$  zu nennen. Mit hochauflösenden Massenspektrometern lassen sich die unterschiedlichen Massen von  $^{129}\text{I}^+$  und  $^{127}\text{IH}_2^+$  zwar trennen, dies geschieht aber unter starken Einbußen bei der Nachweiswahrscheinlichkeit (engl. efficiency). Diese beschreibt den Anteil des Analyten, der aus der Probe noch in den Detektor gelangt. Da  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben nur in Spuren vorliegt und eine beliebige Erhöhung des Probenvolumens in der Praxis nicht möglich ist, lässt es sich aufgrund dieser Probleme in nichtkontaminierten Umweltproben bei  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen kleiner als etwa  $10^{-6}$  nicht mit der konventionellen Massenspektrometrie quantifizieren (siehe auch Abschnitt 6.2).

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS, *accelerator mass spectrometry*) bietet hier einige Vorteile. Sie nutzt besondere Prinzipien der Ionisierung, der Unterdrückung von Molekülinterferenzen und der nuklidspezifischen Detektion. In diesem Abschnitt folgt zunächst die Beschreibung der Prinzipien der Beschleunigermassenspektrometrie und die Grundlagen der Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  mit dieser Methode. Es folgen einige experimentelle Details und die Beschreibung der weiteren rechnerischen Auswertung der Daten. Weitere Einzelheiten zur AMS und speziell zur  $^{129}\text{I}$ -Messung finden sich u. a. bei Tuniz u. a. [1998], Finkel und Suter [1993], Synal u. a. [1997] sowie bei Wagner u. a. [1996].

### 6.6.2 Prinzipien und Aufbau der AMS

Die Messungen dieser Arbeit wurden an der AMS-Anlage des Paul-Scherrer-Instituts (PSI) und der Eidgenössischen Technischen Hochschule (ETH) in Zürich durchgeführt. Sie befindet sich am ETH-Standort Höggerberg im Institut für Teilchenphysik und wird von der Arbeitsgruppe Ionenstrahlphysik betrieben. Die AMS-Anlage (Abb. 6.3) lässt sich in fünf Hauptbereiche aufteilen: Ionenquelle, Niederenergie-Massenspektrometer, Tandem-Beschleuniger mit Stripper, Hochenergie-Massenspektrometer und Detektorsystem.

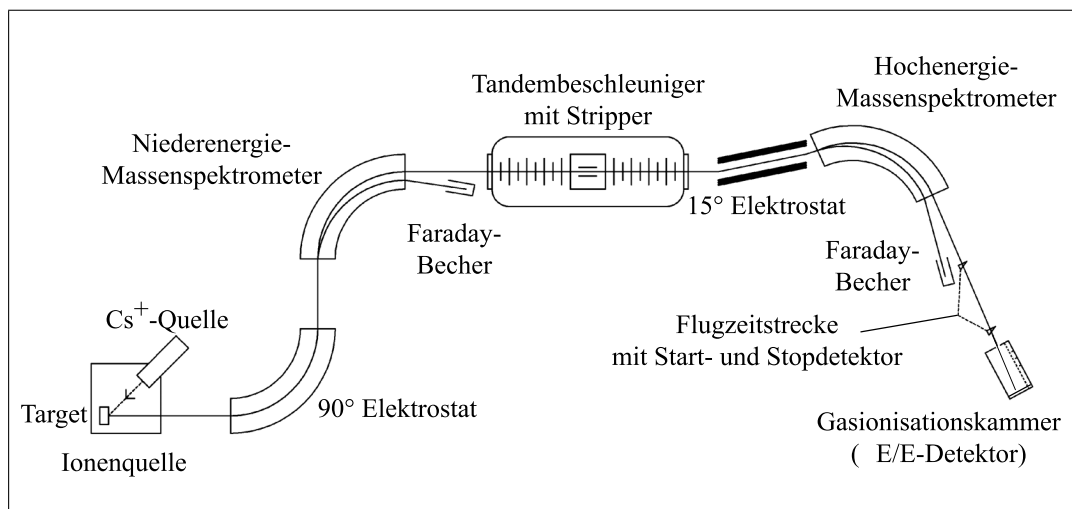


Abbildung 6.3: Schematischer Aufbau der ETH-PSI-AMS-Anlage in Zürich

### Ionenquelle

Die in Targethaltern vorgelegte Probe (AgI, vermischt mit Ag) wird in der Ionenquelle mit  $\text{Cs}^+$ -Ionen beschossen. Diese werden durch das Erhitzen von metallischem Caesium erzeugt, diffundieren durch eine feinporige Fritte und werden durch eine Potentialdifferenz in Richtung des Targets beschleunigt. Im Target werden durch den Beschuss negative Ionen erzeugt und diese durch ein System von elektrostatischen Blenden in Richtung des Niederenergie-Massenspektrometers geleitet. Da in der Ionenquelle nur negative Ionen erzeugt werden, findet hier bereits eine Abtrennung von Elementen statt, die keine stabilen negativen Ionen bilden (z.B.  $^{129}\text{Xe}$ ).

### Niederenergie-Massenspektrometer

Zunächst werden in einer elektrostatischen Ablenkeinheit Ionen der gewünschten Energie selektiert und dann im magnetischen Feld nach ihrem Impuls getrennt. So erfolgt schon eine massenspektrometrische Auftrennung, allerdings mit geringer Auflösung. Ionen mit einem viel zu großen oder viel zu kleinen  $m/z$ -Verhältniss werden ausgeblendet ( $125 < m/z < 130$ ). Der Ionenstrom wird dann an dieser Stelle gepulst. Mit einer Pulsdauer von  $20 \mu\text{s}$  gelangt ein Teil in den Beschleuniger und ein anderer in einen Faraday-Becher. In diesem wird der  $^{127}\text{I}$ -Strom auf der Niederenergieseite des Beschleunigers gemessen. Eine ähnliche Messung erfolgt nach dem Beschleuniger, so dass eine Transmission berechnet werden kann (siehe unten).

### Tandem-Beschleuniger

Der Tandem-Beschleuniger trägt seinen Namen, weil in ihm eine elektrische Spannung zweimal zur Beschleunigung der Ionen genutzt wird. Die zuvor selektierten, einfach negativ geladenen Ionen werden zunächst in Richtung des so genannten Terminals in der Mitte des Geräts beschleunigt. Hier liegt ein positives Potential von  $U = +4,7$  MV an. Die  $I^-$ -Ionen haben nun die Energie  $E = 4,7$  MeV. Am Terminal treffen die beschleunigten Ionen auf den so genannten Stripper, einen mit Argon gefüllten Bereich. Alternativ stehen auch dünne Kohlenstofffolien als Stripper zur Verfügung. Durch Kollisionen mit den Atomen des Strippers verlieren die Anionen Elektronen und werden in Kationen unterschiedlicher Ladungszustände  $q$  umgeladen. Da später nur ein Ladungszustand für die Analyse ausgewählt werden kann, verringert dieser Vorgang die Nachweiswahrscheinlichkeit. Die erzeugten Kationen werden nun vom positiven Potential weg beschleunigt, erhalten damit die zusätzliche Energie von  $E = q \cdot U$  und erreichen damit beim Erdpotential am Ausgang des Beschleunigers die Gesamtenergie

$$E = (1 + q) \cdot U. \quad (6.2)$$

Durch den Stripping-Prozess wird eine Vielzahl von Molekülonen zerstört, ihre Interferenzen werden unterdrückt. Zudem erhalten die Ionen die hohen Energien, die zur weiteren Auftrennung und Detektion nötig sind. Bei dem Beschleuniger der Zürcher AMS-Anlage handelt es sich um einen VAN DE GRAAFF-Beschleuniger, bei dem die Hochspannung am Terminal durch Ladungstransport mittels eines sich schnell bewegenden Gummibandes erzeugt wird.

### Hochenergie-Massenspektrometer

Am Ausgang des Beschleunigers besteht der Ionenstrahl aus mehreren Komponenten. Neben dem Analyten sind noch einige Molekülfragmente vorhanden sowie weitere Ionen mit unterschiedlichen Ladungen und Energien. Diese entstehen im Beschleuniger beim Umladeprozess. Eine Massentrennung im magnetischen Feld alleine reicht nicht aus, um den Analyten von diesen Fragmenten und Ionen zu trennen. Durch einen elektrostatischen  $15^\circ$ -Deflektor werden daher zunächst die Iodionen mit der Ladung  $q = +5$  selektiert. Sie entstehen im Stripper, neben Kationen mit anderen Ladungen, mit einer noch vertretbaren Ausbeute und sind gemäß Gleichung 6.2 auf die hohe Energie von 28,2 MeV beschleunigt worden. Es folgt eine weitere Aufspaltung des Ionenstrahls im magnetischen Feld nach dem Verhältnis von Masse zu Ladung.

Der Ionenstrahl wird an dieser Stelle erneut aufgeteilt. Mittels eines weiteren Faraday-Bechers wird der durch  $^{127}\text{I}^{5+}$ -Ionen erzeugte Strom auf der Hochenergieseite gemessen, ein weiterer Teil des Ionenstrahls gelangt in das Detektorsystem, in dem die  $^{129}\text{I}^{5+}$ -Ionen gezählt werden. Mit den  $^{127}\text{I}$ -Strömen auf der Hochenergie- und auf der Niederenergieseite lässt sich die Transmission berechnen. Sie beträgt in der Regel nur 3 % bis 5 %, bedingt durch die Auswahl des Ladungszustandes +5 für Iodionen sowie durch Streuprozesse im Stripper.

### Detektorsystem

In das Detektorsystem gelangen neben dem  $^{129}\text{I}^{5+}$  noch andere Ionen mit annähernd gleichem Verhältnis von Masse zu Ladung (vgl. Tab. 6.4). Um nun ein  $^{129}\text{I}^{5+}$ -Ion eindeutig

**Tabelle 6.4:** Ionen mit ähnlichem  $m/z$  wie  $^{129}\text{I}^{5+}$ .

Ion	$^{129}\text{I}^{5+}$	$^{127}\text{I}^{5+}$	$^{128}\text{Te}^{5+}$	$^{103}\text{Rh}^{4+}$	$^{104}\text{Pd}^{4+}$	$^{102}\text{Pd}^{4+}$
$m/z$	25,80	25,40	25,60	25,75	26,00	25,50

identifizieren und von den anderen genannten Ionen unterscheiden zu können, werden zwei Detektoren kombiniert. Die Ionen passieren zunächst einen Time-Of-Flight-Detektor (TOF-Detektor) und werden dann in einem Gasionisationsdetektor (GID) registriert.

- **Time-Of-Flight-Messung:** Die kinetische Energie eines sich bewegenden Teilchens lässt sich durch den folgenden Zusammenhang zwischen seiner Masse  $m$  und der Geschwindigkeit  $v$  ausdrücken:

$$E = \frac{1}{2}mv^2. \quad (6.3)$$

Durch Gleichsetzen mit Gl. 6.2 und Umstellen erhält man

$$E = (1+q)U = \frac{1}{2}mv^2 \quad (6.4)$$

$$m = \frac{2(1+q)U}{v^2} \quad (6.5)$$

$$m = \frac{2(1+q)Ut^2}{s^2}. \quad (6.6)$$

Da die Beschleunigerspannung  $U$  und der gewählte Ladungszustand  $q$  bekannt sind, kann man durch Messung der Flugzeit  $t$  des Ions über eine bekannte Strecke  $s$  seine Masse bestimmen. Üblich ist dabei eine Messstrecke von 1 m bis 4 m. Die Flugzeit wird mittels eines Start- und eines Stop-Detektors gemessen. Ein solcher Detektor

besteht aus einer dünnen Kohlenstofffolie, in der beim Passieren des Ions Sekundärelektronen erzeugt werden. Diese werden detektiert und verstärkt und erzeugen damit ein elektronisches Start- bzw. Stop-Signal, woraus die Flugzeit berechnet wird. An der Zürcher AMS-Anlage werden die Daten nach der Digitalisierung mittels eines PCs in einem Time-Of-Flight-Spektrum dargestellt. In diesem ist die Anzahl der detektierten Teilchen gegen ihre Flugzeit aufgetragen. Die dabei beobachteten Peaks lassen sich eindeutig der Masse der detektierten Ionen zuordnen. So unterscheiden sich z. B. die Flugzeiten der Ionen  $^{129}\text{I}^{5+}$  und  $^{128}\text{Te}^{5+}$  bei der benutzten Beschleunigerspannung und der gewählten Messstrecke (4,1 m) um etwa 3,9 ns [Wagner u. a. 1996]. Da die Zeitauflösung der Messung einige hundert Picosekunden beträgt, können diese Ionen unterschieden werden.

- **Gasionisationsdetektor ( $\Delta E$ -E-Detektor):** Eine zusätzliche Identifikation der Ionen erfolgt durch die Ermittlung ihrer Gesamtenergie und ihres Energieverlusts beim Durchgang durch Materie. Zum Verständnis ist die BETHE-BLOCH-Beziehung nützlich, die der Übersichtlichkeit hier nicht vollständig wiedergegeben werden soll. Die Kernaussage dieser Beziehung ist, dass der Energieverlust  $dE$  über ein Strecke  $dx$  proportional zum Quadrat der Ladungszahl  $z$  und umgekehrt proportional zum Quadrat der Geschwindigkeit  $v$  des Teilchens ist:

$$-\frac{dE}{dx} \propto \frac{z^2}{v^2}. \quad (6.7)$$

Durch Einsetzen von (Gl. 6.3) erhält man

$$-\frac{dE}{dx} \propto \frac{mz^2}{E}. \quad (6.8)$$

Der Gasionisationsdetektor besteht aus einer mit Gas gefüllten Kammer, an deren Innenwänden sich Elektroden befinden. An diesen ist ein elektrisches Feld angelegt. Die beschleunigten Ionen treten in diese Kammer durch ein Fenster aus Mylar<sup>®</sup>-Folie ein. Durch Ionisation der Gasmoleküle geben sie ihre Energie schrittweise ab. Die erzeugten Ladungsträger driften zur Anode des elektrischen Felds und können als Strom gemessen werden. Die Stärke des Stroms ist ein Maß für den Energieverlust des detektierten Teilchens. Durch die Anordnung mehrerer Anoden ist es möglich, den Energieverlust über eine gewisse Strecke zu messen. Am Ende der Kammer wird die Restenergie des Teilchens registriert, so dass daraus und aus dem vorhergehenden Energieverlust seine Gesamtenergie resultiert. Trägt man den Energieverlust  $dE/dx$  eines Teilchens gegen seine Gesamtenergie  $E$  auf, so lassen sich Ionen unterschiedlicher Ladungen, aber (annähernd) gleichen Masse-Ladungsverhältnisses unterscheiden. So ist beispielsweise die Unterscheidung von  $^{129}\text{I}^{5+}$  und  $^{103}\text{Rh}^{4+}$  möglich.

In den erhaltenen TOF- bzw.  $\Delta E$ -E-Spektren werden die Bereiche, die den  $^{129}\text{I}$ -Ereignissen zuzuordnen sind, durch setzen so genannter Gates (Peakgrenzen) markiert. Durch Kombination der Spektren können  $^{129}\text{I}$ -Ereignisse deutlich von anderen abgegrenzt werden. Man erhält die Anzahl  $N_{129}$  der registrierten  $^{129}\text{I}$ -Ereignisse in einem bestimmten Zeitraum. Der parallel gemessene Strom  $I_{127}$  auf der Hochenergieseite, der durch  $^{127}\text{I}^{5+}$ -Ionen erzeugt wird, liefert gemäß der folgenden Gleichung die Anzahl dieser Ionen:

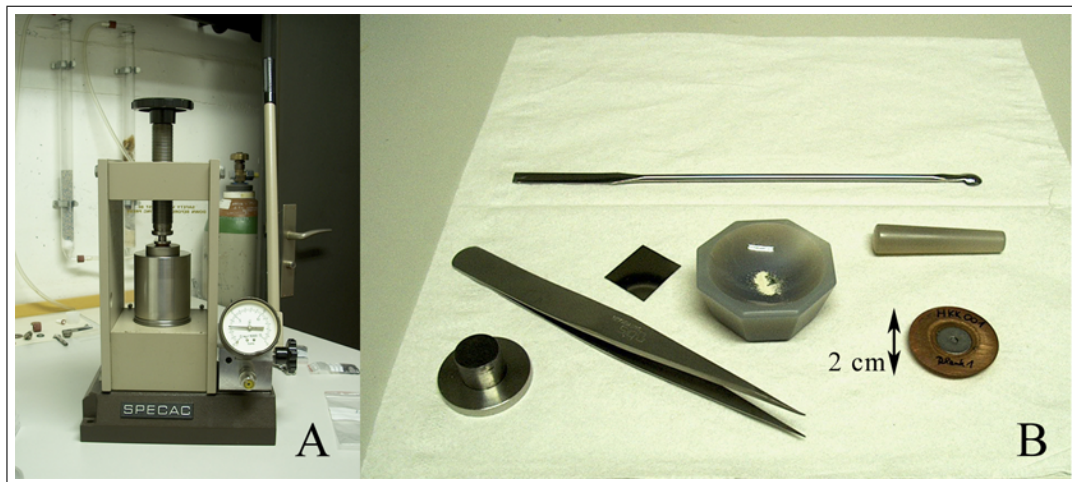
$$N_{127} = \frac{I_{127} \cdot t}{q \cdot e}. \quad (6.9)$$

Dabei ist  $t$  die Messzeit, über die der Strom registriert wurde und  $e$  die Elementarladung ( $e = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$ ). Aus  $N_{129}$  und  $N_{127}$  erhält man das Isotopenverhältnis der Probe, welches aber, wie weiter unten beschrieben, noch korrigiert werden muss.

### 6.6.3 Experimentelle Details und Auswertung der Daten

Da die AMS ein äußerst komplexes Verfahren ist, kann es durch die diversen strahlformen- den Elemente, durch das Pulsiersystem, durch die Massenseparation und durch das Detek- torsystem dazu kommen, dass  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  nicht in dem Verhältnis detektiert werden, in dem sie in der Messprobe vorliegen. Zudem kommt es im Laufe der z.T. mehrere Tage dau- ernden Messungen zu gerätebedingten Schwankungen. Es ist daher nötig, die Messungen relativ zu Standardproben mit einem bekanntem Isotopenverhältnis durchzuführen. Da die Linearität des Messverfahrens gewährleistet ist, wurden die Messungen mit einem Stan- dard durchgeführt, dessen tatsächliches Isotopenverhältnis  $V_{Std,tat} = 4,81 \cdot 10^{-11}$  beträgt. Das AgI mit diesem Verhältnis wurde durch Fällung aus einer zuvor verdünnten Standardlö- sung (NBS-4949B-79, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, USA) erhalten und wird an der ETH vorrätig gehalten [Wagner u. a. 1996].

Die bei der Probenvorbereitung erhaltenen AgI-Proben werden mit Silberpulver mit niedri- gem Tellurgehalt im Verhältnis von etwa 1:4 vermischt und mittels einer Pressvorrichtung in Targets gepresst (Abb. 6.4). Jeweils 24 dieser Targets können in einer Messkassette ange- ordnet werden und in die Ionenquelle eingeschleust werden. Dabei werden in einer Kassette 19 Proben, 4 gleiche Standards und ein so genannter Woodward-Blank angeordnet. Letz- terer wurde durch Fällung von Woodward-Iod erhalten und diente ursprünglich der Ermitt- lung eines Geräteuntergrundes der AMS-Anlage. Durch lange Lagerung und häufiges Nach- pressen des Probenmaterials in die Targets ist inzwischen von einer Kontamination dieser Woodward-Blanks auszugehen. Sie können daher nur noch zu einer zusätzlichen Kontrolle der Stabilität der Messung herangezogen werden, jedoch nicht mehr zur Ermittlung eines Untergrundes. Eine Anfertigung neuer Blank-Proben wäre wünschenswert.



**Abbildung 6.4:** Presse (A) und Pressbesteck mit Target (B) für AMS-Proben.

Die Steuerung des Ablaufs der Messung sowie die Datenaufnahme erfolgt mittels eines PCs. Die Proben der Messkassette werden automatisch nacheinander in eine Position im  $\text{Cs}^+$ -Ionenstrahl gebracht und die Messung gestartet. In Zyklen wird über eine gewisse Messzeit die Anzahl der  $^{129}\text{I}$ -Ereignisse und der zugehörige  $^{127}\text{I}$ -Strom gemessen. Sechs bis 10 Zyklen ergeben einen Run ( $n_c=6\dots 10$ ). Danach wird zur nächsten Probe gewechselt. Jede Messkassette wird dreimal durchlaufen (drei Runs pro Probe).

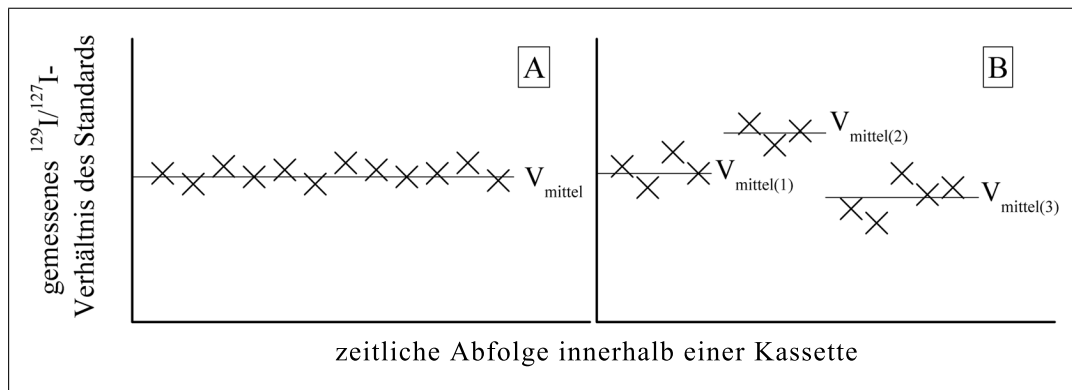
Der Gang der Auswertung wurde bereits von Szidat [2000] ausführlich beschrieben und soll hier nur skizziert werden. Aus den in jedem Zyklus (*cycle*, Index  $c$ ) gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Ereignissen und dem  $^{127}\text{I}$ -Strom (siehe Gl. 6.9) erhält man das Isotopenverhältnis  $V_c$ :

$$V_c = \frac{N_{129}}{N_{127}} = \frac{N_{129}}{\frac{I_{127,c} \cdot t_c}{q \cdot e}} = \frac{q \cdot e \cdot N_{129}}{t_c \cdot I_{127,c}}. \quad (6.10)$$

Die Isotopenverhältnisse aus jedem Zyklus werden gemittelt und dabei nach der Messzeit und dem Strom gewichtet. Man erhält zu jeder Probe  $V_{run}$ :

$$V_{run} = \frac{\sum_{c=1}^{n_c} (V_c \cdot t_c \cdot I_{127,c})}{\sum_{c=1}^{n_c} (t_c \cdot I_{127,c})}. \quad (6.11)$$

Aufgrund der o. g. Faktoren variieren die gemessenen Isotopenverhältnisse  $V_{run}$  des zu verschiedenen Zeiten wiederholt gemessenen Standards. Es wird daher zunächst eine Ausgleichsrechnung vorgenommen (siehe Abb. 6.5). Alle Proben einer Kassette werden mittels einer Datenbanksoftware chronologisch anhand der Nummer des Runs sortiert. Nun werden die Messwerte des Standards separat betrachtet. Wenn die gemessenen Isotopenverhältnisse der Standardmessungen einer Kassette im zeitlichen Verlauf relativ konstant sind, so wird



**Abbildung 6.5:** Normierung auf den mitlaufenden Standard bei der AMS. (A) Alle Standardmessungen einer Kassette schwanken um einen Mittelwert. (B) Aufgrund von größeren Schwankungen müssen mehrere Standardmessungen gruppiert werden.

ein Mittelwert ( $V_{mittel}$ ) berechnet (Abb. 6.5,A). Wenn in den Messwerten des Standards im Laufe der Zeit Sprünge oder eine Drift erkennbar sind, so werden Mittelwerte ( $V_{mittel(1...n)}$ ) für einzelne Gruppen von Standardmessungen berechnet (Abb. 6.5,B). Aus dem Mittelwert oder den Mittelwerten und dem tatsächlichen Isotopenverhältnis des Standards wird durch Division mindestens ein Korrekturfaktor  $f$  berechnet, der im Fall A für die ganze Kassette gilt, im Fall B für jeweils einer Zeitspanne von Runs.

$$f_r = \frac{V_{Std,tat}}{V_{mittel}} \quad (6.12)$$

Der Korrekturfaktor wird auf die im jeweiligen Zeitraum gemessenen Proben angewandt und so deren korrigiertes tatsächliches Isotopenverhältnis berechnet.

$$V_{r,corr} = f_r \cdot V_r \quad (6.13)$$

Für jede Probe liegen in der Regel drei korrigierte Isotopenverhältnisse aus drei Runs vor. Diese werden gemittelt und dabei wiederum nach der Dauer  $t_r$  des Runs und dem gemessenen Strom  $I_{127,r}$  gewichtet.

$$V_{me} = \frac{\sum_{r=1}^3 (V_{r,corr} \cdot t_r \cdot I_{127,r})}{\sum_{c=1}^3 (t_r \cdot I_{127,r})} \quad (6.14)$$

Bei der Berechnung der Unsicherheit der Isotopenverhältnisse der Probe spielen zwei Faktoren eine Rolle. Zum einen ergibt sich eine Unsicherheit aus der Zählstatistik der  $^{129}\text{I}$ -Ereignisse, d. h. aus der z. T. geringen Anzahl an Ereignissen, die in einer gewissen Zeit registriert wurden. Diese wird im Folgenden  $u_{stat,rel}^2(V_{me})$  genannt. Zum anderen ergibt sich



ein Unsicherheitsterm  $u_{wied,rel}^2(V_{me})$  aus der Standardabweichung der Wiederholungsmessungen. Mittels der Methode des reduzierten  $\chi^2$  wird entschieden, ob neben der Unsicherheit der Ereigniszählung die zweite relevant ist. Diese Methode wurde von Szidat [2000], basierend auf der Arbeit von Barnett [1996], für diese Art der Messung angepasst. Für jede Probe einer Messkassette wird zunächst ein Quotient  $\chi^2$  der beiden Unsicherheiten gebildet:

$$\chi^2 = \frac{u_{wied,rel}^2(V_{me})}{u_{stat,rel}^2(V_{me})}. \quad (6.15)$$

Durch Vergleich mit  $n - 1$ , wobei  $n$  die Anzahl der Proben in einer Kassette ist, mit der Summe aller  $\chi^2$  kann man eine Aussage über die komplette Kassette treffen. Der Quotient  $S^2$  sollte eins sein, wenn neben der Unsicherheit aus der Zählstatistik keine weiteren Unsicherheitskomponenten auftreten.

$$S^2 = \frac{\sum_{i=1}^n \chi_i}{n - 1} \quad (6.16)$$

Bis zu einem vorgewählten Wert  $S^2 = 5$  wird angenommen, dass die Unsicherheit der Ereigniszählung die Grundlage der Gesamtunsicherheit der Messung bildet. Ist  $S^2 > 5$ , so hat die Standardabweichung der Einzelmessungen einen deutlichen Einfluss auf die Gesamtunsicherheit der Messung. Danach werden die einzelnen Proben betrachtet. Ist  $\chi^2 \geq 5$ , dann wird  $u_{wied,rel}^2(V_{me})$ , die dann größer ist als  $u_{stat,rel}^2(V_{me})$ , als Unsicherheit einer Messung angesehen.

$$u_{rel}(V_{me}) = u_{wied,rel}^2(V_{me}) \quad \text{für alle Proben, deren } \chi^2 \geq 5 \quad (6.17)$$

Anschließend wird  $S^2$  ohne die Proben, deren  $\chi^2 \geq 5$  ist, erneut berechnet. Es wird jetzt  $S_{corr}^2$  genannt.

$$S_{corr}^2 = \frac{\sum_{i=1}^n \chi_i}{n - 1} \quad \text{mit allen } \chi^2 < 5 \quad (6.18)$$

Die Unsicherheit dieser einzelnen Proben ergibt sich dann aus der Unsicherheit der Zählstatistik, erweitert um den Faktor  $S_{corr}^2$ . Dieser ist ein zusätzlicher Unsicherheitsterm, der z. B. Geräteinstabilitäten enthält und aus allen Messungen einer Kassette abgeleitet wurde.

$$u_{rel}(V_{me}) = s_{corr}^2 \cdot u_{stat,rel}^2(V_{me}) \quad \text{für alle Proben, deren } \chi^2 < 5 \quad (6.19)$$

Schließlich erhält man das Isotopenverhältnis der Messprobe  $V_{me}$  und seine Standardmessunsicherheit  $u(V_{me})$ . Wegen der Zugabe von Woodward-Iod als Träger ist dies nicht das tatsächliche Isotopenverhältnis der ursprünglichen Umweltprobe. Dieses wird nach Abschnitt

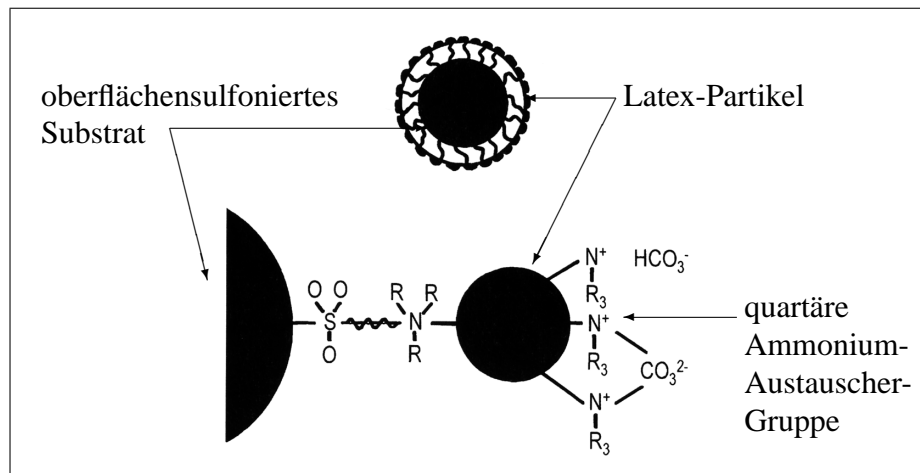
6.9 aus den AMS-Daten und dem per IC oder ICP-MS ermittelten  $^{127}\text{I}$ - bzw. Gesamtiodgehalt der Probe berechnet.

## 6.7 Ionenchromatographie

### 6.7.1 Grundlagen der Ionenchromatographie

Zur Trennung von Substanzgemischen kann man das physikalisch-chemische Verfahren der Chromatographie verwenden. Nach der Trennung können ein oder mehrere Analyten mit einem Detektionssystem qualitativ und/oder quantitativ bestimmt werden. Der Trenneffekt beruht auf der wiederholten Verteilung des Analyten zwischen einer mobilen und einer stationären Phase. Die verschiedenen chromatographischen Methoden kann man nach den Aggregatzuständen der beteiligten Phasen und auch nach der apparativen Ausführung unterteilen (z. B. Säulenchromatographie, Planarchromatographie). Unter Ionenchromatographie versteht man die schnellen, flüssigkeits-chromatographischen Systeme zur Trennung von Ionen auf Säulen, on-line verbunden mit geeigneten Durchflussdetektoren. Es lassen sich dabei noch die Trennprinzipien Ionenaustausch, -paarbildung und -ausschluss unterscheiden, wobei man mit Ionenchromatographie (IC) meist die Ionenaustauschchromatographie meint und die weiteren Trennprinzipien speziell behandelt werden.

Bei der Ionenchromatographie befinden sich auf der festen Phase funktionelle Gruppen, die mit den Analytionen aus der flüssigen Phase wechselwirken. Es bilden sich Verteilungsgleichgewichte zwischen den gelösten Analytionen und der festen Phase aus. Läuft die flüssige an der festen Phase vorbei, werden die verschiedenen Analytionen unterschiedlich stark zurückgehalten. Die Trennwirkung beruht auf der unterschiedlichen Affinität der Analytionen zu den Austauschergruppen. Bei der anschließenden Elution, bei der die Ionen des analytfreien Elutionsmittels (Eluent) die Analytionen verdrängen, verlassen letztere die Säule zu unterschiedlichen Zeiten. Durch Aufzeichnung von Analyteigenschaften mit einem Detektor in Abhängigkeit von der Zeit entsteht das so genannte Chromatogramm. Dabei treten die Signale in Form von Peaks auf, deren Form im Idealfall einer Gauß-Kurve entspricht. Zu der Verbreiterung der Signale kommt es durch Diffusionsvorgänge oder Unregelmäßigkeiten bei der Gleichgewichtseinstellung zwischen mobiler und stationärer Phase, sowie durch Totvolumina in der stationären Phase in Form von Kanälen oder Hohlräumen, die den gleichmäßigen Durchfluss der mobilen Phase beeinträchtigen. In der Praxis weisen die Peaks meist eine mehr oder weniger stark ausgeprägte Asymmetrie (Fronting oder Tailing) auf, die ihre Ursache z. B. in Verstopfungen oder einer Überladung der Säule sowie



**Abbildung 6.6:** Aufbau eines Latex-Anionenaustauschers nach Weiß [2001].

auch in Totvolumina auf der Trennstrecke haben kann. Die Zeit, nach der ein Signal die Säule verlässt, wird Retentionszeit genannt.

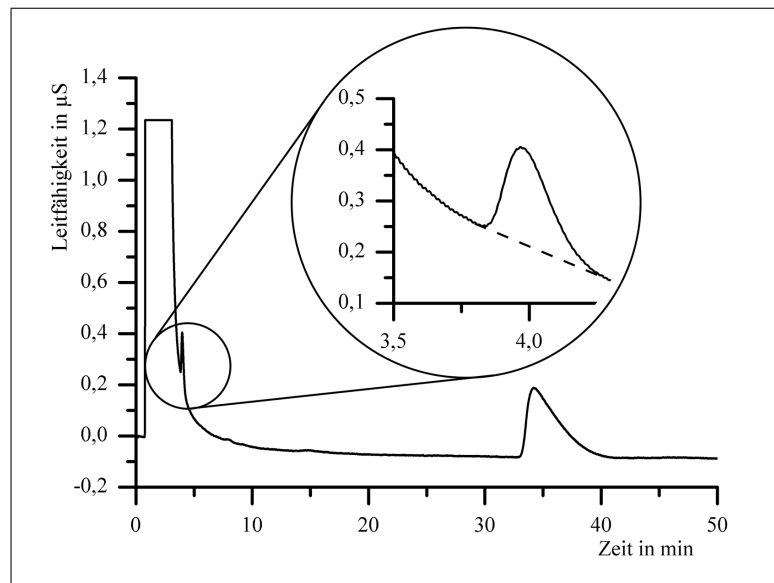
Als Basismaterial der stationäre Phase dienen Polymerkügelchen mit Durchmessern von etwa 2  $\mu\text{m}$  bis 10  $\mu\text{m}$ . Diese Materialien sind entweder direkt an ihrer Oberfläche funktionalisiert oder tragen an dieser weitere, kleinere Partikel, die ihrerseits mit den Austauschergruppen funktionalisiert sind (siehe Abb. 6.6). Im zweiten Fall spricht man von pellicularen Ionenaustauschern. Als Träger der funktionellen Gruppen kommen hier Latexpartikel mit einem Durchmesser von wenigen hundert Nanometern zum Einsatz. In der Anionenchromatographie besteht die Funktionalität meist aus quartären Aminen, die am Stickstoff eine positive Ladung tragen. Je nach Anwendungsbereich stehen verschiedene Detektoren zur Verfügung. Diese werden direkt an die Trennsäule gekoppelt. Am weitesten verbreitet sind photometrische Detektoren, allen voran der UV-Detektor. Verschiedene Bauweisen erlauben die Detektion bei einzelnen oder mehreren Wellenlängen. In der Ionenchromatographie wird häufig die Konduktometrie als Detektionsprinzip verwendet, bei der die Leitfähigkeit des Eluats in einer Messzelle über den elektrischen Widerstand der Lösung gemessen wird. Zur Unterdrückung des Untergrundes, der durch die Leitfähigkeit der Ionen des Eluenten gegeben ist, wird dabei häufig ein so genanntes Suppressorsystem verwendet. Weitere verbreitete Typen sind der Fluoreszenzdetektor und der RI-Detektor, mit dem der Brechungsindex (*refraction index*) der Lösung gemessen wird. Weitere Grundlagen der IC liefern u. a. Weiß [2001]; Schwedt [1996]; Otto [2000].

### 6.7.2 Experimentelles zur Ionenchromatographie

Für zahlreiche der in dieser Arbeit untersuchten Bodenproben wurde der Gesamtiodgehalt mittels IC bestimmt. Das Verfahren wurde von Schmidt [1998] am ZSR etabliert. Es kam ein DX-100 Ionen-Chromatograph (Dionex, Sunnyvale, USA) zum Einsatz, der über ein Interface mit einem PC zur Datenerfassung verbunden war. Die Probenzufuhr wurde mit einem Autosampler (Dionex Automated Sampler ASM-3) in 0,5-mL-Vials durchgeführt. Als Trennsäule wurde eine Ionpac-AS5-Säule mit einer Ionpac-AG5-Vorsäule verwendet. Die Probenaufgabe erfolgte mittels eines Injektionsventils über eine 98- $\mu\text{L}$ -Probenschleife. Zur Unterdrückung der Eluent-Leitfähigkeit wurde ein Autosuppressor (ASRS-ULTRA 4-mm) verwendet, die Detektion erfolgte mit einem Leitfähigkeitsdetektor. Die Chromatogramme wurden mit der Software Dionex AI-450, Version 3.32, aufgezeichnet und ausgewertet.

Die Trennsäule Ionpac-AS5 ist besonders zur Trennung leicht polarisierbarer Anionen wie Iodid, Thiocyanat, Thiosulfat und Chromat geeignet. Im Gegensatz zu ihren Vorgängern wurde die Hydrophobie der funktionellen Gruppen bei dieser Säule reduziert, was eine schnellere Messung ermöglicht. Als Eluent kam eine Lösung von  $\text{NaHCO}_3$  ( $0,0034 \text{ mol L}^{-1}$ ) und  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  ( $0,0043 \text{ mol L}^{-1}$ ) mit einem Zusatz von  $10 \text{ mg kg}^{-1}$  4-Hydroxybenzonnitril zum Einsatz. Der Zusatz bewirkt eine Verringerung von Adsorptionserscheinungen. Die Peaks werden dadurch schmaler und die Retentionszeit verkürzt sich. Die Optimierung der hinzugegebenen Menge an 4-Hydroxybenzonnitril wurde von Schmidt [1998] durchgeführt.

Die mittels IC gemessenen Proben sind ausschließlich Aliquote der Absorptionslösung, in der Iod bei der Verbrennung von Bodenproben aufgefangen wurde. Aliquote aus der Probenaufbereitung anderer Materialien wurden per ICP-MS vermessen. In dieser alkalischen Natriumhydrogensulfit-Lösung liegt Iod als Iodid vor. Ein reales Chromatogramm einer solchen Lösung ist in Abbildung 6.7 dargestellt. Iodid wird unter den genannten Bedingungen bei einer Retentionszeit von ca. 4 Minuten auf der absteigenden Flanke eines Matrixpeaks eluiert. Der Iodidpeak konnte durch Messung von Standardlösungen identifiziert werden. Ein weiteres Ion wird zwischen 33 und 40 Minuten eluiert, weshalb eine entsprechend lange Messzeit gewählt wurde. Es handelt sich hierbei vermutlich um Hydrogensulfit, das der Absorptionslösung zugegeben wird. Eine eindeutige Identifizierung dieses Peaks wurde nicht durchgeführt. Mit der o. g. Software der Firma Dionex wurden die Grenzen des Peaks so gesetzt, dass die ausgegebene Fläche maximal wurde. Die in Abb. 6.7 gestrichelt dargestellte Basislinie unterhalb des Peaks ist dabei linear. Die Peakfläche hat im Prinzip die Einheit  $\mu\text{s}$ . Der tatsächlich ausgegebene Zahlenwert der Peakfläche hängt jedoch von einigen internen Parametern der Software ab und wurde übernommen, da nur die relativen Größen der Peaks von Bedeutung sind.

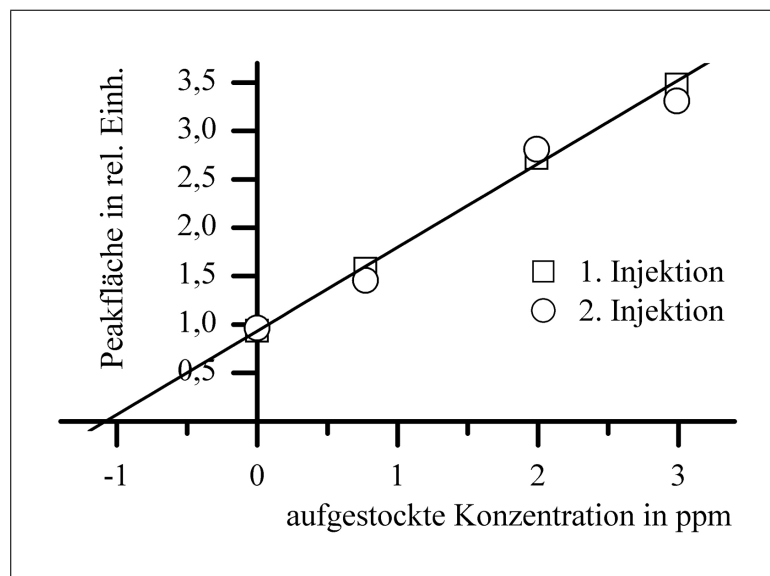


**Abbildung 6.7:** Reales Ionenchromatogramm der Absorptionslösung der Probe HLWBoMPGr01

Die Quantifizierung der Iodidkonzentration erfolgte, wegen des Einflusses der Matrixbestandteile, mittels des Standardadditionsverfahrens. Die verwendeten Standardlösungen wurden durch Verdünnung einer 100-ppm-Standardlösung der Firma High-Purity-Standards (Charleston, USA) gewonnen. Zunächst wurde ein Aliquot der Probelösung vermessen, um dann drei geeignete Aufstockungen im entsprechenden Konzentrationsbereich anzufertigen. In vier 0,5-mL-Vials wurde jeweils das gleiche Volumen (0,2 mL bis 0,4 mL) der Probelösung vorgelegt. Hinzu kamen die entsprechenden Volumina verschiedener Standardlösungen und ggf. Reinstwasser, um für alle Proben das gleiche Gesamtvolumen zu erhalten. In Tabelle 6.5 ist die Aufstockung anhand eines Beispiels dargestellt. Aus jedem Vial erfolgten zwei Messungen (Injektionen). Vor und zwischen den Messungen der Aufstockungsreihe wurde zur Spülung eine Reinstwasserprobe ebenfalls zweimal auf die Säule aufgegeben und jeweils ein Chromatogramm über 10 Minuten aufgenommen.

**Tabelle 6.5:** Beispiel der Aufstockung bei der Ionenchromatographie (Probe HLWBoMPGr02).

Probe in mL	H <sub>2</sub> O in mL	Std. in mL	Konz. des		Peakfläche 1. Injektion	Peakfläche 2. Injektion
			Std. in ppm	zugesetzte Konz. in ppm		
0,2	0,3	–	–	0,00	932903	961784
0,2	0,1	0,2	1,93	0,77	1572057	1456834
0,2	0,1	0,2	4,98	1,99	2719519	2810447
0,2	–	0,3	4,98	2,99	3476498	3308232



**Abbildung 6.8:** Auswertung der IC mittels Standardaddition am Beispiel der Probe HLWBoMPGr02. Daten siehe Tab. 6.5. Die Zahlenwerte der Peakflächen sind in dieser Darstellung durch  $10^6$  dividiert worden.

### 6.7.3 Auswertung

Zur Bestimmung der Iodidkonzentration der nicht aufgestockten Probe wurde mit den erhaltenen Daten eine lineare Regression gemäß Abb. 6.8 durchgeführt (Microsoft Excel). Der Schnittpunkt der Regressionsgeraden mit der Konzentrationsachse ist bei der gewählten Auftragung gerade die gesuchte Konzentration der Messlösung. Die gesuchte Konzentration  $c_{127,IC}$  der Probenlösung ergibt sich demnach wie folgt:

$$c_{127,IC} = f_{IC} \cdot \frac{m_{IC}}{b_{IC}} \quad (6.20)$$

mit:

- $f_{IC}$  = Verdünnungsfaktor bei der Aufstockung
- $m_{IC}$  = Steigung der Regressionsgeraden
- $b_{IC}$  = Achsenabschnitt der Regressionsgeraden

Die Regressionsgerade wird von Excel über das „Verfahren der kleinsten Fehlerquadrate“ bestimmt. Hierzu werden die so genannten Standardfehler der Regressionsparameter  $m_{IC}$  und  $b_{IC}$  ausgegeben. Diese Standardfehler werden als Standardunsicherheiten der Parameter angesehen. Die Standardmessunsicherheit  $u(c_{127,IC})$  der Konzentration berechnet sich dann gemäß

$$u(c_{127,IC}) = c_{127,IC} \cdot \sqrt{\left[\frac{u(m_{IC})}{m_{IC}}\right]^2 + \left[\frac{u(b_{IC})}{b_{IC}}\right]^2} \quad (6.21)$$

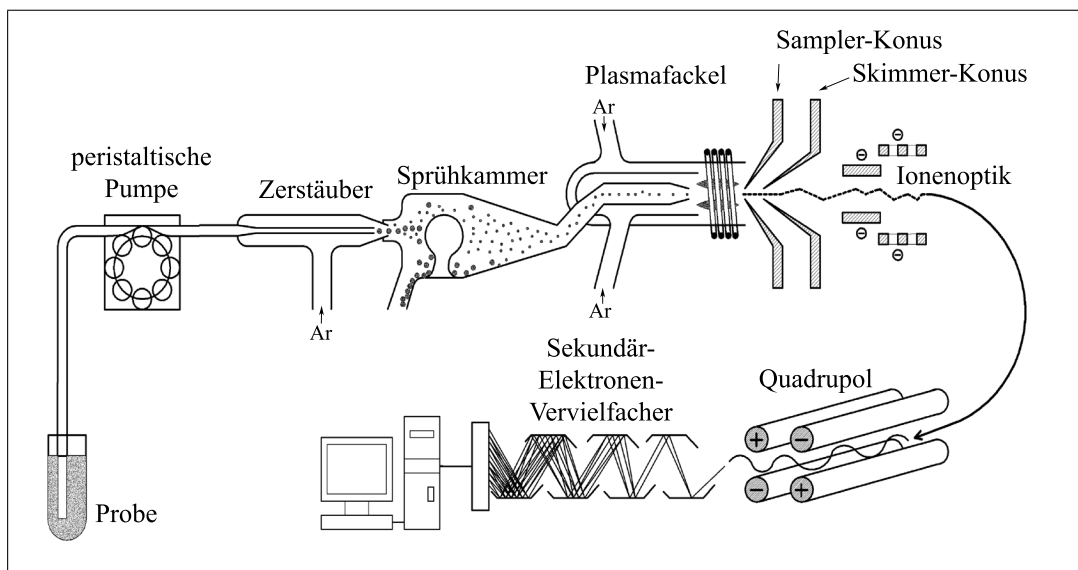
Die Unsicherheit des Verdünnungsfaktors  $f_{IC}$  ergibt sich aus dem Fehler beim Pipettieren und kann vernachlässigt werden.

Zur Ermittlung der charakteristischen Grenzen dieses Verfahrens wäre es nach DIN 32 646 und DIN 25 482 nötig, eine Untergrundmessung durchzuführen. Dies ist jedoch nicht möglich, da sich keine Absorptionslösung ohne Iod herstellen lässt, die sonst alle für den Matrix-peak verantwortlichen Ionen aus einer Bodenverbrennung enthält. Ernst [2003] hat durch Vergleichsmessungen per ICP-MS gezeigt, dass das Anlegen der linearen Basislinie bei Proben mit sehr geringem Iodgehalt, z. B. aus tiefen Bodenschichten, zu einer Unterschätzung der Peakfläche und damit der Iodidkonzentration führt. Dieses Problem tritt erst bei Lösungen mit einer Iodidkonzentration von ca. 200 ppb oder weniger auf. Deshalb kann dieser Wert als Anhaltspunkt für mit diesem Verfahren noch bestimmbaren Konzentrationen angesehen werden. Da in dieser Arbeit nur Oberböden mit entsprechend hohem Iodgehalt untersucht wurden, lagen die Konzentrationen der Messlösungen deutlich darüber. Die Peakflächen waren somit entsprechend groß und die lineare Basislinie konnte bedenkenlos angewandt werden. In die weitere Berechnung der  $^{129}\text{I}$ -Gehalte aus den per AMS erhaltenen Isotopenverhältnissen fließen die Größen  $c_{127,IC}$  und  $u(c_{127,IC})$  ein (siehe Abschnitt 6.9).

## 6.8 Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma

### 6.8.1 Grundlagen der ICP-MS

Die Massenspektrometrie (MS) ist ein Verfahren zur Trennung von Ionen nach ihrem Masse-Ladungs-Verhältnis  $m/z$ . Die Vielzahl der massenspektrometrischen Methoden unterscheidet sich in den Arten der Probenzuführung, der Ionisierung, der Massentrennung und der Detektion. Die MS findet hauptsächlich Anwendung zur Strukturaufklärung von organischen Molekülen und zur quantitativen Analyse einzelner Elemente. Je nach Anwendungsbereich stehen verschiedene Ionisations-Techniken zur Verfügung. Zur Strukturaufklärung nutzt man meist die Elektronenstoß-Ionisation mit anschließender Fragmentierung der Moleküle, um aus dem Fragmentierungsmuster im Massenspektrum Rückschlüsse auf die ursprüngliche Molekülstruktur zu ziehen. Für die Elementanalyse ist das induktiv gekoppelte Plasma (ICP) eine weit verbreitete Ionisationsmethode, da die so zugeführte Energie groß genug ist, die meisten Moleküle zu atomisieren und die Atome zu ionisieren. Zur Massentrennung existieren ebenfalls mehrere Verfahren.



**Abbildung 6.9:** Schematischer Aufbau des ICP-MS Geräts. Die Bauteile sind nicht maßstabsgerecht dargestellt.

Im Folgenden wird nur auf das X-Series ICP-MS Gerät näher eingegangen, das in dieser Arbeit verwendet wurde. Aufbau und Funktionsweise des Gerätes, dessen Bauteile in Abbildung 6.9 schematisch dargestellt sind, werden zusammen mit den experimentellen Details in den folgenden Abschnitten erläutert.

### Probenezuführung

Die wässrigen Probenlösungen werden mit Hilfe von Schlauchverbindungen über die peristaltische Pumpe des ICP-MS-Geräts in einen konzentrischen Zerstäuber eingebracht, der die Lösung in Aerosolpartikel überführt. Vor dort gelangt die Probe über eine Quarzglas-Sprühkammer in das induktiv gekoppelte Plasma. Durch ihre Bauweise sorgt die Sprühkammer dafür, dass nur Aerosolpartikel mit einer Größe von etwa  $10\ \mu\text{m}$  oder darunter in das Plasma gelangen. Größere Partikel werden an den Wandungen der Sprühkammer als Flüssigkeit abgeschieden und abgepumpt. Der Ausschluss der größeren Partikel ist nötig, damit die Stabilität des Plasmas und eine möglichst vollständige Verdampfung und Atomisierung der Probe gewährleistet ist.

### Plasma

Der Plasmabrenner besteht aus drei konzentrischen Quarzglasrohren, über die das Plasma-gas Argon und das Proben-aerosol zugeführt werden. Die Zündung des Plasmas erfolgt durch



einen Tesla-Funken, wodurch das Plasmagas zunächst teilweise ionisiert wird und freie Ladungsträger entstehen. Am Ende der Fackel befindet sich eine Kupferspule (4 Windungen), durch die ein oszillierender (27,12 MHz) Strom fließt. Dieser erzeugt im Plasmabereich ein oszillierendes Magnetfeld, durch das wiederum die zuvor erzeugten Elektronen beschleunigt werden. Durch Stöße kommt es zu einer lawinenartigen weiteren Ionisation und es entsteht ein stabiles Plasma. Es heizt sich auf Temperaturen bis zu 10 000 K in den äußeren Bereichen auf. Im inneren Bereich liegt eine niedrigere Elektronendichte vor, zudem sorgt die Zufuhr des Proben-aerosols für eine Kühlung. Deshalb werden dort 5 000 K bis 6 000 K erreicht. Durch die vom Plasma auf die Probenbestandteile übertragene Energie werden diese zunächst verdampft und anschließend atomisiert und ionisiert. Aus dem in der Lösung als Iodid vorliegenden Iod (Ionisationsenergie  $10,4 \text{ eV} = 1008 \text{ kJ mol}^{-1}$ ) entsteht im Plasma zu einem Anteil von 29 % das einfach positiv geladene  $\text{I}^+$ -Ion. Die Ionisation ist dabei weitestgehend frei von Matrixeffekten. Diese spielen eher bei der Probenzuführung durch die Sprühkammer eine Rolle (siehe Abschnitt 6.8.2).

### **Interface und Ionenoptik**

Vom Plasma zum Quadrupol-Massenanalysator gelangen die gebildeten Ionen durch das so genannte Interface, das aus dem Sampler-Konus und dem Skimmer-Konus gebildet wird. Das Interface bildet den Übergang zwischen dem evakuierten Massenanalysator und dem Bereich Plasma/Sprühkammer, in dem Normaldruck herrscht. Zur Bündelung des durch das Interface aus dem Plasmabereich extrahierten Ionenstrahls schließt sich eine Reihe von Ionenlinsen an, die zusammenfassend als Ionenoptik bezeichnet werden. Sie verhindern außerdem, dass Photonen und neutrale Teilchen, die den Skimmer noch passiert haben, in den Detektor gelangen. An den Linsen ist zudem ein negatives Potential angelegt, das die im Plasma erzeugten Kationen in Richtung des Massenanalysators beschleunigt. Zwischen dem Skimmer-Konus und der Ionenoptik befindet sich ein Schieber (das so genannte Slide Valve), mit dem sich der Hochvakuumteil abriegeln lässt. So ist es möglich, den Sampler- und den Skimmer-Konus auszutauschen, ohne den Vakuumteil der Anlage belüften zu müssen. Der Austausch wird von Zeit zu Zeit nötig, da sich auf den Konen Probenbestandteile ablagern und im schlimmsten Fall ihre Öffnungen verstopfen können. In der Regel ist mit zunehmender Messzeit eine Abnahme des registrierten Signals zu beobachten.

### **Quadrupol-Massenanalysator**

Das zentrale Bauteil des Massenspektrometers ist der Massenanalysator, in dem die Ionen nach ihrem  $m/z$ -Verhältnis räumlich getrennt werden. Zwei weit verbreitete Bauweisen sind

Magnetfeld-Sektorfeld-Geräte und doppelt fokussierende Massenspektrometer, auf die aber hier nicht näher eingegangen werden soll. Das hier verwendete Gerät ist ein Quadrupol-Massenspektrometer. Diese sind in der Bauweise kompakter und somit weniger anfällig gegen Störungen als die zuvor genannten Typen. Der Quadrupol besteht aus vier parallel angeordneten Stäben (Polen), im Falle des X-Series-Gerätes sind es Keramikstäbe, mit einer Molybdän-Oberfläche, einer Länge von 230 mm und einem Durchmesser von 12 mm. An je zwei gegenüberliegende Polen wird eine Gleichspannung und eine Hochfrequenzspannung angelegt. Die Gleichspannungen der Paare sind entgegengesetzt gepolt, die Hochfrequenzspannung ist um  $180^\circ$  phasenverschoben. Durch Anlegen verschiedener Kombinationen von Gleich- und Hochfrequenzspannung können nur Ionen mit einem bestimmten  $m/z$ -Verhältnis den Quadrupol passieren. Andere Ionen schlagen an den Wandungen des Quadrupols auf. Durch schnelles Ändern dieser Kombination kann der Bereich von 2 bis 255 atomaren Masseneinheiten in Bruchteilen von Sekunden „abgefahren“ werden.

### **Detektor**

Nach der Trennung im Quadrupol gelangen die Ionen in den Detektor. Durch das Auftreffen der Ionen auf die erste Dynode eines Sekundärelektronenvervielfachers (SEV) werden dort Elektronen erzeugt und anschließend verstärkt. Die Intensität der Elektronenkaskade, die schließlich als elektrischer Impuls registriert wird, ist ein Maß für die Häufigkeit der Detektion eines Ions des gerade gewählten  $m/z$ -Verhältnisses. Die Signale werden in einer Auswerteeinheit verarbeitet und können am PC weiter analysiert werden. Man erhält ein Massenspektrum, die Auftragung der Häufigkeit der Registrierung von Ionen gegen ihr  $m/z$ -Verhältnis.

## **6.8.2 Experimentelles**

### **Tuning und Geräteparameter**

Der Anteil der Ionen, die aus der Probe bis zum Detektor gelangen (Nachweiswahrscheinlichkeit), ist von zahlreichen Geräteparametern abhängig. Die Aufhängung der strahlformenden Bauteile, wie den Konen, den Ionenlinsen und des Quadrupols, erlaubt es, diese Bauteile zu bewegen und so die Nachweiswahrscheinlichkeit zu steigern. Des Weiteren können die an den Ionenlinsen anliegende Spannung, so wie weitere Parameter angepasst werden. Dies geschieht zu Beginn jedes Messtages im Rahmes des so genannten Tunings. Dabei wird eine Lösung, die Beryllium, Indium und Uran enthält, vermessen und die genannten

Parameter werden durch ein automatische Tuning-Programm so lange iterativ variiert, bis eine maximale Nachweiswahrscheinlichkeit erreicht ist. Diese Elemente decken nahezu den gesamten erfassbaren Massenbereich ab. Zum Tuning werden die Isotope mit der größten Isotopenhäufigkeit ( $^9\text{Be}$ ,  $^{115}\text{In}$  und  $^{238}\text{U}$ ) erfasst. Da die Nachweiswahrscheinlichkeit im Laufe eines Messtages variiert – in der Regel ist eine Abnahme zu verzeichnen – wird  $^{129}\text{Xe}$  als interner Standard gewählt. Der Anteil an  $^{129}\text{I}$  ist in den untersuchten Umweltproben so gering, dass er das Signal des  $^{129}\text{Xe}$  nicht beeinflusst.  $^{129}\text{Xe}$  ist im Plasmagas Argon enthalten, wodurch auch die Bestimmung geringer Mengen  $^{129}\text{I}$  per ICP-MS behindert wird (siehe auch Abschnitt 6.2). Es kann davon ausgegangen werden, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit bei den  $m/z$ -Verhältnissen 127 und 129 gleich ist. Somit ergibt sich auch bei mit der Zeit fallender Nachweiswahrscheinlichkeit, bei ein und derselben Probe das gleiche  $^{127}\text{I}/^{129}\text{Xe}$ -Verhältnis  $Q$ .

$$Q_r = \frac{N_{127,r}}{N_{129,r}} \quad (6.22)$$

Die Counts pro Messintervall (Run, Index  $r$ )  $N_{127,r}$  und  $N_{129,r}$  werden in einem  $m/z$ -Bereich von 126,5 u bis 127,3 u bzw. 128,5 u bis 129,3 u erfasst. In einem Run wird der gewählte  $m/z$ -Bereich 100-mal „abgefahren“. Einer dieser 100 so genannten Sweeps dauert 180 ms. Die Aufzeichnung von  $Q_r$  erfolgt für alle Messungen von Proben, Standards und Spülungen gleichermaßen.

### Probenmessung

Im Zuge der Probenaufbereitungsverfahren (Abschnitt 6.4) wurden jeweils flüssige Aliquote genommen, um die Gesamtiod- bzw.  $^{127}\text{I}$ -Gehalte der Proben zu bestimmen. Zur Messung mit der ICP-MS werden diese Aliquote jeweils soweit verdünnt, dass sich Iod-Konzentrationen im Bereich von etwa  $5 \mu\text{g kg}^{-1}$  bis  $50 \mu\text{g kg}^{-1}$  (ppb) ergeben. Die pH-Werte der verdünnten Proben liegen bei 7 bis 8. Durch die Verdünnung kann die Belastung des Detektors gering gehalten werden. Memory-Effekte im Gerät (siehe unten) werden minimiert und Spülzeiten können verkürzt werden. In Tabelle 6.6 sind typische Verdünnungsfaktoren der bei der Probenaufbereitung anfallenden Aliquote dargestellt. Wie von Ernst [2003] ausführlich dargestellt, ist bei der hier verwendeten Art der Probenzufuhr über die Sprühkammer eventuell mit Memory-Effekten zu rechnen, wenn sich durch die Art der Probe die chemische Umgebung und das Oxidationspotential in der Sprühkammer ändern. Nur etwa 20 % des im Zerstäuber erzeugten Aerosols gelangen direkt weiter in das Plasma, der Rest bleibt als Flüssigkeitsfilm in der Sprühkammer und wird langsam abgepumpt. Sollte nach einer Probe mit hohem Analytgehalt eine mit niedrigerem gemessen werden, so können noch Anteile des Analyten aus der ersten Probe ins Plasma gelangen und schließlich

**Tabelle 6.6:** Verdünnung der Aliquote vor der ICP-MS Messung

Aufbereitung (siehe Kap. 6.4)	Probenmatrix	Verdünnungsfaktor
Verbrennung	Boden	1 : 500 – 1 : 5 000
	Bewuchs, Getreide, Fleisch, etc.	1 : 5 – 1 : 10
	Regenwässer	1 : 1
ohne	Oberflächenwässer	1 : 1 – 1 : 5
	Grundwässer	1 : 1
Festphasen- extraktion	Milch	1 : 10
	Iod-Tabletten	1 : 50 000

das detektierte Signal erhöhen. Bei der Analyse von Iod ist dies besonders kritisch, wenn durch die nachfolgende Probe das Oxidationspotential in der Sprühkammer so erhöht wird, dass möglicherweise Iodid zu leicht flüchtigem, elementarem  $\text{I}_2$  oxidiert wird. Vermieden wird dieser Effekt dadurch, dass nach einer Probe zunächst mit  $\text{HNO}_3$  ( $1 \text{ mol L}^{-1}$ ) gespült wird. Danach schließt sich eine Spülung mit  $\text{NaOH}$  ( $10 \text{ mmol L}^{-1}$ ) an, um die chemische Umgebung in der Sprühkammer der nächsten Probe anzupassen. Das Detektorsignal wird während der Spülungen beobachtet und der Spülzyklus gegebenenfalls wiederholt, bis ein entsprechend niedriger Untergrund für die nächste Probenmessung erreicht ist.

### Quantifizierung

Um Änderungen der Betriebsbedingungen, z. B. eine Änderung des Xenonanteils im Plasmagas, erfassen zu können, wird im Abstand von etwa fünf Proben jeweils dieselbe 5-ppb-Standardlösung erneut vermessen. Dies erfolgt, analog zur Messung von Proben, ebenfalls mit vorheriger Messung des Untergrundes bei der  $\text{NaOH}$ -Spülung. Die sich im Laufe des Tages unterscheidenden Resultate derselben Standardlösung werden im Rahmen einer Normierung (siehe nächster Abschnitt) berücksichtigt. Am Ende des Messtages wird zunächst ein letztes Mal der 5-ppb-Standard gemessen, gefolgt von weiteren externen Standards, in der Regel mit Konzentrationen von 10 ppb, 50 ppb und gegebenenfalls 100 ppb. Mit dieser Standardreihe wird die Kalibration der Messung vorgenommen.

### 6.8.3 Auswertung

Die primäre Messgröße ist der von der Auswertesoftware berechnete Quotient  $Q_r$  nach Gl. 6.22. Für jede Lösung (Proben, Standards, Spülungen) werden  $n$  Runs (meist  $n = 6$ ) aufgezeichnet und die erhaltenen  $Q_r$  gemittelt:

$$Q_{me} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{r=1}^n Q_r. \quad (6.23)$$

Als Unsicherheit von  $u(Q_{me})$  wird die Standardabweichung der  $Q_r$  gewählt.

$$u(Q_{me}) = \sqrt{\frac{n \sum Q_r^2 - (\sum Q_r)^2}{n(n-1)}} \quad (6.24)$$

Diese Unsicherheit pflanzt sich bei den folgenden Berechnungen gemäß dem „ISO Guide for the expression of uncertainty in measurement“ fort. Der vor der jeweiligen Proben- oder Standardmessung bei der NaOH-Spülung ermittelte Wert wird jetzt als Geräteuntergrund abgezogen:

$$Q_{corr}(P,S) = Q_{me}(P,S) - Q_{me}(\text{NaOH}). \quad (6.25)$$

Man erhält für jede Probe und jede Messung des 5-ppb-Standards einen korrigierten Quotienten  $Q_{corr}$ . Aufgrund leicht schwankender Betriebsbedingungen ergeben sich für den in regelmäßigen Abständen wiederholt gemessenen Standard leicht unterschiedliche Quotienten  $Q_{corr}$ . Um dies zu berücksichtigen wird eine Normierung durchgeführt, die anhand von Abb 6.10 am Beispiel der zum Zeitpunkt  $t3$  gemessenen Probe  $P_{t3}$  erläutert werden soll. Die mit  $\times$  markierten Werte seien Proben, während die Markierung  $\otimes$  den regelmäßig gemessenen Standard darstellt. Durch eine lineare Regression zwischen den Standardmessungen  $S_{t1}$  und  $S_{t4}$  wird ein hypothetischer Standardwert  $Q_{corr}(S_{h,t3})$  berechnet (Symbol  $\circ$ ). Da die später erfolgende Kalibration mit Hilfe des letzten Standards  $S_{t7}$  und der direkt danach gemessenen Standards anderer Konzentrationen erfolgt, soll auf  $S_{t7}$  normiert werden. Dazu wird ein Normierungsfaktor  $f_N(t3)$  wie folgt berechnet:

$$f_N(t3) = \frac{Q_{corr}(S_{h,t3})}{Q_{corr}(S_{t7})}. \quad (6.26)$$

Gemäß

$$Q_{norm}(P_{t3}) = \frac{Q_{corr}(P_{t3})}{f_N(t3)} \quad (6.27)$$

erhält man den normierten Wert der Probe (Markierung  $\square$ ). Dieser normierte Messwert  $Q_{norm}$  ist derjenige, den man für die Probe  $P_{t3}$  zu erwarten hätte, wenn sie zum Zeitpunkt

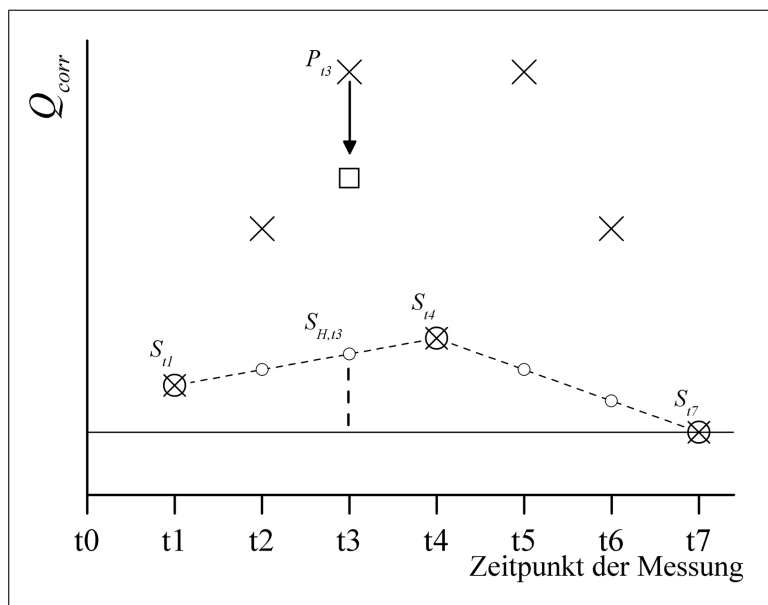


Abbildung 6.10: Normierung im Rahmen der ICP-MS-Messung

$t_7$  gemessen worden wäre. Diese Normierung wird für alle Proben und die zum Schluss gemessenen Standards entsprechend durchgeführt.

Mit Hilfe der am Ende des Messtages gemessenen Standardreihe wird die Kalibration gemäß

$$Q_{norm}(S) = m_{kal} \cdot c_{127,St} + b_{kal} \quad (6.28)$$

durchgeführt (siehe Abb 6.11). Aufgrund des durchgeführten Untergrundabzugs (Gl. 6.25) liegt  $b_{kal}$  nahe bei Null und beeinflusst die Bestimmung der Konzentrationen der Proben nur wenig. Anhand der Gleichung

$$c_{127,ICP-MS} = f_{ICP-MS} \cdot \frac{Q_{norm}(P) - b_{kal}}{m_{kal}} \quad (6.29)$$

mit:  $f_{ICP-MS}$  = Verdünnungsfaktor

erhält man die Iodkonzentration der bei der Probenaufbereitung entnommenen Aliquote. Als Unsicherheiten der Regressionsparameter  $u(m_{kal})$  und  $u(b_{kal})$  werden die Standardab-

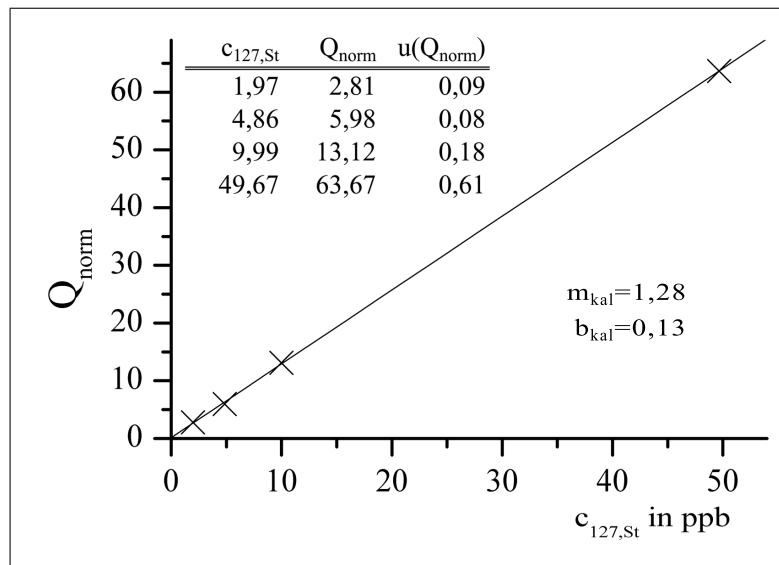


Abbildung 6.11: Kalibration einer ICP-MS-Messung am Beispiel des Messtages 07.09.2004

weichungen (Standardfehler) gemäß Excel verwendet. Die Unsicherheit des Verdünnungsfaktors  $f_{ICP-MS}$  kann vernachlässigt werden. Somit ist die Unsicherheit der Konzentration:

$$\begin{aligned}
 u(c_{127,ICP-MS}) = & \left[ \left( \frac{1}{m_{kal}} \right)^2 \cdot u^2(Q_{norm}) \right. \\
 & + \left( \frac{1}{-m_{kal}} \right)^2 \cdot u^2(b_{kal}) \\
 & \left. + \left( \frac{-(Q_{corr} - b_{kal})}{m_{kal}^2} \right)^2 \cdot u^2(m_{kal}) \right]^{\frac{1}{2}}.
 \end{aligned} \tag{6.30}$$

Während der Geräteuntergrund gemäß Gl. 6.25 berücksichtigt wird, ist durch die aufwendigen Probenaufbereitungsverfahren mit einem gewissen Anteil des Analyten Iod in den Messlösungen zu rechnen, der nicht aus der ursprünglichen Probe stammt. Aufgrund des großen Aufwands bei der Probenaufbereitung ist es jedoch nicht möglich, zu jeder einzelnen Probe eine Blindwertprobe anzufertigen. Im Rahmen der Probenaufbereitung wurden daher in regelmäßigen Abständen Blindwertproben aufbereitet (siehe Abschnitt 6.4). Diese wurden dann im Rahmen der im Abstand von einigen Monaten stattfindenden ICP-MS Messkampagnen vermessen. Bei einem Großteil der Proben lagen die in diesen Blind-Absorptionslösungen gefundenen Konzentrationen um Größenordnungen unter denen der tatsächlichen Proben. Eine Korrektur dieses Blindwertes erfolgte nur, wenn die Konzentrationen von Blindwert und Probe in derselben Größenordnung lagen. In diesen Fällen wurde zur Bestimmung einer Erkennungsgrenze ein vereinfachtes Verfahren angewandt, das auf DIN 25 482-10 basiert. Dazu wird als Standardmessunsicherheit  $u(0)$  der Blindwertana-

lysen die Standardabweichung der Konzentrationen der Blindwertproben im betrachteten Zeitraum eingesetzt. Die Erkennungsgrenze  $x^*$  ergibt sich dann gemäß

$$x^* = k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{2 \cdot u^2(0)}. \quad (6.31)$$

Dabei ist  $k_{1-\alpha}$  das Quantil der Normalverteilung zur Wahrscheinlichkeit  $\alpha$ , dass ein Fehler 1. Art begangen wird [siehe z. B. Michel und Kirchhoff 1999]. Ein solcher Fehler liegt vor, wenn die Hypothese, dass kein Probenbeitrag vorliegt (Nullhypothese), fälschlicherweise abgelehnt wird. Es wurde  $\alpha = 0,05$  und somit  $k_{1-\alpha} = 1,645$  gewählt. Wenn die Iodkonzentration der Absorptionslösung nach Abzug des mittleren Blindwertes unter der Erkennungsgrenze lag, konnte kein Gesamtiod in der entsprechenden Probe quantifiziert werden („< EKG“ in den Ergebnisübersichten). Bei den mittels Festphasenextraktion aufbereiteten Proben wurde analog verfahren.

## 6.9 Abschließende Berechnungen

In diesem Abschnitt wird beschrieben, wie aus den Ergebnissen der AMS, der IC und der ICP-MS das tatsächliche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis der untersuchten Proben und die Gehalte an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  berechnet werden. Alle Berechnungen dieser Arbeit wurden im Tabellenkalkulationsprogramm Excel implementiert. Zu jeder Messgröße wurde die Standardmessunsicherheit in Anlehnung an den „ISO Guide for the Expression of Uncertainty in Measurement“ bzw. nach DIN 1319 bestimmt. Bei jedem Rechenschritt wurden die kombinierten Standardunsicherheiten durch Anwendung des Fehlerfortpflanzungsgesetzes berechnet:

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad (6.32)$$

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^n \left[ \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \right) u^2(x_i) \right] . \quad (6.33)$$

Da die rechnerische Auswertung der Messdaten bei allen Proben- und Aufbereitungsarten auf den selben Grundlagen basiert, soll hier auf Einzelheiten nicht mehr eingegangen werden. Grundsätzlich läuft der Gang der Auswertung wie folgt:

Als Bezugszeitpunkt für die Berechnung der in der Probe tatsächlich enthaltenen  $^{129}\text{I}$ -Menge wird der Zeitpunkt der Zugabe des Woodward-Iod-Trägers gewählt. In diesem Moment wird das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis verändert und die dann in der Probe vorliegende Iodmenge muss genau bekannt sein. Die Bestimmung dieser Iodmenge geschieht durch das



vorherige Abnehmen eines Probenaliquots und der Messung per IC oder ICP-MS. Das zugegebene Woodward-Iod kann als frei von  $^{129}\text{I}$  angesehen werden, da sein Isotopenverhältnis um mehrere Größenordnungen unter dem der Probe liegt.

Das Isotopenverhältnis  $V_{me}$ , das per AMS gemessen wird, ist durch den Quotienten der Stoffmengen  $n$  der beiden Isotope bzw. durch ihre Massen  $m$  und Molmassen  $M$  gegeben:

$$V_{me} = \frac{n_{129}}{n_{127,ges}} = \frac{\frac{m_{129}}{M_{129}}}{\frac{m_{127,ges}}{M_{127}}} \quad (6.34)$$

Da das Isotopenverhältnis  $V_{me}$  und die gesamte Masse  $m_{127,ges}$  bestimmt worden sind, lässt sich die Masse  $m_{129}$ , die von der Probe beigetragen wird, berechnen:

$$m_{129} = V_{me} \cdot \frac{m_{127,ges}}{M_{127}} \cdot M_{129} \quad (6.35)$$

Die gesamte Masse  $m_{127,ges}$  ergibt sich aus dem Iod, das vor dem Moment der Trägerzugabe in der Lösung vorhanden war und dem Träger selbst.

$$m_{127,ges} = m_{127,Probe} + m_{127,Träger} \quad (6.36)$$

Der Iodbeitrag der Proben  $m_{127,Probe}$  wird aus den per IC oder ICP-MS ermittelten Konzentrationen  $c_{127,IC}$  bzw.  $c_{127,ICP-MS}$  der Lösungen und der Masse der Lösung vor der Trägerzugabe berechnet. Die zugegebene Trägermasse  $m_{127,Träger}$  ergibt sich aus der Einwaage der Trägerlösung und ihrer Konzentration. In der auf diese Weise ermittelten Masse  $m_{129}$  ist auch noch  $^{129}\text{I}$  enthalten, das nicht aus der ursprünglichen Probe stammt, sondern im Laufe der aufwendigen Probenaufbereitungsverfahren eingeschleppt wurde. Für die in regelmäßigen Abständen angefertigten Blindwertproben wird die Berechnung nach Gl. 6.35 ebenso durchgeführt. Aufgrund des großen Aufwands und des großen Probenaufkommens war es nicht möglich, zu jeder Probe einen Blindwert zu ermitteln. Die aus mehreren Blindwertproben im Untersuchungszeitraum ermittelten Massen an  $^{129}\text{I}$  werden zu  $m_{129,Blind}$  gemittelt und dieser Wert von  $m_{129}$  abgezogen. Man erhält die Masse  $m_{129,Probe}$ :

$$m_{129,Probe} = m_{129} - m_{129,Blind} \quad (6.37)$$

In den meisten Fällen ist  $m_{129,Blind}$  deutlich kleiner als  $m_{129}$ , und der Blindwertabzug hat fast keinen Einfluss auf den Wert von  $m_{129,Probe}$ . Er wurde nur durchgeführt, wenn  $m_{129}$  und  $m_{129,Blind}$  innerhalb von 2 Größenordnungen lagen und der Blindwertabzug das Ergebnis somit um mehr als 1 % verkleinert. In diesen Fällen wurde eine Erkennungsgrenze (analog zu Gleichung 6.31) berechnet und diese mit der Differenz  $m_{129,Probe}$  verglichen. Als  $u(0)$  wurde die Standardabweichung der gemittelten Blindwerte eingesetzt. In der Ergebnisübersicht

steht dann bei der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration der Eintrag „< EKG“, wenn  $m_{129,Probe}$  nach Gl. 6.37 kleiner ist als die Erkennungsgrenze nach Gl. 6.31. Dies tritt bei solchen Proben auf, die entweder tatsächlich ein niedriges Isotopenverhältnis aufweisen, oder bei denen aufgrund des geringen Gesamtjodgehalts und der limitierten Einwaage nicht genug Iod für die Analyse extrahiert werden konnte.

Das tatsächliche Isotopenverhältnis der Probe ergibt sich dann als

$$V_{Probe} = \frac{\frac{m_{129,Probe}}{M_{129}}}{\frac{m_{127,Probe}}{M_{127}}} \quad (6.38)$$

Dabei sind  $m_{129,Probe}$  und  $m_{127,Probe}$  die Iodmassen, die sich in dem Aliquot der Absorptionslösung (feste Proben) oder des Eluats (Milch, Iodtabletten, Salze) befanden, zu dem der Träger gegeben wurde. Bei Wasserproben liegt der Bezugszeitpunkt vor der Festphasenextraktion. Unter Berücksichtigung der Ausbeuten und aller bis zum Bezugszeitpunkt durchgeführten Aliquotierungen sowie der ursprünglichen Probeneinwaage werden abschließend die Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in den Ursprungsproben berechnet. Je nach Probenart beziehen sich die Konzentrationen z. B. auf Frisch- oder Trockenmassen bzw. bei Wasserproben auf das Volumen. Einzelheiten dazu finden sich im Ergebnisteil dieser Arbeit.

# 7 Ergebnisse und Diskussion

## 7.1 Allgemeines

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt, diskutiert und mit bisher veröffentlichten Daten verglichen. Teilweise wurden die Ergebnisse dieser Arbeit bereits im Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4285 des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) mit dem Titel „Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129“ publiziert [Michel u. a. 2004].

Um einen Überblick über die Radioökologische Situation des  $^{129}\text{I}$  zu bekommen, wurde in dieser Arbeit eine große Anzahl sehr unterschiedlicher Probenarten untersucht. Aufgrund des hohen Aufwands für die Probenvorbereitung und die Messungen konnten in der Regel keine Mehrfachanalysen von ein und derselben Probe vorgenommen werden.

In der Diskussion wird nicht immer jede Probe im Einzelnen vorgestellt, sondern auf die entsprechenden Tabellen im Anhang verwiesen. Die Diskussion der Resultate soll vielmehr an graphischen Darstellungen oder auch an Mittelwerten von bestimmten Proben und aus den unterschiedlichen Regionen erfolgen. Als küstennahe Proben werden die Proben aus Gründeich und vom Neßmerpolder bezeichnet, als küstenfern alle übrigen. In Anlehnung an die Einteilung Niedersachsens in vier Regionen nach Szidat [2000] wurden die küstennahen Proben der Region I, die küstenfernen Proben der Region III zugeordnet.

In der Natur sind auf den ersten Blick zufällig verteilt erscheinende Messgrößen, wie z. B. Konzentrationen eines Elementes in mehreren gleichartigen Proben, häufig logarithmisch normalverteilt [Limpert u. a. 2001]. Diese Beobachtung trifft immer dann zu, wenn die Messgröße durch mehrere Prozesse beeinflusst wird, die multiplikativ auf die Messgröße einwirken mit Parametern, die ihrerseits normalverteilt sind [Michel und Kirchhoff 1999]. Mathematisch beschreibt dies der multiplikative Grenzwertsatz der Statistik: „Das Produkt von unabhängigen Zufallsvariablen strebt gegen eine logarithmische Normalverteilung, wenn die Anzahl der Zufallsvariablen gegen Unendlich strebt“. Dies ist der Fall bei

den meisten Transportprozessen von Stoffen in der Umwelt. Eine Ausnahme bildet die Aufnahme von essentiellen Spurenelementen, wie z. B. des Kaliums, durch Pflanzen. Da hier eine Regulierung (Homöostase) durch die Pflanzen stattfindet, ist der den Transport beschreibende Parameter nicht normalverteilt. Unter diesen Voraussetzungen wird in dieser Arbeit davon ausgegangen, dass die Konzentrationen an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sowie die resultierenden Isotopenverhältnisse in gleichartigen oder ähnlichen Proben logarithmisch normalverteilt sind. Die logarithmische Normalverteilung kann durch den geometrischen Mittelwert  $\bar{x}_g$  der Einzeldaten und die geometrische Standardabweichung  $e^\sigma$  beschrieben werden. Dazu wird im Folgenden die Schreibweise

$$\bar{x}_g \cdot (e^\sigma)^{\pm 1}$$

verwendet.  $\sigma$  wird durch die experimentelle Standardabweichung der logarithmierten Einzeldaten angenähert.

Bei einer Vielzahl der in dieser Arbeit untersuchten Umweltkompartimente ist die Variabilität der Analysenergebnisse innerhalb gleichartiger Proben wesentlich größer als die Messunsicherheit der Einzelproben. Der Übersichtlichkeit halber wird daher in diesem Kapitel auf die Angabe von Messunsicherheiten der Konzentrationen und der Isotopenverhältnisse bei den Einzelproben weitgehend verzichtet. Die Messunsicherheiten der Einzelwerte sind in den jeweiligen Tabellen im Anhang in Form der kombinierten Standardmessunsicherheit angeführt. Hinweise zu durchgeführten Blindwertanalysen und zur Ermittlung der Erkennungsgrenzen finden sich im experimentellen Teil.

Wie schon in Abschnitt 5.2 über die Probenahme beschrieben, wurden für die verschiedenen Probenarten unterschiedliche Konservierungsmaßnahmen angewandt, um einen Verlust des Analyten Iod vor der Aufbereitung und Messung zu vermeiden bzw. zu minimieren. Dennoch kann nicht ausgeschlossen werden, dass die angegebenen Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in den einzelnen Proben unter dem tatsächlichen Wert liegen. Da etwaige Verluste beide Isotope betreffen, hat dies jedoch keinen Einfluss auf die ermittelten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Zunächst werden die  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und die resultierenden Isotopenverhältnisse der untersuchten Umweltproben dargestellt (Abschnitt 7.2). Aus den Konzentrationen der beiden Iod-Isotope in Böden, Bewuchs, pflanzlichen und tierischen Nahrungsmitteln wurde Transferfaktoren ermittelt. Abschnitt 7.3 enthält eine Beschreibung der Berechnung, die Ergebnisse und die Diskussion.

## 7.2 $^{129}\text{I}$ - und $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Umweltproben

### 7.2.1 Niederschlag

Um den Eintrag von  $^{129}\text{I}$  auf das norddeutsche Festland systematisch zu erfassen, werden am ZSR seit 1997 kontinuierlich Niederschlagsproben von vier Standorten auf  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  untersucht. Die genaue Lage der Probenahmestellen und die Zuteilung zu den Regionen I bis IV ist in Abschnitt 5.1 dargestellt. An den Standorten der Regionen II und III wurde neben dem Freilandniederschlag auch sog. Bestandsniederschlag beprobt, der vor dem Auffangen durch das Blattwerk von Bäumen fällt. Die Ergebnisse dieser Zeitreihen, die in dieser Arbeit in der Regel bis zu den Proben von Anfang 2004 fortgesetzt wurden, sind in den Tabellen C.1 bis C.6 im Anhang dargestellt. Enthalten sind der Vollständigkeit halber auch die Zeitreihen von Freiland- und Bestandsniederschlag aus Seesen (Region III), die nur bis in das Jahr 2000 reichen. Bei den fehlenden  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und Isotopenverhältnissen konnten aus Zeitgründen noch keine ICP-MS Messungen vorgenommen werden. Auf die Berechnung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen hat das Fehlen dieser Daten keinen nennenswerten Einfluss, da das  $^{127}\text{I}$  der AMS-Probe zu fast 100 % aus der Zugabe des Woodward-Iod-Trägers stammt. In Tabelle 7.1 sind die geometrischen Mittelwerte der Proben zusammengefasst.

Im Freilandregen der Regionen II bis IV zeigen sich keine signifikanten Unterschiede der Mittelwerte der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen. Deutlich höher liegen hingegen die Konzentrationen beider Isotope bei den Proben von der Nordseeinsel Norderney (Region I). Die Isotopenverhältnisse sind auf Norderney ebenfalls erhöht. Auf die Zusammensetzung des Niederschlags in Küstennähe hat das Meerwasser, das deutlich höhere Konzentrationen beider Iod-Isotope aufweist, einen erkennbaren Einfluss.

Vergleicht man, abseits des direkten Einflusses der Nordsee, die  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in Freiland- und Bestandsniederschlägen, so liegen letztere um etwa den Faktor 3 bis 5 höher. Dies lässt sich durch die trockene Deposition von Iod erklären, die beim Bestandsniederschlag durch die große Pflanzenoberfläche zu einem sehr viel größeren Teil erfasst wird als bei den Freilandmessstellen. Die Isotopenverhältnisse unterscheiden sich zwischen Freiland- und Bestandsniederschlag nicht signifikant. Dies bedeutet auch, dass die Isotopenverhältnisse in trockener Deposition und dem Niederschlag annähernd gleich sind.

Um den Eintrag eines Stoffes aus dem Niederschlag in die Pedosphäre und Biosphäre zu beschreiben, bedient man sich der Depositionsdichte. Diese gibt an, welche Menge des Stoffes

**Tabelle 7.1:** Geometrische Mittelwerte mit Standardabweichung von  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in den Zeitreihen von Niederschlagsproben (1997 – 2004). Typ: F = Freilandniederschlag, B = Bestandsniederschlag. Zum Vergleich sind die geometrischen Mittelwerte der Konzentrationen in Nordseewasserproben der Jahre 1999 – 2002 dargestellt. Diese Proben wurden am ZSR untersucht, die Probenahmeorte sind in Abb. 3.4, S. 14 abgebildet. Die geometrische Standardabweichung der Mittelwerte ist in der Form  $\cdot(e^\sigma)^{\pm 1}$  angegeben (siehe auch S. 90).

Typ	Ort (Region)	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$
F	Norderney (I)	$3,0 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$2,1 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$14 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$7,1 \cdot 1,3^{\pm 1}$
F	Buer-Ostenwalde (II)	$1,8 \cdot 1,8^{\pm 1}$	$0,73 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$4,8 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$3,8 \cdot 2,0^{\pm 1}$
F	Seesen (III)	$1,4 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$0,60 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$3,9 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$4,2 \cdot 1,7^{\pm 1}$
F	Siemen (IV)	$1,9 \cdot 1,4^{\pm 1}$	$0,53 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$3,5 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$2,8 \cdot 1,8^{\pm 1}$
B	Buer-Ostenwalde (II)	$6,1 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$2,6 \cdot 1,8^{\pm 1}$	$17 \cdot 1,8^{\pm 1}$	$4,3 \cdot 1,4^{\pm 1}$
B	Seesen (III)	$5,1 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$2,2 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$15 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$4,3 \cdot 1,3^{\pm 1}$
	Nordseewasser	$45 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$66 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$431 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$15 \cdot 1,4^{\pm 1}$

pro Zeiteinheit und pro Fläche abgelagert wird. Man erhält die Depositionsdichte üblicherweise durch Multiplikation der Konzentration des Stoffes im Niederschlag mit dem Volumen des Niederschlags, der in einem Jahr auf einer Fläche von einem Quadratmeter niedergegangen ist. Um die Depositionsdichten von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  abschätzen zu können, wurden die Zeitreihen von 1997 – 2004 gemittelt. Für den küstennahen Bereich wurden die mittleren Konzentrationen der Niederschlagsproben von Norderney herangezogen ( $3,0 \mu\text{g kg}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  und  $2,1 \text{pg kg}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$ ). Für den küstenfernen Bereich wurden die drei Messreihen des Freilandniederschlags der anderen drei Probenahmestellen gemittelt. Es ergeben sich Konzentrationen von  $1,7 \mu\text{g kg}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  und  $0,62 \text{pg kg}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$ . Für das küstenferne Gebiet lässt sich aus den Bestandsniederschlagsdaten auch eine Depositionsdichte für die beiden Isotope berechnen, welche die trockene Deposition beinhaltet. Dazu wurde der Mittelwert der Daten der beiden Messreihen aus Buer-Ostenwalde und Seesen herangezogen ( $5,7 \mu\text{g kg}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  bzw.  $2,5 \text{pg kg}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$ ).

Nach Elsholz und Berger [1998] liegt die mittlere, jährliche Niederschlagshöhe in Niedersachsen, ohne den tidewasserbeeinflussten Küstenbereich, zwischen etwa 550 mm und > 1000 mm. Diese Zahlenwerte beziehen sich auf einen Quadratmeter und sind daher gleichzusetzen mit der Niederschlagsmenge in  $\text{L m}^{-2} \text{a}^{-1}$ . Gegenden mit großen Niederschlagshöhen sind der Harz und das Weserbergland, durchschnittlich weniger Niederschlag fällt im

**Tabelle 7.2:** Depositionsdichten für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in nordseeküstennahen und küstenfernen Gebieten in Niedersachsen. Bei Typ F wurden die Konzentrationen des Freilandniederschlags zugrunde gelegt, bei Typ B die des Bestandsniederschlags. Die letzte Zeile gibt somit Depositionsdichten unter Berücksichtigung der trockenen Deposition an. Die angegebenen Bereiche ergeben sich aus der Verwendung von 550 mm bzw. 1000 mm als untere und obere Grenze der mittleren jährlichen Niederschlagshöhe und beinhalten nicht die teilweise große Variabilität der Konzentrationen der beiden Iod-Isotope im Niederschlag, für die die geometrischen Mittelwerte der Zeitreihen angesetzt wurden.

Typ	Gebiet	für $^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	für $^{129}\text{I}$ in $\text{pg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$	für $^{129}\text{I}$ in $\text{mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$
F	küstennah	1650 bis 3000	1155 bis 2100	7,55 bis 13,7
F	küstenfern	935 bis 1700	341 bis 620	2,23 bis 4,05
B	küstenfern	3147 bis 5723	1380 bis 2509	9,0 bis 16,4

Nordosten von Niedersachsen, wo vermutlich der Einfluss des kontinentalen, ariden Klimas bereits spürbar wird. Da zu den einzelnen Probenahmestellen keine genauen Daten über die Niederschlagshöhe vorliegen, soll auf die regionale Unterscheidung hier verzichtet werden. Durch Multiplikation der mittleren Konzentrationen mit der oberen und unteren mittleren Niederschlagsmenge ergibt sich für die Depositionsdichte jeweils ein Bereich. Die Ergebnisse sind in Tabelle 7.2 angegeben.

Für das anthropogene Radionuklid  $^{129}\text{I}$  lässt sich zusammenfassen, dass in Niedersachsen, fern ab von der Nordseeküste, jährlich etwa 2,2 mBq bis 4 mBq pro Quadratmeter durch den Niederschlag in die Pedosphäre und die Biosphäre eingetragen werden. Einschließlich der trockenen Deposition beträgt der jährliche Eintrag etwa 9 mBq bis 16 mBq pro Quadratmeter. Im küstennahen Gebiet, in dem der Niederschlag durch das Meerwasser beeinflusst ist, beträgt allein die nasse Deposition zwischen 7,6 mBq und 13,7 mBq pro Jahr und Quadratmeter.

Von dem stabilen Isotop  $^{127}\text{I}$  werden im Landesinneren jährlich etwa 3,1 mg bis 5,7 mg pro Quadratmeter durch trockene und nasse Deposition eingetragen. Davon macht die nasse Deposition etwa 0,9 mg bis 1,7 mg aus. An der Nordseeküste werden alleine durch den Niederschlag jährlich etwa 1,7 mg bis 3 mg pro Quadratmeter eingetragen. Ein Vergleich mit dem Modell von Bonka [1982] in Abbildung 3.2 auf Seite 11 zeigt, dass der Iodeintrag mit dem Regen - zumindest im Vergleich zur aktuellen Situation in Niedersachsen - vom Autor um mindestens den Faktor 2 unterschätzt wurde.

**Tabelle 7.3:** Geometrische Mittelwerte mit Standardabweichung von  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in den Zeitreihen von Oberflächenwässern (1997 – 2004). Zur besseren Vergleichbarkeit der Zahlenwerte mit den Niederschlagsdaten aus Tabelle 7.1 wurden dieselben Einheiten gewählt.

Ort (Region)	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$
Großes Meer (I)	$25,4 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$1,03 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$6,7 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$0,386 \cdot 2,1^{\pm 1}$
Bokeloh (II)	$7,02 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$0,168 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$1,1 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$0,234 \cdot 1,6^{\pm 1}$
Leineturm (III)	$5,75 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$0,0358 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$0,23 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$0,0656 \cdot 2,4^{\pm 1}$
Meetschow (IV)	$7,32 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$0,127 \cdot 2,1^{\pm 1}$	$0,83 \cdot 2,1^{\pm 1}$	$0,198 \cdot 2,6^{\pm 1}$

## 7.2.2 Oberflächen- und Grundwasser

### Oberflächenwasser

Die Ergebnisse der am ZSR seit 1997 untersuchten, niedersächsischen Oberflächenwässer sind in den Tabellen C.7 bis C.10 im Detail dargestellt. Die Zeitreihen wurden in dieser Arbeit teilweise bis in das Jahr 2004 fortgesetzt. Die Darstellung der geometrischen Mittelwerte der Konzentrationen von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  sowie der ermittelten Isotopenverhältnisse in Tabelle 7.3 erlaubt einen Vergleich zwischen den Regionen und mit den jeweiligen Niederschlagsdaten aus Tabelle 7.1. Fernab der Nordseeküste, in den Oberflächenwässern der Regionen II bis IV, sind die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen vergleichbar. Diese Konzentrationen entsprechen in etwa denjenigen, die auch im Bestandsniederschlag dieser Regionen gemessen wurden und sind gegenüber dem Freilandniederschlag um etwa den Faktor 4 erhöht. Daraus lässt sich folgern, dass die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Oberflächenwässern durch den Iodeintrag aus trockener und nasser Deposition bestimmt werden. Diese Annahme ist in erster Näherung sicher plausibel, jedoch muss davon ausgegangen werden, dass weitere Austauschprozesse zwischen den Oberflächenwässern und der Vegetation sowie vor allem zwischen Oberflächenwässern und dem Boden stattfinden. Da die küstenfernen Oberflächenwässer jeweils aus Flüssen stammen, wäre es sinnvoll, in späteren Arbeiten auch hydrologische Parameter, wie das Einzugsgebiet der Flüsse oder deren Fließgeschwindigkeit, zu berücksichtigen. Die durchschnittliche  $^{127}\text{I}$ -Konzentration des Binnensees „Großes Meer“ liegt mit gut  $25 \mu\text{g kg}^{-1}$  um das vier- bis fünffache über denen in Flusswässern aus den anderen Regionen und ist damit etwa halb so hoch, wie die Konzentration im Nordseewasser. Die Entfernung von nur etwa 15 km zwischen dem Binnensee und der Nordseeküste äußert sich also auch

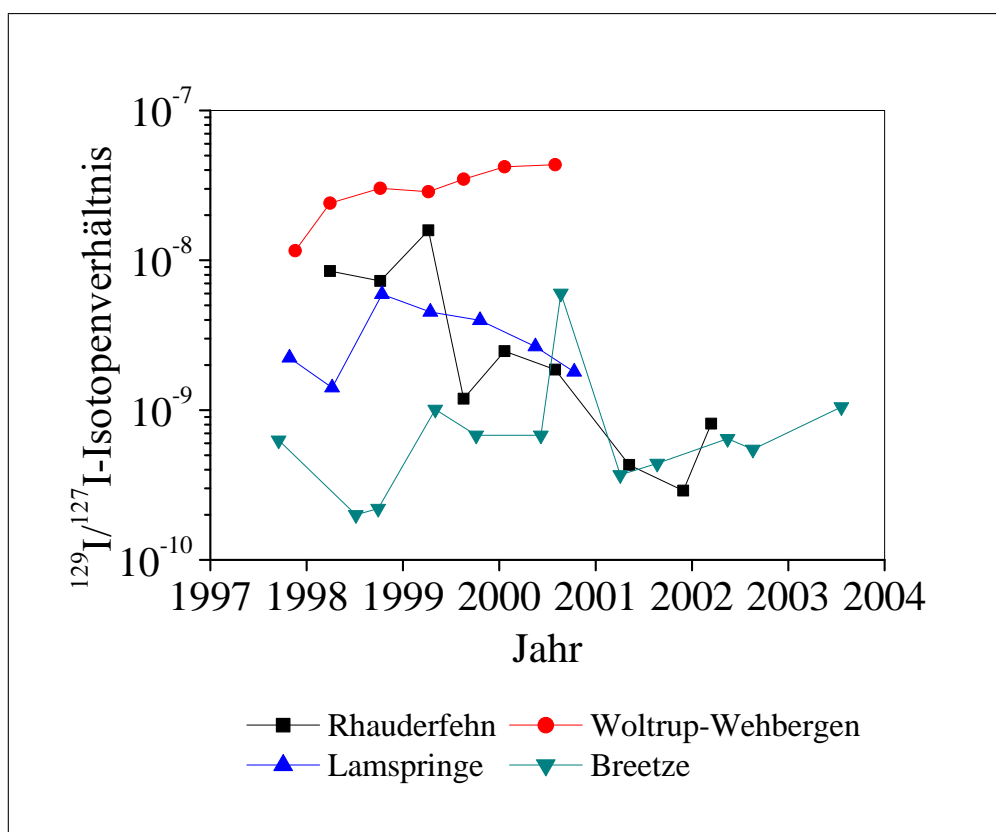


deutlich im Iod-Gehalt des Wassers. Eine genauere Betrachtung des Wasserhaushalts des „Großen Meeres“ im Hinblick auf den Iod-Gehalt gibt Szidat [2000].

Beim Blick auf die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in den küstenfernen Oberflächenwässern, fällt eine größere Variabilität der Daten als bei den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen auf. Während zudem beim  $^{127}\text{I}$  die Konzentration im Oberflächenwasser in etwa der im Bestandsniederschlag entspricht, liegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in allen drei Regionen deutlich unter denen im Niederschlag. Scheinbar wird dieses Isotop auf dem Weg vom Niederschlag zum Oberflächenwasser stärker als das  $^{127}\text{I}$  durch Wechselwirkung mit dem Boden und der Vegetation aus dem Wasser entfernt. Dies äußert sich auch in den Isotopenverhältnissen, die in den Oberflächenwässern um mehr als eine Zehnerpotenz unter denen des Niederschlags liegen. Dieses Verhalten wird im Zusammenhang mit den Ergebnissen der Untersuchung von Bodenproben in folgenden Arbeiten ausführlich betrachtet: [Ernst u. a. 2002; Ernst 2003; Ernst u. a. 2003; Michel u. a. 2004].

### **Grundwasser**

Tabelle C.11 im Anhang gibt die Analysenergebnisse der seit 1997 am ZSR untersuchten Grundwässer wieder. Diese Zeitreihen konnten im Anfertigungszeitraum dieser Arbeit nur um wenige Proben erweitert werden. Während die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen jeweils an einem Probenahmeort im Zeitverlauf relativ konsistent sind, zeigen sich bei Betrachtung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen teils um eine Größenordnung schwankende Werte, was sich auch in den Isotopenverhältnissen widerspiegelt. Diese sind, abhängig vom Probenahmezeitpunkt, in Abb. 7.1 auf S. 96 dargestellt. Für die Zeitreihe aus Woltrup-Wehbergen (Region II) ergab sich bis ins Jahr 2000 ein kontinuierlicher Anstieg des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses. Hingegen ist bei der Zeitreihe aus Rhaudefehn (Region I) tendenziell eher ein Abfall der Isotopenverhältnisse im beobachteten Zeitraum zu verzeichnen. An den anderen beiden Probenahmeorten zeigt sich kein einheitlicher Trend. Vermutlich ist das Verhalten der Iod-Isotope auf ihrem Weg zu den Grundwasserprobenahmestellen stark von den Bedingungen vor Ort abhängig. Neben der Filtrationstiefe, aus der die Wässer jeweils genommen wurden, sind jedoch keine genauen Informationen über die Art des Boden und ggf. der Vegetation, die Grundwasserstandshöhe und weitere hydrologische Parameter, wie das Einzugsgebiet, bekannt. Eine weitere Beobachtung und Diskussion von  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie der Isotopenverhältnisse ist nur im Zusammenhang mit diesen weiteren Parametern sinnvoll.



**Abbildung 7.1:**  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in vier Grundwasserzeitreihen. Die Probenahmeorte sind in Abb. 5.1 dargestellt, die Daten in Tabelle C.11.

### Zusammenfassende Darstellung der Wasserproben

An dieser Stelle sollen die Ergebnisse der Analysen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag, in Oberflächenwasser und Grundwasser noch einmal anhand einer graphischen Darstellung zusammengefasst werden (Abb. 7.2). Für die Diskussion ist es sinnvoll, die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentration darzustellen. Hier und im Folgenden werden dabei vier verschiedene Symbole zur Kennzeichnung der Herkunftsregion verwendet: Dreiecke für Region I, Kreise für Region II, Quadrate für Region III und Rauten für Region IV. In den Abbildungen sind auch Proben mit dargestellt, die vor dem Anfertigungszeitraum dieser Arbeit am ZSR analysiert wurden.

In Abbildung 7.2 nicht mit dargestellt sind die Bestandsniederschläge, die im Hinblick auf den Anteil der trockenen Deposition bereits zuvor gesondert betrachtet wurden. In natürlichen Wasserproben aus Niedersachsen liegen die Konzentrationen des stabilen  $^{127}\text{I}$  zwischen etwa  $1 \mu\text{g kg}^{-1}$  und  $100 \mu\text{g kg}^{-1}$ . Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen variieren stärker und liegen zwischen etwa  $1 \text{ fg kg}^{-1}$  und  $100 \text{ pg kg}^{-1}$ .

In beiden Graphen sind die Daten für Oberflächen- und Grundwasser deutlich von denen für Niederschlag und Meerwasser abgesetzt. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (oberer Graph) im Oberflächenwasser liegen im Durchschnitt oberhalb derer, die im Freilandniederschlag beobachtet werden. Dies ist nur durch eine zusätzliche Iodquelle zu erklären. Als diese Quelle hat sich der Oberboden erwiesen [Michel u. a. 2004]. Innerhalb der Oberflächenwässer ragen die Proben aus dem tieferwasserbeeinflussten Binnensee Großes Meer (Region I) heraus. Hier liegen die  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen zwischen den im Niederschlag und in Meerwasserproben registrierten.

Die Grundwässer der verschiedenen Regionen zeigen kein systematisches Verhalten in der Darstellung des Isotopenverhältnisses gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration. Eine weiterführende Diskussion dieser Daten wäre im Einzelnen nur unter Betrachtung der jeweiligen hydrologischen Bedingungen möglich.

Die Darstellung der Isotopenverhältnisse gegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration zeigt eine deutliche Korrelation zwischen diesen Größen. Bei den im Rahmen von zwei Größenordnungen konstanten  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen führt das Sinken der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen, vom Meerwasser über den Niederschlag zum Oberflächenwasser, um fünf Größenordnungen zu fallenden Isotopenverhältnissen. Dieser allgemeine Trend gilt auch für die Grundwässer, obwohl hier aufgrund der hydrologischen Unterschiede eine größere Variabilität der Daten gegeben ist. Für Oberflächenwasser hohe durchschnittliche  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zeigen erneut die meerwasserbeeinflussten Proben aus Region I.

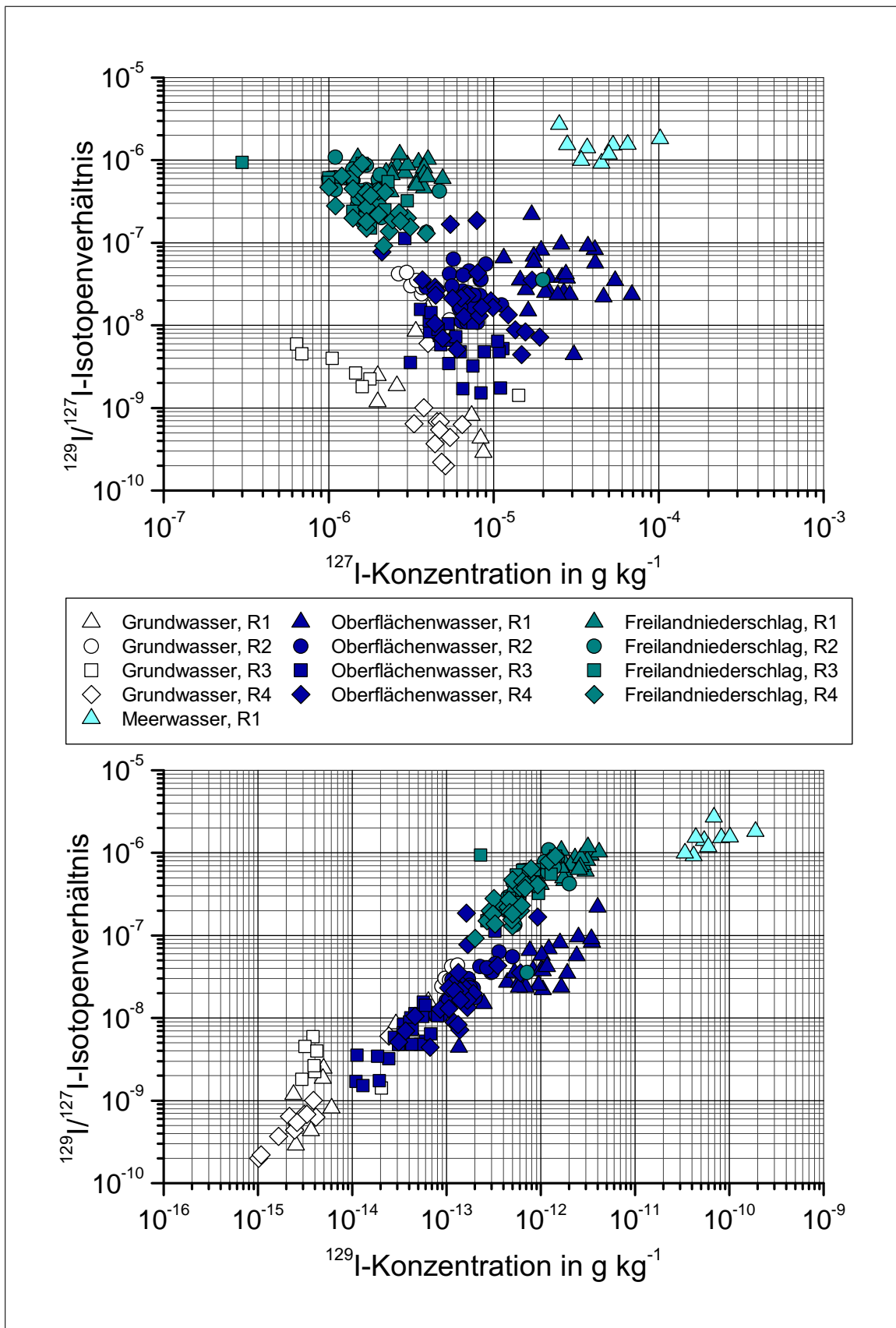


Abbildung 7.2: Zusammenfassende Darstellung der Wasserproben aus Niedersachsen.  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen.

**Tabelle 7.4:** Niedersächsische Böden: Geometrische Mittelwerte mit Standardabweichung von  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Region	Typ (Anzahl der Proben)	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-10}$
I	Wiese/Weide (n=4)	$9,2 \cdot 1,2^{\pm 1}$	$122 \cdot 1,1^{\pm 1}$	$130 \cdot 1,1^{\pm 1}$
I	Acker (n=11)	$8,0 \cdot 2,1^{\pm 1}$	$97 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$120 \cdot 2,8^{\pm 1}$
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=16)	$2,3 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$53 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$228 \cdot 1,9^{\pm 1}$

### 7.2.3 Boden

Mit dem Ziel der Bestimmung von Transferfaktoren wurden an den Standorten der jeweiligen Pflanzen Bodenproben genommen. Die Ergebnisse der Untersuchung dieser Böden werden hier zunächst unabhängig von denen der Pflanzen vorgestellt. Die  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen wurden in 15 Bodenproben aus der Region I und in 19 Proben aus der Region III bestimmt. In Tabelle 7.4 sind die Ergebnisse zusammengefasst. Dabei wird unterschieden zwischen den dauerhaft bewachsenen, ungestörten Weide- und Wiesenböden einerseits und den regelmäßig bewirtschafteten Ackerböden andererseits. Die angegebenen Konzentrationen sind als mittlere Werte für die oberen 20 cm bis 30 cm dieser Böden zu verstehen. Dieser Bereich wird im Folgenden auch als Oberboden bezeichnet.

In Region I zeigen sowohl Wiesen- und Weideböden als auch Ackerböden recht hohe durchschnittliche  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen von  $9,2 \mu\text{g g}^{-1}$  bzw.  $8,0 \mu\text{g g}^{-1}$ . So wurden beispielsweise von Schnell [1997] in Oberbodenmischproben aus ganz Deutschland  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen  $0,01 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $6,5 \mu\text{g g}^{-1}$  nachgewiesen. Ernst [2003] fand jeweils im Oberboden der von ihm untersuchten niedersächsischen Profile Konzentrationen von  $2,4 \mu\text{g g}^{-1}$  bis  $5,6 \mu\text{g g}^{-1}$ .

Auch in den küstenfernen Wiesen- und Weideböden der Region III finden sich mit durchschnittlich  $8,1 \mu\text{g g}^{-1}$  ähnlich hohe  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen. Im Gegensatz dazu beträgt die mittlere Konzentration in den Ackerböden der Region III nur  $2,3 \mu\text{g g}^{-1}$ . Dieser Unterschied zwischen ungestörten und bewirtschafteten Böden in Region III könnte prinzipiell auf eine Durchmischung mit tieferen Bodenschichten geringerer Iod-Gehalte bei der landwirtschaftlichen Bearbeitung zurückzuführen sein. Dies müsste sich dann jedoch in ähnlicher Form auch bei den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und bei den küstennahen Böden zeigen – beides ist nicht der Fall. Der Vergleich der Iodgehalte im Bezug auf die Bewirtschaftungsform der Böden

ist mit diesen Daten auch in so fern unzulässig, da es sich um Mittelwerte ganzer Regionen mit Proben von verschiedenen Standorten handelt. Über die jeweiligen landwirtschaftlichen Gepflogenheiten der beprobten Höfe liegen keine Informationen vor.

Die Konzentrationen des Radionuklids  $^{129}\text{I}$  sind – analog zum Freilandregen (Tab. 7.1) – in den küstennahen Bodenproben signifikant höher als in den küstenfernen. Die Mittelwerte zwischen  $53 \text{ fg g}^{-1}$  und  $122 \text{ fg g}^{-1}$  sind insgesamt in Übereinstimmung mit den von Ernst [2003] in jeweils den oberen Profilschichten gefundenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen etwa  $41 \text{ fg g}^{-1}$  und  $220 \text{ fg g}^{-1}$ .

Das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis liegt, ohne bzgl. der regionalen Herkunft der Proben zu unterscheiden, in den untersuchten Oberböden im Bereich von etwa  $1 \cdot 10^{-8}$  bis  $2 \cdot 10^{-8}$ . Hingegen finden sich im Niederschlag (Tab. 7.1) um mehr als eine Größenordnung höhere Isotopenverhältnisse von etwa  $3 \cdot 10^{-7}$  bis  $7 \cdot 10^{-7}$ . Da der Niederschlag die Quelle für das Iod im Boden ist, stellt sich die Frage, warum das Isotopenverhältnis im Boden deutlich geringer ist. Scheinbar verhalten sich  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  unterschiedlich. Zurückzuführen ist diese Beobachtung auf die ungleichen Zeitskalen des Eintrags der beiden Isotope. Das in die Böden seit Jahrtausenden eingetragene  $^{127}\text{I}$  verdünnt das aktuelle Isotopenverhältnis des Iods im Quellterm Niederschlag. Für den Boden und auch für die Oberflächenwässer (Tab. 7.3) resultieren dann die um 1 bis 2 Größenordnungen geringeren Isotopenverhältnisse als im Niederschlag.

Ein direkter Vergleich der gefundenen  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in Niederschlags- und Oberflächenwässern mit denen in Böden ist wegen der unterschiedlichen Bezugsmatrix nicht sinnvoll. Es ist zudem nicht möglich, aus den hier ermittelten Daten detailliertere Rückschlüsse auf den Iod-Haushalt in Böden zu ziehen, da dieser, wie in Abschnitt 3.4 dargestellt, von zahlreichen Faktoren abhängig ist. Neben der Entfernung zum Meer und der Art der Bewirtschaftung konnten im Rahmen dieser Arbeit allerdings keine weiteren bodenkundlichen Parameter berücksichtigt werden. Die Bodenproben wurden in erster Linie genommen, um den Transfer der Iod-Isotope aus dem Boden in die Nahrungskette unter aktuellen Freilandbedingungen am jeweiligen Standort bestimmen zu können (Abschnitt 7.3).

Gesondert zu betrachten sind Böden von Waldstandorten. Am Standort Rheinhausen wurde in Zusammenhang mit der Probenahme von Pilzen am 04.10.2002 auch eine Bodenprobe genommen. Diese wurde in drei Schichten aufgeteilt, die als Spreu, Bodenauflage und Boden bezeichnet wurden. Die Spreu ist dabei die Schicht von frisch auf den Boden gefallen Blättern. Als Bodenauflage (0 cm bis 3 cm) wird die Übergangsschicht zwischen der Spreu und dem eigentlichen Boden bezeichnet. Letztere wurde in einer Tief von 3 cm

bis ca. 8 cm beprobt. Im Vergleich mit den „Freilandböden“ (Tab. 7.4) finden sich in allen drei Waldbodenschichten relativ niedrige  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen:  $2,1 \mu\text{g g}^{-1}$  in der Spreu,  $1,3 \mu\text{g g}^{-1}$  in der Bodenauflage und  $1,0 \mu\text{g g}^{-1}$  im Boden selbst. Andererseits sind die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen außergewöhnlich hoch:  $639 \text{ fg g}^{-1}$  in der Spreu,  $254 \text{ fg g}^{-1}$  in der Bodenauflage und  $57,5 \text{ fg g}^{-1}$  im Boden. Bei beiden Isotopen fallen die Konzentrationen erwartungsgemäß mit der Tiefe. Es resultieren relativ hohe  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $2,0 \cdot 10^{-7}$  und  $4,8 \cdot 10^{-7}$ , die denen in aktuellen Niederschlagsproben (Tab. 7.1) sehr ähnlich sind. Dies ist nicht verwunderlich, da die oberen Bodenschichten in Wäldern ständig durch verrottendes, herabfallendes Laub neu gebildet werden. Das in diesem „jungen“ Boden enthaltene Iod weist dann ein Isotopenverhältnis auf, das dem Iod, das aktuell durch den Niederschlag in die Pedosphäre und Biosphäre eingetragen wird, entspricht. Das geringe Alter des Waldoberbodens und der damit verbundene kurze Eintragszeitraum erklären auch die geringen  $^{127}\text{I}$ - bzw. Gesamtiodkonzentrationen.

Die Sonderrolle der Waldböden wird noch einmal in der graphischen Zusammenfassung der Ergebnisse der Untersuchung von Bodenproben in Abbildung 7.3 sichtbar, für die erneut die Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentration gewählt wurde. Die wenigen bisher untersuchten Waldböden passen sich in beiden Graphiken nicht in die Bereiche ein, die von den anderen Böden gebildet werden.

Bei der Auftragung der Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration zeigt sich eine deutliche Antikorrelation: mit steigender  $^{127}\text{I}$ -Konzentration sinkt das Isotopenverhältnis. Hier zeigt sich die zunehmende Verdünnung des frisch eingetragenen  $^{129}\text{I}$  mit dem schon im Boden vorhandenen stabilen Iod. Hingegen beeinflusst die Variabilität der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen die Isotopenverhältnisse nur in geringerem Maße.

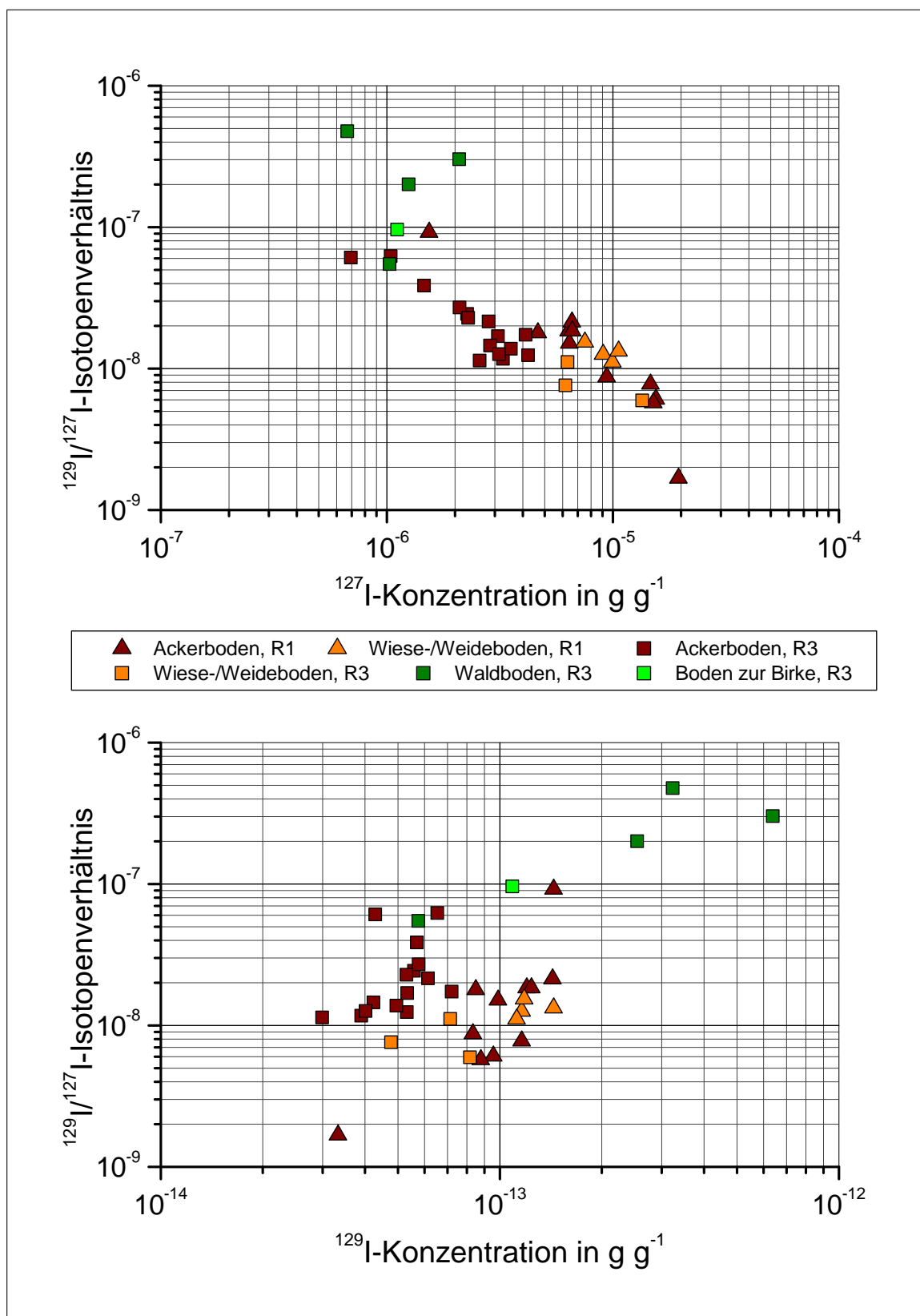


Abbildung 7.3: Zusammenfassende Darstellung der Bodenproben aus Niedersachsen.  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen.



### 7.2.4 Bewuchs und pflanzliche Nahrungsmittel

Die Einzelergebnisse der Analysen von Weide- und Wiesenbewuchs, Blatt- und Wurzelgemüsen, von Getreide, Beeren und Pilzen einschließlich der Messunsicherheiten sind in Tabelle C.12 im Anhang gegeben. Tabelle 7.5 fasst die Ergebnisse, sortiert nach der Probenart zusammen. Bei einigen Proben konnte wegen des sehr geringen Iod-Gehalts und/oder zu geringer Probeneinwaage die Erkennungsgrenze des jeweiligen Messverfahrens nicht erreicht werden. In diesem Fall ist die spezifische Erkennungsgrenze in der Form „< EKG“ angegeben. Am ZSR wurden in den letzten vier Jahren acht Weidebewuchsproben aus der Region IV im Auftrag des NLÖ untersucht. Ohne auf die einzelnen Resultate einzugehen, sind die Mittelwerte dieser Proben zum Vergleich mit angegeben.

Die  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in allen Proben von Weide- und Wiesenbewuchs und pflanzlichen Nahrungsmitteln variieren stark und zeigen keine einfache oder eindeutige Systematik. Es lässt sich jedoch eine grobe Einteilung nach Weidebewuchs, Getreide, Blattgemüse und Wurzelgemüse treffen. Bei den Gemüseproben beziehen sich die angegebenen Konzentrationen auf das Frischgewicht. Durch die Gefriertrocknung im Rahmen der Probenvorbereitung reduzierte sich die Masse dieser Proben auf durchschnittlich etwa 10 % der Frischmasse. Berücksichtigt man diesen Faktor, so kann man, bezogen auf das Trockengewicht, etwa zehnfach höhere Konzentrationen der beiden Isotope in den Gemüsesorten annehmen. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen liegen dann in den Gemüseproben zwischen etwa  $0,1 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $0,5 \mu\text{g g}^{-1}$ . In Weide- und Wiesenbewuchs finden sich, ebenfalls bezogen auf das Trockengewicht, deutliche höhere  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen als in Gemüse.

Auch die gemessenen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen variieren selbst innerhalb ähnlicher Proben teilweise um Größenordnungen. Herauszuheben ist allein die mit  $238 \cdot 1,5^{\pm 1}$  sehr hohe mittlere  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in den küstennahen Heu-Proben. Diese ist sicherlich auf die höhere atmosphärische Deposition des Isotops in Meeresnähe zurückzuführen. In den Fällen, in denen gleiche Pflanzen aus Region I und III untersucht werden konnten, zeigt sich dieses Verhalten jedoch nicht durchgängig. Bei Gerste und Lauch finden sich in Region I höhere Werte. Bei Wirsingkohl und Kohlrabi weisen jedoch jeweils die küstenfernen Proben höhere Konzentrationen an  $^{129}\text{I}$  und auch an  $^{127}\text{I}$  auf.

Die resultierenden Isotopenverhältnisse überdecken einen Bereich von zwei Größenordnungen (ca.  $1,5 \cdot 10^{-8}$  bis  $1,5 \cdot 10^{-6}$ ). Generell liegen die Isotopenverhältnisse der Pflanzenproben in dem Bereich, der vom Niederschlag, den Oberflächenwässern und den Böden aufgespannt wird, was die stetigen Austauschprozesse zwischen diesen Umweltbereichen verdeutlicht.

In den beiden Proben von Brom- und Himbeeren ergaben sich Konzentrationen beider Isotope, die mit denen in Gemüse vergleichbar sind. Diese Daten können, ebenso wie die Ergebnisse der Analyse von Pilzen, nur als erste Anhaltswerte für evtl. weitere Untersuchungen angesehen werden. Um hier verlässliche Aussagen treffen zu können, ist ein größerer Probenumfang unabdingbar.

**Tabelle 7.5:** Zusammenfassung der Analysenergebnisse von Weide- und Wiesenbewuchs und von pflanzlichen Nahrungsmitteln, sortiert nach Probenart und Herkunftsregion. Bei Gras, Heu, Getreide und Pilzen beziehen sich die Konzentrationen auf die Trockenmasse (Lufttrocknung), bei Gemüse und Beeren auf das Frischgewicht.

Region	Material	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-10}$
<b>Weidebewuchs</b>				
I	Heu (n = 3)	$1,36 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$238 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$1720 \cdot 1,7^{\pm 1}$
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)	$1,44 \cdot 1,8^{\pm 1}$	$112 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$764 \cdot 1,8^{\pm 1}$
<b>Blattgemüse</b>				
I	Kopfsalat	0,024	9,44	3850
I	Weißkohl	< 0,005	< 0,3	–
I	Blumenkohl	< 0,007	< 0,4	–
I	Wirsingkohl	0,012	< 0,5	–
I	Lauch	0,049	8,36	1690
III	Wirsingkohl	0,02	27,7	14000
III	Lauch	0,016	1,3	814
<b>Knollen- und Wurzelgemüse</b>				
I	Kartoffeln	0,013	0,42	323
I	Kohlrabi	0,0059	0,17	287
I	Radieschen	0,0182	1,6	862
III	Kohlrabi	0,049	0,8	161
<b>Getreide</b>				
I	Gerste	0,096	49,3	5050
I	Hafer	0,14	32,9	2350
I	Weizen	0,12	8,45	675
III	Weizen	0,18	6,67	361
III	Gerste (n = 2)	$0,063 \cdot 5,0^{\pm 1}$	$5,53 \cdot 1,3^{\pm 1}$	$865 \cdot 3,8^{\pm 1}$
<b>Beerenobst</b>				
III	Brombeeren	0,014	1,05	768
III	Himbeeren	0,012	0,73	593
<b>Pilze</b>				
III	Schirmlinge	0,12	29,9	2410
III	Steinpilze	0,24	8,6	348
III	Maronen-Röhrlinge	1,9	28,0	149

**Tabelle 7.6:** Zusammenfassung der Analysenergebnisse von Kuhmilch. Die Konzentrationsangaben beziehen sich auf das Frischgewicht. Die Milchproben aus den Regionen I und III wurden im Rahmen dieser Arbeit in den Jahren 2001–2003 genommen und analysiert. Die Milchproben der Region IV stammen aus den Jahren 1998–2001.

Region (Anzahl)	Probenahmeort	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-10}$
I (n=4)	Neßmerpolder	$0,02 \cdot 1,6^{\pm 1}$	$4,9 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$2\,362 \cdot 1,2^{\pm 1}$
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	$0,1 \cdot 2,9^{\pm 1}$	$2,8 \cdot 1,5^{\pm 1}$	$278 \cdot 3,0^{\pm 1}$

## 7.2.5 Tierische Nahrungsmittel und tierische Schilddrüsen

Unter dem Oberbegriff „tierische Nahrungsmittel“ werden hier die Analysenergebnisse der Proben von Kuhmilch, Rind-, Schweine-, Schaf-, Ziegen- und Rehfleisch vorgestellt. Zudem konnten  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  auch in Schilddrüsen dieser Tiere bestimmt werden.

### Kuhmilch

Eine besondere Bedeutung im Hinblick auf den Transfer von radioaktiven Iod-Isotopen aus der Umwelt zum Menschen kommt der Kuhmilch zu. Sie spielt für die Strahlenexposition durch kurzlebige  $^{131}\text{I}$  nach Fallout-Ereignissen eine Schlüsselrolle. In Tabelle 7.6 sind neben den Ergebnissen dieser Arbeit auch früher am ZSR gemessenen Daten für zwei Standorte aus Region IV zusammengefasst.

Auch in Milch wird bei den  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sowie bei den Isotopenverhältnissen eine große Variabilität beobachtet. In den einzelnen Proben finden sich  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen  $0,007 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $0,44 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen  $1,1 \text{fg g}^{-1}$  und  $8,8 \text{fg g}^{-1}$ . Das Isotopenverhältnis liegt im Bereich von  $7,7 \cdot 10^{-9}$  bis  $3,1 \cdot 10^{-7}$ . Bei den geometrischen Mittelwerten zeigt sich für  $^{127}\text{I}$  eine recht gute Übereinstimmung für die Proben aus Region I und III sowie vom Standort Marleben in Region IV ( $0,01 \mu\text{g g}^{-1}$  bis  $0,02 \mu\text{g g}^{-1}$ ). Dagegen ergibt sich für den zweiten Standort Meetschow aus Region IV eine fünffach höhere mittlere  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ( $0,1 \mu\text{g g}^{-1}$ ). Bei den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen sind die Mittelwerte aus den Regionen I und III um ein Vielfaches gegenüber denen aus Region IV erhöht. All dies deutet auf eine hohe Komplexität des Transfers der Iod-Isotope in die Milch hin. Dies wird in Abschnitt 7.3.2 weiter diskutiert werden.

**Tabelle 7.7:** Zusammenfassung der Analysenergebnisse von tierischem Muskelfleisch und Schilddrüsen. Die Konzentrationsangaben beziehen sich auf das Frischgewicht. Bei zwei Proben sind die Erkennungsgrenzen als „< EKG“ angegeben.

Region	Tier	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis 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 (Nr. 1)	< 0,014	1,3	-
Schilddrüsen				
III	Rind	310	55 600	1 790
III	Schwein	65	969	147
III	Schaf	22,1	9 000	4 010
III	Reh (Nr. 1)	1 490	385 000	2 540
III	Reh (Nr. 2)	1 820	843 000	4 570

### Tierisches Muskelfleisch und Schilddrüsen

Tabelle 7.7 fasst die Ergebnisse der Analysen von tierischem Muskelfleisch und Schilddrüsen zusammen.

Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen liegen zwischen  $0,027 \mu\text{g g}^{-1}$  (Schaf) und  $0,28 \mu\text{g g}^{-1}$  (Ziege). In Schweinefleisch und Rehfleisch liegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen unter der Erkennungsgrenze. Das Radionuklid  $^{129}\text{I}$  ist mit Konzentrationen von einigen  $\text{fg g}^{-1}$  im Muskelfleisch der untersuchten Tiere enthalten. Da die Schilddrüse auch bei Tieren Iod im Zuge der Bildung und Bevorratung von iodhaltigen Hormonen akkumuliert, liegen die Konzentrationen der beiden Iod-Isotope im Schilddrüsengewebe um mehrere Größenordnungen höher.

Interessant ist ein Vergleich der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Schilddrüsen der Tiere. Beim Schwein liegt das Verhältnis mit etwa  $1,5 \cdot 10^{-8}$  um mehr als eine Größenordnung unter denen in den Schilddrüsen der anderen Tiere ( $1,8 \cdot 10^{-7}$  bis  $4,6 \cdot 10^{-7}$ ). Dies hängt vermutlich mit den unterschiedlichen Ernährungsbedingungen der Tiere zusammen. Während das Schwein überwiegend mit einer technisch hergestellten Futtermischung ernährt wurde, bezogen die anderen Tiere ihr Futter hauptsächlich direkt von Weiden und Wiesen. Es ist daher naheliegend, dass das Iod im Körper dieser Tiere ein ähnliches Isotopenverhältnis aufweist, wie das Iod, das sich auch in Böden und Bewuchs befindet.

Die Schilddrüse und das Muskelfleisch vom Schaf stammen vom selben Tier und können verglichen werden. Es zeigt sich, dass das Isotopenverhältnis in der Schilddrüse um den Faktor 10 höher liegt als im Muskelfleisch. Dies wäre nur mit einer unterschiedlichen Verstoffwechslung der beiden Isotope zu erklären. Denkbar wäre solch ein Verhalten nur bei einer unterschiedlichen Speziation der Isotope in der Nahrung. Die letzten beiden Aussagen sind als rein spekulativ zu verstehen und es bedarf weitere Untersuchungen mit einer größeren Probenanzahl und der Bestimmung der Iod-Spezies, um hier Klarheit zu schaffen.

## 7.2.6 Gesamtnahrung, iodierte Speisesalze, medizinische Iodpräparate und Trinkwasser

### Gesamtnahrung

Zur Abschätzung der Aufnahme von  $^{129}\text{I}$  mit der menschlichen Nahrung wurde exemplarisch das Mittagessen der studentischen Hauptmensa Hannover beprobt und analysiert. Die Ergebnisse zu diesen Proben sind in Tabelle C.12 ab S. 159 dargestellt.

$^{127}\text{I}$  konnte in allen untersuchten Proben quantifiziert werden. Die Konzentrationen, bezogen auf die Frischmasse des Essens, lagen dabei zwischen etwa  $90 \text{ ng g}^{-1}$  und  $485 \text{ ng g}^{-1}$  mit einem geometrischen Mittelwert von  $146 \cdot 1,7^{\pm 1} \text{ ng g}^{-1}$ . Eine Tagesration setzt sich aus jeweils vier der angebotenen Gerichte zusammen. Die Massen der einzelnen Gerichte (Tab. B.3) liegen zwischen  $185 \text{ g}$  und  $761 \text{ g}$  mit einem Mittelwert von  $387 \cdot 1,3^{\pm 1} \text{ g}$ . Durch Multiplikation der Iod-Konzentration mit der Masse einer Mahlzeit erhält man die aufgenommene Menge an Iod. Um die Schwankungsbreite der beiden Größen zu berücksichtigen, soll davon ausgegangen werden, dass der geometrische Mittelwert und die geometrische Standardabweichung eine logarithmische Normalverteilung beschreiben. Mit dem Excel<sup>®</sup>-Add-In Crystal-Ball<sup>®</sup> lassen sich diese beiden Verteilungen multiplizieren und man erhält für die aufgenommene Iodmenge ebenfalls eine logarithmische Normalverteilung. Die Anwendung von Crystal-Ball<sup>®</sup> wird im Rahmen der Berechnung von Transferfaktoren in Abschnitt 7.3.2 näher beschrieben. Für die mit einer Portion Mittagessen aufgenommene Iod-Menge ergibt sich eine Verteilung, die durch den geometrischen Mittelwert  $56,2 \mu\text{g}$  und eine geometrische Standardabweichung von  $1,76$  beschrieben wird. Betrachtet man als Grenzen des Vertrauensbereichs das 5%- und das 95%-Perzentil, so nimmt man mit einer Mittagsmahlzeit zwischen  $22,1 \mu\text{g}$  und  $143 \mu\text{g}$  Iod auf. Die mittlere Aufnahme von etwa  $56 \mu\text{g}$  Iod pro Mahlzeit deckt etwa ein Drittel der von der WHO empfohlenen täglichen Aufnahme von  $150 \mu\text{g}$  für Erwachsene ab [WHO 2001].

Das Radionuklid  $^{129}\text{I}$  konnte nur in der Probe vom 16.08.2002 mit einer Konzentration von  $9,6 \text{ fg g}^{-1}$  bestimmt werden. Das Isotopenverhältnis in dieser Probe liegt mit  $1 \cdot 10^{-7}$  relativ hoch. Diese Probe enthielt als einzige auch eine Fischmahlzeit. Die Art und die Herkunft des Fisches konnten nicht ermittelt werden. In den anderen Proben lagen die spezifischen Erkennungsgrenzen für  $^{129}\text{I}$  zwischen  $0,55 \text{ fg g}^{-1}$  und  $5,6 \text{ fg g}^{-1}$ . Damit liegt das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in all diesen Proben unter  $1,2 \cdot 10^{-8}$ .

### Iodierte Speisesalze

Die Verwendung von iodierten Speisesalzen zur Verminderung des Auftretens von Iodmangel-Krankheiten ist weit verbreitet. So kann davon ausgegangen werden, dass bei großen Bevölkerungsanteilen zumindest ein Teil der täglichen Iodaufnahme mit diesen iodierten Speisesalzen erfolgt, und dass damit auch das Radionuklid  $^{129}\text{I}$  aufgenommen wird. An drei verschiedenen, kommerziell erhältlichen iodierten Speisesalzen wurden daher Vorexperimente zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  unternommen (siehe Abschnitt 6.4.2). Dabei wurden jeweils etwa 60 g des Salzes gelöst, das enthaltene Iodat zum Iodid reduziert und dieses per Festphasenextraktion aufkonzentriert. In diesen Vorexperimenten konnte die quantitative Reduktion von Iodat zu Iodid nicht gesichert werden. Ebenso wenig wurde die Ausbeute der Festphasenextraktion bestimmt. So war es nicht möglich den tatsächlichen Gehalt der beiden Iod-Isotope in den Salzen zu bestimmen. Durch die Entnahme eines Aliquots für die Quantifizierung von  $^{127}\text{I}$  mittels ICP-MS nach der Festphasenextraktion, aber vor der Zugabe des Woodward-Iod-Trägers, konnte jedoch das Isotopenverhältnis in den Proben bestimmt werden.

Obwohl die eingewogenen Salzmengen von 60 g laut Packungsaufschrift jeweils knapp 1 mg Iod enthalten, konnte in nur einer der drei Proben das Isotop  $^{129}\text{I}$  über der Erkennungsgrenze quantifiziert werden. Tabelle 7.8 fasst die Ergebnisse zusammen. Mit diesen ersten Ergebnissen lassen sich einige Überschlagsrechnungen durchführen. Unter der Annahme, dass die Salze Iod mit einer Konzentration von durchschnittlich  $20 \mu\text{g g}^{-1}$  enthalten, wäre zur Deckung des von der WHO empfohlenen Tagesbedarfs von  $150 \mu\text{g}$  für Erwachsene die Aufnahme von 7,5 g dieser Salze notwendig. Ausgehend von der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration von Probe 2 würde  $^{129}\text{I}$  damit pro Tag in einer Menge von  $1,65 \text{ fg}$  ( $1,1 \cdot 10^{-8} \text{ Bq}$ ) aufgenommen.

Obwohl es sich hier nur um erste Ergebnisse handelt, kann zusammenfassend festgehalten werden, dass die iodierten Speisesalze mit  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von  $< 10^{-11}$  nicht zu einer nennenswerten Aufnahme von  $^{129}\text{I}$  mit der Nahrung beitragen. Durch ihren Beitrag zur Gesamtiodversorgung wird das Isotopenverhältnis des insgesamt mit der Nahrung aufgenommenen Iods weiter verdünnt.

**Tabelle 7.8:** Ergebnisse erster Experimente zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  in drei kommerziell erhältlichen iodierten Speisesalzen. In zwei der drei Proben lag die  $^{129}\text{I}$ -Menge in der AMS-Probe unter der Erkennungsgrenze. Es ergab sich dann eine obere Grenze für das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis. Das Isotopenverhältnis der Probe 2 ist mit einer relativen Unsicherheit von 76 % behaftet. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in der letzte Spalte wurden unter der Annahme einer Gesamtiodykonzentration in den Salzen von  $20 \mu\text{g g}^{-1}$  abgeschätzt. Die Iodykonzentrationen sind laut Packungsangabe in der dritten Spalte angegeben.

Probe	Kaliumiodatgehalt laut Packungsaufschrift	Iod-Konzentration in $\mu\text{g g}^{-1}$	Isotopenverhältnis $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$ -Konzentration in $\text{fg g}^{-1}$
1	mind. 0,0025 %	> 14,8	$< 1,0 \cdot 10^{-12}$	< 0,021
2	mind. 0,0025 %	> 14,8	$1,1 \cdot 10^{-11}$	0,22
3	0,0025 % – 0,0042 %	14,8 – 24,9	$< 9,8 \cdot 10^{-12}$	< 0,2

Marke, Hersteller, Gewinnungsort	
1	Heide Jodsalz mit Fluorid, esco european salt company, Bernburg
2	safrisalz Bad Friedrichshaller Jodsalz, Südsalz GmbH, unbekannt
3	Bad Reichenhaller Marken Jodsalz, Südsalz GmbH, Bad Reichenhall

### Medizinische Iodpräparate

Einen zusätzlichen Beitrag zur Iod-Versorgung der Bevölkerung leisten weitere iodhaltige Präparate. Diese werden teils als Medikament, teils auch in Form frei verkäuflicher Nahrungsergänzungsmittel angeboten. Um die  $^{129}\text{I}$ -Aufnahme mit diesen Tabletten abschätzen zu können, wurden erste Experimente durchgeführt. Die Probenaufbereitung fand analog zu der bei den iodierten Speisesalzen beschriebenen statt. Das vollständige Auflösen der Tabletten konnte, wie auch die Ausbeute der Festphasenextraktion, nicht bestimmt werden. So konnte zwar das Isotopenverhältnis, nicht jedoch die tatsächlichen Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  bestimmt werden. Die Experimente wurden mit folgenden Tabletten durchgeführt: eine Tablettenart zur täglichen Versorgung mit Iod (1), zwei gleiche Tabletten eines anderen Herstellers zur wöchentlichen Einnahme (2a, 2b), und zwei Tabletten einer dritten Sorte, die als so genannte Iod-Prophylaxe-Tabletten zum Einsatz kommen sollen (3a, 3b). Sie können im Falle einer unfallbedingten Freisetzung von radioaktiven Iod-Isotopen kurzfristig verteilt und eingenommen werden, um die Aufnahme des radioaktiven Iods durch Sättigung der Schilddrüse mit dem inaktiven Iod zu verhindern. Man spricht in diesem Fall von der „Iod-Blockade“. Die Ergebnisse der Analysen sind in Tabelle 7.9 zusammengefasst. Mit  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen  $< 2 \cdot 10^{-12}$  und einer maximalen  $^{129}\text{I}$ -Aufnahme von 16 fg ( $1 \cdot 10^{-7}$  Bq) mit einer Tablette leisten diese, wie auch die iodierten Speisesalze, keinen nennenswerten Beitrag zur  $^{129}\text{I}$ -Aufnahme.

**Tabelle 7.9:** Ergebnisse erster Experimente zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  in drei Arten von Iod-Tabletten. Packungsangaben von Gehalten an Kaliumiodid oder -iodat wurden auf die entsprechende Iodgehalte umgerechnet. In zwei der fünf Proben lag die  $^{129}\text{I}$ -Menge in der AMS-Probe unter der Erkennungsgrenze. Es ergab sich dann eine obere Grenze für das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis. Die vierte Spalte gibt die rel. Unsicherheit der Isotopenverhältnisse an. Die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in der letzte Spalte wurden aus dem ermittelten Isotopenverhältnis und der laut Packungsaufschrift in einer Tablette enthaltenen Iodmenge abgeschätzt.

Probe	Iodgehalt pro Tablette in mg	Isotopen- verhältnis $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	relative Unsicherheit in %	$^{129}\text{I}$ -Gehalt pro Tablette in fg
1	0,092	$< 1,9 \cdot 10^{-12}$	-	$< 0,17$
2a	1,53	$1,3 \cdot 10^{-12}$	62	2,1
2b	1,53	$< 5,2 \cdot 10^{-13}$	-	$< 0,81$
3a	49,7	$3,2 \cdot 10^{-13}$	33	16
3b	49,7	$5,2 \cdot 10^{-14}$	169	2,6

Marke, Hersteller	
1	Naturreform Iod-Tablette, VIVA GmbH
2	Jodetten <sup>®</sup> depot, Firma Henning, Berlin
3	Iod-Prophylaxe-Tabletten, Lannacher Heilmittel GmbH, Österreich

**Tabelle 7.10:**  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Trinkwasserproben aus Hamburg und Hannover.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in fg $\text{kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-10}$
Hamburg-Eimsbüttel	$9,8 \pm 2,4$	$1,3 \pm 0,4$	$1,4 \pm 0,5$
Hannover-Buchholz	$5,7 \pm 2,2$	$30 \pm 1,0$	$52 \pm 20$
Hannover-Gleidingen	$0,92 \pm 0,36$	$45 \pm 1,4$	$480 \pm 190$



## Trinkwasser

Im Jahr 2004 wurden drei Proben von Leitungswasser direkt aus dem Wasserhahn in Privatwohnungen genommen: eine Probe im Hamburger Stadtteil Eimsbüttel, eine aus Hannover-Buchholz (nördlicher Stadtteil) und eine aus Gleidingen am südlichen Stadtrand von Hannover. Vorhergehende Recherchen hatten ergeben, dass im Hamburger Stadtgebiet sämtliches Trinkwasser aus ein und dem selben Grundwasserreservoir stammt. Hingegen setzt sich das Trinkwasser in Hannover aus Grundwasserquellen in der nördlich gelegenen Heide und aus Oberflächenwasser (Stauseen) aus den südöstlich gelegenen Harz zusammen. Nach Aussage des Wasserversorgungsunternehmens vermischt sich das Wasser aus beiden Quellen im Leitungssystem von Hannover. Es sei jedoch davon auszugehen, dass die südlichen Stadtteile zu einem größeren Anteil Wasser aus dem Harz erhalten, die nördlichen eher Wasser aus der Heide.

Die Ergebnisse der Untersuchung dieser drei Trinkwasserproben auf ihre Gehalte an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sind in Tabelle 7.10 zusammengefasst.

Auch wenn es sich hierbei nur um drei einzelne Proben handelt, so lässt sich feststellen, dass das Leitungswasser für die Iod-Versorgung der Bevölkerung keine nennenswerte Rolle spielt. Die Strahlenschutzverordnung nimmt für Trinkwasser eine jährliche Verzehrsmenge von 350 Litern für Erwachsene an. Für das Leitungswasser aus Hamburg-Eimsbüttel würde dies eine tägliche Iodaufnahme von 9,4 µg bedeuten – nur 6,3 % der von der WHO empfohlenen Dosis. Diese Abschätzung ist zudem als konservativ zu betrachten, da nicht davon ausgegangen werden kann, dass das Trinkwasser zu 100 % aus Leitungswasser besteht.

Dementsprechend sind die  $^{129}\text{I}$  Mengen, die mit dem Wasser mit dem höchsten Isotopenverhältnis ( $4,8 \cdot 10^{-8}$ , Hannover-Gleidingen) aufgenommen würden, vernachlässigbar klein: 41 fg bzw.  $2,8 \cdot 10^{-7}$  Bq pro Tag bei einem jährlichem Verzehr von 350 Litern.

Das letztgenannte Isotopenverhältnis der Probe aus Hannover-Gleidingen liegt um eine Größenordnung über dem der Probe aus Hannover-Buchholz ( $5,2 \cdot 10^{-9}$ ). Dies kann als Indiz dafür gewertet werden, dass das Trinkwasser im Süden von Hannover tatsächlich zu einem größeren Teil aus dem Oberflächenwasser der Harzstauseen stammt. Dort liegt ein größerer Einfluss des aktuell mit dem Niederschlag eingetragenen  $^{129}\text{I}$  vor, als im Grundwasser der Heide.

### 7.2.7 Menschliche Schilddrüsen

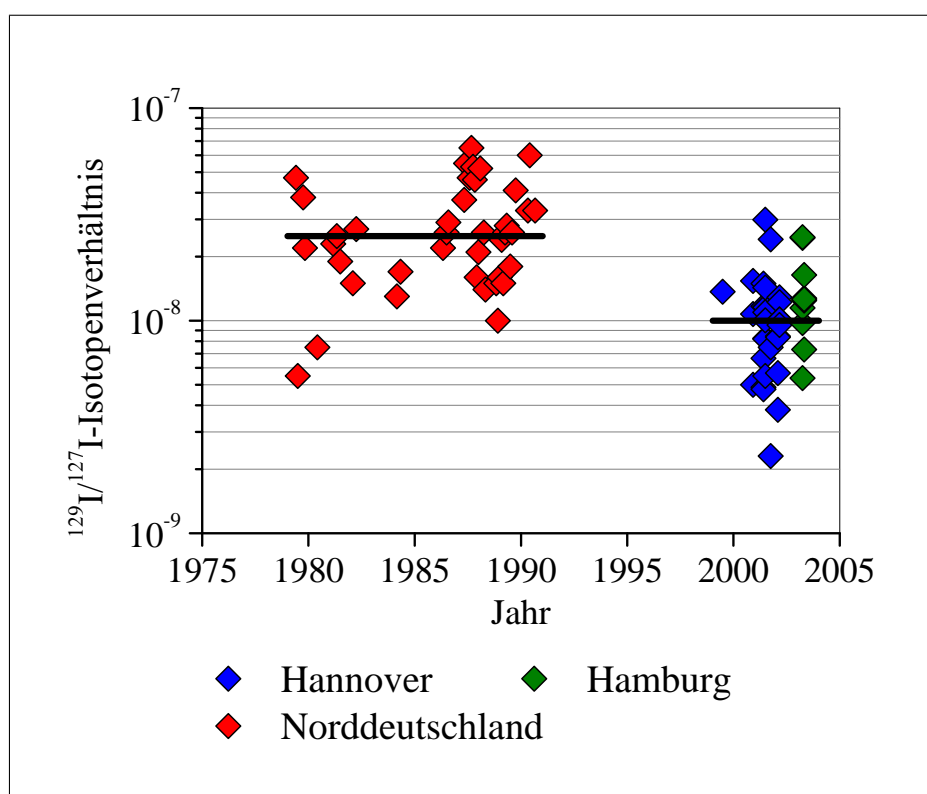
Die Schilddrüse wird als Endpunkt des Transfers von Iod durch die Nahrungskette zum Menschen angesehen.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und das entsprechende Isotopenverhältnis wurden in 15 menschlichen Schilddrüsen aus Hannover und 10 Schilddrüsen aus Hamburg mithilfe der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse bestimmt. Die Proben stammen von männlichen und weiblichen Spendern, die in unterschiedlichen Lebensaltern in den Jahren 1999 bis 2003 verstorben sind. Es wurden nur solche Personen berücksichtigt, von denen keine Erkrankung der Schilddrüse bekannt war, und die keine dieses Organ beeinflussenden Medikamente bekamen. Die Ergebnisse der Analysen sind in Tabelle C.14 auf S. 164 zusammen mit 15 weiteren hannoverschen Schilddrüsen, die in einer eigenen vorangegangenen Arbeit untersucht wurden, dargestellt. Ein zeitbezogener Trend ist weder bei den Konzentrationen der beiden Isotope, noch bei den Isotopenverhältnissen zu beobachten.

In den 30 Proben aus Hannover liegt die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration, bezogen auf das Frischgewicht der Schilddrüse, zwischen  $53 \mu\text{g g}^{-1}$  und  $1259 \mu\text{g g}^{-1}$ . Der geometrische Mittelwert und die geometrische Standardabweichung liegen bei  $359 \mu\text{g g}^{-1}$  bzw. 1,9. Das Minimum der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration in den 10 Schilddrüsen aus Hamburg liegt bei  $178 \mu\text{g g}^{-1}$ , das Maximum bei  $546 \mu\text{g g}^{-1}$ . Der geometrische Mittelwert von  $335 \cdot 1,5^{\pm 1} \mu\text{g g}^{-1}$  ist dem der hannoverschen Proben ähnlich.

Das Radionuklid  $^{129}\text{I}$  ist in den Schilddrüsen aus Hannover in Konzentrationen zwischen  $0,68 \text{ pg g}^{-1}$  und etwa  $18 \text{ pg g}^{-1}$  enthalten. Der Mittelwert liegt bei  $3,3 \cdot 2,2^{\pm 1} \text{ pg g}^{-1}$ . In den Schilddrüsen aus Hamburg liegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zwischen  $2,1 \text{ pg g}^{-1}$  und  $8,0 \text{ pg g}^{-1}$ , mit einem geometrischen Mittelwert von  $4,2 \cdot 1,6^{\pm 1} \text{ pg g}^{-1}$ .

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die zwischen etwa  $2,3 \cdot 10^{-9}$  und  $3,0 \cdot 10^{-8}$  liegen, sind in Abbildung 7.4 dargestellt. Ein Mittelwert der Isotopenverhältnisse in diesen menschlichen Schilddrüsen aus Norddeutschland aus den Jahren 1999 bis 2003 kann mit  $1 \cdot 10^{-8}$  mit einer geometrischen Standardabweichung von 1,7 angegeben werden. Schon in den Jahren 1979 bis 1990 wurden am ZSR menschliche Schilddrüsen aus Niedersachsen untersucht [Handl 1996]. In diesem Zeitraum lagen die Isotopenverhältnisse zwischen  $5,5 \cdot 10^{-9}$  und  $6,5 \cdot 10^{-8}$ , der Mittelwert bei  $2,5 \cdot 10^{-8}$ . Diese Zahlen und die grafische Darstellung machen deutlich, dass tendenziell eine Abnahme der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen in Norddeutschland zwischen den beiden betrachteten Zeiträumen erfolgte.

Die in dieser Arbeit untersuchten Schilddrüsen von Rind, Schaf und Reh (Tab. 7.7) zeigen mit Werten zwischen  $1,8 \cdot 10^{-7}$  und  $4,6 \cdot 10^{-7}$  deutlich höhere Isotopenverhältnisse als die



**Abbildung 7.4:**  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen aus Hannover und Hamburg aus den Jahren 1999 bis 2003 (diese Arbeit) und aus Niedersachsen aus den Jahren 1979 bis 1990 [Handl 1996]. Die Einzeldaten der aktuellen Probenserie sind in Tabelle C.14 auf S. 164 angegeben. Die schwarzen Balken stellen die geometrischen Mittelwerte der beiden Gruppen dar.

menschlichen. Diese Daten sind konsistent mit den von Hou u. a. [2003] veröffentlichten Untersuchungen von Tierschilddrüsen aus Dänemark. In 20 Schilddrüsen von Schafen aus dem Jahr 2000 wurden Isotopenverhältnisse zwischen  $5,28 \cdot 10^{-8}$  und  $4,11 \cdot 10^{-7}$  mit einem Mittelwert von  $(1,81 \pm 1,1) \cdot 10^{-7}$  gemessen. Eine Ausnahme bildet die in dieser Arbeit untersuchte Schweineschilddrüse mit einem Isotopenverhältnis von  $1,5 \cdot 10^{-8}$ . Sie ordnet sich in den Bereich der menschlichen Schilddrüsen ein.

Offenbar nimmt das Iod aus der Umwelt einen deutlich direkteren Weg zu den Weidetieren als zum Menschen und zum Schwein. Bei der Ernährung des Menschen ist durch die haushaltsübliche oder industrielle Zubereitung der Nahrungsmittel mit einem signifikanten Iod-Verlust gegenüber dem natürlichen Roh-Produkt zu rechnen. Die Iodversorgung erfolgt auch zu einem nicht geringen Anteil mit den im vorigen Abschnitt diskutierten iodierten Speisesalzen und ggf. auch mit weiteren iodhaltigen Präparaten. Diese weisen besonders niedrige  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse auf. Es ist daher verständlich, dass sich in tierischen Schilddrüsen höhere Isotopenverhältnisse finden als in den menschlichen.

## 7.3 Transfer von $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ durch die Nahrungskette

Mithilfe der zuvor dargestellten  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in Böden, Bewuchs, pflanzlichen und tierischen Nahrungsmitteln von Standorten in Niedersachsen wurden Transferfaktoren für diese beiden Iod-Isotope bestimmt. Diese Faktoren beschreiben den Anteil des Iods, der von einem Umweltkompartiment in ein anderes gelangt. Dabei sind die Transferwege nicht immer eindeutig. So ist insbesondere für Pflanzen nicht nur die Aufnahme von Iod aus dem Boden über den Wurzelpfad entscheidend, sondern auch die trockene und nasse Deposition mit Aufnahme von Iod über die Blätter. Die hier ermittelten Transferfaktoren beziehen sich auf eine bestimmte, aktuelle Freilandsituation und sollen daher als *in-situ* Transferfaktoren bezeichnet werden. Folgende Transfers wurden berücksichtigt: Boden–Pflanze, Futter–Kuhmilch und Futter–Tierfleisch. Mit so genannten aggregierten Transferfaktoren kann der Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in die Futterpflanzen und weiter in Milch und Fleisch zusammengefasst werden.

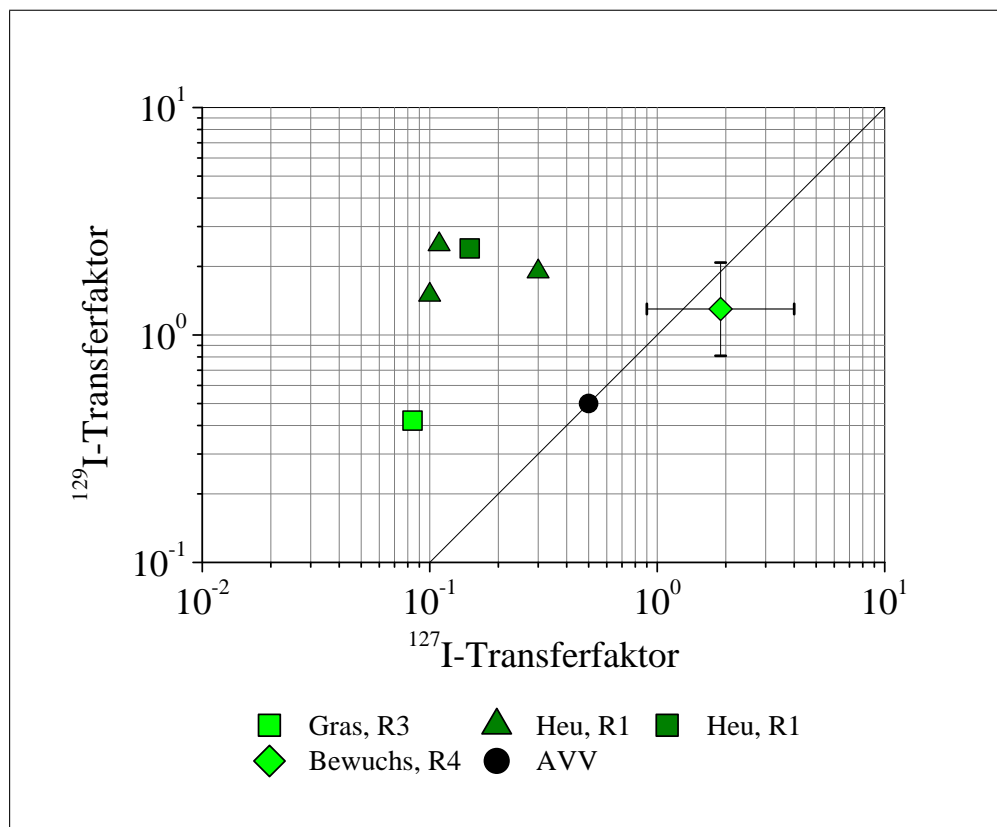
### 7.3.1 Transferfaktoren für den Transfer Boden–Pflanze

#### Berechnung

Zu den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben von Weide- und Wiesenbewuchs, Getreide, Gemüse, Beeren und Pilzen wurde jeweils am Standort der Pflanzen auch eine Bodenprobe genommen. Die einzelnen Analyseergebnisse der Konzentrationen an  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  sind in Tabelle C.12 zusammengefasst. Gemäß Gleichung 4.5 (S. 29) ergibt sich der Transferfaktor für den Transfer Boden–Pflanze durch Division der Konzentration des Nuklids in der Pflanze durch dessen Konzentration im dazugehörigen Boden. Da dabei die Konzentrationen in gleichen Einheiten verwendet werden, ist der resultierende Transferfaktor einheitenlos. Wichtig ist es jedoch anzugeben, ob sich die Konzentrationen in Pflanze und Boden auf die Trockenmasse oder die Frischmasse der Probe beziehen. Die berechneten Faktoren für den Transfer der beiden Iod-Isotope aus dem Boden in die verschiedenen Pflanzen sind in Tabelle C.13 im Anhang dargestellt.

#### Der Transfer Boden–Weide/Wiesenbewuchs

In diesem Abschnitt werden, wenn nicht anders angegeben, die Transferfaktoren immer bezogen auf die Trockenmasse von Bewuchs und Pflanze angegeben. So ist einen direkter Vergleich der Daten möglich.



**Abbildung 7.5:** Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Gras und Heu, bezogen auf die Trockenmasse beider Kompartimente. Der Transferfaktor der AVV, der sich dort auf die Frischmasse des Bewuchses bezieht, wurde unter der Annahme  $\text{TM} = 0,2 \cdot \text{FM}$  umgerechnet. Für Region IV ist ein Wertepaar aus geometrischen Mittelwerten dargestellt, die „Fehlerbalken“ geben die Streuung der Daten in Form der geometrischen Standardabweichung an.

Für den Transfer Boden–Gras und Boden–Heu wurden in dieser Arbeit in fünf Proben aus den Regionen I und III Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  zwischen 0,084 und 0,3 ermittelt. Für  $^{129}\text{I}$  liegen die Transferfaktoren zwischen 0,42 und 2,5. Eine Unterscheidung zwischen küstennahen und küsternen Proben kann wegen der geringen Probenanzahl nicht getroffen werden. In Abb. 7.5 sind die Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  gegeneinander dargestellt. Die eingezeichnete Gerade mit der Steigung eins ist die Ortslinie gleicher Transferfaktoren. Sie erlaubt einen schnellen Überblick, ob sich die Transferfaktoren der beiden Isotope generell unterscheiden. Küsternen Proben aus Region III (R3) sind dabei im Folgenden immer mit Quadraten, küstennahe Proben aus Region I (R1) mit Dreiecken markiert. Ebenfalls mit eingezeichnet sind das Wertepaar geometrischer Mittelwerte für Wiesenbewuchs aus Region IV, und der z. Zt. für alle Iod-Isotope geltende Transferfaktor für Berechnungen gemäß AVV. Die Bestimmung der Konzentrationen von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in den Proben aus Region IV erfolgte im Auftrag des NLÖ, aus diesen Daten wurden die Transferfaktoren berechnet.

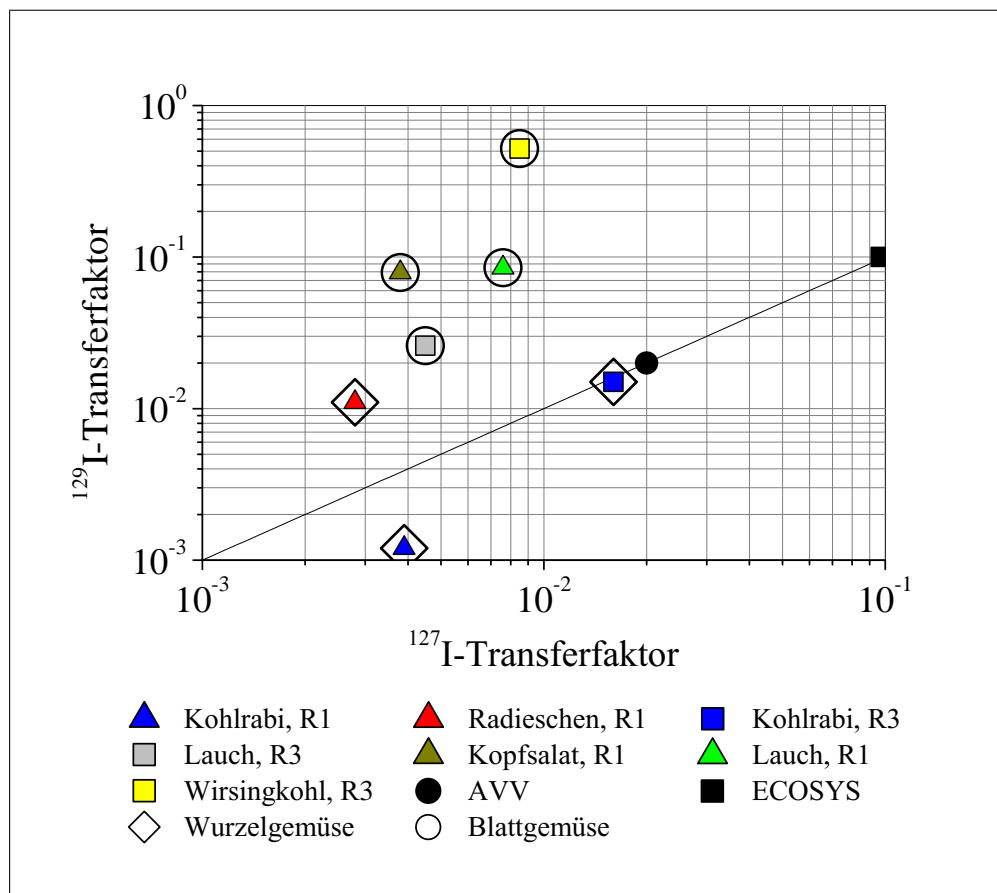
Mit Ausnahme von Region IV, wo  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  annähernd gleich verfügbar sind, zeigen die Proben aus den Regionen I und III um nahezu eine Zehnerpotenz höhere Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  als für  $^{127}\text{I}$ . Dies ist auf die Tatsache zurückzuführen, dass die *in-situ* Transferfaktoren Beiträge von nasser und trockener Deposition enthalten und nicht alleine den Transfer vom Boden in die Pflanzen wiedergeben. Da das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Durchschnitt im Niederschlag höher ist als im Boden, ergibt sich insgesamt ein höherer *in-situ* Transferfaktor.

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 während in Region IV ein signifikant höherer Mittelwert von 1,9 gefunden wird. Für  $^{129}\text{I}$  liegen mit Ausnahme der Gras-Probe aus Region III alle Transferfaktoren oberhalb von 1.

Der Transferfaktor von 0,1 aus der AVV, der auch im Modell ECOSYS [Müller und Pröhl 1993] für alle Iod-Isotope verwendet wird, bezieht sich dort auf die Frischmasse des Bewuchses. Vahlbruch [2004] hat experimentell bestimmt, dass die Trockenmasse von Gras ( $19,7 \pm 2,7$ ) % der Frischmasse ausmacht. Dies ist auch in guter Übereinstimmung mit den Angaben zur Trockenmasse von verschiedenen Futtermitteln in den „Messanleitungen“ [BMU 2000, Blatt F- $\gamma$ -SPEKT-FUMI-02-03]. Mit der Näherung  $TM = 0,2 \cdot FM$  lässt sich der Transferfaktor aus der AVV umrechnen und liegt dann bei 0,5 bezogen auf die Trockenmasse des Bewuchses. Der Vergleich mit den hier ermittelten Daten zeigt, mit Ausnahme der Daten aus Region IV, dass mit dem Transferfaktor der AVV der Transfer für das stabile Iod abgedeckt wird. Ebenfalls mit einer Ausnahme liegen die Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  jedoch deutlich höher.

### **Der Transfer Boden–Gemüse und Boden–Obst**

Auch für Blatt- und Wurzelgemüse konnten Transferfaktoren für beide Iod-Isotope in einigen Proben bestimmt werden (Tab. C.13). Die zugrunde gelegten Konzentrationen beziehen sich hier auf die Frischmasse des Gemüses und auf die Trockenmasse des Bodens. In Abb. 7.6 sind die Transferfaktoren für beide Iod-Isotope gegeneinander dargestellt. In allen Fällen werden die in dieser Arbeit bestimmten Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  vom Wert 0,02 aus der AVV übertroffen. Für das stabile Iod ist dieser Wert daher als konservativer Schätzwert für den Transfer Boden–Gemüse geeignet. Auch Brown und Simmonds [1995] verwenden als Transferfaktor den Wert 0,02 im Modell FARMLAND. Mit 0,1 deutlich höher setzen Müller und Pröhl [1993] den Iod-Transferfaktor Boden–Gemüse im Modell ECOSYS an.



**Abbildung 7.6:** Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Gemüse, bezogen auf die Frischmasse des Gemüses und die Trockenmasse des Bodens.

Mit der Ausnahme des  $^{129}\text{I}$ -Transferfaktors des Wirsingkohls deckt dieser Wert alle in dieser Arbeit für den Transfer Boden–Gemüse ermittelten Faktoren für beide Iod-Isotope ab.

In den hier dargestellten sieben Proben weisen fünf für  $^{129}\text{I}$  einen höheren *in-situ* Transferfaktor auf als für  $^{127}\text{I}$ . Dies deutet wieder auf einen nicht unwesentlichen Anteil trockener und nasser Deposition direkt auf den Pflanzen hin. Dabei ist dieser Effekt erwartungsgemäß größer bei den Blattgemüsen Kopfsalat und Lauch und besonders auffällig bei Wirsingkohl, der eine große Oberfläche hat.

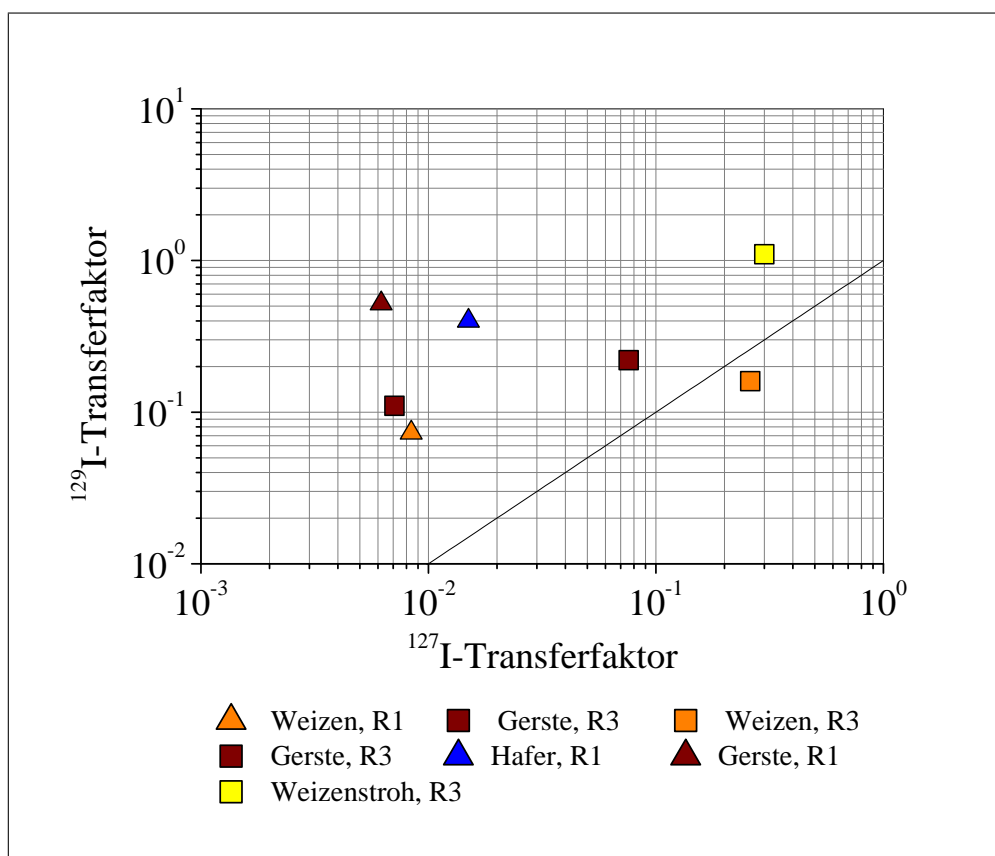
Auch für Brombeeren und Himbeeren wurden Transferfaktoren für beide Iod-Isotope ermittelt (Tab. C.13). Sie liegen bei 0,0032 bzw. 0,012 für  $^{127}\text{I}$  und 0,02 bzw. 0,011 für  $^{129}\text{I}$ , bezogen auf die Frischmasse der Obstsorten. Auch wenn diese Nahrungsmittel in der durchschnittlichen Ernährung sicher keinen großen Anteil ausmachen, so werden die hier gefundenen Werte durch die Transferfaktoren der genannten radioökologischen Modelle abgedeckt.

### Der Transfer Boden–Getreide

In drei Gerste-, einer Hafer-, sechs Weizenproben sowie in zwei Proben von Weizenstroh und den zugehörigen Böden wurde  $^{127}\text{I}$  quantifiziert und der Transferfaktor, bezogen auf jeweils die Trockenmasse von Bewuchs und Boden, berechnet (Tab. C.13).  $^{129}\text{I}$  konnte nicht in allen Proben bestimmt werden, weshalb zunächst die Transferfaktoren separat für  $^{127}\text{I}$  diskutiert werden.

Für die beiden Proben von Weizenstroh aus Region III wurden sehr ähnliche Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  von 0,34 und 0,30 gefunden. Der Transfer von  $^{127}\text{I}$  in Weizenkorn wird in den fünf küstenfernen Proben durch stark variierende Faktoren zwischen 0,0026 und 0,26 beschrieben. Der geometrische Mittelwert ergibt sich dabei zu  $0,042 \cdot 5,9^{\pm 1}$ . Der Transferfaktor für  $^{127}\text{I}$  in der einzigen küstennahen Weizenprobe liegt bei 0,0084.

Für die weiteren Getreidesorten Gerste und Hafer ergeben sich Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  zwischen 0,0062 und 0,076. Dabei liegen selbst bei den beiden Gersteproben, die am selben



**Abbildung 7.7:** Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Getreide, bezogen auf die Trockenmasse beider Kompartimente.

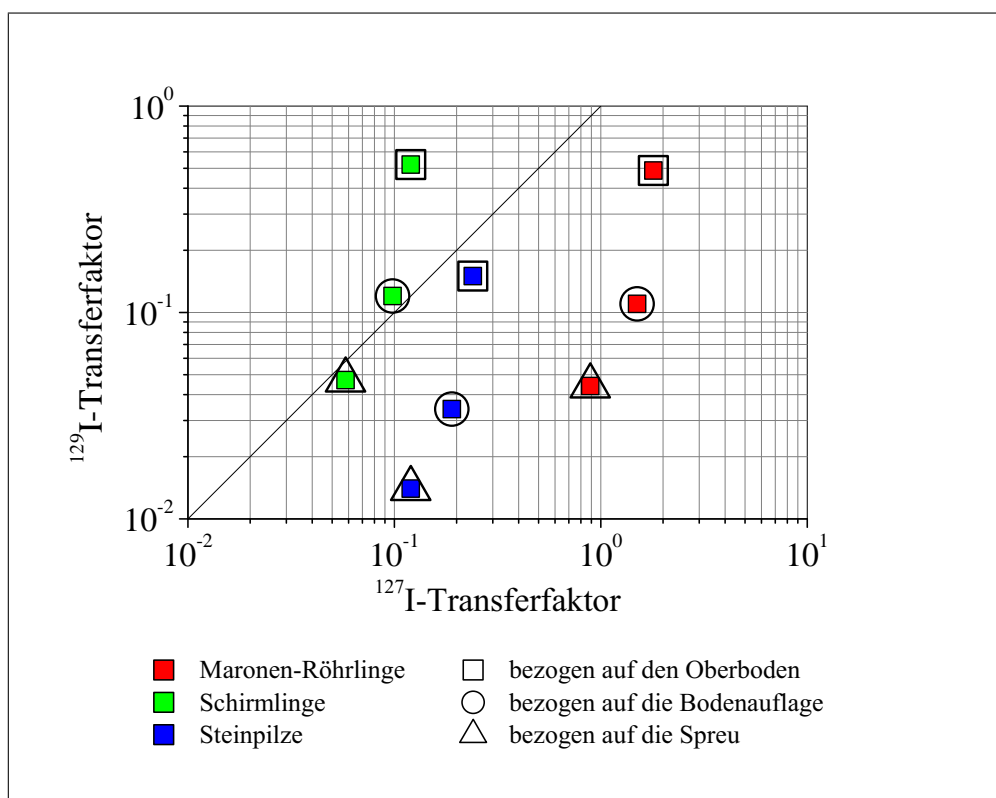


Tag von zwei Feldern am selben Ort genommen wurden, die Transferfaktoren mit 0,0071 und 0,076 um mehr als den Faktor 10 auseinander.

In sechs Fällen von Getreidekorn und einer Proben von Weizenstroh konnten auch Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  ermittelt werden. In Abb. 7.7 sind sie im Vergleich mit den Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  dargestellt. Scheinbar ist auch beim Getreide das Isotope  $^{129}\text{I}$  besser für die Aufnahme in die Pflanze verfügbar als  $^{127}\text{I}$ . Auch hier ist, wie bei den anderen oberirdischen Pflanzen, eine direkte Kontamination durch trockene und nasse Deposition anzunehmen. Der *in-situ* Transferfaktor ist dann nicht alleine durch den Transfer des Iods aus dem Boden bestimmt.

#### **Der Transfer Boden–Pilze**

An einem Waldstandort wurde der Iod-Transfer für beide Isotope in drei Sorten von Pilzen untersucht. Pilze bilden in der Systematik der Lebewesen einen eigenen Bereich, und sind im Bezug auf ihrer Physiologie nicht direkt mit Pflanzen zu vergleichen. Da hier nicht genauer darauf eingegangen werden kann, wie Pilze ihre Nahrung beziehen, wurde der Transfer aus allen drei beprobten Bodenschichten, d. h. aus der Spreu, der Bodenaufgabe und dem eigentlichen Oberboden berechnet (siehe auch Abschnitt 7.2.3). Die berechneten Transferfaktoren sind in Tabelle C.13 im Anhang und in Abbildung 7.8 dargestellt. Die Unterschiede sind sowohl im Bezug auf die verschiedenen Bodenschichten als auch zwischen den drei Pilzsorten beträchtlich. Eine weitere Interpretation ist im Rahmen dieser Arbeit wegen der unzureichenden Kenntnis über den Iod-Haushalt von Waldökosystemen und der speziellen Rolle der Pilze als Lebewesen nicht möglich.



**Abbildung 7.8:** Transferfaktoren für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in drei Sorten von Pilzen. Berechnet wurde der Transfer aus den drei Bodenschichten Spreu, Bodenauflage und Oberboden. Alle Werte beziehen sich auf die Trockenmasse beider Kompartimente.

### 7.3.2 Transferfaktoren für den Transfer in tierische Nahrungsmittel

#### Berechnung

Für den Transfer Futter–Milch und Futter–Fleisch berechnet sich der Transferfaktor gemäß folgender Gleichung:

$$T_r^{Mi/Fl} = \frac{C_r^{Mi/Fl}}{A_{\text{tägl.}}} = \frac{C_r^{Mi/Fl}}{C_r^{\text{Futter}} \cdot m_{\text{Futter,tägl.}}} \quad (7.1)$$

mit:

$T_r^{Mi/Fl}$	Transferfaktor für das Nuklid $r$ für den Übergang vom Futter in die Milch bzw. in das Fleisch
$C_r^{Mi/Fl}$	Konzentration des Nuklids $r$ in Milch bzw. Fleisch
$A_{\text{tägl.}}$	täglich durch das Tier mit dem Futter aufgenommene Aktivität bzw. Masse des Nuklids
$C_r^{\text{Futter}}$	Konzentration des Nuklids $r$ im Futter des Tieres
$m_{\text{Futter,tägl.}}$	täglich vom Tier aufgenommene Masse an Futter

Die Konzentrationen der Iod-Isotope in Futter (Weide/Wiesenbewuchs), Milch und Fleisch wurden in dieser Arbeit bestimmt und sind in Tabelle C.12 dargestellt. Zur Berechnung eines Transferfaktors wurden dabei alle Konzentrationen von gleichartigen Proben vom selben Standort zu einer mittleren Konzentration zusammengefasst. Die Angaben zur täglichen Futter-Verzehrmenge von Milchkühen, Schafen und Ziegen stammen aus dem „Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments“ [IAEA 1994]. Dort werden die Erwartungswerte und Bereiche für die Futteraufnahme, bezogen auf die Trockenmasse, angegeben:

- Milchkühe (Dairy cows): 16,1 kg d<sup>-1</sup> (minimal 10 kg d<sup>-1</sup>, maximal 25 kg d<sup>-1</sup>),
- Schaf (Dairy sheep): 1,3 kg d<sup>-1</sup> (minimal 1 kg d<sup>-1</sup>, maximal 2,5 kg d<sup>-1</sup>),
- Ziege (Dairy goats): 1,3 kg d<sup>-1</sup> (minimal 1 kg d<sup>-1</sup>, maximal 3,5 kg d<sup>-1</sup>).

Die Berechnung der Transferfaktoren erfolgte probabilistisch mittels des Excel®-Add-Ins Crystal-Ball®. Mit diesem Makro können in einem Excel®-Arbeitsblatt Monte-Carlo-Simulationen durchgeführt werden. Dabei werden allen in eine Formel einfließenden Parametern Verteilungen zugeordnet, die sich bei der anschließenden Simulation fortpflanzen und in einer Gesamtverteilung resultieren. Eine Simulation besteht dabei aus 100 000 Durchgängen. In jedem Durchgang wird für jeden Parameter eine Zufallsvariable erzeugt, die innerhalb der angenommenen Verteilung liegt und das Ergebnis der Berechnung ermittelt. Es ergeben sich 100 000 Ergebnisse der Berechnung, die wieder einer Verteilung entsprechen. Diese Verteilung kann grafisch unter Ausgabe von zusätzlichen Parametern, wie z. B. beliebiger Perzentile, ausgegeben werden. Dieses Verfahren soll anhand eines Beispiels und Abbil-

dung 7.9 verdeutlicht werden. Dargestellt ist die Berechnung des Transferfaktors von  $^{127}\text{I}$  aus dem Futter in die Milch anhand der Proben aus Region I. Als geom. Mittelwert für die Konzentration von  $^{127}\text{I}$  im Futter wurde aus drei Heuproben  $1,35 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$  mit einer geom. Standardabweichung von 1,58 ermittelt. Dieses Wertepaar beschreibt die dargestellte logarithmische Normalverteilung (Abb. 7.9, links oben). Für die Konzentration in der Milch ergab sich aus vier Proben ein geom. Mittelwert von  $2,04 \cdot 10^{-8} \text{ g g}^{-1}$  mit einer geom. Standardabweichung von 1,64 (rechts oben). Für die tägliche Verzehrsmenge wurde mit den oben dargestellten Literaturdaten eine Dreiecksverteilung mit mindestens  $10 \text{ kg d}^{-1}$ , höchstens  $25 \text{ kg d}^{-1}$  und einer wahrscheinlichsten Futteraufnahme von  $16,1 \text{ kg d}^{-1}$  angenommen (links unten). Nach der Simulation ergab sich für den nach Gleichung 7.1 berechneten Transferfaktor eine Verteilung (rechts unten), an die eine logarithmische Normalverteilung angepasst wurde (grüne Kurve). Diese Verteilung wird durch den geom. Mittelwert  $9,00 \cdot 10^{-4} \text{ d kg}^{-1}$  mit einer geom. Standardabweichung von 2,01 beschrieben.

Auf die gleiche Weise wurden auch die anderen im Folgenden beschriebenen Transferfaktoren berechnet. Wenn für eine Probenart nicht mehrere, sondern nur ein einzelner Konzentrationswert ermittelt werden konnte, so wurde angenommen, dass dieser als geom. Mittelwert eine logarithmische Normalverteilung beschreibt. Als geom. Standardabweichung, also als Maß für die Breite der Verteilung, wurde dann der Wert 2 angesetzt.

Auch die aggregierten Transferfaktoren Boden–Milch und Boden–Fleisch wurden mit diesem probabilistischen Ansatz nach folgender Formel berechnet.

$$T_{r,aggr.}^{Mi/Fl} = \frac{C_r^{Mi/Fl}}{C_r^{Boden}} \quad (7.2)$$

mit:

$T_{r,aggr.}$  Aggregierter Transferfaktor für das Nuklid  $r$  für den Übergang vom Boden in die Milch bzw. in das Fleisch

$C_r^{Mi/Fl}$  Konzentration des Nuklids  $r$  in Milch bzw. Fleisch

$C_r^{Boden}$  Konzentration des Nuklids  $r$  im Boden

Auch diese aggregierten Transferfaktoren beziehen sich auf die aktuelle Freilandsituation und beschreiben somit nicht ausschließlich den Iod-Transfer aus dem Boden in Milch und Fleisch. Sie beinhalten vielmehr zu einem Teil auch das Iod, das über die atmosphärische Deposition in die Futterpflanzen und weiter in die Milch bzw. das Fleisch gelangt.

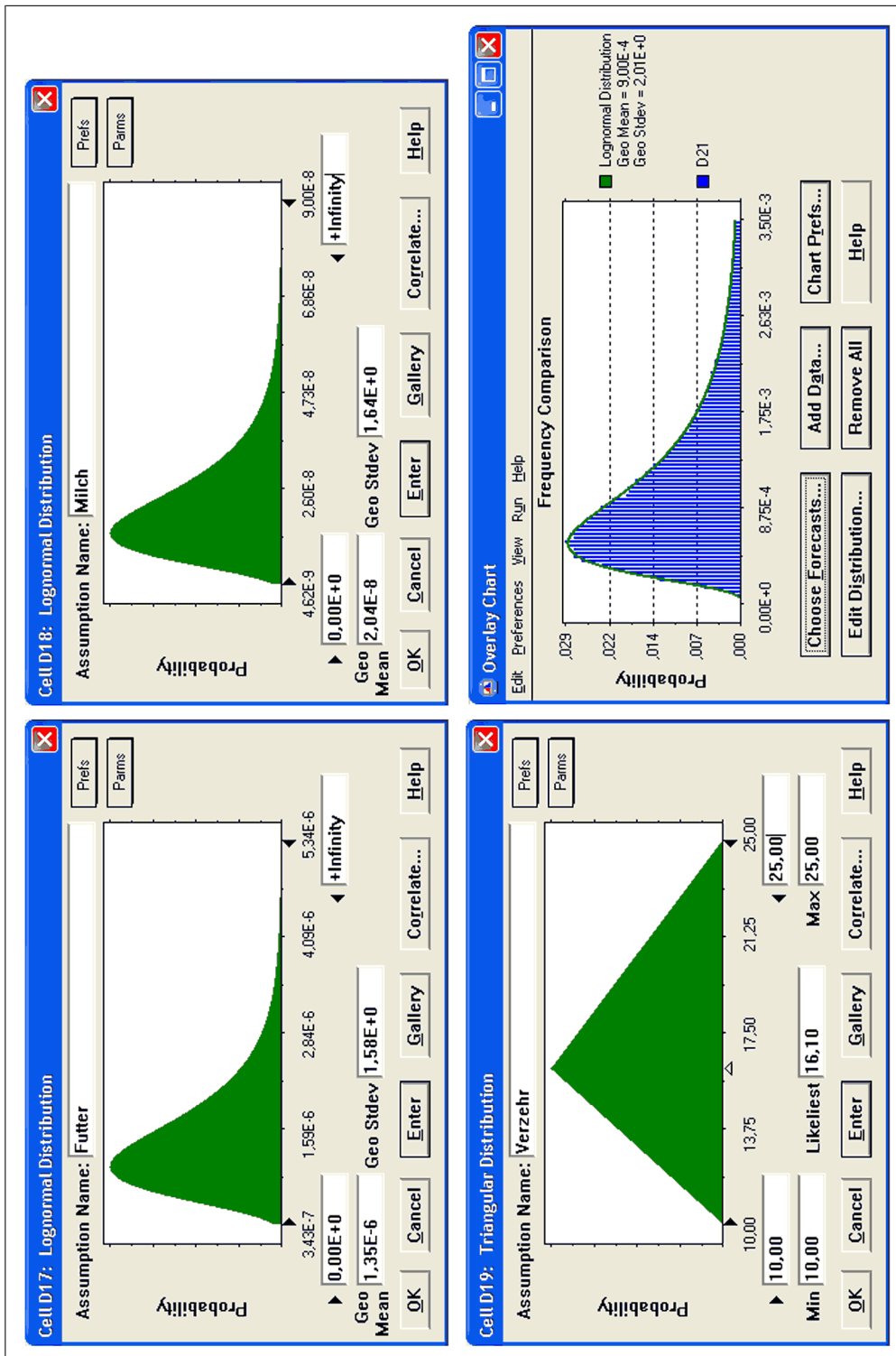


Abbildung 7.9: Berechnung von Transferfaktoren mit Crystal-Ball® am Beispiel des Transferfaktors Futter-Milch für  $^{127}\text{I}$  in Region I.

### Der Transfer von $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Milch

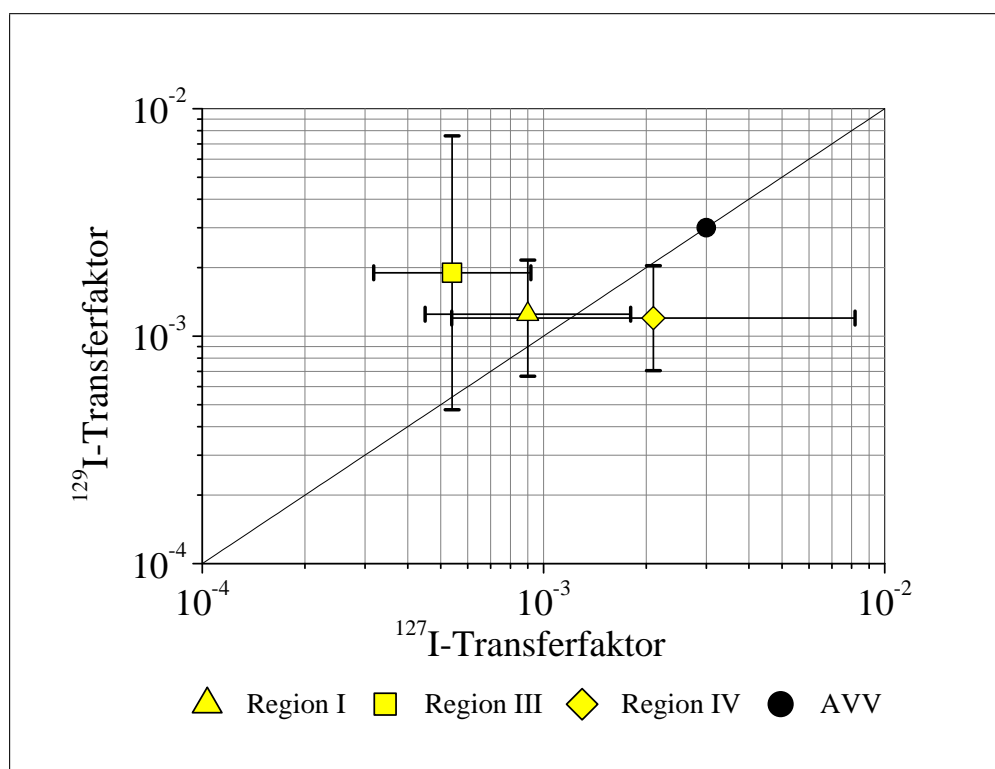
In Tabelle 7.11 sind die Ergebnisse der zuvor beschriebenen Berechnungen der Transferfaktoren Futter–Milch und der aggregierten Transferfaktoren Boden–Milch für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  dargestellt. Die Konzentrationen der Isotope in den Milch-, Futter- und Bodenproben aus Region IV wurden vor dem Anfertigungszeitraum dieser Arbeit am ZSR ermittelt.

Abbildung 7.10 zeigt die Gegenüberstellung der Transferfaktoren der beiden Iod-Isotope für den Transfer von Futter in Milch und den Transferfaktor aus der AVV. Innerhalb der großen Breiten der berechneten Verteilungen sind die Faktoren für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  nicht signifikant verschieden, die Punkte zu den Wertepaaren liegen mehr oder weniger auf der Ortslinie gleicher Transferfaktoren. Der Transferfaktor aus der AVV ( $0,003 \text{ d kg}^{-1}$ ), der auch in Übereinstimmung mit dem Modell ECOSYS steht, ist größer, aber verträglich mit den in dieser Arbeit ermittelten Werten. In anderen Literaturstellen (Tab. A.3, S. 138) finden sich noch höhere Transferfaktoren, die ebenfalls die in dieser Arbeit ermittelten Werte abdecken.

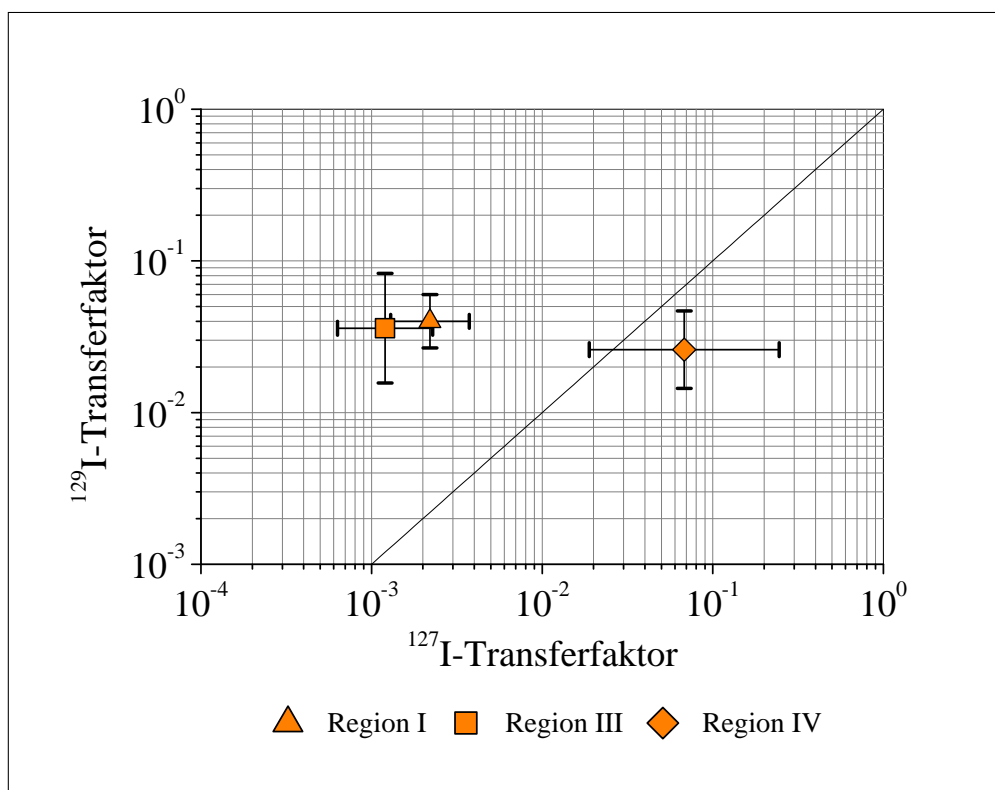
In der Darstellung der aggregierten Transferfaktoren für den Übergang vom Boden in die Milch (Abb. 7.11) zeigt das Isotop  $^{129}\text{I}$  in Region I und III signifikant höhere Transferfaktoren als  $^{127}\text{I}$ . Dagegen ist in der Region IV kein deutlicher Unterschied beim Transfer der beiden Isotope vom Boden in die Milch festzustellen. Für diesen Unterschied zwischen Region I und III einerseits und Region IV andererseits spielt möglicherweise eine Besonderheit der Böden aus Region IV eine Rolle. Ernst [2003] hat die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Vorkommen in Böden der Region IV diskutiert. Durch die Lage der Probenahmeorte im direkten Wassereinzugsgebiet der Elbe sind die dortigen Böden durch einen schnelleren, großräumigen Transport der mobilen Iod-Spezies geprägt. Dies führt, im Vergleich mit den anderen Regionen, zu verhältnismäßig niedrigen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und relativ hohen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen. Ein direkter Zusammenhang zwischen diesem Phänomen und den regionalen Unterschieden bei den aggregierten Transferfaktoren konnte jedoch nicht hergestellt werden.

**Tabelle 7.11:** Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$  für den Transfer vom Futter in die Milch bzw. als aggregierter Transferfaktor vom Boden in die Milch. Angegeben sind der geom. Mittelwert und die geom. Standardabweichung, die die ermittelte Verteilung der Transferfaktoren beschreiben.

Region	Transfer	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	Einheit u. Bezug auf
I	Milch/Futter	$0,0009 \cdot 2,0^{\pm 1}$	$0,0012 \cdot 1,8^{\pm 1}$	$\text{d kg}^{-1} \text{ FM}$
III	Milch/Futter	$0,00054 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$0,0019 \cdot 4,0^{\pm 1}$	$\text{d kg}^{-1} \text{ FM}$
IV	Milch/Futter	$0,0021 \cdot 3,9^{\pm 1}$	$0,0012 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$\text{d kg}^{-1} \text{ FM}$
I	Milch/Boden	$0,0022 \cdot 1,7^{\pm 1}$	$0,04 \cdot 1,5^{\pm 1}$	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



**Abbildung 7.10:** Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Futter in Milch in der Einheit  $\text{d kg}^{-1}$ . Die „Fehlerbalken“ geben die Breite der ermittelten Verteilung der Werte in Form der geometrischen Standardabweichung an. Das Wertepaar zu Region I wurde etwas höher eingezeichnet, um eine Überlappung der „Fehlerbalken“ zu verhindern.



**Abbildung 7.11:** Aggregierte Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Milch. Die „Fehlerbalken“ geben die Breite der ermittelten Verteilung der Werte in Form der geometrischen Standardabweichung an.

**Tabelle 7.12:** Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$  für den Transfer vom Futter in das Fleisch bzw. als aggregierter Transferfaktor vom Boden in das Fleisch. Angegeben sind der geom. Mittelwert und die geom. Standardabweichung, die die ermittelte Verteilung der Transferfaktoren beschreiben.

Region	Transfer	$^{127}\text{I}$	$^{129}\text{I}$	Einheit u. Bezug auf
I	Rind/Futter	$0,0065 \cdot 2,3^{\pm 1}$	$0,0012 \cdot 2,2^{\pm 1}$	$\text{d kg}^{-1}$ FM
III	Schaf/Futter	$0,026 \cdot 2,9^{\pm 1}$	$0,031 \cdot 2,4^{\pm 1}$	$\text{d kg}^{-1}$ FM
III	Ziege/Futter	$0,19 \cdot 2,8^{\pm 1}$	$0,12 \cdot 2,8^{\pm 1}$	$\text{d kg}^{-1}$ 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

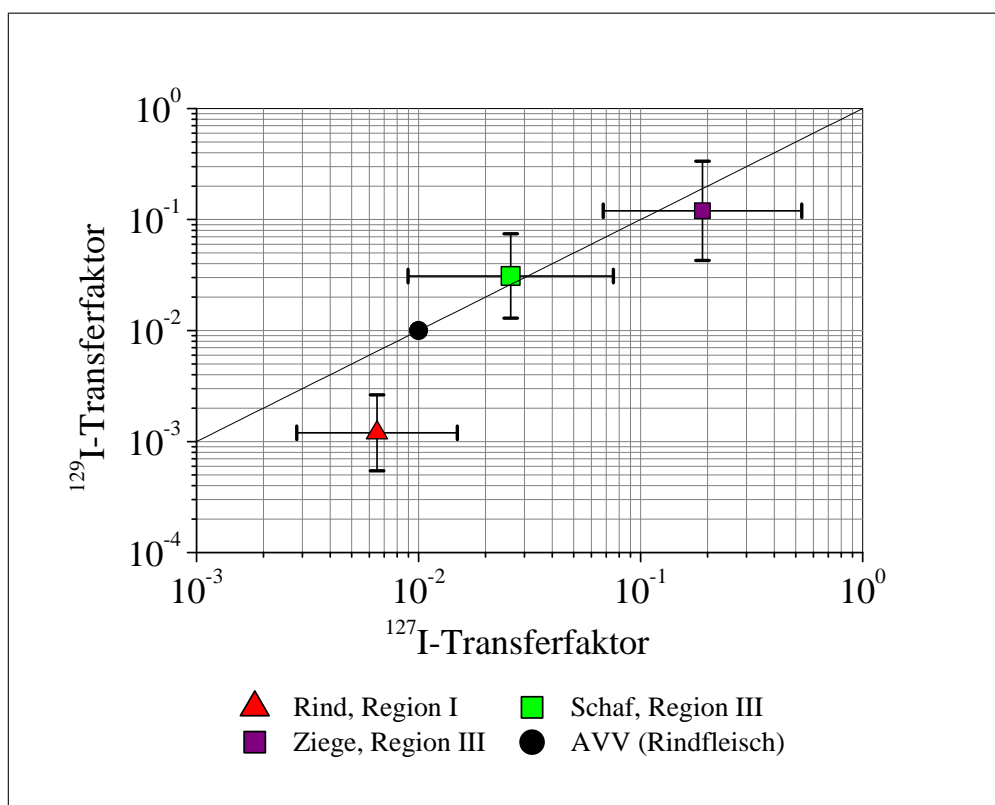


### Der Transfer von $^{127}\text{I}$ und $^{129}\text{I}$ in Fleisch

Der Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Futter in essbares Muskelfleisch konnte am Beispiel je eines Rindes, eines Schafes und einer Ziege bestimmt werden. Ein aggregierter Transferfaktor Boden–Fleisch konnte nur für das Rind und das Schaf ermittelt werden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 7.12 zusammengefasst.

Beim Transfer vom Futter ins Rind-, Schaf- und Ziegenfleisch (Abb. 7.12) bzw. vom Boden in Rind- und Schaffleisch weisen die beiden Iod-Isotope jeweils keine signifikanten Unterschiede auf. Der Transferfaktor vom Futter in das Fleisch eines Rinds wurde in dieser Arbeit zu  $0,0012 \cdot 2,2^{\pm 1} \text{ d kg}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$  und zu  $0,0065 \cdot 2,3^{\pm 1} \text{ d kg}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  bestimmt. Die in der Literatur verfügbaren Transferfaktoren für den Transfer von Iod vom Futter in Rindfleisch sind in Tabelle A.4 auf S. 139 zusammengestellt. Diese Literaturdaten variieren zwischen  $0,001 \text{ d kg}^{-1}$  und  $0,05 \text{ d kg}^{-1}$ . Dabei wurden die größten Transferfaktoren mit  $0,05 \text{ d kg}^{-1}$  bzw.  $0,04 \text{ d kg}^{-1}$  von der IAEA [1994, 2001] und in dem neueren Kompendium von Staven u. a. [2003] veröffentlicht. In die radioökologischen Modelle haben bisher eher geringe Transferfaktoren zur Beschreibung des Transfers Futter–Fleisch Einzug gehalten. Die AVV verwendet  $0,01 \text{ d kg}^{-1}$  und stimmt damit recht gut mit dem hier gefundenen Wert für  $^{127}\text{I}$  überein. Der im Modell ECOSYS [Müller und Pröhl 1993] verwendete Faktor  $0,001 \text{ d kg}^{-1}$  ist in guter Übereinstimmung mit dem in dieser Arbeit gefundenen Wert für  $^{129}\text{I}$ . Das Modell FARMLAND [Brown und Simmonds 1995] verwendet  $0,005 \text{ d kg}^{-1}$ .

Größere Transferfaktoren als für Rindfleisch wurden für Schaf- und Ziegenfleisch ermittelt. Die im Ziegenfleisch gefundenen Werte  $0,19 \cdot 2,8^{\pm 1} \text{ d kg}^{-1}$  für  $^{127}\text{I}$  und  $0,12 \cdot 2,8^{\pm 1} \text{ d kg}^{-1}$  für  $^{129}\text{I}$  übersteigen alle in der Literatur gefundenen Transferfaktoren für den Transfer von Iod aus Futter in Tierfleisch. Nur ein von Müller und Pröhl [1993] für den Iod-Transfer in Geflügel angegebener Faktor liegt mit  $0,1 \text{ d kg}^{-1}$  in dieser Größenordnung.



**Abbildung 7.12:** Transferfaktoren für den Übergang von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Futter in das Fleisch verschiedener Tiere. Die „Fehlerbalken“ geben die Breite der ermittelten Verteilung der Werte in Form der geometrischen Standardabweichung an.

## 8 Zusammenfassung und Ausblick

Die natürlichen Vorkommen des langlebigen, radioaktiven Iod-Isotops  $^{129}\text{I}$  sind in den letzten 50 Jahren weltweit durch anthropogenes  $^{129}\text{I}$  dramatisch verändert worden. Dies äußert sich in allen Iod-austauschenden Umweltkompartimenten in  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen, die das prä nukleare Verhältnis von etwa  $10^{-12}$  um mehrere Größenordnungen übersteigen.

Für die Erhöhung des Inventars dieses Isotops in Mitteleuropa sind vor allem die weiterhin andauernden Emissionen der beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague (Frankreich) und Sellafield (Großbritannien) verantwortlich.

In dieser Arbeit wurde die aktuelle radioökologische Situation des  $^{129}\text{I}$  in Norddeutschland beschrieben. Dazu wurden in den Jahren 2001 bis 2003 Umweltproben von verschiedenen nordseeküstennahen und -fernen Standorten genommen und auf ihre Gehalte an  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  analysiert.

Um den Pfad des Iods durch die Umwelt bis zum Menschen nachverfolgen zu können, wurden folgende Probenarten untersucht: Böden, Weide- und Wiesenbewuchs, verschiedene Blatt- und Wurzelgemüse, Getreide, Milch und essbares Tierfleisch. Hinzu kamen Gesamtnahrungsprouben sowie menschliche und tierische Schilddrüsen. An iodierten Speisesalzen, medizinischen Iod-Präparaten und Leitungswasser konnten erste Analysen durchgeführt werden. Desweiteren wurden Zeitreihen von Niederschlags-, Oberflächen- und Grundwässern, die seit 1997 am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie durchgeführt werden, fortgesetzt. Für den Transfer von Iod auf den Pfaden Boden–Pflanze, Futter–Milch und Futter–Tierfleisch wurden als radioökologische Parameter die Transferfaktoren für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  berechnet und verglichen.

Als analytische Methoden kamen zur Bestimmung von  $^{127}\text{I}$  die Massenspektrometrie mit induziert gekoppeltem Plasma (ICP-MS) und die Ionenchromatographie (IC) zum Einsatz. Mit der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) wurde das Isotop  $^{129}\text{I}$  quantifiziert. In den Proben von menschlichen Schilddrüsen, die sehr hohe Konzentrationen beider Isotope aufweisen, wurde die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) zur parallelen Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  angewandt. Die Abtrennung von Iod aus der Proben-

matrix erfolgte für feste Proben mit einem oxidativen Aufschluss durch Verbrennung im Sauerstoffstrom und für flüssige Proben durch Festphasenextraktion.

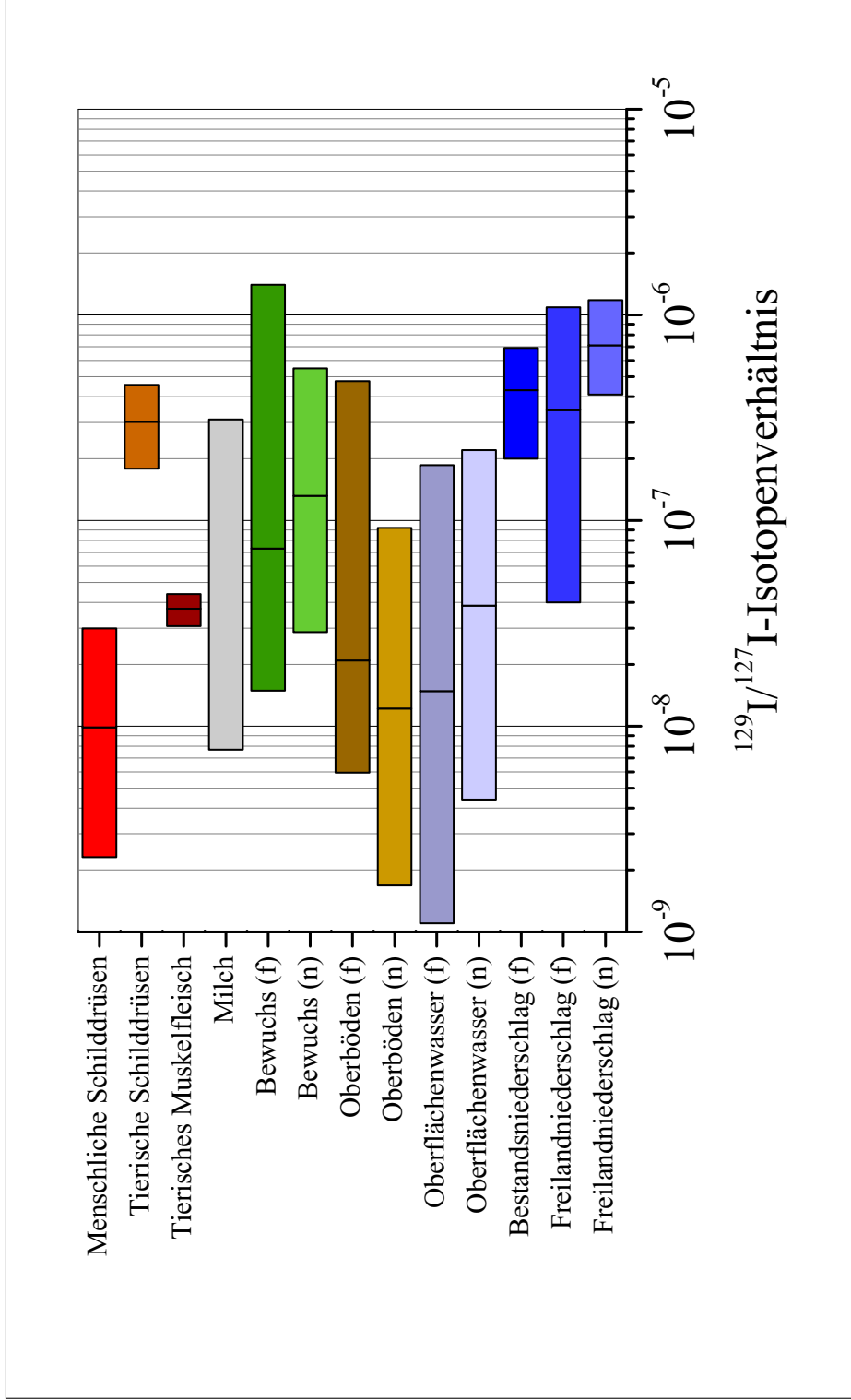
### Zusammenstellung der wichtigsten Ergebnisse

Die ermittelten Konzentrationen der beiden Iod-Isotope  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  sind alleine nicht geeignet, die radioökologische Situation des Iods zu beschreiben. Bei den unterschiedlichen Probenarten beziehen sie sich auf verschiedene Matrices und sind daher nicht vergleichbar. Dagegen kann das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis Aufschluss über Transport- und Austauschvorgänge zwischen verschiedenen Umweltkompartimenten geben, da es unabhängig von der Bezugsmatrix ist. Abbildung 8.1 zeigt die in den unterschiedlichen Probenarten bestimmten Isotopenverhältnisse im Vergleich.

Mit dem Niederschlag wird Iod in die Umwelt eingetragen. Hier liegt das Isotopenverhältnis aktuell zwischen etwa  $4 \cdot 10^{-8}$  und  $1 \cdot 10^{-6}$ . Der küstennahe Freilandniederschlag weist ein signifikant höheres mittleres Isotopenverhältnis auf, als der küstenferne. Im Bestandsniederschlag ist das trocken auf der Pflanzenoberfläche deponierte Iod mit enthalten, die Konzentrationen der beiden Isotope sind deutlich höher als im Freilandniederschlag. Das mittlere Isotopenverhältnis im Bestandsniederschlag ist nicht von dem im ebenfalls küstenfernen Freilandniederschlag unterscheidbar.

Im Vergleich zum Niederschlag liegt das durchschnittliche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Oberflächenwasser und in Oberböden um mehr als eine Größenordnung tiefer. In einem dieser Arbeit vorausgegangenem Projekt konnte Ernst [2003] das Verhalten von Iodverbindungen im System Boden/Wasser anhand der Dynamik der Sorption, der Migration und der Akkumulation sowie anhand der unterschiedlichen Eintragszeiträume des stabilen Iods und des  $^{129}\text{I}$  erklären.

Das Isotopenverhältnis in rezenten Bewuchsproben aus Norddeutschland deckt einen weiten Bereich von etwa  $1,5 \cdot 10^{-8}$  bis etwa  $1,5 \cdot 10^{-6}$  ab. Auch die Konzentrationen der beiden Iod-Isotope variieren selbst innerhalb ähnlicher Pflanzen teils um Größenordnungen. Die separate Bestimmung von *in-situ* Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  für den Transfer Boden–Pflanze hat gezeigt, dass das Radioisotop scheinbar besser für die Aufnahme in Pflanzen verfügbar ist. Diese Beobachtung lässt sich mit einem Beitrag der trockenen und nassen atmosphärischen Deposition zum Iodgehalt der Pflanzen erklären. Er wird nicht nur durch die Iodaufnahme aus dem Boden über die Wurzeln bestimmt. Da das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Durchschnitt im Niederschlag höher als im Boden ist, ergibt sich insgesamt ein höherer *in-situ* Transferfaktor für  $^{129}\text{I}$ .



**Abbildung 8.1:** Übersicht der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den in dieser Arbeit untersuchten Umweltproben. Mit (n) sind die küstennahen Proben, mit (f) die küstenfernen markiert. Gezeigt ist der Bereich zwischen dem niedrigsten und dem höchsten gemessenen Isotopenverhältnis. Der senkrechte Strich innerhalb der farbigen Balken markiert die Lage des geometrischen Mittelwertes. Bei der Milch wurde auf diese Marke verzichtet, da es hier bisher ungeklärte regionale Unterschiede innerhalb Norddeutschlands gibt und eine Mittelwertbildung über alle Daten nicht sinnvoll ist. Beim Niederschlag, den Oberflächenwässern, bei Milch und den menschlichen Schilddrüsen sind neben den Daten aus dieser Arbeit auch einige aus vorhergehenden Arbeiten des ZSR mit eingeschlossen.

Als sehr komplex stellt sich der Transfer in die tierischen Nahrungsmittel Milch und Fleisch dar. Die in dieser Arbeit untersuchten Milchproben aus den Jahren 2001 bis 2003 weisen Isotopenverhältnisse von  $1,6 \cdot 10^{-7}$  bis  $3,2 \cdot 10^{-7}$  auf. Hingegen wurden bei Untersuchungen aus den Jahren 1998 bis 2001, aus einer anderen Region Niedersachsens, deutlich geringere Verhältnisse zwischen  $7,7 \cdot 10^{-9}$  und  $1,9 \cdot 10^{-7}$  gemessen, die auch eine höhere Variabilität zeigen. Die Transferfaktoren von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  für den Übergang Futter–Milch sind innerhalb der großen Schwankungsbreite der Einzelwerte nicht voneinander unterscheidbar. Selbiges gilt auch für den Transfer Futter–Tierfleisch. In drei untersuchten Proben essbaren Tierfleisches wurde allerdings mit durchschnittlich etwa  $3,7 \cdot 10^{-8}$  ein signifikant tieferes Isotopenverhältnis gefunden als in den Schilddrüsen der Tiere (ca.  $3 \cdot 10^{-7}$ ).

Der Transfer der Iod-Isotope zum Menschen ist von den normalen radioökologischen Pfaden weitgehend entkoppelt. In 10 untersuchten Gesamtnahrungsproben konnte  $^{127}\text{I}$  in Konzentrationen zwischen  $90 \text{ ng g}^{-1}$  und  $485 \text{ ng g}^{-1}$ , bezogen auf die Frischmasse, nachgewiesen werden. Das Radionuklid  $^{129}\text{I}$  konnte jedoch nur in einer Probe quantifiziert werden. Das Isotopenverhältnis liegt in der untersuchten Gesamtnahrung in der Regel unter  $1 \cdot 10^{-8}$  und damit unter den durchschnittlichen Verhältnissen in den frischen Nahrungsmitteln Gemüse, Milch und Fleisch. Es kann davon ausgegangen werden, dass das natürliche Iod bei der haushaltsüblichen und industriellen Zubereitung der Nahrungsmittel zu einem großen Teil entfernt wird. Die Verwendung von iodierten Speisesalzen führt Iod in die Nahrungskette ein, das vermutlich aufgrund seiner Herkunft sehr wenig anthropogenes  $^{129}\text{I}$  enthält. In ersten Experimenten konnte in drei untersuchten Proben solcher iodierten Speisesalze kein Isotopenverhältnis größer als etwa  $1 \cdot 10^{-11}$  nachgewiesen werden.

In menschlichen Schilddrüsen aus Norddeutschland aus den Jahren 1999 bis 2003 wurden  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $2,3 \cdot 10^{-9}$  und  $3 \cdot 10^{-8}$  mit einem mittleren Verhältnis von  $1 \cdot 10^{-8}$  gefunden. Ein Vergleich mit älteren Daten aus den Jahren 1979 bis 1990 zeigt trotz des bis Ende der 1980er Jahre steigenden anthropogenen Eintrags von  $^{129}\text{I}$  keine Zunahme der Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen.

### **Ausblick**

Das anthropogen eingetragene  $^{129}\text{I}$  wurde in dieser Arbeit als Tracer für den Iodaustausch zwischen verschiedensten Umweltkompartimenten genutzt. Die unterschiedlichen Eintragszeiträume von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  bewirken ein Ungleichgewicht der beiden Isotope in der europäischen Umwelt – in verschiedenen Umweltkompartimenten finden sich unterschiedliche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. In der hier erzielten Gesamtschau offenbart sich die Komplexität der Pfade von Iod durch die verschiedensten Umweltkompartimente bis hin zum Men-

schen. Für einige der untersuchten Umweltbereiche können die in dieser Arbeit ermittelten Daten allerdings nur erste Anhaltspunkte für weitere Untersuchungen geben. So zeigt das Verhalten der Iod-Isotope in Waldökosystemen einige Besonderheiten, die in Zukunft näher untersucht werden sollten. Die Beobachtung, dass sich in tierischen Schilddrüsen deutlich höhere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse finden als im tierischem Muskelfleisch sollte anhand weiterer Proben überprüft werden. Nicht nur in diesem Fall könnte die Bestimmung der chemischen Spezies, in denen die Iod-Isotope vorliegen, eine weitere Klärung des komplexen Iodtransfers ermöglichen. Die Aufnahme von Iod mit der Nahrung sollte im Hinblick auf das  $^{129}\text{I}$  an weiteren Nahrungsmittel wie z. B. Trinkwasser und Fischen unterschiedlicher Herkunft untersucht werden.

Neben diesen radioökologischen Fragestellungen ist es zudem weiterhin notwendig, den Ist-Zustand im Bezug auf die Vorkommen des  $^{129}\text{I}$  in den verschiedenen Umweltkompartimenten zu beobachten. Nur dann kann die weiter andauernde anthropogene Veränderung auch in Zukunft registriert und quantifiziert werden.





# **A Tabellenanhang: Literaturdaten**

**Tabelle A.1:** Zeitreihen von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in Algen bzw. Seetang von der norwegischen und dänischen Küste im Vergleich zu den gemeinsamen flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield. Zusammenstellung nach Michel u. a. [2004], basierend auf Daten von Hou u. a. [1999, 2000b, 2002]. Eine Karte der Probenahmeorte und eine grafische Darstellung der Daten befindet sich in den Abbildungen 3.5 und 3.6 dieser Arbeit.

Jahr	Isotopenverhältnis in Seetang und Algen				Emissionen in kg
	in $10^{-8}$ vor den Küsten von				
	Klint	Utsira	Bornholm	Roskilde	
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

**Tabelle A.2: Transferfaktoren** für den Transfer von Iod-Isotopen aus dem **Boden** in **Pflanzen** (Futterpflanzen, menschl. Nahrungsmittel). TM = Trockenmasse, FM = Frischmasse. Diese Transferfaktoren sind einheitlos. Die Bezeichnungen aus den Originalliteraturstellen wurden beibehalten. Siehe auch Kapitel 4.3.

Bezeichnung	Wert	bezogen auf	Literatur
Transferfaktor Boden-Weidegras	0,1	FM/TM	BMU [2003]
Transferfaktor Boden-Pflanze	0,02	FM/TM	BMU [2003]
Default values of Bv2 concentration factors in food crops in Bq g <sup>-1</sup> fresh food per Bq g <sup>-1</sup> dry soil	0,02	FM/TM	IAEA [1982]
Soil to plant transfer factors in Bq per dry weight grass/Bq per dry weight soil	0,0034 <sup>a)</sup>	TM/TM	IAEA [1994]
Soil to plant transfer factors in Bq per dry weight crop/Bq per dry weight	0,02	TM/TM	IAEA [1994]
Transfer factor for terrestrial foods, forage in dry weight	0,1	TM	IAEA [2001]
Transfer factor for terrestrial foods, crops in fresh weight	0,02	FM	IAEA [2001]
Transferfaktoren für Boden zu Pflanzen: Gras, Mais Silage, Maiskolben, Kar- toffeln, rote Bete, rote Bete Blätter, Getreide, Blattgemüse, Wurzel- gemüse, Fruchtgemüse, Früchte, Beeren in Bq kg <sup>-1</sup> Pflanze Frischmasse pro Bq kg <sup>-1</sup> Boden Trockenmasse	0,1	FM/TM	Müller und Pröhl [1993]
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil green vegetables	0,02	FM/TM	Brown und Simmonds [1995]
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil grain	0,02	FM/TM	Brown und Simmonds [1995]
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil Root vegetables	0,02	FM/TM	Brown und Simmonds [1995]
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil potatoes	0,02	FM/TM	Brown und Simmonds [1995]
Soil to plant transfer factor wet weight plant to dry weight soil pasture	0,02	FM/TM	Brown und Simmonds [1995]
Transfer Factors for Leafy Vegetables, Fruit, Root Vegetables, Grain	0,04	TM/TM	Staven u. a. [2003]
Transferfaktor Boden-Pflanze	0,014 <sup>b)</sup>	TM/TM	Cierjacks und Albers [2004]

a) Hierbei handelt es sich wohl um einen mittleren Wert, angegeben wird zudem ein Bereich von 0,00034 bis 0,034.

b) Geometrischer Mittelwert. Minimum und Maximum sind mit 0,001 bzw. 1,86 angegeben.

**Tabelle A.3: Transferfaktoren** für den Transfer von Iod-Isotopen aus dem **Futter** in die **Milch** von Kühen, Schafen und Ziegen. Die Bezeichnungen aus den Originalliteraturstellen wurden beibehalten. Siehe auch Kapitel 4.3.

Bezeichnung	Wert	Einheit	Literatur
Transferfaktor Futter – Milch	0,003	d kg <sup>-1</sup>	BMU [2003]
Default values of Fm, the transfer coefficient to milk	0,01	d L <sup>-1</sup>	IAEA [1982]
Transfer coefficient for cow milk	0,01 (0,001–0,035)	d L <sup>-1</sup>	IAEA [1994]
Transfer factor for terrestrial foods, cattle milk	0,01	d L <sup>-1</sup>	IAEA [2001]
Transferfaktoren Futter – tierisches Produkt: Kuhmilch	0,003	d kg <sup>-1</sup>	Müller und Pröhl [1993]
Transfer Factor for Milk	0,009	d L <sup>-1</sup>	Staven u. a. [2003]
transfer factors for cattle milk	0,005	d L <sup>-1</sup>	Brown und Simmonds [1995]
Transferfaktoren Futter – tierisches Produkt: Schafs- und Ziegenmilch	0,5	d L <sup>-1</sup>	Müller und Pröhl [1993]
Transferfaktor Futter–Schafsmilch, basierend auf <sup>131</sup> I	0,4	d L <sup>-1</sup>	Monte [1990]
Transfer coefficient for sheep milk	0,49 (0,08–0,94)	d L <sup>-1</sup>	IAEA [1994]
Transferfaktor Futter – Ziegenmilch	0,23 <sup>a)</sup>	d L <sup>-1</sup>	Green und Woodman [2003]
Transfer coefficient for goat milk	0,43 (0,06–0,65)	d L <sup>-1</sup>	IAEA [1994]

a) angegeben ist der Mittelwert von 6 Werten, basierend auf <sup>125</sup>I und <sup>131</sup>I. Die Standardabweichung beträgt 0,17 d L<sup>-1</sup>. Minimum und Maximum sind mit 0,06 d L<sup>-1</sup> bzw. 0,467 d L<sup>-1</sup> angegeben.

**Tabelle A.4: Transferfaktoren** für den Transfer von Iod-Isotopen aus dem **Futter** in **Fleisch** verschiedener Tiere. Die Bezeichnungen aus den Originalliteraturstellen wurden beibehalten. Siehe auch Kapitel 4.3

Bezeichnung	Wert	Einheit	Literatur
Transferfaktor Futter – Fleisch	0,01	d kg <sup>-1</sup>	BMU [2003]
Transfer factor for terrestrial foods, meat	0,05	d kg <sup>-1</sup>	IAEA [2001]
Default value of Ff transfer coefficient to beef (fresh meat)	0,01	d kg <sup>-1</sup> FM	IAEA [1982]
Transferfaktor Futter – Rindfleisch für <sup>129</sup> I	0,011	d kg <sup>-1</sup> FM	Hauschild und Aumann [1989]
Transfer coefficient for beef	0,04 (0,007–0,05)	d kg <sup>-1</sup>	IAEA [1994]
Transferfaktoren Futter – tierisches Produkt: Rindfleisch	0,001	d kg <sup>-1</sup>	Müller und Pröhl [1993]
Transfer factors for Beef	0,04	d kg <sup>-1</sup>	Staven u. a. [2003]
transfer factors for cattle meat fraction of the daily intake by ingestion transferred to one kg meat	0,005	d kg <sup>-1</sup>	Brown und Simmonds [1995]
Transfer coefficient for sheep meat	0,03	d kg <sup>-1</sup>	IAEA [1994]
Transferfaktoren Futter – tierisches Produkt: Lamm, Roedeer	0,01	d kg <sup>-1</sup>	Müller und Pröhl [1993]
transfer factors for sheep meat fraction of the daily intake by ingestion transferred to one kg meat	0,05	d kg <sup>-1</sup>	Brown und Simmonds [1995]
Transfer coefficient for pork	0,0033 (0,00018–0,0033)	d kg <sup>-1</sup>	IAEA [1994]
Transferfaktor für Schweinefleisch- und inneren, basierend auf <sup>129</sup> I	0,015 ± 0,007	d kg <sup>-1</sup>	Robens u. a. [1988]
Transferfaktor für Schweinefleisch- und inneren, basierend auf <sup>127</sup> I	0,066 ± 0,01	d kg <sup>-1</sup>	Robens u. a. [1988]
Transferfaktoren Futter tierisches Produkt: Kalbfleisch, Schwein	0,003	d kg <sup>-1</sup>	Müller und Pröhl [1993]
Transfer coefficient for poultry	0,01	d kg <sup>-1</sup>	IAEA [1994]
Transferfaktoren Futter – tierisches Produkt: Geflügel	0,1	d kg <sup>-1</sup>	Müller und Pröhl [1993]
Transfer factors for Poultry	0,05	d kg <sup>-1</sup>	Staven u. a. [2003]

**Tabelle A.5: Transferfaktoren** für den Transfer von Iod-Isotopen aus dem **Futter** in **Kuhmilch** nach Green und Woodman [2003]. Die Autoren sichten eine große Anzahl an Literaturquellen. Sie konnten so nach Iod-Isotopen und Szenarien differenzieren (siehe auch Kapitel 4.3). Angegeben sind jeweils das Minimum, das Maximum, der Mittelwert mit Standardabweichung und der Median, alle in der Einheit  $d L^{-1}$ .

Typ	Mittelwert	Standard- abweichung	Median	Minimum	Maximum	Anzahl der Daten
All	0,0067	0,0051	0,005	0,00024	0,022	85
All – $^{129}I$	0,0021	0,0026	0,00129	0,00024	0,012	21
All – $^{131}I$	0,0084	0,0048	0,0078	0,0015	0,022	62
Feed – orally administered	0,0099	0,0048	0,0092	0,0032	0,022	28
Feed – continuous fallout	0,0014	0,0004	0,00125	0,00088	0,002	8
Feed – Chernobyl fallout	0,0046	0,0023	0,0035	0,0015	0,0081	11
Field – continuous fallout	0,0062	0,0053	0,0043	0,00024	0,0192	32
Field – continuous fallout $^{129}I$	0,0025	0,0031	0,0018	0,00024	0,012	14
Field – continuous fallout $^{131}I$	0,009	0,0049	0,0081	0,0028	0,0192	18
Field – Chernobyl fallout	0,0056	0,0035	0,0044	0,002	0,012	6

## **B Tabellenanhang: Probenherkunft und Probenahme**

**Tabelle B.1:** Probenahmeorte für Boden, pflanzliche und tierische Produkte und Gesamtnahrung. Die Lage der Orte ist auf der Karte in Abbildung 5.2 auf Seite 35 dargestellt. Die Abkürzung HLW steht für die Hermannsdorfer Landwerkstätten. Nicht jede genommene Probenart wurde im Hinblick auf die beiden Iod-Isotope analysiert.

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



**Tabelle B.2:** Abkürzungen im Identifikationscode der einzelnen Proben.

Orte		Beschreibung	
Bu	Buntenbock	Bb	Brombeeren
Ge	Gestorf	Bk	Blumenkohl
Gl	Gleidingen	Br	Brokkoli
Gr	Gründeich	eF	essbares Fleisch
HLW	Hermansdorfer	Ge	Gerste
	Landwerkstätten	Gr	Gras
Je	Jeinsen	Ha	Hafer
Po	Neßmerpolder	Hb	Himbeeren
Rh	Reinhausen	He	Heu
Sc	Schessinghausen	Hf	Hackfleisch
Sl	Schlewecke	Ka	Kartoffeln
		Kr	Kohlrabi
		Ks	Kopfsalat
Kategorie		La	Lauch
Ba	Baum	Mg	Mangold
Bo	Boden	Mi	Milch
Ge	Gemüse	Mr	Maronen-Röhrlinge
GES	Gesamtnahrung	Re	Reh
Ko	Korn	Sc	Schirmlinge
Ob	Obst	Sd	Schilddrüse
Pi	Pilze	Sp	Steinpilze
Re	Reh	We	Weizen
Ri	Rind	Wek	Weißkohl
Sa	Schaf	Wk	Wirsingkohl
St	Stroh		
Sw	Schwein		
Zi	Ziege		

**Tabelle B.3:** Zusammensetzung der als Gesamtnahrung untersuchten Mittagessen der Hauptmensa der Universität Hannover.

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
	Wahlmenü mit Fleisch	Bifteki Schweinehack mit Schafskäse, Zaziki	227
	Wahlmenü ohne Fleisch in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Vegetarisches Frikassee mit Tofu Tomatenreis, Pommes frites, Gemüse, Mais-Zucchini Gemüse mit Tomate, Salat mit Schnittlauchdressing	377
09.04.2002	Eintopf	Spargelintopf mit Mettklößchen, Brötchen	626
	Vollwertmenü	Putenbrustfilet mit Zwiebelkruste, Paprikasauce, gemischtem Gemüse und Kräuterris, Birnenkompott	424
	Wahlmenü mit Fleisch	Hähnchenbrustfilet mit Erdnussauce	405
	Wahlmenü ohne Fleisch in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Zwiebel-Käseschnitte mit Estragonrahmsauce Kürkumareis, Gemüse, Kohlrabigemüse, gem. Salat mit Orangendressing	401
10.04.2002	Eintopf	Kichererbseneintopf	526
	Vollwertmenü	Spätzlepfanne mit Putenfleisch und Gemüse, gemischter Salat mit Joghurt-Kräuterdressing	466
	Wahlmenü mit Fleisch	Schweinegeschnetzeltes Zürcher Art	494
	Wahlmenü ohne Fleisch in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Falafelbratling mit Gemüserahmsauce Salzkartoffeln, Spiralmudeln	383
11.04.2002	Eintopf	Botaggio italienischer Geflügeleintopf, Ciabattabrot	761
	Tellergericht	Senfeier mit Petersilienkartoffeln und Kopfsalat mit Zitronendressing	433
	Wahlmenü mit Fleisch	Spießbraten mit Burgundersauce	372
	Wahlmenü ohne Fleisch in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Sojagulasch mit buntem Gemüse Schnittlauchkartoffeln, Chilireis, Gemüse, Italienisches Mischgemüse, Möhrenrohkostsalat mit Äpfeln und Sesam	388
12.04.2002	Eintopf	Irish Stew Lammeintopf, Bauernbrot	660
	Tellergericht	Hot Dog mit Pommes frites und American Salat mit Islanddressing	355
	Wahlmenü mit Fleisch	Heilbutsteak mit Estragon-Senfsauce	425
	Wahlmenü ohne Fleisch in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Knusperschnitte Hawaii mit Currysauce Butterkartoffeln, Makkaroni, Gemüse, Balkangemüse, Fenchel-Karottensalat	434

Fortsetzung folgt

Fortsetzung von Tabelle B.3

Tag	Menü	Zusammensetzung	Masse in g
12.08.2002	Eintopf	Milchreis mit Früchten	437
	Tellergericht	Chili con Carne (Rindfleisch), Naturreis und gem. Salat mit Quarkdressing	429
	Wahlmenü mit Fleisch	Schweineschnitzel Toscana, Pizzaoilauce mit Oliven	391
	Wahlmenü ohne Fleisch	Championburger mit Sellerie-Apfelcremesauce	281
	in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Herzoginkartoffeln, Gnocchi mit Lauch, Chinakohlalat mit Paprikastreifen, Buttererbsen, Joghurtcremesuppe	
13.08.2002	Eintopf	Linseintopf 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
	in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Maissalat, Lauchgemüse in Rahm mit Curry, heller und dunkler Reis mit Sonnenblumenkernen, Kroketten	
14.08.2002	Eintopf	Salatteller mit Calamaris, Joghurt-Kräuterdressing und Baguette	185
	Tellergericht	Kohlroulade mit Kümmeljus, Salzkartoffeln und Rote-Bete-Salat	316
	Wahlmenü mit Fleisch	Hähnchen-Piccata mit Tomaten-Frischkäsesauce	351
	Wahlmenü ohne Fleisch	Makkaroni, Käsesauce mit Ratatouillewürfel	274
	in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Safranrisotto, Makkaroni, Tomatensalat, Paprika-Zwiebelgemüse, Kartoffelsuppe mit Mais, Melonenjoghurt mit Minze	
15.08.2002	Eintopf	Botaggio italienischer Geflügeleintopf, Ciabattabrot	325
	Tellergericht	Vegetarische Frühlingsrolle, Chinesische Sauce, Butterreis und Eisbergsalat mit Mandarinen	322
	Wahlmenü mit Fleisch	Schweinebraten griechische Art mit Knoblauchsauce	396
	Wahlmenü ohne Fleisch	Gnocchi à la Romana mit Pesto	390
	in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Pommes frites, Rosmarinkartoffeln, Baltischer Gurkensalat, grünes Bohnengemüse, Zuchinisuppe, Sanddorn Dickmilch	
16.08.2002	Eintopf	Bockwurst mit Senf	258
	Tellergericht	Pizza Salami	380
	Wahlmenü mit Fleisch	Gebackenes Schollenfilet	455
	Wahlmenü ohne Fleisch	Vegetarisches Frikassee	308
	in den Wahlmenüs enthaltene Beilagen	Apfel-Möhren-Fenchelsalat, Blattspinat, Vollkornrisotto mit Kräutern, Salzkartoffeln	



## **C Tabellenanhang: Ergebnisse**

**Tabelle C.1:** Zeitreihe von **Freilandniederschlag** der Probenahmestelle „Norderney“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	Quelle
14.02.1997	$4,9 \pm 0,9$	$3,00 \pm 0,40$	$6,0 \pm 1,3$	[Szidat 2000]
16.05.1997	$3,5 \pm 0,8$	$3,40 \pm 0,50$	$9,5 \pm 2,6$	[Szidat 2000]
31.07.1997	$2,6 \pm 0,6$	$2,30 \pm 0,15$	$8,7 \pm 2,1$	[Szidat 2000]
31.10.1997	$3,8 \pm 0,9$	$2,80 \pm 0,20$	$7,2 \pm 1,8$	[Szidat 2000]
14.02.1998	$4,0 \pm 0,9$	$4,17 \pm 0,27$	$10,2 \pm 2,4$	[Szidat 2000]
16.05.1998	$3,8 \pm 0,8$	$3,12 \pm 0,29$	$8,1 \pm 1,9$	[Szidat 2000]
31.07.1998	$2,4 \pm 0,5$	$1,80 \pm 0,50$	$7,4 \pm 2,8$	[Szidat 2000]
31.10.1998	$1,5 \pm 0,4$	$1,65 \pm 0,18$	$10,7 \pm 2,8$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$2,9 \pm 0,6$	$2,06 \pm 0,11$	$7,1 \pm 1,5$	[Szidat 2000]
16.05.1999	$3,0 \pm 0,6$	$2,67 \pm 0,17$	$8,8 \pm 1,8$	[Szidat 2000]
10.10.1999	$3,8 \pm 0,5$	$2,62 \pm 4,14$	$6,8 \pm 1,1$	[Ernst 2003]
03.03.2000	$2,7 \pm 0,4$	$3,17 \pm 4,51$	$11,8 \pm 1,8$	[Ernst 2003]
10.08.2000	$3,4 \pm 1,0$	$1,86 \pm 2,84$	$5,4 \pm 1,5$	[Ernst 2003]
09.09.2001	$3,8 \pm 0,1$	$1,79 \pm 2,83$	$4,6 \pm 0,2$	[Ernst 2003]
04.12.2001	$3,4 \pm 0,1$	$1,74 \pm 2,66$	$5,0 \pm 0,2$	[Ernst 2003]
25.03.2002	$2,2 \pm 0,4$	$1,61 \pm 0,05$	$7,1 \pm 1,2$	diese Arbeit
18.08.2002	$2,4 \pm 0,1$	$1,00 \pm 0,05$	$4,1 \pm 0,3$	diese Arbeit
23.11.2002	$2,0 \pm 0,2$	$1,18 \pm 0,02$	$5,8 \pm 0,7$	diese Arbeit
09.03.2003	$4,0 \pm 0,3$	$2,54 \pm 0,07$	$6,3 \pm 0,5$	diese Arbeit
15.08.2003	$2,4 \pm 0,4$	$1,64 \pm 0,05$	$6,7 \pm 1,1$	diese Arbeit
15.11.2003	–	$1,40 \pm 0,04$	–	diese Arbeit
geo. Mittel	3,01	2,12	7,09	
geo. Standardabw.	1,34	1,45	1,33	
Minimum	1,5	1,00	4,1	
Maximum	4,9	4,17	11,8	

**Tabelle C.2:** Zeitreihe von **Freilandniederschlag** der Probenahmestelle „**Buer-Ostenwalde**“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	Quelle
14.02.1997	$1,0 \pm 0,4$	$1,24 \pm 0,17$	$6,0 \pm 1,4$	[Szidat 2000]
16.05.1997	$1,7 \pm 0,4$	$1,50 \pm 0,12$	$8,7 \pm 2,2$	[Szidat 2000]
31.07.1997	$1,1 \pm 0,3$	$0,69 \pm 0,06$	$6,1 \pm 1,6$	[Szidat 2000]
31.10.1997	$1,1 \pm 0,3$	$0,69 \pm 0,06$	$6,1 \pm 1,6$	[Szidat 2000]
14.02.1998	$2,0 \pm 0,5$	$1,19 \pm 0,12$	$5,8 \pm 1,5$	[Szidat 2000]
16.05.1998	$1,3 \pm 0,3$	$0,77 \pm 0,06$	$6,1 \pm 1,6$	[Szidat 2000]
31.07.1998	$1,1 \pm 0,3$	$1,22 \pm 0,13$	$10,9 \pm 3,0$	[Szidat 2000]
31.10.1998	$2,0 \pm 0,4$	$0,88 \pm 0,12$	$4,4 \pm 1,0$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$1,4 \pm 0,3$	$0,80 \pm 0,05$	$5,7 \pm 1,3$	[Szidat 2000]
16.05.1999	$1,1 \pm 0,2$	$0,51 \pm 0,03$	$4,4 \pm 0,9$	[Szidat 2000]
12.08.1999	$4,7 \pm 0,5$	$2,02 \pm 0,07$	$4,2 \pm 0,5$	[Ernst 2003]
20.12.1999	$1,4 \pm 0,4$	$0,81 \pm 0,03$	$5,7 \pm 1,4$	[Ernst 2003]
18.02.2000	$1,4 \pm 0,4$	$1,10 \pm 0,05$	$7,8 \pm 2,0$	[Ernst 2003]
16.05.2000	$1,5 \pm 0,5$	$0,45 \pm 0,02$	$2,9 \pm 1,0$	[Ernst 2003]
01.08.2000	$1,6 \pm 0,5$	$0,69 \pm 0,03$	$4,2 \pm 1,3$	[Ernst 2003]
19.11.2000	$1,6 \pm 0,8$	$0,29 \pm 0,01$	$1,8 \pm 1,0$	[Ernst 2003]
14.02.2001	$1,7 \pm 0,9$	$0,38 \pm 0,02$	$2,2 \pm 1,1$	[Ernst 2003]
16.05.2001	$1,7 \pm 0,9$	$0,49 \pm 0,02$	$2,8 \pm 1,4$	[Ernst 2003]
18.07.2001	$1,7 \pm 0,4$	$0,74 \pm 0,03$	$4,4 \pm 1,1$	[Ernst 2003]
15.05.2002	$2,0 \pm 0,2$	$0,58 \pm 0,02$	$2,8 \pm 0,3$	diese Arbeit
15.08.2002	$1,6 \pm 0,1$	$0,32 \pm 0,02$	$2,0 \pm 0,1$	diese Arbeit
15.11.2002	$3,9 \pm 0,3$	$0,53 \pm 0,03$	$1,3 \pm 0,1$	diese Arbeit
15.02.2003	$2,1 \pm 0,0$	$1,39 \pm 0,07$	$6,7 \pm 0,4$	diese Arbeit
15.05.2003	$2,1 \pm 0,2$	$0,43 \pm 0,01$	$2,0 \pm 0,2$	diese Arbeit
15.08.2003 <sup>1)</sup>	$19,9 \pm 1,2$	$0,72 \pm 0,01$	$0,4 \pm 0,0$	diese Arbeit
15.11.2003	$1,5 \pm 0,4$	$0,53 \pm 0,02$	$3,5 \pm 0,8$	diese Arbeit
14.02.2004	—	$1,06 \pm 0,03$	—	diese Arbeit
geo. Mittel	1,81	0,73	3,79	
geo. Standardabw.	1,83	1,63	2,04	
Minimum	1,0	0,29	0,4	
Maximum	19,9	2,02	10,9	

<sup>1)</sup> Die auffällig hohe  $^{127}\text{I}$ -Konzentration dieser Probe wurde durch Nachmessung der Rückstellproben mittels ICP-MS bestätigt.

**Tabelle C.3:** Zeitreihe von **Bestandsniederschlag** der Probenahmestelle „**Buer-Ostenwalde**“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	Quelle
14.02.1997	$10,2 \pm 2,2$	$5,20 \pm 0,60$	$5,0 \pm 1,2$	[Szidat 2000]
16.05.1997	$7,5 \pm 1,8$	$4,30 \pm 0,30$	$5,7 \pm 1,4$	[Szidat 2000]
31.07.1997	$7,1 \pm 1,7$	$3,36 \pm 0,22$	$4,7 \pm 1,2$	[Szidat 2000]
31.10.1997	$7,1 \pm 1,7$	$3,36 \pm 0,22$	$4,7 \pm 1,2$	[Szidat 2000]
14.02.1998	$8,7 \pm 1,9$	$4,30 \pm 0,40$	$4,8 \pm 1,2$	[Szidat 2000]
16.05.1998	$6,1 \pm 1,3$	$3,40 \pm 0,30$	$5,5 \pm 1,3$	[Szidat 2000]
31.07.1998	$9,4 \pm 1,7$	$6,70 \pm 0,50$	$6,9 \pm 1,4$	[Szidat 2000]
31.10.1998	$5,1 \pm 0,9$	$2,73 \pm 0,19$	$5,3 \pm 1,0$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$5,0 \pm 1,0$	$2,45 \pm 0,17$	$4,8 \pm 1,0$	[Szidat 2000]
16.05.1999	$5,3 \pm 1,1$	$2,70 \pm 0,40$	$4,9 \pm 1,3$	[Szidat 2000]
12.08.1999	$1,0 \pm 0,4$	$0,25 \pm 0,01$	$2,4 \pm 0,9$	[Ernst 2003]
20.12.1999	$5,4 \pm 0,6$	$2,92 \pm 0,21$	$5,4 \pm 0,7$	[Ernst 2003]
18.02.2000	$8,4 \pm 0,6$	$4,04 \pm 0,16$	$4,7 \pm 0,4$	[Ernst 2003]
16.05.2000	$5,4 \pm 0,6$	$3,04 \pm 0,13$	$5,6 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
01.08.2000	$6,4 \pm 0,6$	$2,40 \pm 0,10$	$3,7 \pm 0,4$	[Ernst 2003]
19.11.2000	$10,1 \pm 1,8$	$2,06 \pm 0,08$	$2,0 \pm 0,4$	[Ernst 2003]
14.02.2001	$7,2 \pm 1,5$	$2,00 \pm 0,08$	$2,7 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
16.05.2001	$6,8 \pm 1,3$	$2,68 \pm 0,12$	$3,9 \pm 0,8$	[Ernst 2003]
18.07.2001	$6,6 \pm 1,6$	$3,02 \pm 0,10$	$4,5 \pm 1,1$	[Ernst 2003]
14.02.2002	$5,6 \pm 0,3$	$2,22 \pm 0,04$	$3,9 \pm 0,2$	diese Arbeit
15.08.2002	$4,0 \pm 0,3$	$1,47 \pm 0,04$	$3,6 \pm 0,3$	diese Arbeit
15.11.2002	$5,3 \pm 0,2$	$1,41 \pm 0,07$	$2,6 \pm 0,2$	diese Arbeit
14.02.2003	$5,2 \pm 0,1$	$3,28 \pm 0,17$	$6,2 \pm 0,3$	diese Arbeit
15.05.2003	$6,2 \pm 0,3$	$2,18 \pm 0,04$	$3,5 \pm 0,2$	diese Arbeit
15.08.2003	$7,7 \pm 0,3$	$3,50 \pm 0,09$	$4,5 \pm 0,2$	diese Arbeit
15.11.2003	–	$2,36 \pm 0,09$	–	diese Arbeit
14.02.2004	–	$2,89 \pm 0,12$	–	diese Arbeit
geo. Mittel	6,07	2,64	4,28	
geo. Standardabw.	1,56	1,79	1,36	
Minimum	1,0	0,25	2,0	
Maximum	10,2	6,70	6,9	



**Tabelle C.4:** Zeitreihe von **Freilandniederschlag** der Probenahmestelle „Seesen“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	Quelle
16.05.1997	$1,7 \pm 3,0$	$0,47 \pm 0,06$	$2,8 \pm 0,7$	[Szidat 2000]
31.07.1997	$0,3 \pm 0,1$	$0,23 \pm 0,04$	$9,4 \pm 3,9$	[Szidat 2000]
31.10.1997	$1,1 \pm 0,3$	$0,66 \pm 0,05$	$6,2 \pm 1,8$	[Szidat 2000]
14.02.1998	$1,6 \pm 0,4$	$1,44 \pm 0,14$	$9,1 \pm 2,5$	[Szidat 2000]
16.05.1998	$3,0 \pm 0,7$	$0,95 \pm 0,24$	$3,2 \pm 1,1$	[Szidat 2000]
31.07.1998	$2,3 \pm 0,4$	$1,29 \pm 0,10$	$5,5 \pm 1,1$	[Szidat 2000]
31.10.1998	$1,5 \pm 0,3$	$0,67 \pm 0,05$	$4,4 \pm 0,9$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$1,8 \pm 0,3$	$0,27 \pm 0,02$	$1,5 \pm 0,3$	[Szidat 2000]
16.05.1999	$1,0 \pm 0,2$	$0,64 \pm 0,05$	$6,1 \pm 1,5$	[Szidat 2000]
19.08.1999	$1,4 \pm 0,4$	$0,34 \pm 0,01$	$2,4 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
20.11.1999	$1,0 \pm 0,4$	$0,55 \pm 0,02$	$5,4 \pm 1,9$	[Ernst 2003]
19.02.2000	$1,4 \pm 0,4$	$0,86 \pm 0,03$	$6,2 \pm 1,6$	[Ernst 2003]
18.05.2000	$2,2 \pm 0,5$	$0,57 \pm 0,02$	$2,5 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
30.08.2000	$2,2 \pm 0,5$	$0,55 \pm 0,02$	$2,5 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
geo. Mittel	1,44	0,60	4,20	
geo. Standardabw.	1,74	1,70	1,74	
Minimum	0,3	0,23	1,5	
Maximum	3,0	1,44	9,4	

**Tabelle C.5:** Zeitreihe von **Bestandsniederschlag** der Probenahmestelle „Seesen“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	Quelle
14.02.1997	$5,4 \pm 1,1$	$1,98 \pm 0,24$	$3,6 \pm 0,9$	[Szidat 2000]
16.05.1997	$6,4 \pm 1,2$	$2,30 \pm 0,50$	$3,5 \pm 1,0$	[Szidat 2000]
31.07.1997	$4,6 \pm 2,8$	$1,63 \pm 0,14$	$3,5 \pm 2,1$	[Szidat 2000]
31.10.1997	$4,9 \pm 1,5$	$1,71 \pm 0,13$	$3,4 \pm 1,1$	[Szidat 2000]
14.02.1998	$4,2 \pm 0,9$	$2,74 \pm 0,26$	$6,5 \pm 1,5$	[Szidat 2000]
16.05.1998	$5,7 \pm 1,2$	$2,38 \pm 0,22$	$4,1 \pm 1,0$	[Szidat 2000]
31.07.1998	$5,8 \pm 1,1$	$4,01 \pm 0,28$	$6,8 \pm 1,3$	[Szidat 2000]
31.10.1998	$5,6 \pm 1,0$	$2,08 \pm 0,15$	$3,7 \pm 0,7$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$3,2 \pm 0,6$	$1,49 \pm 0,09$	$4,6 \pm 1,0$	[Szidat 2000]
16.05.1999	$5,8 \pm 1,3$	$2,34 \pm 0,16$	$4,0 \pm 0,9$	[Szidat 2000]
19.08.1999	$6,9 \pm 0,8$	$2,04 \pm 0,07$	$2,9 \pm 0,3$	[Ernst 2003]
20.11.1999	$4,7 \pm 0,5$	$2,63 \pm 0,09$	$5,5 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
19.02.2000	$4,4 \pm 0,6$	$2,93 \pm 0,17$	$6,5 \pm 1,0$	[Ernst 2003]
geo. Mittel	5,11	2,25	4,34	
geo. Standardabw.	1,23	1,31	1,33	
Minimum	3,2	1,49	2,9	
Maximum	6,9	4,01	6,8	

**Tabelle C.6:** Zeitreihe von **Freilandniederschlag** der Probenahmestelle „Siemen“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-7}$	Quelle
16.05.1997	$2,0 \pm 0,4$	$0,45 \pm 0,06$	$2,2 \pm 0,5$	[Szidat 2000]
31.07.1997	$1,4 \pm 0,5$	$0,29 \pm 0,03$	$2,0 \pm 0,7$	[Szidat 2000]
31.10.1997	$1,2 \pm 0,5$	$0,79 \pm 0,06$	$6,4 \pm 2,4$	[Szidat 2000]
16.05.1998	$1,1 \pm 0,3$	$0,32 \pm 0,04$	$2,8 \pm 0,8$	[Szidat 2000]
31.07.1998	$2,0 \pm 0,4$	$0,85 \pm 0,06$	$4,2 \pm 0,8$	[Szidat 2000]
31.10.1998	$1,5 \pm 0,3$	$1,22 \pm 0,09$	$7,9 \pm 1,6$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$1,6 \pm 0,4$	$0,60 \pm 0,04$	$3,8 \pm 0,9$	[Szidat 2000]
16.05.1999	$1,0 \pm 0,3$	$0,50 \pm 0,03$	$4,7 \pm 1,2$	[Szidat 2000]
15.08.1999	$1,4 \pm 0,4$	$0,64 \pm 0,03$	$4,5 \pm 1,2$	[Ernst 2003]
31.10.1999	$1,7 \pm 0,4$	$0,70 \pm 0,03$	$4,1 \pm 0,9$	[Ernst 2003]
15.02.2000	$1,6 \pm 0,4$	$1,43 \pm 0,05$	$9,1 \pm 2,2$	[Ernst 2003]
01.05.2000	$3,0 \pm 0,5$	$0,61 \pm 0,02$	$2,0 \pm 0,4$	[Ernst 2003]
15.08.2000	$1,7 \pm 0,5$	$0,46 \pm 0,02$	$2,7 \pm 0,8$	[Ernst 2003]
14.11.2000	$1,7 \pm 0,5$	$0,27 \pm 0,01$	$1,5 \pm 0,4$	[Ernst 2003]
14.02.2001	$1,7 \pm 0,8$	$0,31 \pm 0,01$	$1,8 \pm 0,9$	[Ernst 2003]
16.05.2001	$2,2 \pm 0,9$	$0,93 \pm 0,04$	$4,1 \pm 1,6$	[Ernst 2003]
01.08.2001	$3,9 \pm 0,1$	$0,50 \pm 0,03$	$1,3 \pm 0,1$	[Ernst 2003]
15.11.2001	$1,8 \pm 0,1$	$0,68 \pm 0,02$	$3,7 \pm 0,2$	[Ernst 2003]
15.05.2002	$2,2 \pm 0,1$	$0,20 \pm 0,01$	$0,9 \pm 0,1$	diese Arbeit
15.08.2002	$2,3 \pm 0,0$	$0,33 \pm 0,02$	$1,4 \pm 0,1$	diese Arbeit
14.02.2003	$2,5 \pm 0,2$	$0,47 \pm 0,01$	$1,9 \pm 0,2$	diese Arbeit
15.05.2003	$3,1 \pm 0,3$	$0,49 \pm 0,02$	$1,6 \pm 0,1$	diese Arbeit
15.08.2003	$2,7 \pm 0,2$	$0,63 \pm 0,02$	$2,3 \pm 0,2$	diese Arbeit
15.11.2003	$2,7 \pm 0,4$	$0,50 \pm 0,02$	$1,8 \pm 0,3$	diese Arbeit
geo. Mittel	1,89	0,53	2,75	
geo. Standardabw.	1,40	1,61	1,82	
Minimum	1,0	0,20	0,9	
Maximum	3,9	1,43	9,1	

**Tabelle C.7:** Zeitreihe von **Oberflächenwasser** der Probenahmestelle „**Großes Meer**“.  
 $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-9}$	Quelle
05.03.1997	$16,2 \pm 1,8$	$250 \pm 70$	$15,0 \pm 0,6$	[Szidat 2000]
18.06.1997	$46,5 \pm 9,0$	$1050 \pm 230$	$22,0 \pm 0,6$	[Szidat 2000]
16.09.1997	$41,3 \pm 8,0$	$2400 \pm 400$	$57,0 \pm 1,4$	[Szidat 2000]
27.11.1997	$19,4 \pm 4,0$	$1600 \pm 120$	$81,0 \pm 2,0$	[Szidat 2000]
26.02.1998	$15,7 \pm 4,0$	$440 \pm 50$	$27,0 \pm 0,7$	[Szidat 2000]
27.05.1998	$26,6 \pm 6,0$	$940 \pm 100$	$25,0 \pm 0,8$	[Szidat 2000]
14.09.1998	$17,5 \pm 4,0$	$1220 \pm 140$	$69,0 \pm 1,6$	[Szidat 2000]
17.11.1998	$21,6 \pm 4,0$	$830 \pm 70$	$38,0 \pm 0,8$	[Szidat 2000]
20.01.1999	$21,3 \pm 4,0$	$590 \pm 80$	$27,0 \pm 0,6$	[Szidat 2000]
16.04.1999	$20,6 \pm 4,0$	$950 \pm 60$	$25,0 \pm 0,9$	[Szidat 2000]
06.08.1999	$41,0 \pm 8,0$	$3500 \pm 200$	$83,0 \pm 1,7$	[Szidat 2000]
01.10.1999	$17,0 \pm 3,0$	$4000 \pm 200$	$220,0 \pm 5,0$	[Szidat 2000]
16.03.2000	$11,5 \pm 1,7$	$767 \pm 30$	$65,5 \pm 10,2$	[Ernst 2003]
23.05.2000	$25,7 \pm 3,5$	$2508 \pm 140$	$96,0 \pm 14,0$	[Ernst 2003]
27.03.2001	$14,5 \pm 2,7$	$526 \pm 21$	$35,7 \pm 6,7$	[Ernst 2003]
28.06.2001	$30,6 \pm 0,4$	$136 \pm 4$	$4,4 \pm 0,1$	[Ernst 2003]
20.09.2001	$17,5 \pm 0,2$	$1028 \pm 31$	$57,8 \pm 1,7$	[Ernst 2003]
10.12.2001	$26,0 \pm 0,9$	$1009 \pm 85$	$38,3 \pm 3,2$	[Ernst 2003]
31.01.2002	$27,8 \pm 2,3$	$1051 \pm 41$	$37,2 \pm 3,4$	diese Arbeit
12.06.2002	$27,4 \pm 2,3$	$1172 \pm 50$	$42,1 \pm 3,9$	diese Arbeit
27.08.2002	$54,4 \pm 3,8$	$1920 \pm 45$	$34,8 \pm 2,6$	diese Arbeit
28.11.2002	$29,0 \pm 0,8$	$694 \pm 22$	$23,6 \pm 1,0$	diese Arbeit
12.03.2003	$24,5 \pm 2,4$	$591 \pm 19$	$23,7 \pm 2,4$	diese Arbeit
26.06.2003	$69,0 \pm 3,9$	$1647 \pm 52$	$23,5 \pm 1,5$	diese Arbeit
15.09.2003	$37,2 \pm 1,6$	$3443 \pm 109$	$91,2 \pm 4,9$	diese Arbeit
16.12.2003	–	$639 \pm 21$	–	diese Arbeit
19.02.2004	–	$472 \pm 16$	–	diese Arbeit
22.06.2004	–	$2942 \pm 99$	–	diese Arbeit
geo. Mittel	25,4	1030	38,6	
geo. Standardabw.	1,6	2,2	2,1	
Minimum	11,5	136	4,4	
Maximum	69,0	4000	220,0	

**Tabelle C.8:** Zeitreihe von **Oberflächenwasser** der Probenahmestelle „**Bokeloh**“:  
<sup>129</sup>I- und <sup>127</sup>I-Konzentrationen sowie <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Isotopenverhältnisse

Probenahme	<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- Verhältnis in 10 <sup>-9</sup>	Quelle
18.02.1997	6,4 ± 1,2	72 ± 13	11,1 ± 0,3	[Szidat 2000]
15.04.1997	8,0 ± 1,5	88 ± 12	10,8 ± 0,3	[Szidat 2000]
08.07.1997	6,5 ± 1,5	168 ± 16	26,0 ± 0,6	[Szidat 2000]
15.10.1997	7,7 ± 1,5	183 ± 17	23,0 ± 0,5	[Szidat 2000]
06.01.1998	3,9 ± 1,5	115 ± 11	29,0 ± 1,2	[Szidat 2000]
01.07.1998	6,2 ± 1,4	99 ± 12	16,0 ± 0,4	[Szidat 2000]
04.08.1998	8,5 ± 1,8	178 ± 40	21,0 ± 0,5	[Szidat 2000]
24.11.1998	9,0 ± 1,7	500 ± 40	55,0 ± 1,1	[Szidat 2000]
09.03.1999	5,4 ± 1,1	227 ± 15	42,0 ± 0,9	[Szidat 2000]
04.05.1999	5,8 ± 1,2	135 ± 10	23,0 ± 0,5	[Szidat 2000]
10.09.1999	6,4 ± 1,3	112 ± 10	17,0 ± 0,4	[Szidat 2000]
26.10.1999	6,2 ± 1,3	124 ± 16	20,0 ± 0,5	[Szidat 2000]
15.02.2000	5,6 ± 0,9	171 ± 12	29,9 ± 5,2	[Ernst 2003]
11.04.2000	5,7 ± 0,9	362 ± 14	63,0 ± 9,8	[Ernst 2003]
20.09.2000	7,0 ± 1,1	176 ± 8	24,8 ± 4,1	[Ernst 2003]
22.02.2001	8,3 ± 1,5	299 ± 12	35,5 ± 6,4	[Ernst 2003]
18.08.2001	7,1 ± 0,3	330 ± 65	45,5 ± 2,0	[Ernst 2003]
21.08.2001	8,7 ± 0,1	163 ± 45	18,6 ± 0,6	[Ernst 2003]
01.11.2001	6,9 ± 0,1	77 ± 2	10,9 ± 0,3	[Ernst 2003]
19.02.2002	8,4 ± 0,7	309 ± 10	36,2 ± 3,2	diese Arbeit
28.05.2002	7,3 ± 0,3	121 ± 4	16,3 ± 0,8	diese Arbeit
08.08.2002	11,2 ± 0,3	201 ± 9	17,7 ± 0,9	diese Arbeit
29.10.2002	6,6 ± 0,2	268 ± 9	40,2 ± 1,8	diese Arbeit
18.02.2003	8,1 ± 0,2	159 ± 10	19,4 ± 1,3	diese Arbeit
15.05.2003	8,3 ± 0,2	193 ± 9	23,0 ± 1,2	diese Arbeit
27.08.2003	7,5 ± 0,3	126 ± 4	16,6 ± 0,8	diese Arbeit
18.11.2003	6,3 ± 0,2	105 ± 10	16,4 ± 1,6	diese Arbeit
04.02.2004	–	197 ± 9	–	diese Arbeit
09.06.2004	7,6 ± 0,2	179 ± 6	23,1 ± 1,0	diese Arbeit
geo. Mittel	7,02	168	23,4	
geo. Standardabw.	1,2	1,6	1,6	
Minimum	3,9	72	10,8	
Maximum	11,2	500	63,0	

**Tabelle C.9:** Zeitreihe von **Oberflächenwasser** der Probenahmestelle **„Leineturm“**.  
 $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-9}$	Quelle
04.02.1997	$6,5 \pm 1,2$	$11,0 \pm 2,0$	$1,7 \pm 0,0$	[Szidat 2000]
05.08.1997	$4,7 \pm 0,9$	$36,0 \pm 6,0$	$7,5 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
22.10.1997	$11,4 \pm 4,5$	$60,0 \pm 6,0$	$5,2 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
19.01.1998	$4,3 \pm 1,7$	$42,0 \pm 4,0$	$10,0 \pm 0,4$	[Szidat 2000]
23.05.1998	$6,3 \pm 2,5$	$31,0 \pm 4,0$	$4,8 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
28.07.1998	$4,8 \pm 1,0$	$28,0 \pm 5,0$	$5,8 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
27.11.1998	$5,3 \pm 1,1$	$56,0 \pm 8,0$	$10,4 \pm 0,3$	[Szidat 2000]
14.02.1999	$4,6 \pm 0,9$	$41,0 \pm 3,0$	$8,9 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
22.04.1999	$4,1 \pm 0,9$	$35,0 \pm 3,0$	$8,3 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
16.07.1999	$4,6 \pm 0,9$	$41,0 \pm 3,0$	$8,9 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
21.10.1999	$10,8 \pm 2,2$	$53,0 \pm 6,0$	$4,8 \pm 0,1$	[Szidat 2000]
26.01.2000	$5,2 \pm 0,8$	$34,7 \pm 1,6$	$6,6 \pm 1,1$	[Ernst 2003]
21.06.2000	$5,9 \pm 0,8$	$43,4 \pm 2,3$	$7,3 \pm 1,1$	[Ernst 2003]
30.08.2000	$10,6 \pm 1,2$	$68,3 \pm 3,7$	$6,4 \pm 0,8$	[Ernst 2003]
21.03.2001	$7,5 \pm 2,2$	$24,5 \pm 1,1$	$3,2 \pm 1,0$	[Ernst 2003]
10.05.2001	$2,9 \pm 0,9$	$327,2 \pm 14,7$	$111,7 \pm 36,0$	[Ernst 2003]
12.11.2001	$8,8 \pm 0,2$	$43,0 \pm 1,7$	$4,8 \pm 0,2$	[Ernst 2003]
23.01.2002	$4,1 \pm 0,1$	$46,6 \pm 2,6$	$11,3 \pm 0,7$	diese Arbeit
24.02.2002	$3,1 \pm 0,2$	$11,3 \pm 1,4$	$3,6 \pm 0,5$	diese Arbeit
15.04.2002	$3,6 \pm 0,1$	$57,0 \pm 2,5$	$15,5 \pm 0,9$	diese Arbeit
14.08.2002	$4,2 \pm 0,2$	$60,1 \pm 4,8$	$14,2 \pm 1,2$	diese Arbeit
23.10.2002	$7,5 \pm 0,2$	$80,8 \pm 5,0$	$10,6 \pm 0,7$	diese Arbeit
08.04.2003	$5,4 \pm 0,6$	$18,6 \pm 1,0$	$3,4 \pm 0,4$	diese Arbeit
06.08.2003	$8,4 \pm 0,8$	$13,0 \pm 0,8$	$1,5 \pm 0,2$	diese Arbeit
20.11.2003	$11,0 \pm 0,9$	$19,4 \pm 1,8$	$1,7 \pm 0,2$	diese Arbeit
12.02.2004	–	$48,3 \pm 2,7$	–	diese Arbeit
22.04.2004	–	$5,0 \pm 0,4$	–	diese Arbeit
geo. Mittel	5,75	35,8	6,56	
geo. Standardabw.	1,5	2,2	2,4	
Minimum	2,9	5,0	1,5	
Maximum	11,4	327,2	111,7	

**Tabelle C.10:** Zeitreihe von **Oberflächenwasser** der Probenahmestelle „**Meetschow**“.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-9}$	Quelle
12.02.1997	$6,0 \pm 1,6$	$31,0 \pm 8,0$	$5,1 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
15.05.1997	$6,6 \pm 1,2$	$86,0 \pm 11,0$	$12,8 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
09.07.1997	$13,5 \pm 2,5$	$121,0 \pm 10,0$	$8,8 \pm 0,1$	[Szidat 2000]
17.10.1997	$8,2 \pm 1,5$	$106,0 \pm 27,0$	$13,0 \pm 0,3$	[Szidat 2000]
06.01.1998	$4,9 \pm 0,9$	$37,0 \pm 14,0$	$7,0 \pm 0,3$	[Szidat 2000]
15.05.1998	$6,9 \pm 2,7$	$158,0 \pm 18,0$	$23,0 \pm 0,8$	[Szidat 2000]
01.07.1998	$8,0 \pm 1,7$	$349,0 \pm 37,0$	$43,0 \pm 0,7$	[Szidat 2000]
23.11.1998	$4,4 \pm 0,8$	$128,0 \pm 12,0$	$29,0 \pm 0,3$	[Szidat 2000]
03.03.1999	$14,8 \pm 3,1$	$67,0 \pm 5,0$	$4,4 \pm 0,1$	[Szidat 2000]
08.06.1999	$19,0 \pm 3,9$	$138,0 \pm 11,0$	$7,2 \pm 0,1$	[Szidat 2000]
03.09.1999	$12,3 \pm 2,5$	$167,0 \pm 13,0$	$13,4 \pm 0,2$	[Szidat 2000]
02.12.1999	$2,1 \pm 0,7$	$168,1 \pm 6,9$	$77,5 \pm 26,4$	[Ernst 2003]
10.03.2000	$4,5 \pm 0,8$	$119,3 \pm 5,0$	$26,2 \pm 4,7$	[Ernst 2003]
26.05.2000	$9,6 \pm 1,0$	$193,3 \pm 8,7$	$19,8 \pm 2,3$	[Ernst 2003]
05.03.2001	$4,4 \pm 1,9$	$46,6 \pm 2,1$	$10,5 \pm 4,5$	[Ernst 2003]
11.06.2001	$9,9 \pm 0,1$	$166,8 \pm 6,5$	$16,5 \pm 0,6$	[Ernst 2003]
17.09.2001	$7,9 \pm 0,1$	$163,4 \pm 6,9$	$185,8 \pm 7,8$	[Ernst 2003]
10.12.2001	$3,7 \pm 0,1$	$133,9 \pm 11,4$	$35,6 \pm 3,0$	[Ernst 2003]
05.03.2002	$5,5 \pm 1,7$	$929,9 \pm 29,6$	$167,7 \pm 51,9$	diese Arbeit
06.05.2002	$6,4 \pm 1,7$	$138,9 \pm 4,5$	$21,5 \pm 5,8$	diese Arbeit
25.09.2002	$17,1 \pm 0,8$	$610,5 \pm 19,5$	$35,2 \pm 1,9$	diese Arbeit
25.11.2002	$4,5 \pm 1,7$	$105,2 \pm 3,5$	$23,2 \pm 8,9$	diese Arbeit
25.03.2003	$5,6 \pm 1,7$	$121,8 \pm 4,0$	$21,3 \pm 6,4$	diese Arbeit
20.05.2003	$15,6 \pm 2,2$	$132,4 \pm 6,7$	$8,4 \pm 1,2$	diese Arbeit
22.09.2003	$8,5 \pm 1,9$	$140,9 \pm 5,0$	$16,4 \pm 3,6$	diese Arbeit
01.12.2003	–	$66,1 \pm 3,6$	–	diese Arbeit
03.02.2004	–	$55,5 \pm 3,0$	–	diese Arbeit
21.05.2004	–	$129,2 \pm 7,9$	–	diese Arbeit
geo. Mittel	7,32	127,0	19,8	
geo. Standardabw.	1,7	2,1	2,6	
Minimum	2,1	31,0	4,4	
Maximum	19,0	929,9	185,8	

**Tabelle C.11:** Zeitreihen von Grundwasser von den vier Standorten in Niedersachsen.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

Probenahme	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-10}$	Quelle
<b>Rhauderfehn, Region I, Filtrationstiefe 10 m</b>				
31.03.1998	$3,37 \pm 0,80$	$29,03 \pm 3,16$	$84,8 \pm 21,0$	[Szidat 2000]
07.10.1998	$5,65 \pm 1,10$	$41,69 \pm 4,93$	$72,7 \pm 17,0$	[Szidat 2000]
08.04.1999	$4,00 \pm 0,90$	$64,39 \pm 5,98$	$158,4 \pm 38,0$	[Szidat 2000]
19.08.1999	$1,98 \pm 0,45$	$2,39 \pm 0,50$	$11,9 \pm 3,7$	[Ernst 2003]
21.01.2000	$1,98 \pm 0,45$	$4,99 \pm 0,49$	$24,7 \pm 6,1$	[Ernst 2003]
31.07.2000	$2,59 \pm 0,46$	$4,89 \pm 0,39$	$18,6 \pm 3,6$	[Ernst 2003]
08.05.2001	$8,35 \pm 1,51$	$3,67 \pm 0,20$	$4,3 \pm 0,8$	[Ernst 2003]
29.11.2001	$8,67 \pm 0,12$	$2,54 \pm 0,28$	$2,9 \pm 0,3$	[Ernst 2003]
15.03.2002	$7,35 \pm 0,57$	$6,06 \pm 1,48$	$8,1 \pm 2,1$	diese Arbeit
4. Q. 2002 <sup>1)</sup>	–	$86,64 \pm 7,08$	–	diese Arbeit
16.04.2003	–	$2,19 \pm 0,73$	–	diese Arbeit
<b>Woltrup-Wehbergen, Region II, Filtrationstiefe 8 m</b>				
19.11.1997	$5,42 \pm 1,20$	$63,66 \pm 8,66$	$115,7 \pm 31,0$	[Szidat 2000]
31.03.1998	$3,66 \pm 0,80$	$89,55 \pm 10,16$	$240,8 \pm 61,0$	[Szidat 2000]
07.10.1998	$3,15 \pm 0,60$	$96,61 \pm 8,16$	$302,1 \pm 67,0$	[Szidat 2000]
08.04.1999	$3,70 \pm 0,70$	$107,70 \pm 8,22$	$286,9 \pm 60,0$	[Szidat 2000]
19.08.1999	$3,42 \pm 0,48$	$120,77 \pm 4,15$	$347,5 \pm 50,2$	[Ernst 2003]
21.01.2000	$2,66 \pm 0,56$	$113,71 \pm 4,62$	$420,8 \pm 89,4$	[Ernst 2003]
31.07.2000	$2,97 \pm 0,53$	$131,36 \pm 6,07$	$434,9 \pm 79,9$	[Ernst 2003]
<b>Lamspringe, Region III, Filtrationstiefe 3 m, Probenahme wurde Ende 2000 eingestellt</b>				
28.10.1997	$1,78 \pm 0,40$	$4,02 \pm 1,51$	$22,3 \pm 10,0$	[Szidat 2000]
08.04.1998	$14,22 \pm 3,40$	$20,38 \pm 4,09$	$14,1 \pm 4,0$	[Szidat 2000]
14.10.1998	$0,64 \pm 0,10$	$3,85 \pm 1,37$	$59,3 \pm 25,0$	[Szidat 2000]
15.04.1999	$0,69 \pm 0,20$	$3,16 \pm 0,46$	$45,2 \pm 12,0$	[Szidat 2000]
20.10.1999	$1,05 \pm 0,36$	$4,22 \pm 0,19$	$39,7 \pm 13,6$	[Ernst 2003]
17.05.2000	$1,46 \pm 0,37$	$3,94 \pm 0,24$	$26,5 \pm 6,8$	[Ernst 2003]
11.10.2000	$1,60 \pm 0,49$	$2,92 \pm 0,16$	$18,0 \pm 5,6$	[Ernst 2003]
<b>Breetze, Region IV, Filtrationstiefe 5 m</b>				
12.02.1997	$5,10 \pm 1,18$	$0,06 \pm 0,06$	$0,1 \pm 0,1$	[Szidat 2000]
17.09.1997	$6,44 \pm 1,30$	$4,12 \pm 0,58$	$6,3 \pm 1,5$	[Szidat 2000]
07.07.1998	$5,10 \pm 1,00$	$1,02 \pm 0,31$	$2,0 \pm 0,7$	[Szidat 2000]
29.09.1998	$4,84 \pm 1,00$	$1,08 \pm 0,30$	$2,2 \pm 0,8$	[Szidat 2000]
04.05.1999	$3,78 \pm 0,70$	$3,89 \pm 0,46$	$10,1 \pm 2,3$	[Szidat 2000]
06.10.1999	$4,53 \pm 0,59$	$3,12 \pm 0,14$	$6,8 \pm 0,9$	[Ernst 2003]
07.06.2000	$4,75 \pm 0,56$	$3,29 \pm 0,19$	$6,8 \pm 0,9$	[Ernst 2003]
22.08.2000	$4,00 \pm 0,47$	$24,40 \pm 1,02$	$60,1 \pm 7,4$	[Ernst 2003]
04.04.2001	$4,41 \pm 1,07$	$1,65 \pm 0,09$	$3,7 \pm 0,9$	[Ernst 2003]
22.08.2001	$5,45 \pm 0,09$	$2,45 \pm 0,06$	$4,4 \pm 0,1$	[Ernst 2003]
16.05.2002	$3,29 \pm 0,04$	$2,16 \pm 0,14$	$6,5 \pm 0,4$	diese Arbeit
20.08.2002	$4,70 \pm 0,45$	$2,61 \pm 0,41$	$5,5 \pm 1,0$	diese Arbeit
1. Q. 2003 <sup>2)</sup>	–	$2,44 \pm 0,27$	–	diese Arbeit
21.07.2003	$8,96 \pm 0,64$	$9,56 \pm 0,52$	$10,5 \pm 0,9$	diese Arbeit

<sup>1)</sup> Probe aus dem 4. Quartal 2002. Das genaue Probenahmedatum ist nicht zu ermitteln.

<sup>2)</sup> Probe aus dem 1. Quartal 2003. Das genaue Probenahmedatum ist nicht zu ermitteln.



**Tabelle C.12:**  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Umweltproben aus Niedersachsen, sortiert nach Probenahmeorten. Ergebnisse unter der Erkennungsgrenze sind als  $< EKG$  angegeben. Die Konzentrationsangaben beziehen sich bei Boden, Gras/Heu/Stroh, Getreide und Pilzen auf die Trockenmasse (Luftrocknung). Bei Gemüse, Obst, Fleisch, Schilddrüsen und Milch sind die Konzentrationen auf das Frischgewicht bezogen. Der Code zur Probenbezeichnung wird in Abschnitt 5.1 erläutert.

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$u_{rel}$ in %	$c(^{127}\text{I})$ in $\text{g g}^{-1}$	$u_{rel}$ in %	$c(^{129}\text{I})$ in $\text{g g}^{-1}$	$A(^{129}\text{I})$ in $\text{Bq g}^{-1}$	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	$u_{rel}$ in %
10.04.2003	BuZIEPRJ01	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
08.07.2003	BuMPGr01	Buntenbock	III	Gras vom Ziegenwiese	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
22.01.2003	GeKoMPWe01	Gestorf	III	Weizen	15.08.2001	79,8	1,2	7,20E-09	8,5	$< 1,32\text{E-}15$	$< 8,62\text{E-}09$	-	$< 1,81\text{E-}07$	-
31.10.2002	GeBoMPW01	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
29.08.2002	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
18.06.2003	GeGeEPKa01	Gestorf	III	Kartoffeln	15.08.2001	82,3	0,6	2,45E-08	12,7	$< 4,06\text{E-}16$	$< 2,65\text{E-}09$	-	$< 1,63\text{E-}08$	-
15.10.2002	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
13.08.2003	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
10.07.2003	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
09.09.2003	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
21.07.2003	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
28.08.2003	GrGeEPBk01	Gründeich	I	Blumenkohl	02.10.2002	66,8	0,5	$< 6,6\text{E-}09$	-	$< 3,91\text{E-}16$	$< 2,55\text{E-}09$	-	-	-
08.09.2003	GrBoEPBk01	Gründeich	I	Boden zu Blumenkohl	02.10.2002	95,6	0,6	-	Keine Ergebnisse	-	-	-	-	-
10.02.2003	GrGeEPKa01	Gründeich	I	Kartoffeln	02.10.2002	63,1	1	1,29E-08	4,1	4,22E-16	2,75E-09	39,5	3,23E-08	39,8
20.02.2003	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
13.02.2003	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
10.03.2003	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
28.01.2003	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
29.08.2003	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
02.09.2003	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
26.08.2003	GrGeEPRd01	Gründeich	I	Radisheschen	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
05.09.2003	GrBoEPRd01	Gründeich	I	Boden zu Radisheschen	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
27.08.2003	GrGeEPWeK01	Gründeich	I	Weißkohl	03.09.2002	72,7	0,5	$< 5,1\text{E-}09$	-	$< 2,95\text{E-}16$	$< 1,93\text{E-}09$	-	-	-
25.08.2003	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
18.02.2003	GrGeEPWk01	Gründeich	I	Wirsingkohl	02.10.2002	82,1	0,9	1,16E-08	7	$< 4,76\text{E-}16$	$< 3,11\text{E-}09$	-	$< 4,04\text{E-}08$	-
09.04.2003	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

C Tabellenanhang: Ergebnisse

Fortsetzung von Tabelle C.12

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$u_{rel}$ in %	$c(^{127}I)$ in $g\ g^{-1}$	$u_{rel}$ in %	$c(^{129}I)$ in $g\ g^{-1}$	$A(^{129}I)$ in $Bq\ g^{-1}$	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$	$u_{rel}$ in %
29.10.2002	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	-
14.11.2002	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	-
21.11.2002	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	-
25.11.2002	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	-
27.11.2002	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	-
11.11.2002	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	-
03.12.2002	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	-
17.12.2002	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	-
07.01.2003	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	-
09.01.2003	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
14.05.2003	HLW'saeF01	HLW	III	Schafffleisch	09.09.2002	81,8	1	2,68E-08	21,1	1,19E-15	7,80E-09	24,3	4,39E-08	32,2
22.05.2003	HLW'saSd01	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
19.05.2003	HLW'sweF01	HLW	III	Schweinefleisch	09.09.2002	28,4	1	< 3,7E-08	-	< 2,16E-15	< 1,41E-08	-	-	-
23.06.2003	HLW'swSd01	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
19.11.2003	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
15.09.2003	HLWMPGr01	HLW	III	Gras	24.05.2002	88	0,6	1,14E-06	1,6	3,40E-14	2,22E-07	4,9	2,94E-08	5,1
05.08.2003	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
19.08.2003	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
17.09.2003	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
10.09.2003	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
06.02.2003	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
06.02.2003	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
05.11.2003	HLWMPMi11	HLW	III	Milch	25.04.2003	73,1	0,5	6,59E-09	2,2	1,07E-15	6,99E-09	5	1,59E-07	5,5
31.07.2003	JeGeEPKf01	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
30.01.2003	JeBoEPKf01	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
04.11.2002	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
19.01.2004	JeGeEPWk01	Jeinsen	III	Wirsingkohl	13.09.2001	65,2	1	1,95E-08	64,8	2,77E-14	1,81E-07	3,1	1,40E-06	64,9
23.01.2003	JeBoEPWk01	Jeinsen	III	Boden zu Wirsingkohl	13.09.2001	68,7	1	2,29E-06	6,8	5,31E-14	3,47E-07	4,5	2,28E-08	8,1
26.09.2003	JeGeEPLa01	Jeinsen	III	Lauch	13.09.2001	45,3	0,7	1,59E-08	23,8	1,31E-15	8,57E-09	17	8,14E-08	29,3
04.02.2004	JeBoEPLa01	Jeinsen	III	Boden zu Lauch	13.09.2001	96,9	0,8	3,54E-06	5	4,96E-14	3,24E-07	3,2	1,38E-08	5,9
03.02.2003	PoKoMPGe01	Neßmerpolder	I	Gerste	27.08.2001	84	1,2	9,61E-08	6,3	4,93E-14	3,22E-07	4,5	5,05E-07	7,8

Fortsetzung von Tabelle C.12

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$c(^{127}\text{I})$ in $\text{g g}^{-1}$	$u_{rel}$ in %	$c(^{129}\text{I})$ in $\text{g g}^{-1}$	$A(^{129}\text{I})$ in $\text{Bq g}^{-1}$	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	$u_{rel}$ in %
25.02.2003	PoBoMPGe01	Neßmerpolder	I	Boden zu Gerste	05.12.2001	101,2	1,55E-05	11,4	9,57E-14	6,25E-07	4,5	6,09E-09	12,3
25.07.2003	PoKoMPHa01	Neßmerpolder	I	Hafer	27.08.2001	74,3	1,38E-07	8	3,29E-14	2,15E-07	7,5	2,35E-07	10,9
09.07.2003	PoBoMPHa01	Neßmerpolder	I	Boden zu Hafer	27.08.2001	100,3	9,40E-06	10,7	8,33E-14	5,44E-07	10,1	8,72E-09	14,7
15.07.2003	PoBoMPHa03	Neßmerpolder	I	Boden zu Hafer 0-30cm	01.10.2002	96,2	1,51E-05	8,5	8,79E-14	5,74E-07	6,2	5,73E-09	10,5
14.07.2003	PoBoMPHa04	Neßmerpolder	I	Boden zu Hafer 30-60cm	01.10.2002	76,8	1,95E-05	7,5	3,33E-14	2,17E-07	6,2	1,68E-09	9,8
17.09.2003	PoMPHe01	Neßmerpolder	I	Heu Wiese 17-19	25.05.2001	64,5	9,21E-07	3,8	1,69E-13	1,10E-06	4,3	1,80E-07	5,7
30.07.2003	PoBoMPHe01	Neßmerpolder	I	Bod. zu Heu Wiese 17-19	25.05.2001	97	9,07E-06	13,9	1,16E-13	7,57E-07	6,2	1,26E-08	15,2
21.08.2003	PoMPHe02	Neßmerpolder	I	Heu Wiese 17-19	15.08.2001	91,8	2,26E-06	1,3	2,26E-13	1,48E-06	2,4	9,85E-08	2,7
01.08.2003	PoBoMPHe02	Neßmerpolder	I	Bod. zu Heu Wiese 17-19	27.08.2001	92,9	7,51E-06	1,4	1,18E-13	7,68E-07	3,2	1,54E-08	3,5
11.09.2003	PoMPHe03	Neßmerpolder	I	Heu Wiese 17-19	01.10.2002	79,5	1,21E-06	2,9	3,51E-13	2,30E-06	2,3	2,86E-07	3,7
24.07.2003	PoBoMPHe03	Neßmerpolder	I	Bod. zu Heu Wiese 17-19	17.07.2002	76,8	9,98E-06	11,2	1,12E-13	7,33E-07	3,2	1,11E-08	11,6
03.09.2003	PoBoMPHe04	Neßmerpolder	I	Bod. zu Heu Wiese 17-19	01.10.2002	94,9	1,06E-05	1,4	1,44E-13	9,38E-07	4,1	1,33E-08	4,3
07.05.2002	PoKoMPWe01	Neßmerpolder	I	Weizen	27.08.2001	58,5	1,23E-07	9,5	8,45E-15	5,52E-08	13,8	6,75E-08	16,7
14.03.2002	PoBoMPWe01	Neßmerpolder	I	Boden zu Weizen	27.08.2001	84,7	1,47E-05	37	1,16E-13	7,59E-07	4	7,79E-09	37,2
25.03.2002	PoSIMPWe01	Neßmerpolder	I	Weizenstroh	27.08.2001								
02.04.2002	PoSIMPWe01	Neßmerpolder	I	Weizenstroh	27.08.2001								
14.04.2003	PoRIEPh01	Neßmerpolder	I	Rinderfleisch	19.09.2001	84,9	1,47E-07	3,4	4,60E-15	3,01E-08	8,9	3,07E-08	9,5
27.02.2003	PoMPMi02	Neßmerpolder	I	Milch	27.08.2001	78,1	2,07E-08	2,6	4,28E-15	2,80E-08	1,2	2,04E-07	2,9
27.02.2003	PoMPMi09	Neßmerpolder	I	Milch	30.03.2002	66,8	4,00E-08	2,1	8,83E-15	5,77E-08	0,9	2,17E-07	2,3
04.11.2003	PoMPMi12	Neßmerpolder	I	Milch	15.07.2002	62,8	1,23E-08	1,8	3,68E-15	2,40E-08	4	2,94E-07	4,4
04.11.2003	PoMPMi14	Neßmerpolder	I	Milch	15.11.2002	56,7	1,73E-08	1,1	4,20E-15	2,74E-08	4	2,38E-07	4,1
11.03.2003	RhPIMPSc02	Rheinhausen	III	Pilze (Schirmlinge)	04.10.2002	69,7	1,22E-07	21,7	2,99E-14	1,95E-07	6,2	2,41E-07	22,6
22.04.2003	RhPIMPSP01	Rheinhausen	III	Pilze (Steinpilze)	04.10.2002	80,8	2,43E-07	5,2	8,59E-15	5,61E-08	18,3	3,48E-08	19
08.05.2003	RhPIMPTr02	Rheinhausen	III	Pilze (Maronen-Röhrl.)	04.10.2002	59,9	1,86E-06	2,1	2,80E-14	1,83E-07	6,9	1,49E-08	7,2
22.07.2003	RhBoEPau01	Rheinhausen	III	Bodenaufgabe zu Pilzen	04.10.2002	98,2	1,25E-06	35,4	2,54E-13	1,66E-06	5,1	2,01E-07	35,8
23.07.2003	RhBoEPWe01	Rheinhausen	III	Boden zu Pilzen	01.10.2001	97,6	6,70E-07	24,3	3,24E-13	2,12E-06	6,1	4,77E-07	25,1
29.07.2003	RhBoEPP01	Rheinhausen	III	Boden zu Pilzen	04.10.2002	90	1,03E-06	1	5,75E-14	3,75E-07	7,1	5,49E-08	7,2
01.09.2003	RhBoEPP01	Rheinhausen	III	Spreu zu Pilzen	04.10.2002	99,6	2,09E-06	1,5	6,39E-13	4,17E-06	4,1	3,01E-07	4,4
13.05.2003	RhRe4awBl	Rheinhausen	III	Rehfleisch	13.08.2002	72,1	< 1,4E-08	-	1,33E-15	8,66E-09	26,4	> 9,35E-08	-
15.01.2004	RhRe8mmSd	Rheinhausen	III	Rehshildrüse	13.08.2002	99	1,82E-03	10,9	8,43E-10	5,51E-03	10,10%	4,57E-07	14,8
16.01.2004	RhRe4awSd	Rheinhausen	III	Rehshildrüse	13.08.2002	93	1,49E-03	8,2	3,85E-10	2,51E-03	10,10%	2,54E-07	13
07.08.2002	ScKoMPWe01	Schessingsh.	III	Weizen	11.09.2001	31,2	2	Probleme bei der Verbrennung – Weiterbearbeitung und Auswertung nicht möglich.					

C Tabellenanhang: Ergebnisse

Fortsetzung von Tabelle C.12

Datum der Verbrennung	Probenbezeichnung (Datenbank)	Ort	Region	Material	Probenahmedatum	Ausbeute	$u_{rel}$ in %	$c(^{127}I)$ in $g\ g^{-1}$	$u_{rel}$ in %	$c(^{129}I)$ in $g\ g^{-1}$	$A(^{129}I)$ in $Bq\ g^{-1}$	$u_{rel}$ in %	Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$	$u_{rel}$ in %
20.01.2003	ScKoMPWe01	Schessinghs.	III	Weizen	11.09.2001	76,2	0,8	8,83E-08	5,7	<1,39E-15	<9,08E-09	-	<1,55E-08	-
22.04.2002	ScBoMPWe01	Schessinghs.	III	Boden zu Weizen	11.09.2001	97	0,6	2,10E-06	10	5,76E-14	3,76E-07	2,8	2,70E-08	10,4
19.08.2002	ScKoMPWe02	Schessinghs.	III	Weizen	11.09.2001	56,7	1,8	1,98E-07	4,4	<2,06E-15	<1,35E-08	-	<1,02E-08	-
24.04.2002	ScBoMPWe02	Schessinghs.	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
30.10.2002	ScBoEPKa01	Schessinghs.	III	Boden zu Kartoffeln	11.09.2001	79,7	1	2,27E-06	12,8	5,59E-14	3,65E-07	2,6	2,43E-08	13,1
16.07.2003	ScBoMPBi01	Schessinghs.	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
10.02.2004	ScBaEPBi01-R	Schessinghs.	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
17.02.2004	ScBaEPBi01-H	Schessinghs.	III	Birke Holz	05.08.2002	37,7	1,2	<9,20E-9	-	<6,05E-15	<3,95E-08	-	-	-
10.04.2002	SiKoMPWe01	Schleweke	III	Weizen	06.08.2001	43,4	1	1,82E-07	7,7	6,67E-15	4,35E-08	14,4	3,61E-08	16,3
21.01.2003	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	-
13.03.2002	SiBoMPWe01	Schleweke	III	Boden zu Weizen	06.08.2001	67,3	0,5	Probleme bei der Verbrennung – Weiterbearbeitung und Auswertung nicht möglich.						
12.09.2002	SiBoMPWe01	Schleweke	III	Boden zu Weizen	06.08.2001	88	1,3	6,94E-07	12,6	4,29E-14	2,80E-07	1,9	6,09E-08	12,7
19.03.2002	SiStMPWe01	Schleweke	III	Weizenstroh	06.08.2001	32,3	1	Probleme bei der Verbrennung – Weiterbearbeitung und Auswertung nicht möglich.						
21.03.2002	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
27.08.2002	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	-
11.07.2003	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
04.02.2003	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
11.02.2003	SiBoMPGe01	Schleweke	III	Boden zu Gerste	21.07.2001	96,5	0,9	2,87E-06	11	4,24E-14	2,77E-07	1,9	1,45E-08	11,2
05.02.2003	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
17.03.2003	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 C.13: Transferfaktoren für den Transfer von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  vom Boden in Pflanzen

Probenkürzel	Region	Probenart	$^{127}\text{I}$	$u_{rel}$	$^{129}\text{I}$	$u_{rel}$	bezogen auf
PoKoMPGe01	I	Gerste	0,0062	13	0,52	6,4	TM Korn / TM Boden
SIKoMPGe01	III	Gerste	0,0071	14	0,11	14	TM Korn / TM Boden
SIKoMPGe02	III	Gerste	0,076	6,9	0,22	11	TM Korn / TM Boden
PoKoMPHa01	I	Hafer	0,015	13	0,4	13	TM Korn / TM Boden
PoKoMPWe01	I	Weizen	0,0084	38	0,073	14	TM Korn / TM Boden
GeKoMPWe01	III	Weizen	0,0026	13	–	–	TM Korn / TM Boden
ScKoMPWe01	III	Weizen	0,042	12	–	–	TM Korn / TM Boden
ScKoMPWe02	III	Weizen	0,136	45	–	–	TM Korn / TM Boden
SIKoMPWe01	III	Weizen	0,26	15	0,16	15	TM Korn / TM Boden
SIKoMPWe02	III	Weizen	0,036	9,5	–	–	TM Korn / TM Boden
GeStMPWe01	III	Weizenstroh	0,343	10	–	–	TM Korn / TM Boden
SISMPWe01	III	Weizenstroh	0,3	13	1,1	4,7	TM Stroh / TM Boden
GrGeEPKs01	I	Kopfsalat	0,0038	5,4	0,079	5,9	FM Gemüse / TM Boden
GrGeEPLa01	I	Lauch	0,0076	6,8	0,085	5,7	FM Gemüse / TM Boden
GrGeEPRd01	I	Radieschen	0,0028	12	0,011	9,6	FM Gemüse / TM Boden
GrGeEPWk01	I	Wirsingkohl	0,0025	7,7	–	–	FM Gemüse / TM Boden
GrGeEPKr01	I	Kohlrabi	0,0039	7,1	0,0012	42	FM Gemüse / TM Boden
JeGeEPKr01	III	Kohlrabi	0,016	11	0,015	20	FM Gemüse / TM Boden
GeGeEPKa01	III	Kartoffeln	0,006	14	–	–	FM Kartoffeln / TM Boden
JeGeEPWk01	III	Wirsingkohl	0,0085	65	0,52	5,4	FM Gemüse / TM Boden
JeBoEPLa01	III	Lauch	0,0045	24	0,026	17	FM Gemüse / TM Boden
GIObMPBb01	III	Brombeeren	0,0032	11	0,02	15	FM Beeren / TM Boden
GIObMPHb01	III	Himbeeren	0,012	25	0,011	20	FM Beeren / TM Boden
HLWMPGr01	III	Gras	0,084	10	0,42	7,1	TM Gras / TM Boden
PoMPHe01	I	Heu Wiese 17-19	0,1	14	1,5	7,5	TM Heu / TM Boden
PoMPHe02	I	Heu Wiese 17-19	0,3	2	1,9	3,9	TM Heu / TM Boden
PoMPHe03	I	Heu Wiese 17-19	0,11	3,2	2,5	4,7	TM Heu / TM Boden
HLWMPHe01	III	Heu	0,15	4,4	2,4	4,9	TM Heu / TM Boden
RhPiMPMr02	III	Pilze/Maronen-Röhrlinge	1,8	2,3	0,487	9,9	TM Pilze / TM Boden
			1,5	36	0,11	8,6	TM Pilze / TM Bodenauflage
			0,89	2,5	0,044	8	TM Pilz / TM Spreu
RhPiMPSc02	III	Pilze/Schirmlinge	0,12	22	0,52	9,4	TM Pilze / TM Boden
			0,098	42	0,12	8	TM Pilze / TM Bodenauflage
			0,058	22	0,047	7,4	TM Pilz / TM Spreu
RhPiMPSp01	III	Pilze/Steinpilze	0,24	5,2	0,15	20	TM Pilze / TM Boden
			0,19	36	0,034	19	TM Pilze / TM Bodenauflage
			0,12	5,4	0,014	19	TM Pilz / TM Spreu

**Tabelle C.14:** Ergebnisse der Untersuchung menschlicher Schilddrüsen aus den Jahren 1999 bis 2003 aus Hannover und Hamburg.  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen, bezogen auf das Frischgewicht, sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Das Datum gibt den Todeszeitpunkt des Spenders an.

	Datum	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g g}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{pg g}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Verhältnis in $10^{-9}$	Quelle
Hannover	1999	495 ± 14	6,77 ± 0,3	13,7 ± 0,7	[Klipsch 2002]
	Dez. 00	218 ± 7	2,35 ± 0,2	10,8 ± 0,9	[Klipsch 2002]
	Dez. 00	53 ± 2	0,81 ± 0,1	15,4 ± 2,2	[Klipsch 2002]
	Dez. 00	895 ± 28	4,48 ± 0,3	5,0 ± 0,3	[Klipsch 2002]
	Jun. 01	294 ± 9	4,39 ± 0,2	14,9 ± 1,0	[Klipsch 2002]
	Jun. 01	176 ± 5	0,85 ± 0,2	4,9 ± 1,1	[Klipsch 2002]
	Jun. 01	248 ± 11	1,65 ± 0,2	6,6 ± 1,0	[Klipsch 2002]
	Jun. 01	437 ± 14	5,11 ± 0,5	11,7 ± 1,1	[Klipsch 2002]
	Jun. 01 <sup>1)</sup>	141 ± 9	0,68 ± 0,2	4,8 ± 1,5	s. u.
	Jul. 01	330 ± 9	3,83 ± 0,2	11,6 ± 0,6	[Klipsch 2002]
	Jul. 01	202 ± 6	6,04 ± 0,3	29,9 ± 1,9	[Klipsch 2002]
	Jul. 01	448 ± 14	5,17 ± 0,3	11,6 ± 0,8	[Klipsch 2002]
	Jul. 01	350 ± 11	2,89 ± 0,2	8,3 ± 0,6	[Klipsch 2002]
	Jul. 01	403 ± 14	3,31 ± 0,3	8,2 ± 0,8	[Klipsch 2002]
	Jul. 01	207 ± 7	2,27 ± 0,3	11,0 ± 1,7	[Klipsch 2002]
	Jul. 01	317 ± 10	1,74 ± 0,3	5,5 ± 0,9	diese Arbeit
	Jul. 01	626 ± 17	6,29 ± 0,4	10,0 ± 0,7	diese Arbeit
	Jul. 01	1259 ± 45	18,03 ± 0,9	14,3 ± 0,9	diese Arbeit
	Okt. 01	694 ± 22	1,60 ± 0,1	2,3 ± 0,2	diese Arbeit
	Okt. 01	440 ± 13	10,61 ± 0,5	24,2 ± 1,4	diese Arbeit
	Okt. 01	496 ± 31	3,72 ± 2,0	7,5 ± 4,1	diese Arbeit
	Feb. 02	336 ± 13	2,85 ± 0,2	8,5 ± 0,8	diese Arbeit
	Feb. 02	500 ± 21	4,18 ± 0,3	8,4 ± 0,7	diese Arbeit
	Feb. 02	480 ± 11	1,83 ± 0,1	3,8 ± 0,2	diese Arbeit
	Feb. 02	170 ± 6	0,96 ± 0,4	5,7 ± 2,3	diese Arbeit
	Mrz. 02	502 ± 18	6,46 ± 0,3	12,9 ± 0,8	diese Arbeit
	Mrz. 02	261 ± 15	3,19 ± 0,3	12,2 ± 1,4	diese Arbeit
	Mrz. 02	1023 ± 31	10,37 ± 0,5	10,1 ± 0,6	diese Arbeit
	Mrz. 02	297 ± 14	3,00 ± 0,3	10,1 ± 1,2	diese Arbeit
	Mrz. 02	641 ± 47	6,11 ± 0,9	9,5 ± 1,5	diese Arbeit
Hamburg	Apr. 03	474 ± 14	4,63 ± 0,2	9,8 ± 0,6	diese Arbeit
	Apr. 03	327 ± 11	8,00 ± 0,4	24,5 ± 1,6	diese Arbeit
	Apr. 03	262 ± 8	6,46 ± 0,3	24,7 ± 1,4	diese Arbeit
	Apr. 03	546 ± 22	2,93 ± 0,2	5,4 ± 0,4	diese Arbeit
	Apr. 03	215 ± 6	2,48 ± 0,2	11,5 ± 0,8	diese Arbeit
	Mai. 03	495 ± 17	6,33 ± 0,4	12,8 ± 0,8	diese Arbeit
	Mai. 03	287 ± 8	2,10 ± 0,2	7,3 ± 0,7	diese Arbeit
	Mai. 03	178 ± 6	2,92 ± 0,2	16,4 ± 1,3	diese Arbeit
	Mai. 03	344 ± 9	4,27 ± 0,3	12,4 ± 0,9	diese Arbeit
	Mai. 03	428 ± 15	5,40 ± 0,3	12,6 ± 0,9	diese Arbeit

<sup>1)</sup> von dieser Schilddrüse wurden drei Aliquote für die RNAA aufbereitet. Oben angegeben sind die Mittelwerte der Konzentrationen und das daraus berechnete Isotopenverhältnis. In den einzelnen Proben wurden folgende Werte ermittelt. Einheiten wie oben.

Jun. 01	149 ± 4	0,77 ± 0,1	5,2 ± 0,7	[Klipsch 2002]
Jun. 01	131 ± 4	0,83 ± 0,1	6,3 ± 0,8	diese Arbeit
Jun. 01	143 ± 4	0,45 ± 0,3	3,1 ± 2,2	diese Arbeit

## D Abkürzungen

AMS	accelerator mass spectrometry, Beschleunigermassenspektrometrie
AVV	Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 der Strahlenschutzverordnung
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
CC-MS	collision cell - mass spectrometry, Kollisionszellentechnologie in der Massenspektrometrie
DPD	N,N-Diethyl-1,4-phenylendiamin
ETH	Eidgenössisch Technische Hochschule
FARMLAND	Radioökologisches Modell des NRPB: Food Activity from Radionuclide Movement on LAND
FM	Frischmasse
GID	Gasionisationsdetektor
IAEA	International Atomic Energy Agency
IC	ion chromatography, Ionenchromatographie
ICP-MS	inductively coupled plasma - mass spectrometry, Massenspektrometrie mit induziert gekoppeltem Plasma
IMIS	Integriertes Meß- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität
INAA	instrumental neutron activation analysis, instrumentelle Neutronenaktivierungsanalyse
MS	Massenspektrometrie
NAA	neutron activation analysis, Neutronenaktivierungsanalyse
NIR	Niedersächsisches Institut für Radioökologie (bis 1994 Vorgängereinstitut des ZSR)
NLÖ	Niedersächsisches Landesamt für Ökologie, im Januar 2005 aufgegangen im NLWKN
NLWK	Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft und Küstenschutz, im Januar 2005 aufgegangen im NLWKN

## D Abkürzungen

---

NLWKN	Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz
NRPB	National Radiological Protection Board, die Strahlenschutzbehörde des Vereinigten Königreiches
NTIMS	negative thermal ionization mass spectrometry
ppb	Konzentrationsangabe in <i>parts per billion</i> , z. B. für $\mu\text{g kg}^{-1}$
ppm	Konzentrationsangabe in <i>parts per million</i> , z. B. für $\text{mg kg}^{-1}$
RIMS	Resonanz-Ionisations-Massenspektrometrie
RNAA	radiochemical neutron activation analysis, radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
$T_{1/2}$	Halbwertszeit des radioaktiven Zerfalls
TM	Trockenmasse
TOF	time of flight, Flugzeit
WHO	World Health Organization, Weltgesundheitsorganisation
ZSR	Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie an der Universität Hannover



# Literaturverzeichnis

- Alfimov u. a. 2004a** ALFIMOV, V. ; ALDAHAN, A. ; POSSNERT, G. ; KEKLI, A. ; MEILI, M.: Concentrations of  $^{129}\text{I}$  along a transect from the North Atlantic to the Baltic Sea. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 223-224 (2004), S. 446–450
- Alfimov u. a. 2004b** ALFIMOV, V. ; ALDAHAN, A. ; POSSNERT, G. ; WINSOR, P.: Anthropogenic iodine-129 in seawater along a transect from the Norwegian coastal current to the North Pole. In: *Marine Pollution Bulletin* 49 (2004), S. 1097–1104
- Anderson 1978** ANDERSON, T. J.: Methodology for determination of environmental  $^{129}\text{I}$  and  $^{99}\text{Tc}$ . In: *Conference of the American Society for Testing and Materials on Effluent Monitoring in Environmental Radioation Surveillance*. 9.-14. Juli, Johnson, Vermont, 1978
- Aumann u. a. 1981** AUMANN, D.C. ; FALESCHINI, H. ; FRIEDMANN, L.: Determination of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  at Natural Levels by Neutron Activation Analysis. In: *Radiochimica Acta* 29 (1981), S. 209–215
- Bachhuber und Bunzel 1992** BACHHUBER, H. ; BUNZEL, K.: Background levels of atmospheric deposition to ground and temporal variation of  $^{129}\text{I}$ ,  $^{127}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^7\text{Be}$  in a rural area of Germany. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 16 (1992), S. 77–89
- Barnett 1996** BARNETT, R. M.: Review of particle physics. In: *Physical Review D* 54 (1996), Nr. 1, S. 1–708
- Becker 2002a** BECKER, J. S.: ICP-MS: Determination of long-lived radionuclides. In: *Spectroscopy Europe* 14/6 (2002), S. 8–16
- Becker 2002b** BECKER, J. S.: State-of-the-art and progress in precise and accurate isotope ratio measurement by ICP-MS and LA-ICP-MS. In: *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 17 (2002), S. 1172–1185
- Becker 2003** BECKER, J. S.: Mass spectrometry of long-lived radionuclides. In: *Spektrochimica Acta Part B* 58 (2003), S. 1757–1784
- Becker und Dietze 1983** BECKER, J. S. ; DIETZE, H.-J.: Grundlagen und Anwendung von Gastargets zur Empfindlichkeitssteigerung massenspektrometrischer Methoden. In: *Isotopenpraxis* 19 (1983), S. 105–112

- Bittermann 1999** BITTERMANN, H.: *Jodversorgung deutscher Wehrpflichtiger im Alter von 17,5 bis 21 Jahren*, Humboldt-Universität Berlin, Dissertation, 1999
- BMU 2000** BMU ; BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT (Hrsg.): *Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*. Stuttgart, Jena, New York : Urban & Fischer, 2000
- BMU 2003** BMU: *Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Entwurf der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zu § 47 StrlSchV*. Stand: 01. Juli 2003
- BNFL** BNFL: *British Nuclear Fuels: Discharges Reports*. – Online im Internet: <http://www.bnfl.com> [Stand: 17.02.2005]
- Boaretto u. a. 1994** BOARETTO, E. ; BERKOVITS, D. ; DELMAS, R. ; JOHNSON, R. R. ; KAUFMANN, A. ; MAGARITZ, M. ; PAUL, M. ; POURCHET, M.: Measurement of anthropogenic radionuclides in environmental samples. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994), S. 350–356
- Bonka 1982** BONKA, H.: *Strahlenexposition durch radioaktive Emissionen aus kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb*. Köln : Verlag TÜV Rheinland, 1982. – Zugl. Habil.-Schrift an der Techn. Hochsch. Aachen, 1981
- Bonka 2000** BONKA, H.: Stand der Entwicklung radioökologischer Modelle. In: *Bull. Soc. Frib. Sc. Nat.* 89 (2000), Nr. 1, S. 65–93
- Bouisset u. a. 1999** 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. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 437 (1999), S. 114–127
- Brauer 1989** BRAUER, F. P.: Measurement methods for low-level  $^{129}\text{I}$  determinations / Pacific Northwest National Laboratory. Richland, USA, 1989 (PNL-SA-16788). – Forschungsbericht
- Brown und Simmonds 1995** BROWN, J. ; SIMMONDS, J. R.: FARMLAND: A Dynamic Model for the Transfer of Radionuclides through Terrestrial Foodchains / National Radiological Protection Board. Chilton, UK, 1995 (NRPB R273). – Forschungsbericht
- Buraglio 2000** BURAGLIO, N.: *Accelerator mass spectrometry of  $^{129}\text{I}$  and its applications in natural water systems*, Uppsala University, Department of Materials Science, Dissertation, 2000
- Carter und Moghissi 1977** CARTER, M. ; MOGHISSI, A.: Three decades of nuclear testing. In: *Health Physics* 33 (1977), S. 55–71
- Chamberlain 1991** CHAMBERLAIN, A.: *Radioactive Aerosols*. Cambridge : Cambridge University Press, 1991

- Cierjacks und Albers 2004** 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: *Strahlenforschung Programmbericht 2002, BfS*. Hrsg: Bergler, I.; Bernhard, C.; Gödde, R.; Löbke-Reinl, A. und Schmitt-Hannig, A., 2004, S. 81–86
- Cogema** COGEMA: *La Hague Plant Website*. – Online im Internet: <http://www.cogemalahague.com> [Stand: 17.02.2005]
- Coughtrey u. a. 1993** COUGHTREY, P. J. ; JACKSON, D. ; THORNE, M. C.: *Radionuclide Distribution and Transport in Terrestrial and Aquatic Ecosystems*. Rotterdam : A.A. Balkema, 1993
- Edwards 1962** EDWARDS, R. R.: Iodine-129: Its occurrence in Nature and its utility as a tracer. In: *Science* 137 (1962), S. 851–853
- Edwards und Rey 1968** EDWARDS, R. R. ; REY, P.: Terrestrial occurrence and distribution of  $^{129}\text{I}$  / Atomic Energy Commission. 1968 (NYO-3624-3). – Forschungsbericht
- Eiden u. a. 1997** EIDEN, G. C. ; BARINAGA, C. J. ; KOPPENAAL, D. W.: Beneficial Ion/Molecule Reactions in Elemental Mass Spectrometry. In: *Rapid Communications in Mass Spectrometry* 11 (1997), S. 37–42
- Eisenbud und Gesell 1997** EISENBUD, M. ; GESELL, T.: *Environmental Radioactivity*. 4. Aufl. San Diego : Academic Press, 1997
- Elsholz und Berger 1998** ELSHOLZ, M. ; BERGER, H.: *Oberirdische Gewässer Nr. 6/98. Hydrologische Landschaften im Raum Niedersachsen*. 1998. – Veröffentlichung des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie, Online im Internet: [http://193.218.216.17/crome/projekt6/downloads/D619194\\_1.pdf](http://193.218.216.17/crome/projekt6/downloads/D619194_1.pdf) [Stand: 27.01.2005]
- Ernst 2003** 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, Dissertation, 2003
- Ernst 2005** ERNST, T.: 2005. – persönliche Mitteilung
- Ernst u. a. 2002** 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: *Praxis des Strahlenschutzes: Messen, Modellieren, Dokumentieren, Tagungsband der 34. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V.* Hrsg: Michel, R.; Täschner, M. und Bayer, A., TÜV Verlag, Köln, 2002, S. 167–174
- Ernst u. a. 2003** ERNST, T. ; SZIDAT, S. ; HANDL, J. ; JAKOB, D. ; MICHEL, R. ; SCHNABEL, Ch. ; SYNAL, H.-A. ; 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. In: *Kerntechnik* 68 (2003), Nr. 4, S. 155–167

- Fabryka-Martin 1984** FABRYKA-MARTIN, J. T.: *Natural  $^{129}\text{I}$  as a ground-water tracer*, University of Arizona, Master of Science Thesis, 1984
- Fabryka-Martin u. a. 1985** FABRYKA-MARTIN, J. T. ; BENTLEY, H. ; ELMORE, D. ; AIREY, P. L.: Natural iodine-129 as an environmental tracer. In: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 49 (1985), Nr. 2, S. 337–347
- Farmer III u. a. 1998** FARMER III, O. T. ; BARINAGA, C. J. ; KOPPENAAL, D. W.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in ambient air by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP/MS). In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 234 (1998), Nr. 1-2, S. 153–157
- Fasset u. a. 1988** FASSET, J. D. ; WALKER, R. J. ; TRAVIS, J. C. ; RUEGG, F. C.: Measurement of low abundance isotopes by laser resonance ionization mass spectrometry (RIMS). In: *Analytical Instrumentation* 17 (1988), Nr. 1&2, S. 69–86
- Finkel und Suter 1993** FINKEL, R.C. ; SUTER, M.: AMS in the earth sciences: technique and applications. In: *Advances in Analytical Geochemistry* 1 (1993), S. 1–114
- Fréchou und Calmet 2003** FRÉCHOU, C. ; CALMET, D.:  $^{129}\text{I}$  in the environment of the La Hague nuclear fuel reprocessing plant - from sea to land. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003), S. 43–59
- Fréchou u. a. 2002** FRÉCHOU, C. ; CALMET, D. ; BERTHO, X. ; GAUDRY, A.:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio measurement in bovine thyroids from the North Cotentin area. In: *The Science of the Total Environment* 293 (2002), S. 59–67
- Fréchou u. a. 2001** 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. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 249 (2001), Nr. 1, S. 133–138
- Gabay u. a. 1974** GABAY, J. J. ; PAPERIELLO, C. J. ; GOODYEAR, S. ; DALY, J. C. ; MATUSZEK, J. M.: A method for determining iodine-129 in milk and water. In: *Health Physics* 26 (1974), S. 89–96
- Gerzabek u. a. 1999** GERZABEK, M. H. ; MURAMATSU, Y. ; STREBL, F. ; YOSHIDA, S.: Iodine and bromine contents of some Austrian soils and relations to soil characteristics. In: *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* 162 (1999), Nr. 4, S. 415–419
- Graf u. a. 1987** GRAF, U. ; HENNING, H. J. ; STANGE, K. ; WILRICH, P. T.: *Formeln und Tabellen der angewandten mathematischen Statistik*. Berlin, Heidelberg, New York : Springer, 1987
- Green und Woodman 2003** GREEN, N. ; WOODMAN, R. F. M.: Recommended transfer factors from feed to animal products / National Radiological Protection Board. 2003 (NRPB-W40). – Forschungsbericht

- Haisch und Schüttelkopf 1993** HAISCH, A. ; SCHÜTTELKOPF, H.: Transferfaktoren Boden-Pflanze für I-129 und Weidebewuchs / Kernforschungszentrums Karlsruhe, Hauptabteilung Sicherheit. 1993 (KfK 5119). – Forschungsbericht
- Hamby und Benke 1999** HAMBY, D. M. ; BENKE, R. R.: Uncertainty of the iodine-131 ingestion dose conversion factor. In: *Radiation Protection Dosimetry* 82 (1999), Nr. 4, S. 245–256
- Handl 1996** HANDL, J.: Concentrations of iodine-129 in the biosphere. In: *Radiochimica Acta* 72 (1996), S. 33–38
- Handl u. a. 1984** HANDL, J. ; KÜHN, W. ; HENSCH, R. D.: Content and heterogeneity of distribution of iodine in human and bovine thyroid glands determined by neutron activation analysis. In: *Journal of endocrinological investigation* 7 (1984), S. 97–101
- Handl u. a. 1990** 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. In: *Health Physics* 58 (1990), Nr. 5, S. 609–619
- Hauschild und Aumann 1989** HAUSCHILD, J. ; AUMANN, D.C.: Iodine-129 in the Environment of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant, Part V.: The Transfer of 129-I and 127-I in the Soil-Pasture-Cow-Milk/Meat Pathway, as Obtained by Field Measurement. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 9 (1989), S. 145–162
- Hoffman u. a. 2004** HOFFMAN, F. O. ; ANSPAUGH, L. R. ; APOSTOAEI, A. I. ; BEVK, H. L. ; BOUVILLE, A. ; NAPIER, B. ; SIMON, S. L.: Credibility of uncertainty analyses for  $^{131}\text{I}$  pathway assessments. In: *Health Physics* 86 (2004), Nr. 5, S. 536–538
- Hou u. a. 1999** HOU, X. L. ; DAHLGAARD, H. ; RIETZ, B. ; JACOBSEN, U. ; NIELSEN, S. P. ; AARKROG, A.: Determination of 129-I in seawater and some environmental materials by neutron activation analysis. In: *Analyst* 124 (1999), S. 1109–1114
- Hou u. a. 2000a** HOU, X. ; DAHLGAARD, H. ; RIETZ, B. ; JACOBSEN, U. ; NIELSEN, S. P.: Pre-separation neutron activation analysis of seawater, urine and milk for iodide and iodate. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 244 (2000), S. 87–91
- Hou u. a. 2000b** HOU, X. L. ; DAHLGAARD, H. ; NIELSEN, S. P.: Iodine-129 time series in Danish, Norwegian and northwest Greenland coast and the Baltic Sea by seaweed. In: *Estuarine and Coastal Shelf Science* 51 (2000), Nr. 5, S. 571–584
- Hou u. a. 2002** HOU, X. L. ; DAHLGAARD, H. ; NIELSEN, S. P. ; KUCERA, J.: Level and origin of Iodine-129 in the Baltic Sea. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 61 (2002), S. 331–343
- Hou u. a. 2003** HOU, X. L. ; MALENCHEKO, A. F. ; KUCERA, J. ; DAHLGAARD, H. ; NIELSEN, S. P.: Iodine-129 in thyroid and urine in Ukraine and Denmark. In: *The Science of the Total Environment* 302 (2003), S. 63–73

- IAEA 1982** IAEA: *Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental transfer of Radionuclides from Routine Releases - Exposures of Critical groups*. Vienna : IAEA, 1982 (IAEA Safety Series No. 57)
- IAEA 1994** IAEA: *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments*. Vienna : IAEA, 1994 (IAEA Technical Report Series No. 364)
- IAEA 2001** IAEA: *Generic Models for the Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment*. Vienna : IAEA, 2001 (IAEA Safety Report Series No. 19)
- Izmer u. a. 2003** IZMER, A. V. ; BOULYGA, S. F. ; BECKER, J. S.: Determination of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  isotope ratios in liquid solutions and environmental soil samples by ICP-MS with hexapole collision cell. In: *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 18 (2003), S. 1339–1345
- Izmer u. a. 2004** IZMER, A. V. ; BOULYGA, S. F. ; ZORIY, M. V. ; BECKER, J. S.: Improvement of the detection limit for determination of  $^{129}\text{I}$  in sediments by quadrupole inductively coupled plasma mass spectrometry with collision cell. In: *Journal of Analytical Atomic Spectrometry* 19 (2004), Nr. 9, S. 1278–1280
- Johanson 2000** JOHANSON, K. J.: Iodine in soil / Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. 2000 (TR-00-21). – Forschungsbericht. Online im Internet: <http://www.skb.se/upload/publications/pdf/TR-00-21webb.pdf> [Stand: 25.01.2005]
- Karl und Münkner 1997** KARL, H. ; MÜNKNER, W.: Iodbestimmung in Fischen und Fischerzeugnissen. In: *Lebensmittelchemie* 51 (1997), S. 89
- Karl und Münkner 1998** KARL, H. ; MÜNKNER, W.: Iod in Fischen und Fischerzeugnissen. In: *Informationen für die Fischwirtschaft aus der Fischereiforschung* 45 (1998), Nr. 3, S. 115–118
- Kilius u. a. 1994** KILIUS, L.R. ; RUCKLIDGE, J.C. ; SOTO, C.: The dispersal  $^{129}\text{I}$  from the Columbia River estuary. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994), S. 393–397
- Klipsch 2002** KLIPSCH, K.: *Neutronenaktivierungsanalytische Untersuchungen zur Bestimmung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von  $^{129}\text{I}$* , Universität Hannover, Fachbereich Chemie, Diplomarbeit, 2002
- Kocher 1981** KOCHER, D. C.: A dynamic model of the global iodine cycle and estimation of dose to the world population from releases of iodine-129 to the environment. In: *Environment International* 5 (1981), S. 15–31
- Kohman und Edwards 1966** KOHMAN, T. P. ; EDWARDS, R. R.: Iodine-129 as a geochemical and ecological tracer / Carnegie Institute of Technology. 1966 (NYO-3624-1). – Forschungsbericht

- Krupp und Aumann 1999** KRUPP, G. ; AUMANN, D.C.: Iodine-129 in rainfall over Germany. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 46 (1999), S. 287–299
- Lieser 1991** LIESER, K. H.: *Einführung in die Kernchemie*. 3. Auflage. Weinheim, New York, Basel, Chambridge : VCH, 1991
- Limpert u. a. 2001** LIMPERT, E. ; STAHEL, W. A. ; ABBT, M.: Log-normal Distributions across the Sciences: Keys and Clues. In: *BioScience* 51 (2001), Nr. 5, S. 341–352
- López-Gutiérrez u. a. 2004** LÓPEZ-GUTIÉRREZ, J. M. ; GARCÍA-LEÓN, M. ; SCHNABEL, C. ; SUTER, M. ; SYNAL, H.-A. ; SZIDAT, S. ; GARCÍA-TENORIO, R.: Relative influence of  $^{129}\text{I}$  sources in a sediment core from the Kattegat area. In: *Science of the Total Environment* 323 (2004), S. 195–210
- Lu und Wendt 2003** LU, Z.-T. ; WENDT, K. D. A.: Laser-based methods for ultrasensitive trace-isotope analyses. In: *Review of Scientific Instruments* 74 (2003), Nr. 3, S. 1169–1179
- Magno u. a. 1972** MAGNO, P. J. ; REAVY, T. C. ; APITIANAKIS, J. D.:  $^{129}\text{I}$  in the environment around a nuclear fuel reprocessing plant / U.S. Environmental Protection Agency. 1972 (ORP/SID-72-5). – Forschungsbericht
- Michel 2003** MICHEL, R.: Was ist und wofür benötigt man die realistische Ermittlung der Strahlenexposition? In: *Klausurtagung des Radioökologieausschusses der Strahlenschutzkommission (SSK)*. Eltville, 25./26.11.2003 2003
- Michel und Kirchhoff 1999** MICHEL, R. ; KIRCHHOFF, K.: *Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen*. TÜV-Verlag, 1999 (FS-99-108-AKSIGMA). – Publikationsreihe Fortschritte im Strahlenschutz
- Michel u. a. 2002** MICHEL, R. ; ERNST, T. ; SZIDAT, S. ; SCHNABEL, C. ; SYNAL, H.-A.: Iodine-129 as a Long-Lived Tracer in the Environment. In: *Int. Conf. on the Study of Environmental Change using Isotope Techniques*. Wien, 2002, S. 336–345
- Michel u. a. 2004** MICHEL, R. ; KLIPSCH, K. ; ERNST, Th. ; GORNY, M. ; JAKOB, D. ; VAHLBRUCH, J. ; SYNAL, H.-A. ; SCHNABEL, C.: Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129. Abschlussbericht Vorhaben StSch4285, August 2004. In: *Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz*, ISSN 1612-6386. Online im Internet unter: <http://www.bmu.de/strahlenschutz/doc/6872.php> und <http://www.zsr.uni-hannover.de> [Stand: 21.03.2005]
- Michel u. a. 2005** MICHEL, R. ; HANDL, J. ; ERNST, T. ; BOTSCH, W. ; SZIDAT, S. ; SCHMIDT, A. ; JAKOB, D. ; BELTZ, D. ; ROMANTSCHUCK, L. D. ; SYNAL, H.-A. ; 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. In: *Science of the Total Environment* 340 (2005), Nr. 1-3, S. 35–55

- Mitsuhashi und Kaneda 1990** MITSUHASHI, T. ; KANEDA, Y.: Gas chromatographic determination of total iodine in foods. In: *Journal / Association of Official Analytical Chemists* 73 (1990), Nr. 5, S. 790–792
- Monte 1990** MONTE, L.: Evaluation of the environmental transfer parameters for  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  using the contamination produced by the Chernobyl accident at a site in central Italy. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 12 (1990), S. 13–22
- Moran u. a. 1997** MORAN, J. E. ; OKTAY, S. ; SANTSCHI, P. H. ; SCHINK, D. R.: Surface  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios: marine vs. terrestrial. In: *Duggan, J. L. and Morgan, I. L.: Applications of Accelerators in Research and Industry*. AIP Press, 1997, S. 807–810
- Moran u. a. 1999** MORAN, J. E. ; OKTAY, S. ; SANTSCHI, P. H. ; SCHINK, D. R.: Atmospheric Dispersal of  $^{129}\text{I}$  from Nuclear Fuel Reprocessing Facilities. In: *Environmental Science and Technology* 33 (1999), S. 2536–2542
- Müller und Pröhl 1993** MÜLLER, H. ; PRÖHL, G.: ECOSYS-87: A dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents. In: *Health Physics* 64 (1993), Nr. 2, S. 232–252
- Muramatsu und Ohmomo 1986** MURAMATSU, Y. ; OHMOMO, Y.: Iodine-129 and Iodine-127 in environmental samples collected from Tokaimura/Ibaraki, Japan. In: *The Science of the Total Environment* 48 (1986), S. 33–43
- Muramatsu und Wedepohl 1998** MURAMATSU, Y. ; WEDEPOHL, K.H.: The distribution of iodine in the earth's crust. In: *Chemical Geology* 147 (1998), Nr. 3-4, S. 201–216
- Muramatsu u. a. 2003** MURAMATSU, Y. ; YOSHIDA, S. ; SAHOO, S. K. ; MATSUZAKI, H. ; SNYDER, G. ; FEHN, U.: Determination of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in environmental samples by NAA, AMS and ICP-MS. In: *International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry*. Rokkasho, Aomori, Japan, Oktober 2003
- NEA 1999** NEA: *Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation – Status and Assessment Report*. Nuclear Energy Agency, OECD Publications, Paris. 1999
- NLÖ 1993** NLÖ: *Belastung von Wasser und Boden durch Schadstoffe in Luft und Niederschlägen*. Bericht des Niedersächsischen Landesamts für Ökologie zum Depositions-Messnetz Niedersachsen. 1993
- OSPAR Commision 2004** OSPAR COMMISSION: *Radioactive Substances Series, Liquid Discharges from Nuclear Installations*. 2004
- Otto 2000** OTTO, M.: *Analytische Chemie*. 2. Auflage. Weinheim, New York : Wiley-VCH, 2000
- Paul u. a. 1987** PAUL, M. ; FINK, D. ; HOLLOS, G. ; KAUFMAN, A. ; KUTSCHERA, W. ; MAGARITZ, M.: Measurement of  $^{129}\text{I}$  concentrations in the environment after the Chernobyl reactor accident. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 29 (1987), S. 341–345



- Pel 1993** PEL, E.: Zum Verhalten von Iod im System Boden-Pflanze-Luft / Kernforschungszentrums Karlsruhe, Hauptabteilung Sicherheit. 1993 (KfK 5118). – Forschungsbericht
- Pietrzak-Flis u. a. 2003** 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. In: *Health Physics* 84 (2003), Nr. 6, S. 698–708
- Raisbeck 2002** RAISBECK, G. M.: Use of  $^{129}\text{I}$  as an oceanographic tracer in the nordic Seas. In: *The 5th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic*. St. Petersburg (Russia), 2002
- Raisbeck u. a. 1995** RAISBECK, G.M. ; YIOU, F. ; ZHOU, Z.Q. ; KILIUS, L.R.:  $^{129}\text{I}$  from nuclear fuel facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer. In: *Journal of Marine Systems* 6 (1995), S. 561–570
- Rat der Europäischen Union 1996** RAT DER EUROPÄISCHEN UNION: *Richtlinie 96/29/EURATOM des Rates vom 13. Mai 1996 zur Festlegung der grundlegenden Sicherheitsnormen für den Schutz der Gesundheit der Arbeitskräfte und der Bevölkerung gegen die Gefahren ionisierender Strahlungen*. 1996. – AB1.EG, L159/1 (29.06.1996)
- Robens u. a. 1988** ROBENS, E. ; HAUSCHILD, J. ; AUMANN, D.C.: Iodine-129 in the Environment of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant, Part II.: Iodine-129 and Iodine-127 Contents of Soils, Forage Plants and Deer Thyroids. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 7 (1988), S. 265–274
- Robertson u. a. 2003** 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 / Pacific Northwest National Laboratory. 2003 (NUREG/CR-6825, prepared for the U.S. Nuclear Regulatory Commission). – Forschungsbericht
- Rucklidge u. a. 1994** RUCKLIDGE, J. ; KILIUS, L. ; FUGE, R.:  $^{129}\text{I}$  in moss downwind from the Sellafield nuclear fuel reprocessing plant. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994), S. 417–420
- Sandell und Kolthoff 1937** SANDELL, E. ; KOLTHOFF, I.: Microdetermination of iodine by catalytic method. In: *Microchimica Acta* 1 (1937), S. 9–25
- Santschi und Schwehr 2004** 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. In: *Science of the Total Environment* 321 (2004), S. 257–271
- Schink u. a. 1995** SCHINK, D. R. ; SANTSCHI, P. H. ; CORAPCIOGLU, O. ; SHARMA, P. ; FEHN, U.:  $^{129}\text{I}$  in Gulf of Mexico waters. In: *Earth and Planetary Science Letters* 135 (1995), S. 131–138

- Schmidt 1998** SCHMIDT, A.: *<sup>129</sup>I und stabiles Iod in Umweltproben. Qualitätskontrolle von Analysemethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie*, Universität Hannover, Dissertation, 1998
- Schnabel u. a. 2001** SCHNABEL, C. ; LOPEZ-GUTIERREZ, J. M. ; SZIDAT, S. ; SPRENGER, M. ; WERNLI, H. ; BEER, J. ; SYNAL, H.-A.: On the origin of <sup>129</sup>I in rain water near Zürich. In: *Radiochimica Acta* 89 (2001), S. 815–822
- Schnell 1997** SCHNELL, D.: *Stabiles Iod und das langlebige radioaktive Spaltprodukt Iod-129 in Böden in Deutschland*. Bonn, Dissertation, 1997
- Schnier u. a. 2001** SCHNIER, C. ; NIEDERGESÄSS, R. ; JABLONSKI, R. ; SCHAPER, R.: *Instrumental Neutron Activation Analysis*. 2001. – Poster, Online im Internet: [http://venus.gkss.de/aes/pdf\\_doku/schnier01\\_poster\\_e.pdf](http://venus.gkss.de/aes/pdf_doku/schnier01_poster_e.pdf) [Stand: 17.02.2005]
- Schwarz und Heumann 2002** SCHWARZ, A. ; HEUMANN, K.: Two-dimensional online detection of brominated and iodinated volatile organic compounds by ECD and ICP-MS after GC separation. In: *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 374 (2002), Nr. 2, S. 212–219
- Schwedt 1996** SCHWEDT, G. (Hrsg.): *Taschenatlas der Analytik*. 2. Auflage. Stuttgart, New York : Georg Thieme, 1996
- Simpkins und Hamby 2003** SIMPKINS, A. A. ; HAMBY, D. M.: Uncertainty in transport factors used to calculate historical dose from I-131 releases at the Savannah River site. In: *Health Physics* 85 (2003), Nr. 2, S. 194–203
- Simpkins und Hamby 2004** SIMPKINS, A. A. ; HAMBY, D. M.: Credibility of uncertainty analyses for <sup>131</sup>I pathway assessments: Reply to Hoffman et. al. In: *Health Physics* 86 (2004), Nr. 5, S. 538
- Staven u. a. 2003** STAVEN, L. H. ; RHOADS, K. ; NAPIER, B. A. ; STRENGE, D. L.: A compendium of transfer factors for agricultural and animal products / Pacific Northwest National Laboratory. 2003 (PNNL-13421). – Forschungsbericht
- Straume u. a. 1996** 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 <sup>129</sup>I to reconstruct <sup>131</sup>I deposition from the Chernobyl reactor accident. In: *Health Physics* 71 (1996), Nr. 5, S. 733–740
- Strebin u. a. 1988** STREBIN, R. S. ; BRAUER, F. P. ; KAYE, J. H. ; RAPIDS, M. S. ; STOFFELS, J. J.: Neutron Activation and Mass Spectrometric Measurement of <sup>129</sup>I. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* 127 (1988), Nr. 1, S. 59–73
- StrlSchV** STRLSCHV: *Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen*. Veröffentlicht im Bundesgesetzblatt I (BGBl I), 2001, S. 1714 vom 20.6.2001. Geändert durch BGBl I, 2002, S. 1869 vom 18.06.2002

- Studier u. a. 1962** 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: The isolation of iodine from a variety of materials. In: *Journal of Inorganic Nuclear Chemistry* 24 (1962), S. 755–761
- Synal u. a. 1997** SYNAL, H.-A. ; BONANI, G. ; DÖBELI, M. ; ENDER, R. M. ; GARTENMANN, P. ; KUBIK, P. W. ; SCHNABEL, C. ; SUTER, M.: Status report of the PSI/ETH AMS facility. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 123 (1997), S. 62–68
- Szanto u. a. 2001** SZANTO, Zs. ; SZŰCS, Z. ; SVINGOR, É. ; MOLNÁR, M. ; PALCSU, L. ; FUTÓ, I. ; VAJDA, N. ; MOLNÁR, Zs. ; KABAI, É.: Determination of  $^{129}\text{I}$  in low level radioactive waste by two different methods. In: *International Conference Nuclear Energy in Central Europe*. Portoroz, Slovenien, 2001
- Szidat 2000** SZIDAT, S.: *Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien*, Universität Hannover, Dissertation, 2000
- Thorne 2003** THORNE, M. C.: Estimation of animal transfer factors for radioactive isotopes of iodine, technetium, selenium and uranium. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 70 (2003), S. 3–20
- Tuniz u. a. 1998** TUNIZ, C. ; BIRD, J. R. ; FINK, D. ; HERZOG, G. F.: *Accelerator Mass Spectrometry – Ultrasensitive Analysis for Global Science*. Boca Raton, Boston, London, New York, Washington D.C. : CRC Press, 1998
- UNSCEAR 1982** UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Report to the General Assembly of the United Nations. 1982. – Forschungsbericht
- Vahlbruch 2004** VAHLBRUCH, J.-W.: *Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland*, Universität Hannover, Dissertation, 2004
- Wagner u. a. 1996** WAGNER, M. J. M. ; DITTRICH-HANNEN, B. ; SYNAL, H.-A. ; SUTER, M. ; SCHOTTERER, U.: Increase of  $^{129}\text{I}$  in the environment. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 113 (1996), S. 490–494
- Weiß 2001** WEISS, J.: *Ionen-Chromatographie*. 3. Auflage. Weinheim, New York : Wiley-VCH, 2001
- Whicker und Kirchner 1987** WHICKER, K. ; KIRCHNER, T. B.: Pathway: A dynamic food-chain model to predict radionuclide ingestion after fallout deposition. In: *Health Physics* 52 (1987), S. 717–737
- Whitehead 1979** WHITEHEAD, D. C.: Iodine in the U. K. environment with particular reference to agriculture. In: *Journal of Applied Ecology* 16 (1979), S. 269–279

- Whitehead 1984** WHITEHEAD, D. C.: The distribution and transformations of iodine in the environment. In: *Environment International* 10 (1984), S. 321–339
- WHO 2001** WHO: *Assessment of Iodine Deficiency Disorders and Monitoring their Elimination, Publikation der World Health Organization*. 2001. – Online im Internet: [http://www.who.int/nut/documents/assessment\\_idd\\_monitoring\\_elimination.pdf](http://www.who.int/nut/documents/assessment_idd_monitoring_elimination.pdf) [Stand: 17.02.2005]
- Yiou u. a. 1994** YIOU, F. ; RAISBECK, G. M. ; ZHOU, Z. Q. ; KILIUS, L. R.:  $^{129}\text{I}$  from nuclear fuel reprocessing: potential as an oceanographic tracer. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 92 (1994), S. 436–439

# Danksagung

Frau Prof. Dr. Carla Vogt danke ich für die Betreuung dieser Arbeit. Für die freundliche Aufnahme in den Arbeitskreis Analytik des Instituts für Anorganische Chemie danke ich Frau Prof. Vogt und ihren Mitarbeitern herzlich.

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. Rolf Michel, der mir die Möglichkeit gab, diese Arbeit am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR) der Universität Hannover anzufertigen. Für die Einführung in die Radioökologie, die stete Diskussionsbereitschaft und die immer freundliche Unterstützung danke ich Herrn Prof. Michel besonders.

Ich danke zudem allen Mitarbeitern des ZSR für ihre stete Hilfsbereitschaft. Vor allem Dr. Thomas Ernst und Dr. Dieter Jakob, die mir die theoretischen und praktischen Hintergründe meiner Arbeit näher gebracht, sind hier hervorzuheben. Frau Monika Gorny danke ich für die andauernde tatkräftige Unterstützung bei den experimentellen Arbeiten. Bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Dr. Jan-Willem Vahlbruch für die freundschaftliche Arbeitsatmosphäre im gemeinsamen Büro und seine herausragende Organisation der umfangreichen Probenahme. Herrn Karl-Heinz Iwanek danke ich für meine bisher längste und aufregendste Autofahrt. Ihm und auch Herrn Sven Hippler gilt zudem mein Dank für die Unterstützung bei der Anfertigung von Grafiken und Zeichnungen. Für das Gelingen einer unvergessenen Exkursion in die Ukraine im Jahre 2002 danke ich den Herren Prof. Michel, Dr. Jan-Willem Vahlbruch, Dr. Arne Mewis und Sven Hippler. Ein spezielles Dankeschön geht auch an die Mitarbeiter der Werkstatt, die bei technischen Fragen immer schnell und kompetent zu helfen wussten und die, nicht nur durch die kulinarische Versorgung der Mitarbeiter, zum insgesamt sehr guten Arbeitsklima im ZSR beitrugen.

Für die Möglichkeit der Benutzung des ICP-MS-Gerätes und die Einführung in die Bedienung danke ich Frau Prof. Vogt und Frau Susan Gruhl aus dem Arbeitskreis Analytik.

Eine optimale Betreuung bei der Durchführung und Auswertung der AMS-Messung an der ETH-Hönggerberg in Zürich wurde mir durch Dr. Hans-Arno Synal und Prof. Dr. Martin Suter zu teil. Allen anderen Mitarbeitern des Instituts für Ionenstrahlphysik, die viel Zeit für das Gelingen der Analysen geopfert haben und auch nachts zur Betreuung der Messungen zur Verfügung standen, gilt ebenso mein aufrichtiger Dank.

Ich danke auch der Zentralabteilung Forschungsreaktor des GKSS-Forschungszentrums Geesthacht, speziell Herrn Dr. P. Schreiner, Herrn K. Pfaffenbach, Herrn U. Geyer und Herrn M. Heuer für die Durchführung der Bestrahlung der Proben im Rahmen der RNAA.

Die Probenahme zu dieser Arbeit war nur durch die Mitarbeit vieler hilfsbereiter Menschen möglich. Mein Dank geht an Familie Steffens in Neßmerpolder, Familie Block in Schessinghausen, Familie Erhardt in Schlewecke und Herrn Estorf aus Gestorf für die Ermöglichung der Probenahme von Umweltproben. Den Hermannsdorfer Landwerkstätten, vertreten durch Herrn Brauch und Herrn Huwatschek, den Gemüsebetrieben Nötel in Jeinsen und Wessels in Gründeich und dem Obstbetrieb Hahne aus Gleidingen danke ich ebenfalls. Das Studentenwerk Hannover, in Person von Herrn Hübschner, hat die Beprobung des Mittagessens der Hauptmensa der Universität Hannover möglich gemacht. Dem Institut für Wildbiologie und Jagdkunde der Universität Göttingen, vertreten durch Herrn Horst Reinicke, danke ich für die Probenahme von tierischem Fleisch und Schilddrüsen. Herrn Dr. Wolfgang Städe, Herrn Joachim Döring, Herrn Volkhard Knapp und allen für mich anonym gebliebenen Mitarbeitern des ehemaligen NLÖ danke ich für die Bereitstellung der Wasserproben.

Ich danke 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 die Schilddrüsenproben.

Für die kritische Durchsicht dieser Arbeit danke ich neben Herrn Prof. Michel und Herrn Dr. Jakob auch Herrn Dr. Arndt Meyer und vor allem Frau Anett Körn. Ihre fachlich versierte Prüfung der deutschen Rechtschreibung in dieser Arbeit war den gängigen elektronischen Verfahren eindeutig überlegen. Diesbezüglich verbliebene Mängel sind ausschließlich dem Autor anzulasten.

Herrn Dr. R. V. Battersby danke ich für den Freiraum, diese Arbeit und die damit verbundene Prüfung, parallel zu den ersten Monaten meiner Beschäftigung bei der EBRC Consulting GmbH, erfolgreich zu Ende zu bringen.

Für den seelischen und finanziellen Beistand während meines gesamten Studiums danke ich meinen Eltern Elona und Klaus und meiner Schwester Birthe.

Abschließend möchte ich mich bei meiner Freundin Danny von ganzem Herzen für ihre Unterstützung bedanken. Sie hat besonders meine körperliche und geistige Abwesenheit lange tapfer ertragen.

## Publikationen

Michel, R.; Klipsch, K.; Ernst, Th.; Gorny, M., Jakob, D.; Vahlbruch, J.-W.; Synal, H.-A.; Schnabel, C.: *I-129 and I-127 in northern Germany*. Goldschmidt Conference Abstracts 2005 , Geochim. Cosmochim. Acta (2005), Im Druck.

Michel, R.; Klipsch, K.; Ernst, Th.; Gorny, M., Jakob, D.; Vahlbruch, J.-W.; Synal, H.-A.; Schnabel, C.: *Long-lived Radionuclides in the Environment: On the Radioecology of Iodine-129*. Proceedings ECORAD 2004, Aix-en-Provence, Angenommen zur Veröffentlichung.

Michel, R.; Klipsch, K.; Ernst, Th.; Gorny, M., Jakob, D.; Vahlbruch, J.-W.; Synal, H.-A.; Schnabel, C.: *Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129*. Abschlussbericht Vorhaben StSch 4285, August 2004. In: Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, ISSN 1612-6386.

Online im Internet unter

<http://www.bmu.de/strahlenschutz/doc/6872.php>

<http://www.zsr.uni-hannover.de> [Stand: 21.03.2005].

Michel, R.; Ernst, T.; Klipsch, K.; Vahlbruch, J.-W.; Jakob, D.; Synal, H.-A.; Schnabel, C.; Szidat, S.; López-Gutiérrez, J.M.: *Long-Lived Radionuclides in the Environment: On the Radioecology of Iodine-129*. In: Qaim, S.M.; Coenen, H.H. (Hrsg.): *Advances in Nuclear and Radiochemistry, Extended abstracts of the 6th Int. Conf. on Nuclear and Radiochemistry (NRC-6)*, 29.08.- 03.09.2004, Aachen. Schriften des Forschungszentrums Jülich, Reihe Allgemeines und Interdisziplinäres, Vol. 3, ISSN 1433-5565, ISBN 3-89336-362-9, S. 666 – 668 (2004).

# Lebenslauf

**Name:** Kevin Klipsch

**Geburtsdatum:** 26.04.1975

**Geburtsort:** Hannover

## **Ausbildung:**

1981 – 1994 Schulausbildung

Erlangung der Hochschulreife am Ratsgymnasium Hannover

1994 – 1995 Grundwehrdienst

1995 – 2002 Studium der Chemie an der Universität Hannover

Abschluss als Diplomchemiker im Januar 2002

Thema der Diplomarbeit: „Neutronenaktivierungsanalytische Untersuchungen zur Bestimmung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von  $^{129}\text{I}$ “

2002 – 2005 Promotion bei Prof. Dr. R. Michel am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover

Thema der Dissertation: „Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des  $^{129}\text{I}$  auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen“