

**Kontamination von Nord- und Ostsee mit langlebigem Iod-129
und anderen anthropogenen Radionukliden**

Von der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.
genehmigte Dissertation
von

Dipl.-Chem. Lübbert Tosch

geboren am 1. April 1979 in Aurich

2010

Referentin: Frau Prof. Dr. Carla Vogt

Korreferent: Prof. Dr. Rolf Michel

Tag der Promotion: 12.10.2010

Zusammenfassung

Das Radionuklid Iod-129 ($T_{1/2} = 15,7$ Ma) entsteht in der Natur durch Spontanspaltung von Uran-238 und durch Spallationsreaktionen von Xenon mit kosmischer Strahlung. Im Zuge der militärischen und zivilen Nutzung der neutroneninduzierten Kernspaltung von Uran-235 und Plutonium-239 wurden und werden große Mengen von anthropogenem Iod-129 in die Umwelt freigesetzt. Wesentliche Quellen sind die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague am Englischen Kanal (Frankreich) und Sellafield an der Irischen See (UK).

Es kann ein natürliches $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa $1,5 \cdot 10^{-12}$ für die marine Hydrosphäre und von $3,0 \cdot 10^{-13}$ für die terrestrische Biosphäre angenommen werden. Durch die Freisetzungen des anthropogenen Iod-129 werden die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in allen Umweltkompartimenten erhöht. Umfassendes Wasserprobenmaterial aus der Deutschen Bucht, der Nord-, Ost- und der Irischen See sowie einiger Proben aus dem Nordatlantik liefern einen Überblick über den Zustand dieser Meere und offenbaren die anthropogenen Veränderungen.

Iod erweist sich im Meerwasser als ein sehr konservativer Tracer. Die ^{127}I -Konzentrationen variieren mit Ausnahme von küstennahen Bereichen in der Umgebung von Flußmündungen nur wenig ($40,7 \pm 6,2$ ng/g). Dagegen erstrecken sich die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse über fünf Zehnerpotenzen von 10^{-10} bis auf mehr als 10^{-6} . Die Variation der Isotopenverhältnisse wird ausschließlich durch die Beimengungen von anthropogenem ^{129}I verursacht. Wasserproben fernab der Emittenten zeigen die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. In direkter Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlagen werden die stärksten Kontaminationen festgestellt. Die flüssigen Emissionen aus La Hague lassen sich entlang des Küstenstreifens vor Frankreich über Belgien, den Niederlanden und Deutschland bis nach Dänemark verfolgen. Die Ableitungen aus Sellafield können in nördlicher Richtung entlang der schottischen Küste nachgewiesen werden. Ergebnisse weiterer anthropogener Radionuklide, die zusammen mit ^{129}I den Zustand der kompletten Nordsee beschreiben, werden in bezug auf Transportprozesse in der Nordsee und benachbarter Meere ergänzend diskutiert. Der Reaktorunfall von Tschernobyl und der globale Fallout spielen in Hinblick auf die ^{129}I -Situation in Westeuropa keine signifikante Rolle.

Ostseewasser besitzt deutlich geringere und stärker streuende ^{127}I -Gehalte (10 bis 25 ng/g) als die übrigen Meerwasserproben, die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse reichen von $7,4 \cdot 10^{-8}$ bis $2,8 \cdot 10^{-7}$. Im Ostseewasser nehmen mit kürzer werdendem Abstand zur Nordsee die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die ^{127}I -Konzentrationen zu. Grund dafür ist ein mit der iodreicheren und gleichzeitig stärker kontaminierten Nordsee stattfindender Wasseraustausch. Ein Sedimentprofil aus der Deutschen Bucht zeigt ein schnelles Vordringen des Iod-129 in tiefe Sedimentschichten. Archivierte pränukeare Sedimente haben über ihre lange Lagerungszeit Kontaminationen durch anthropogenes Iod-129 erfahren.

^{127}I wurde mit ICP-MS am Institut für Anorganische Chemie der Leibniz Universität Hannover (Lehrgebiet Analytische Chemie) und ^{129}I mit Beschleunigermassenspektrometrie an der ETH Zürich bestimmt.

Schlagworte: Beschleunigermassenspektrometrie, Iod-129, Iod-127, Meerwasser

Abstract

The radionuclide iodine-129 ($T_{1/2} = 15.7$ Ma) is produced in nature by spontaneous fission of uranium-238 and by cosmic ray induced spallation of xenon. Due to the military and civil use of neutron-induced fission of uranium-235 and plutonium-239 a huge amount of iodine-129 has been released into the environment. The main sources of anthropogenic ^{129}I are the re-processing plants in La Hague (France) near the English Channel and in Sellafield (UK) close to the Irish Sea.

The natural equilibrium $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios are estimated to $1.5 \cdot 10^{-12}$ for the marine hydrosphere and to $3.0 \cdot 10^{-13}$ for the terrestrial biosphere respectively. Due to the emissions of anthropogenic iodine-129 the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios have been increased in all compartments of the environment. Surface water samples taken from the English Channel, the North Sea, the Baltic Sea, the Irish Sea, and the North Atlantic give information about anthropogenic changes.

Iodine turns out to be a conservative tracer in seawater. The iodine-127 concentrations in seawater except for coastal areas are rather constant (40.7 ± 6.2 ng/g). The observed $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios range between 10^{-10} and more than 10^{-6} . The variation of the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios is caused by the admixture of anthropogenic iodine-129. Water samples taken far away from the reprocessing plants show the lowest isotopic ratios. The highest $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios are found near the reprocessing plants. The transport of ^{129}I from La Hague has a rather clear pattern. It can be observed along the coasts of France, Belgium, the Netherlands, Germany and Denmark. The iodine-129 emissions from Sellafield can be followed northbound along the Scottish coast. The results of other anthropogenic radionuclides are used for discussing transport processes in the North Sea and the Irish Sea. Large areas in the North Sea are characterised by a ^{129}I contamination from both La Hague and Sellafield. The global fallout and emissions from Chernobyl do not contribute significantly to the situation in Western Europe.

Water samples from the Baltic Sea show lower iodine-127 concentrations (10-25 ng/g) than other seawater samples. The $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios in the Baltic Sea range between $7.4 \cdot 10^{-8}$ and $2.8 \cdot 10^{-7}$. The $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopic ratios and iodine-127 concentrations increase with a shorter distance to the North Sea, as the Baltic Sea exchanges water with the contaminated North Sea. A sediment core taken from the German Bight shows that iodine-129 expands rapidly into deep layers. Prenuclear sediments have been contaminated during their long storage.

Iodine-127 was determined by ICP-MS at Leibniz Universität Hannover, iodine-129 was measured by accelerator mass spectrometry at ETH Zurich.

Keywords: accelerator mass spectrometry, iodine-129, iodine-127, seawater

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	<i>Eigenschaften und Verwendung der Iodisotope.....</i>	<i>1</i>
1.2	<i>Quellen des natürlichen Iod-129.....</i>	<i>2</i>
1.2.1	<i>Pränukleare Iod-129/Iod-127-Isotopenverhältnisse</i>	<i>2</i>
1.3	<i>Anthropogene Iod-129-Quellen und radiologische Relevanz</i>	<i>3</i>
1.4	<i>Radioökologie des Iod-129</i>	<i>4</i>
1.5	<i>Verwendung des Iod-129</i>	<i>5</i>
1.6	<i>Natürliche Vorkommen von Radionukliden in der Umwelt.....</i>	<i>5</i>
2	Aufgabenstellung	8
3	Quellen anthropogener Radionuklide.....	9
3.1	<i>Einleitung.....</i>	<i>9</i>
3.2	<i>Hintergrundaktivitäten im Meerwasser nach Kernwaffentests</i>	<i>10</i>
3.3	<i>Freisetzung anthropogener Radionuklide nach dem Unfall von Tschernobyl.....</i>	<i>12</i>
3.4	<i>Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield.....</i>	<i>14</i>
3.4.1	<i>Iod-129-Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen.....</i>	<i>14</i>
3.4.2	<i>Emissionen von Tritium, Strontium-90, Cäsium-137 und den Transuranen</i>	<i>16</i>
3.4.3	<i>Technetium-99-Emissionen.....</i>	<i>19</i>
3.5	<i>Das Oslo-Paris-Abkommen (OSPAR-Konvention)</i>	<i>20</i>
4	Vorkommen und Eigenschaften von Iod-127 und Iod-129 in der Umwelt.....	22
4.1	<i>Vorkommen des Iods in der Umwelt</i>	<i>22</i>
4.1.1	<i>Physiologische Eigenschaften des Iods</i>	<i>23</i>
4.2	<i>Chemische Eigenschaften des Iods im Meerwasser.....</i>	<i>23</i>
4.3	<i>Der allgemeine Iodkreislauf.....</i>	<i>28</i>
4.4	<i>Meere als Quellen und Senken des Iods.....</i>	<i>31</i>
5	Stand des Wissens.....	35
5.1	<i>Eigenschaften der Radionuklide im Meerwasser</i>	<i>35</i>
5.1.1	<i>Strontium-90</i>	<i>35</i>
5.1.2	<i>Technetium-99</i>	<i>36</i>
5.1.3	<i>Cäsium-137</i>	<i>38</i>
5.1.4	<i>Transurane: Plutonium-238, Plutonium-239+240 und Americium-241.....</i>	<i>40</i>
5.1.5	<i>Zusammenfassung.....</i>	<i>41</i>
5.2	<i>Bisherige Arbeiten zu Iod-129 in der Nordsee und benachbarten Meeren.....</i>	<i>41</i>
5.3	<i>Bisherige Arbeiten zu Iod-127 Iod-129 in Sedimenten</i>	<i>52</i>
5.4	<i>Iod-127 und Iod-129 in der Biota</i>	<i>54</i>
5.5	<i>Strömungsverhältnisse in der Nordsee und im Nordatlantik</i>	<i>58</i>
6	Probenherkunft und Probennahme	63
6.1	<i>Probennahme und Lagerung: Seewasser.....</i>	<i>63</i>
6.2	<i>Probennahme und Lagerung: Sedimente</i>	<i>66</i>
6.3	<i>Allgemeine Probenparameter</i>	<i>68</i>

6.4	<i>Analysen weiterer Radionuklide im Oberflächenwasser der Nordsee im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481</i>	69
6.4.1	Quantifizierung von Tritium	69
6.4.2	Quantifizierung von Technetium-99	69
6.4.3	Quantifizierung von Strontium-90 und Cäsium-137	70
6.4.4	Quantifizierung der Transurane: Plutonium-238, Plutonium-239+240, Americium-241	70
7	Experimentelle Quantifizierung von Iod-127 und Iod-129	71
7.1	<i>Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS)</i>	71
7.1.1	Aufbau und Funktionsweise der ICP-MS	72
7.1.2	Vorbereitung und Durchführung der ICP-MS-Messungen	75
7.1.3	Auswertegang der ICP-MS-Messungen	76
7.2	<i>Aufbau und Funktionsweise der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)</i>	79
7.2.1	Erfordernis des AMS-Systems	84
7.2.2	Aufarbeitung der Wasserproben für die AMS	85
7.2.3	Aufarbeitung der Sedimente	86
7.2.4	Auswertung der AMS-Messungen	88
7.3	<i>Qualitätskontrolle und charakteristische Grenzen</i>	91
7.3.1	Einleitung und Grundlagen	91
7.3.2	Bayes-Statistik	93
7.3.3	Blindwerte der Wasserproben	97
7.3.4	Blindwerte der Sedimente	98
7.3.5	Analyse von Referenzmaterialien: Seewasser	99
7.3.6	Analysen weiterer Referenzmaterialien	102
8	Ergebnisse	104
8.1	<i>Iod-127 und Iod-129 in der Deutschen Bucht</i>	104
8.2	<i>Iod-127 und Iod-129 in der Nordsee und in der Irischen See</i>	108
8.3	<i>Tiefenprofile</i>	111
8.4	<i>Zeitreihen</i>	114
8.5	<i>Iod-127 und Iod-129 in der Ostsee</i>	115
8.6	<i>Iod-127 und Iod-129 im Nordatlantik</i>	118
8.7	<i>Einzelproben von Spiekeroog</i>	118
8.8	<i>Exotische Wasserproben: Iod-127 und Iod-129 fernab der Emittenten</i>	119
8.9	<i>Ergebnisse der Sedimentuntersuchungen</i>	120
8.9.1	Pränukleare Sedimente	120
8.9.2	Aktuelles Sedimentprofil aus der Deutschen Bucht	120
9	Ergebnisse des Strahlenschutzvorhabens 4481	123
9.1	<i>Tritium, Strontium-90, Technetium-99 und Cäsium-137 in der Nordsee</i>	124
9.2	<i>Transurane in der Nordsee: Plutonium-238, Plutonium-239+240 und Americium-241</i>	128
9.3	<i>Aktivitätsverhältnisse in der Nordsee</i>	130
10	Beurteilung der Ergebnisse und Diskussion	137
10.1	<i>Deutsche Bucht, Nordsee und Irische See</i>	137
10.2	<i>Iod-127 und Iod-129 im Europäischen Nordmeer</i>	149
10.3	<i>Tiefenprofile</i>	149
10.4	<i>Ergebnisse des Strahlenschutzvorhabens 4481</i>	153
10.4.1	H-3, Sr-90 und Cs-137 in der Nordsee	153
10.4.2	Tc-99 in der Nordsee	156
10.4.3	Transurane in der Nordsee: Pu-238, Pu-239/240 und Am-241	157

10.5	<i>Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in der Nordsee</i>	158
10.6	<i>Iod-127 und Iod-129 im Ostseewasser</i>	161
10.7	<i>Cäsium-137 und Strontium-90 in der Ostsee</i>	165
10.8	<i>Iod-127 und Iod-129 fernab der Emittenten</i>	166
10.9	<i>Abschließende und zusammenfassende Diskussion der Iodisotope in Wasserproben</i>	167
10.10	<i>Iod-127 und Iod-129 in Sedimenten</i>	170
10.10.1	Pränukleare Sedimente	170
10.10.2	Aktuelles Profil aus der Deutschen Bucht.....	171
10.11	<i>Vergleich zu bisher am ZSR angefertigten Arbeiten</i>	175
11	Zusammenfassung und Ausblick	180
	Literaturangaben	182
	Anhang I: Probenparameter und Meßergebnisse	197
	Anhang II: Ergänzende Daten, Meßwerte und Abbildungen zum Strahlenschutzvorhaben 4481	226
	Anhang III: Ergänzende Abbildungen	255
	Anhang IV: Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen	258
	Danksagung	270

Abkürzungsverzeichnis

abs.	absolut
Amru	Amrum
AMS	accelerator mass spectrometry (Beschleunigermassenspektrometrie)
Arko	Arkonabecken
At/l	Atome pro Liter
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BLW	Blindwert
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
Brgru	Borkumriffgrund
Briff	Borkumriff
BSH	Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie, Nachfolgeinstitution des DHI
BSWL	Bordseewasserleitung
DEHP	Diisopropylhydrogenphosphat
DHI	Deutsches Hydrographisches Institut, Vorgängerinstitution des BSH
ECC	European Coastal Current, europäischer Küstenstrom
EKG	Erkennungsgrenze
ETH	Eidgenössische Technische Hochschule
Fbelt	Fehmarnbelt
FC	Faraday-Becher (Faraday-Cup)
FS	Forschungsschiff
GID	Gasionisationsdetektor
Gl.	Gleichung
GUM	ISO Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement
Howabu	Hohwichter Bucht
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
IMIS	Integriertes Meß- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität
Kalkgr	Kalkgrund
Kfotn6	Kieler Förde Tonne Nr. 6
Kibu	Kieler Bucht
LTKiel	Leuchtturm Kiel
Luebu	Lübecker Bucht
Mebu	Mecklenburger Bucht

Abkürzungsverzeichnis (Fortsetzung)

NAC	North Atlantic Current, Nordatlantischer Strom
NCC	Norwegian Coastal Current, norwegischer Küstenstrom
NEC	National Eleostatics Corp.
Neubu	Neustädter Bucht
Norde	Norderney
NRPA	Norwegian Radiation Protection Authority
OSPAR	Oslo-Paris-Abkommen zum Schutz der Meeresumwelt des Nordostatlantikraumes
ppb	parts per billion, ng/g
ppm	parts per million, µg/g
ppt	parts per trillion, pg/g
REI	Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen
rel.	relativ
Sal.	Salinität
Schlei	Schleimündung
SEV	Sekundärelektronenvervielfacher
Stolgr	Stoller Grund
StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
StrVG	Strahlenschutzvorsorgegesetz
StrlSch	Strahlenschutz
Swwba	südwestlich Weiße Bank
TM	Trockenmasse
TMAH	Tetramethylammoniumhydroxid
TOF	time of flight
Trolgr	Trollegrund
U	Unsicherheit
WAA	Wiederaufarbeitungsanlage
Warnem	Warnemünde
Wbank	Weiße Bank
WSC	West Spitzbergen Current, Westspitzbergen Strom
WWI	Woodwardiod
ZSR	Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie

1 Einleitung

In der Umwelt sind radioaktive Nuklide, auch Radionuklide genannt, aus natürlichen und künstlichen Quellen zugegen. Ein großer Anteil natürlicher Radioaktivität entstammt den Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums. Die Uran-Actinium-Reihe beginnt bei Uran-235, die Uran-Radium-Reihe bei Uran-238 und die Thoriumreihe bei Thorium-232. Diese natürlichen Zerfallsreihen enden in verschiedenen stabilen Bleisotopen. Neben den Zerfallsreihen finden auch Spontanspaltungen von schweren Nukliden statt. Primordiale Radionuklide, zu denen auch Uran-238, Uran-235 und Thorium-232 zählen, verfügen über sehr lange Halbwertszeiten und sind seit der Nukleosynthese vor etwa 10^9 Jahren vorhanden. Kosmogene Radionuklide werden fortlaufend durch den Einfluß kosmischer Strahlung neu gebildet.

Seit Nutzung der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von ^{235}U und ^{239}Pu werden künstlich erzeugte Radionuklide in die Umwelt freigesetzt. Seit Beginn der oberirdischen Kernwaffentests erfahren die dabei entstehenden Nuklide wissenschaftliches Interesse. Dies betrifft neben dem in dieser Arbeit untersuchten ^{129}I insbesondere ^{90}Sr , ^{137}Cs und ^{99}Tc . Diese Radionuklide werden auch im Zuge der Wiederaufarbeitung nuklearer Brennstoffe in die Umwelt abgeleitet. Sie verfügen über lange Halbwertszeiten und lassen sich demzufolge lange nach ihrer Freisetzung nachweisen. Die Emissionen von Kernkraftwerken und Forschungsreaktoren sind im Vergleich zu denen der Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA) vernachlässigbar, sofern sich die Reaktoren im Normalbetrieb befinden.

1.1 Eigenschaften und Verwendung der Iodisotope

Das Halogen Iod mit der Ordnungszahl $Z = 53$ besitzt mit ^{127}I nur ein stabiles Isotop. Insgesamt sind 37 Iodisotope von ^{108}I bis ^{144}I bekannt. Die Isotope ^{123}I und ^{125}I wie auch die anderen protonenreichen Iodisotope werden durch Kernreaktionen in Teilchenbeschleunigern künstlich hergestellt. Sie finden vielfältige Einsatzmöglichkeiten für Markierungszwecke bei der Aufklärung chemischer Reaktionsmechanismen sowie in der medizinischen Diagnostik und Therapie.

Die neutronenreichen Iodisotope ^{128}I , ^{129}I und ^{131}I sind in der Spuren- und Traceranalytik von Bedeutung und werden auch für medizinische Anwendungen eingesetzt. ^{129}I wird bei der retrospektiven Dosimetrie (s. Abschnitt 1.4) genutzt, auch ist es bei der Aufklärung geochemischer Transportprozesse von Bedeutung. Die schwereren, kurzlebigen Iodisotope ^{132}I ($T_{1/2} = 2,3$ h), ^{133}I ($T_{1/2} = 20,8$ h) und ^{135}I ($T_{1/2} = 6,61$ h) [Magill et al., 2007] sind lediglich im Hinblick auf die Strahlenexposition nach einem nuklearen Unfall von Relevanz [Santschi und Schwehr, 2004].

Iod-129 ist ein β^- -Strahler mit einer maximalen Zerfallsenergie von 0,15 MeV. Es zerfällt mit einer Halbwertszeit von 15,7 Ma in metastabiles Xenon-129, welches durch die Aussendung eines Gammaquants der Energie 39,58 keV bei einer Halbwertszeit von 8,9 Tagen in den Grundzustand übergeht.

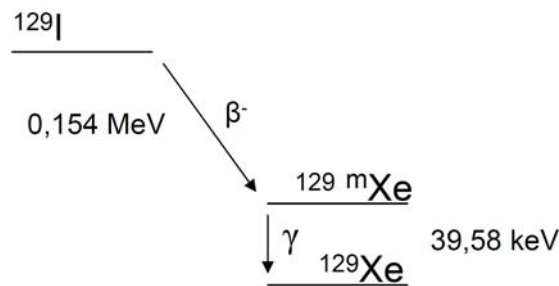


Abbildung 1: Zerfallsschema des Iod-129.

1.2 Quellen des natürlichen Iod-129

Die natürliche Entstehung von Radionukliden läßt sich in drei Bildungsmechanismen unterteilen. Primordiale Nuklide existieren schon seit der Entstehung der Erde, fissiogene Nuklide werden bei der Spontanspaltung natürlicher radioaktiver Kerne gebildet und kosmogene Nuklide entstehen bei Wechselwirkungen von Materie mit kosmischer Strahlung. Aufgrund der Halbwertszeit des ^{129}I von 15,7 Ma ist primordiales ^{129}I nicht mehr zugegen.

In der Natur entsteht das langlebige ^{129}I bei der Wechselwirkung von energiereichen Teilchen der kosmischen Strahlung mit Xenon in den oberen Schichten der Erdatmosphäre. Bei diesen Spallationsreaktionen liegt die Produktionsrate nach Berechnungen von Kohman und Edwards für kosmogenes Iod-129 bei 5 mg/a, das entspricht 32,7 kBq/a [Kohman und Edwards, 1966]. Die mittlere Gleichgewichtsmenge von kosmogenem ^{129}I berechnet sich nach Multiplikation der Bildungsrate mit der mittleren Lebensdauer τ ($\tau = T_{1/2}/\ln 2$) zu etwa 120 kg [Schmidt, 1998]. Bei der Spontanspaltung von Actinoiden entstehen ebenfalls radioaktive Iodisotope, wobei nur das langlebige ^{129}I von Bedeutung ist. Der wesentliche Entstehungsmechanismus des fissiogenen ^{129}I ist die Spontanspaltung von ^{238}U . Etwa 55 % (142 kg/a) des natürlichen ^{129}I entstehen bei der Spontanspaltung der Actinoide und etwa 45 % (120 kg/a) bei Spallationsreaktionen von Xenon mit kosmischer Strahlung. Diese beiden Entstehungsmechanismen können somit als die beiden einzigen signifikanten Quellen des natürlichen ^{129}I aufgefaßt werden. Die natürliche Gleichgewichtsmenge von ^{129}I in Atmosphäre, Hydrosphäre, Pedosphäre und Biosphäre ergibt sich demnach zu 262 kg und wird als freies ^{129}I -Inventar bezeichnet [Buraglio, 2000; Ernst, 2003; Fabryka-Martin, 1984; Kocher, 1981; Schmidt, 1998; Szidat, 2000; Whitehead, 1984]. Neben dem freien ^{129}I -Inventar sind etwa 50000 kg ^{129}I im Inneren der Erde gebunden [Fabryka-Martin, 1984]. Diese Vorkommen sind aber aufgrund der fehlenden Mobilität in der Umwelt bei den in dieser Arbeit durchgeführten Betrachtungen nicht relevant.

1.2.1 Pränukleare Iod-129/Iod-127-Isotopenverhältnisse

Durch die fortdauernden Freisetzungen des anthropogenen ^{129}I wird das freie ^{129}I -Inventar stetig erhöht. Da die ^{127}I -Vorkommen in der Umwelt sehr unterschiedlich sind, hat es sich bewährt, das Stoffmengenverhältnis $n(^{129}\text{I})/n(^{127}\text{I})$, welches im allgemeinen auch $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis genannt wird, zu diskutieren. Im Gegensatz zu Aktivitätskonzentrationen oder weiteren gebräuchlichen Einheiten läßt sich mit dem Isotopenverhältnis sofort das Ausmaß der Beeinflussung durch den Menschen erfassen [Klipsch, 2005]. Unter dem natürlichen oder

auch pränuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis versteht man das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis, welches in der Natur vorlag, bevor der Mensch durch seine Aktivitäten in den ^{129}I -Haushalt eingegriffen hat.

Pränukleare $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse können mit Modellrechnungen abgeschätzt oder experimentell bestimmt werden. Modellrechnungen beziehen unterschiedliche Parameter wie zum Beispiel die Produktions- und Zerfallsraten oder Verweilzeiten des Iods in den Kompartimenten ein. Experimentelle Bestimmungen können an pränuklearen Proben erfolgen. Darunter sind Proben zu verstehen, die genommen und konserviert wurden, bevor es zu Freisetzungen von anthropogenem ^{129}I kam. Alternativ können auch rezente Proben herangezogen werden, die nicht am globalen Iodaustausch teilgenommen haben [Ernst, 2003]. Die pränuklearen Proben unterliegen immer der Gefahr der Kontamination durch anthropogenes ^{129}I , so daß die experimentell ermittelten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse stets nur eine Obergrenze des natürlichen Isotopenverhältnisses darstellen [Ernst, 2003; Michel et al., 2006; Michel et al., 2004].

Die experimentelle Untersuchung des natürlichen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses konnte erst in den 1980er Jahren mit Erfindung der Beschleunigermassenspektrometrie (kurz: AMS = accelerator mass spectrometry) beginnen. Die AMS ermöglicht eine Bestimmung von $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in der Größenordnung von 10^{-14} . Medizinische Iodpräparate aus den Jahren 1918 und 1935 zeigten Isotopenverhältnisse von etwa $2 \cdot 10^{-13}$ [Ernst, 2003]. Das pränukleare Isotopenverhältnis der ozeanischen Mischungsschicht wurde nach Untersuchungen an Sedimentkernen zu etwa $1,5 \cdot 10^{-12}$ bestimmt [Fehn et al., 1986; Moran et al., 1998]. Im Tiefenwasser aus dem Golf von Mexiko wurde ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa $1,4 \cdot 10^{-12}$ ermittelt [Schink et al., 1995b]. Als natürliche $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden heute $3 \cdot 10^{-13}$ für die terrestrische Biosphäre und $1,5 \cdot 10^{-12}$ für die marine Hydrosphäre angenommen und stellen wichtige Größen dar, um zu beurteilen wie stark Systeme durch den Menschen beeinflusst wurden. Die Diskussion über die kontinentalen Verhältnisse soll an dieser Stelle nicht weiter ausgeführt werden. Der Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhabens 4285 [Michel et al., 2004] liefert weiterführende Informationen zu dieser Thematik.

Verschiedene Modellrechnungen ergaben natürliche $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $4 \cdot 10^{-14}$ bis $3 \cdot 10^{-13}$ [Edwards, 1962; Edwards und Rey, 1968; Fabryka-Martin, 1984; Kohman und Edwards, 1966]. In der umfangreichen Arbeit von Fabryka-Martin, die sich auch mit Gleichgewichtsmodellen der Kompartimente befaßt, wird ein pränukleares $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis der marinen Hydrosphäre von $5,5 \cdot 10^{-13}$ und eines der terrestrischen Biosphäre von $6,5 \cdot 10^{-13}$ berechnet [Fabryka-Martin, 1984].

1.3 Anthropogene Iod-129-Quellen und radiologische Relevanz

Anthropogenes Iod-129 entsteht bei der neutroneninduzierten Kernspaltung von ^{235}U und ^{239}Pu . Durch Kernwaffenexplosionen wurden zwischen 45 und 150 kg ^{129}I in die Umwelt freigesetzt. Die relativ große Unsicherheit der ^{129}I -Menge beruht auf der unzureichenden Kenntnis über die Sprengkräfte der Bomben [Carter und Moghissi, 1977; Chamberlain, 1991; Eisenbud und Gesell, 1997; UNSCEAR, 1982]. Aufgrund des globalen Fallouts nach Kernwaffentests beläuft sich das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Meerwasser fernab der westeuropäischen Emittenten auf etwa 10^{-10} und liegt damit zwei Zehnerpotenzen über dem natür-

lichen Isotopenverhältnis der marinen Hydrosphäre [Yiou *et al.*, 1994]. Dieser sogenannte „post bomb background“ ist auch bei weiteren in dieser Arbeit diskutierten anthropogenen Radionukliden zu beobachten und bei der Bewertung späterer Veränderungen von Bedeutung. In Abschnitt 3.2 werden die Hintergrundaktivitätskonzentrationen einiger Nuklide nach dem globalen Fallout dargestellt.

Das Reaktorunglück von Tschernobyl leistete mit etwa 2 bis 6 kg ^{129}I nur einen recht geringen Beitrag zur Erhöhung der ^{129}I -Vorkommen in der Umwelt [Aldahan *et al.*, 2007a; Paul *et al.*, 1987; Schmidt, 1998]. Die heute relevanten Quellen in Europa sind die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague am Englischen Kanal und Sellafield in England an der Irischen See. Die WAA La Hague befindet sich auf Cotentin, einer Halbinsel im Norden Frankreichs. Die Emissionen der WAA belaufen sich bis heute auf mehr als 5000 kg ^{129}I . In Abschnitt 3 wird das Emissionsverhalten der Wiederaufarbeitungsanlagen ausführlicher behandelt. Auch die militärischen Wiederaufarbeitungsanlagen in der damaligen Sowjetunion emittierten ^{129}I , allerdings liegen über diese Anlagen keine hinreichenden Bilanzierungen vor. Hanford und West Valley in den USA setzten etwa 290 kg ^{129}I in die Umwelt frei.

Iod reichert sich sowohl beim Menschen als auch bei Säugetieren in der Schilddrüse an und ist für die stoffwechselsteuernden Hormone von Bedeutung. Berechnungen von Schmidt [Schmidt, 1998] zeigen, daß erst ab einem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,2 \cdot 10^{-3}$ bei Erwachsenen und von $5,1 \cdot 10^{-3}$ für Kleinkinder der Grenzwert für die Schilddrüsendosis von 0,9 mSv/a erreicht wird. Das höchste bisher in Westeuropa experimentell bestimmte $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis einer Umweltprobe lag bei $2,5 \cdot 10^{-4}$ und wurde in einer Rinderschilddrüse gemessen. Das dazugehörige Rind ist in direkter Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage von La Hague aufgewachsen. Seetangproben in der gleichen Umgebung zeigten Isotopenverhältnisse von mehr 10^{-5} [Fréchou *et al.*, 2002]. Demzufolge ist nach dem derzeitigen Wissensstand ^{129}I für den Menschen radiologisch noch nicht relevant. Wegen seiner Anreicherung in der Schilddrüse, der großen Mobilität in der Umwelt sowie der langen biologischen und physikalischen Halbwertszeit ist eine langfristige Überwachung des ^{129}I jedoch zu empfehlen. Ein ausführlicherer Überblick über bisherige Arbeiten bezüglich ^{129}I wird in Abschnitt 5 gegeben.

1.4 Radioökologie des Iod-129

Die Radioökologie befaßt sich mit den Eigenschaften und dem Verhalten von radioaktiven Stoffen in der Umwelt. Dabei werden die für den Menschen kritischen Expositionspfade ermittelt und die resultierende Strahlenexposition abgeschätzt. Die Strahlenexposition wird üblicherweise in die externe und interne Exposition unterteilt. Zur internen Strahlenexposition zählen Inhalation und Ingestion, zu der externen werden alle äußeren (z. B. terrestrische) Strahlenexpositionen gezählt. Weitreichende radioökologische Kenntnisse sind Bewertungsgrundlage von Kontaminationen in der Umwelt. So können im Falle unfallbedingter Freisetzungen die Folgen abgeschätzt und Vorschläge für Maßnahmen erarbeitet werden. Üblicherweise werden dabei die nach einem Stör- oder Unfall freigesetzten kurzlebigen Nuklide betrachtet. Umfassend sind radioökologische Parameter und deren Herleitung im Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhabens 4285 [Michel *et al.*, 2004] und in einigen am ZSR angefertigten Dissertationen beschrieben [Ernst, 2003; Klipsch, 2005; Schmidt, 1998]. Radioökologische Kenntnisse dienen als Grundlage bei der Ableitung von Referenzwerten für Abluft, Abwasser und Abfälle sowie für Nahrungsmittel.

1.5 Verwendung des Iod-129

Iod-129 kann als Tracer in Umweltprozessen genutzt werden. Ein Beispiel dafür ist die Bestimmung von Transportzeiten und -richtungen der Wassermassen in Meeren und Ozeanen. Unter der Transportzeit ist der Zeitabschnitt zwischen einem Emissionsereignis und dem Erreichen des maximalen Beitrages an einem bestimmten stromabwärts gelegenen Punkt zu verstehen. Bei einer möglichst hochaufgelösten Eintragsfunktion (Ort, Nuklid, Zeitpunkt und Menge) und den gemessenen Konzentrationen des Nuklids an der Beprobungsstelle kann die Transportzeit abgeschätzt werden [Hou et al., 2000a]. Dabei werden neben Iod-129 bisweilen auch andere Radionuklide (z. B. ^{99}Tc und ^{137}Cs) ergänzend herangezogen. Umfangreiche Arbeiten beschäftigen sich mit dem Transport von Radionukliden in Meerwasser [Aarkrog et al., 1988; Dahlgaard, 1994; 1995a; b; c; Dahlgaard et al., 1997; Dahlgaard et al., 1995a; Dahlgaard et al., 1995b; Edmonds et al., 2001; Hou et al., 2007; Hou et al., 2001; Raisbeck, 2002; Raisbeck und Yiou, 1999; Raisbeck et al., 1995; Raisbeck et al., 1997; Yiou et al., 1994]. Diese angegebenen Literaturstellen geben nur eine Auswahl vieler Aufsätze wieder. In Abschnitt 5 werden einige Arbeiten detailliert vorgestellt. Wie in dieser Arbeit (Abschnitt 10.5) gezeigt wird, lassen sich die Quellen des Iod-129 unterscheiden. Zu diesem Zweck werden die Emissionsdaten weiterer Radionuklide aus den WAA herangezogen. Neben Wasser erfreut sich Seetang einer erhöhten Aufmerksamkeit, da dieser das Iod stark anreichert [Fréchet und Calmet, 2003; Fréchet et al., 2001; Hou et al., 2000a; Hou et al., 1999; Kershaw et al., 1999; Muramatsu et al., 1988]. Seetang kann als sogenannter Proxy für ^{129}I -Konzentrationen im Meerwasser genutzt werden. Unter einem Proxy ist ein indirekter Anzeiger zu verstehen, der mittelbar auf den Zustand des Wassers schließen läßt. ^{129}I ist auch bei der Berechnung der Verweilzeiten des Iods in den verschiedenen Umweltkompartimenten hilfreich.

Ein weiteres Anwendungsgebiet für Iod-129 ist die retrospektive Dosimetrie. Während das direkt nach dem Unfall von Tschernobyl für die Strahlenexposition der Schilddrüse relevante Radionuklid ^{131}I schnell abgeklungen ist, blieb das langlebige ^{129}I zurück. Da das $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ -Verhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung bekannt ist, läßt sich im Nachhinein anhand der Depositionsdichten des ^{129}I die durch das ^{131}I verursachte Dosis abschätzen (s. Abschnitt 4.1.1) [Michel et al., 2005a; Schmidt, 1998].

1.6 Natürliche Vorkommen von Radionukliden in der Umwelt

Alle in dieser Arbeit behandelten Radionuklide liegen wegen ihrer im Vergleich zum Alter der Erde kurzen Halbwertszeit nicht mehr aus primordialen Quellen vor. Unter der natürlichen Hintergrundkonzentration eines Radionuklids versteht man die Konzentration des Nuklids, die ohne anthropogene Freisetzungen gemessen werden würde und ist zur Beurteilung anthropogener Veränderungen von Bedeutung. Da seit Mitte des vergangenen Jahrhunderts Veränderungen durch den Menschen stattfinden, gestalten sich heutige Abschätzungen prä-nuklearer Aktivitätskonzentration schwierig.

Prinzipiell können die bei Kernwaffentests freigesetzten Nuklide Cäsium-137 und Strontium-90 auch in sehr geringen Mengen beim Spontanzerfall des Urans entstehen. Die natürlichen Konzentrationen dieser Radionuklide sind so gering, daß sie sich nicht der derzeit verfügbaren Meßtechnik bestimmen lassen [Anonymous, 1992]. Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit einer Auswahl von auf natürlichem Wege entstandenen Radionukliden in Meer- und Flußwasser.

6 Natürliche Vorkommen von Radionukliden in der Umwelt

Geht man von einem Iodgehalt von 45 ng/g im Meerwasser und einem prä nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,5 \cdot 10^{-12}$ aus, berechnet sich daraus eine ^{129}I -Aktivitätskonzentration von $4,4 \cdot 10^{-10} \text{ Bq/m}^3$. Das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,5 \cdot 10^{-12}$ berücksichtigt die Beiträge aus Spontanspaltung und den kosmogenen Quellen. Tabelle 1 zeigt die Hintergrundaktivitäten kosmogener Radionuklide im Meerwasser

Tabelle 1: Hintergrundaktivitäten einiger kosmogener Radionuklide im oberflächennahen Meerwasser [Anonymous, 1992].

Natürliches Nuklid	Halbwertszeit	Aktivität im Oberflächenwasser
	in Jahren	in Bq/m^3
^3H	12,3	20-100
^7Be	0,146	1,1-3,4
^{14}C	5730	5,5-6,7
^{32}Si	172	$0,2-3,3 \cdot 10^{-3}$
^{129}I	$1,57 \cdot 10^7$	$4,4 \cdot 10^{-10 \text{ a}}$

a) berechneter Wert, beinhaltet Spontanspaltung und den kosmogenen Beitrag

Einige Autoren geben Tritiumaktivitätskonzentrationen in sogenannten Tritiumeinheiten (TU) an, eine Tritiumeinheit entspricht dabei 120 Bq/m^3 . In Süßwasser wird eine größere Tritium-Aktivitätskonzentration beobachtet als in Meerwasser.

In Tabelle 2 werden die Hintergrundaktivitäten von primordialen Nukliden mit einigen ihrer wichtigsten Tochternuklide vorgestellt. Etwa $3,3 \mu\text{g/l}$ Uran sind im Meerwasser gelöst. Dieser Wert variiert nur wenig und entspricht einer Aktivität von etwa 41 Bq/m^3 . Natürliches Uran besteht aus drei Isotopen, ^{234}U , ^{235}U und ^{238}U , wobei ^{238}U mit 99,275 % das mit Abstand häufigste Uranisotop ist. Im Flußwasser variieren die Urangelhalte stärker, die ^{238}U -Aktivitätskonzentrationen liegen zwischen $0,19$ und 63 Bq/m^3 . Die Aktivitätskonzentrationen des ^{235}U lassen sich aus dem $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ -Isotopenverhältnis berechnen. In Flußwasser reichen die ^{235}U -Aktivitätskonzentrationen von $0,0074$ bis $2,59 \text{ Bq/m}^3$, im Meerwasser liegen sie typischerweise bei $1,9 \text{ Bq/m}^3$ [Anonymous, 1992].

^{238}U geht nach einem Alphazerfall ins Thorium-234 über. Dessen Halbwertszeit liegt bei 24,1 Tagen und es verhält sich nicht konservativ im Meerwasser, sondern lagert sich schnell an Partikel an. Auf diese Weise findet eine geochemische Fraktionierung statt. Daher kann kein radioaktives Gleichgewicht zwischen den Nukliden angenommen werden. Die Konzentration des Thoriums wird entscheidend durch die Partikelkonzentration bestimmt. Die Aktivitätskonzentrationen des aus Uran-234 entstehenden Thorium-230 reichen im Meerwasser von 2 bis 52 mBq/m^3 , in Flußwasser von $0,2$ bis $1,4 \text{ Bq/m}^3$.

Thorium-230 zerfällt in Radium-226, welches sich wesentlich besser in Wasser löst als Thorium und daher wieder in die Hydrosphäre übergeht [Anonymous, 1992]. Radium-226 zerfällt in Radon-222, ein Edelgas mit einer Halbwertszeit von 3,7 Tagen. Es ist in der Lage, das Wasser an der Phasengrenzfläche in Richtung der Atmosphäre zu verlassen. ^{222}Rn ist als Alphastrahler für etwa die Hälfte der natürlichen Strahlenexposition in Deutschland ver-

antwortlich [BMU, 2008]. Die Zerfallsreihe verläuft über einige kurzlebige Nuklide zum Blei-210. Das daraus entstehende Polonium-210 wird relativ zügig aus Oberflächenwasser entfernt. Am Beispiel dieser Zerfallskette verdeutlicht sich die Komplexität der Eigenschaften von Radionukliden in Meerwasser.

Tabelle 2: Hintergrundaktivitätskonzentrationen einiger primordialer Radionuklide mit ihren wichtigsten Tochternukliden im oberflächennahen Meerwasser [Anonymous, 1992].

Primordiales Nuklid	Halbwertszeit in Jahren	Aktivitätskonz. im Oberflächenwasser in Bq/m ³
⁴⁰ K	$1,28 \cdot 10^9$	11800-12300
⁸⁷ Rb	$4,80 \cdot 10^{10}$	106
²³² Th	$1,41 \cdot 10^{10}$	$0,4-29 \cdot 10^{-3}$
²²⁸ Ra	5,76	0,8-8
²²⁸ Th	1,91	0,004-0,3
²³⁵ U	$7,04 \cdot 10^8$	1,9
²³⁸ U	$4,47 \cdot 10^9$	40-44
²³⁴ Th	0,066	0,6-6,8
²³⁴ U	$2,45 \cdot 10^5$	47
²³⁰ Th	$8,0 \cdot 10^4$	$2-52 \cdot 10^{-3}$
²²⁶ Ra	1617	0,8-8
²¹⁰ Pb	22,3	1-4,5 ^{a)}
²¹⁰ Pb	22,3	0,4-2,0 ^{b)}
²¹⁰ Po	0,378	0,55-1,93

^{a)} ozeanisch

^{b)} in der Nordsee

2 Aufgabenstellung

In dieser Arbeit sollen zahlreiche Wasserproben und einige Sedimente auf Iod-127 und Iod-129 untersucht werden. Die Bestimmung des stabilen Iod-127 soll mit ICP-MS an der Universität Hannover, die des Iod-129 mit AMS an der ETH Zürich erfolgen. Schwerpunkt der Arbeit bilden Wasserproben, die im Jahre 2005 während einer Reise über die komplette Nordsee und den Englischen Kanal entnommen wurden. Neben der Iodanalytik wurden von anderen Institutionen Untersuchungen auf weitere anthropogene Radionuklide vorgenommen, die in das Strahlenschutzvorhaben 4481 eingeflossen sind und in dieser Arbeit ergänzend zu diskutieren sind. Mit den zur Verfügung gestellten Daten und den eigenen Ergebnissen sind Transportprozesse in der Nordsee, dem Englischen Kanal, der Irischen See und der Deutschen Bucht zu ergründen. Dabei gilt es, die Quelle der ^{129}I -Kontamination in verschiedenen Bereichen zu identifizieren. Vermischungsprozesse von Wassermassen sind anhand von Tiefenprofilen zu erörtern, von besonderem Interesse sind dabei der Einlaß des Englischen Kanals, der nordöstliche und nordwestliche Teil der Nordsee sowie der Mündungsbereich des Skagerraks. Ziel ist es, einen Überblick über die Kontamination von Nord-, Ost- und Irischer See, dem Englischen Kanal und dem Nordostatlantik zu erhalten und ein besseres Verständnis für die Bewegung von Wassermassen in der Nordsee zu gewinnen. Anhand von Wasserproben, die an identischen Orten in Zeitreihen entnommen wurden, ist der längerfristige Zustand der Nordsee auch unter Berücksichtigung vorangegangener Arbeiten zu erfassen.

Neben den Strömungsverhältnissen innerhalb der Nordsee gilt es auch, den Einfluß des Süßwassereintrages zu klären. Unter Zuhilfenahme der Salinitäten, die als Kenngröße von Meerwasserproben begleitend aufgenommen wurden, sind Süßwassereinträge aus Flüssen und der Ostsee unter Beachtung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zu deuten.

Exotische Meerwasserproben von der hawaiischen Küste, aus dem Indischen Ozean sowie Oberflächenwasser von Hawaii sollen einen Eindruck von der aktuellen ^{129}I -Kontamination fernab der westeuropäischen Emittenten vermitteln. Einige marine pränukeare Sedimente können ein neues experimentell bestimmtes pränukeares $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis liefern. Voraussetzung dafür ist, daß die Sedimente während ihrer langen Lagerungszeit und während der Aufarbeitung keiner Kontamination unterliegen. Es ist auf eine besonders sorgfältige Probenaufarbeitung und Minimierung möglicher Kontaminationsquellen zu achten, gleichzeitig ist eine engmaschige Blindwertüberwachung notwendig. In einem aktuellen Sediment aus der Deutschen Bucht ist der Eintrag des anthropogenen Iod-129 aus den vergangenen Jahrzehnten zu erfassen.

Das Ungleichgewicht der Iodisotope in den Kompartimenten ist in Hinblick auf frühere am ZSR angefertigte Arbeiten zu diskutieren. Die Quelle des Iod-129 im Regenwasser soll unter Beachtung der luftgetragenen Emissionen abschließend geklärt werden.

3 Quellen anthropogener Radionuklide

3.1 Einleitung

Die anthropogenen Quellen der Radionuklide lassen sich in drei Kategorien einteilen. Oberirdische Kernwaffenexplosionen, unfallbedingte Freisetzungen und Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen verteilen künstliche Radionuklide in der Umwelt. Die mit thermischen Neutronen induzierten Spaltungen von ^{235}U und ^{239}Pu sind die wichtigsten Entstehungsmechanismen der in dieser Arbeit besprochenen Radionuklide. Reaktionen in Teilchenbeschleunigern oder sonstigen Forschungseinrichtungen fallen kaum ins Gewicht. Die Spaltausbeuten des Iod-129 bei neutroneninduzierten Spaltungen von ^{235}U und ^{239}Pu liegen bei 0,74 bzw. 1,6 % [England und Rider, 1994].

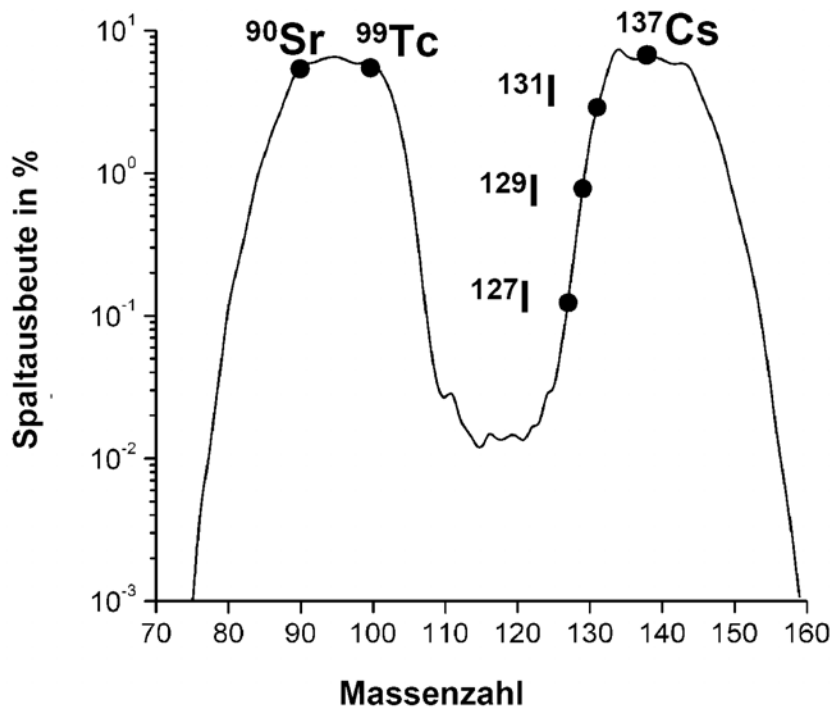


Abbildung 2: Isobarenausbeuten der neutroneninduzierten Kernspaltung von ^{235}U . Die Darstellung basiert auf Daten von England und Rider [England und Rider, 1994].

Bei der neutroneninduzierten Kernspaltung von ^{235}U mit thermischen Neutronen ist die Wahrscheinlichkeit für die Bildung von ^{129}I etwa sechsmal so groß wie für ^{127}I . Seit Beginn der zivilen und militärischen Nutzung der Kernspaltung wird künstlich hergestelltes ^{129}I in großen Mengen in die Umwelt freigesetzt. Somit erhöht sich kontinuierlich die Menge des ^{129}I in der Umwelt. Abbildung 3 faßt das Ausmaß der in Abschnitt 1.3 beschriebenen anthropogenen Freisetzungen zusammen und stellt die Menge des natürlichen ^{129}I gegenüber.

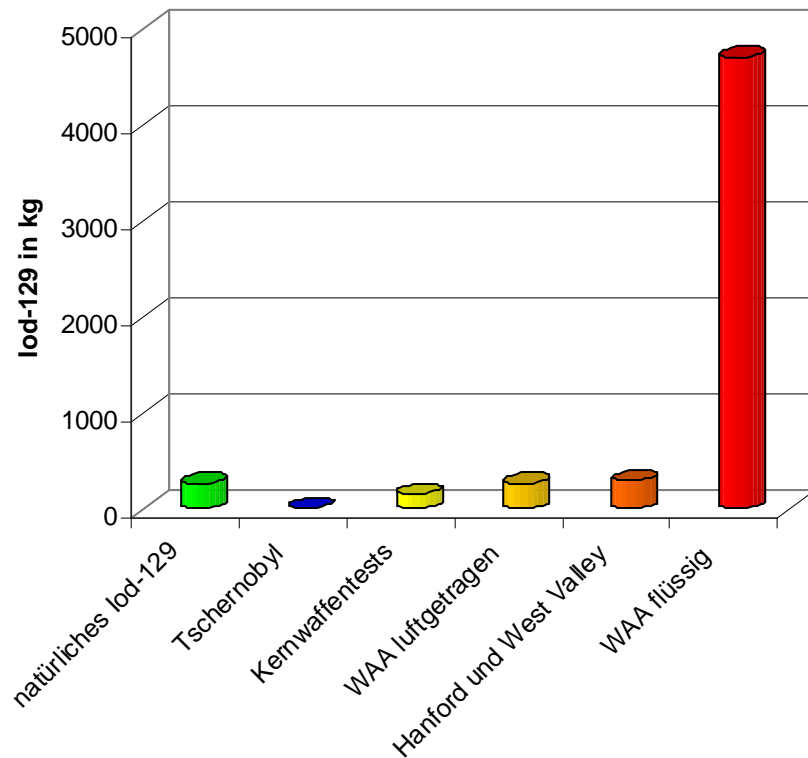


Abbildung 3: Quellen des Iod-129 in der Umwelt. Unter dem natürlichen ^{129}I ist das freie, mit der Biosphäre austauschende ^{129}I -Inventar zu verstehen. Bezüglich der Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA) wurden die Emissionen von La Hague und Sellafield summiert.

Es wird deutlich, daß die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield die wesentlichen Quellen von anthropogenem Iod-129 sind. Bis zum Jahr 2005, in dem ein Großteil der in dieser Arbeit untersuchten Wasserproben genommen wurde, belaufen sich die luftgetragenen ^{129}I -Emissionen der WAA von La Hague und Sellafield auf 250 kg ^{129}I . Dies entspricht schon fast dem natürlichen freien ^{129}I -Inventar von 260 kg. Die summierten luftgetragenen und flüssigen Ableitungen dieser beiden Anlagen belaufen sich bis zum Jahr 2005 auf etwa 5 Tonnen, das entspricht fast dem 20-fachen des natürlichen ^{129}I -Gehaltes in der Umwelt. Die Emissionen der beiden westeuropäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield werden im zeitlichen Verlauf und nuklidspezifisch in Abschnitt 3.4 detailliert dargestellt.

3.2 Hintergrundaktivitäten im Meerwasser nach Kernwaffentests

Die im Jahre 1945 beginnenden und bis etwa 1963 stattfindenden oberirdischen Kernwaffentests stellen den Startschuß für die Freisetzung anthropogener Radionuklide dar. Große Mengen von Cäsium-137, Strontium-90, Plutonium-238/239 und Americium-241 wurden in die Umwelt freigesetzt. Auf diese Weise entstand eine globale Kontamination, die in der Literatur häufig als „post bomb background“ bezeichnet wird. Diese Hintergrundkonzentrationen anthropogener Radionuklide stellen Referenzwerte dar, die zur Beurteilung späterer Veränderungen von Bedeutung sind. Tabelle 3 zeigt die Hintergrundaktivitätskonzentrationen einiger Radionuklide, die durch den Fallout nach atmosphärischen Kernwaffentests in das Oberflächenwasser des Atlantischen Ozeans eingetragen wurden. Tabelle 3 zeigt nur diese Auswahl von Radionukliden, da sie über hinreichend große Halbwertszeiten verfügen,

während die kurzlebigen Radionuklide schon weitestgehend abgeklungen sind. Die den Kernwaffentests zuzuordnende Hintergrundaktivitätskonzentration des ^{129}I wurde unter der Annahme eines $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses von 10^{-10} und einer ^{127}I -Konzentration von 45 ng/g berechnet.

Tabelle 3: Hintergrundaktivitätskonzentrationen einiger künstlicher Radionuklide im Oberflächenwasser des Atlantischen Ozeans nach dem Fallout infolge oberirdischer Kernwaffentests. Der radioaktive Zerfall wurde dabei bis zum Jahr 1990 berücksichtigt [Anonymous, 1992].

Radionuklid	Halbwertszeit	Aktivitätskonzentration
	in Jahren	in Bq/m ³
^{137}Cs	30,1	2,5-5 ^{a)} , 0,1-2,0 ^{b)}
^{90}Sr	28,8	1,6-3,2 ^{a)}
$^{239,240}\text{Pu}$	24390	4,0-8,0 · 10 ^{-3 a)} , ca. 1,5 · 10 ^{-3 b)}
^{241}Am	433	2,1-4,4 · 10 ^{-3 c)}
^{129}I	1,57 · 10 ⁷	3,0 · 10 ^{-5 d)}

a) Nordhalbkugel

b) Südhalbkugel

c) Nordostatlantik

d) berechneter Wert

Unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls kann man abschätzen, daß die Aktivitätskonzentrationen des ^{137}Cs und des ^{90}Sr von 1990 bis zum Jahr der Probenahme im Jahre 2005 um etwa 30 % abgenommen haben. Dies berücksichtigt nicht den Übergang der Nuklide in Sedimente, wodurch eine weitere Abnahme der Aktivitätskonzentration im Meerwasser verursacht werden kann. Auffällig ist die große Spanne der durch den globalen Fallout verursachten ^{137}Cs -Kontamination. Die Nordhalbkugel ist mit bis zu 5 Bq/m³ am stärksten kontaminiert. Im Nordatlantik nördlich des 20. Breitengrades werden die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen auf 3 Bq/m³ beziffert, von 20° N bis 30° S werden etwa 2 Bq/m³ beobachtet und südlich des 65. südlichen Breitengrades werden 0,3 Bq/m³ angetroffen. Südlich der Konvergenzzone liegt der Wert sogar unter 0,1 Bq/m³ [Anonymous, 1992]. Den radioaktiven Zerfall bis zum Jahr 2005 einbeziehend, ergeben sich rechnerische ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen von 1,75 bis 3,5 Bq/m³ für die nördliche und 0,07 bis 0,14 Bq/m³ für die südliche Hemisphäre. Der ^{90}Sr -Gehalt liegt im Jahr 2005 zerfallskorrigiert zwischen 1,1 und 2,2 Bq/m³. Durch den globalen Fallout wird ein $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätsverhältnis von 1,2 bis 1,7 verursacht.

Ein dem ^{137}Cs analoges Verteilungsmuster zeigt sich auch beim Plutonium, von der Nord- zur Südhalbkugel werden abnehmende Aktivitätskonzentrationen gefunden. Plutonium-239 und Plutonium-240 lassen sich alphaspektrometrisch nicht unterscheiden. Daher wird oftmals die Summe der Aktivitätskonzentrationen dieser beiden Radionuklide angegeben. Massenspektrometrische Messungen legen ein durch den globalen Fallout verursachtes $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnis von 0,18 nahe, das entspricht einem Aktivitätsverhältnis von 0,67.

12 Freisetzung anthropogener Radionuklide nach dem Unfall von Tschernobyl

Americium-241 wird in wissenschaftlichen Aufsätzen nur wenig diskutiert. Der „post bomb background“ des ^{241}Am reicht nach experimentellen Befunden von 2,1 bis 4,4 mBq/m³. Berechnungen aus dem $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnis des globalen Fallouts legen die Annahme einer ^{241}Am -Aktivitätskonzentration im Oberflächenwasser von 2,6 mBq/m³ nahe. Die leichte Anlagerung an Partikel und die anschließende Sedimentation des ^{241}Am läßt den Schluß zu, daß der Hintergrundwert des ^{241}Am etwas zu hoch angenommen sein könnte [Anonymous, 1992].

3.3 Freisetzung anthropogener Radionuklide nach dem Unfall von Tschernobyl

Am 26. April 1986 ereignete sich in der damaligen UdSSR (heutige Ukraine) der bis dahin folgenschwerste Unfall der zivilen Nutzung der Kernenergie. Im Block 4 des Kernreaktors kam es zu einer plötzlichen Überkritikalität in dessen Folge die Kettenreaktion außer Kontrolle geriet und der Reaktor größtenteils zerstört wurde. Das im Reaktor als Moderator dienende Graphit geriet in Brand. Infolge der Explosion und des Brandes wurden radioaktive Stoffe bis zu 1000 m Höhe in die Atmosphäre befördert und durch wetterbedingte Luftbewegungen sowie durch Niederschläge weiträumig über Europa und darüber hinaus verteilt. Erst zehn Tage nach dem Unfall waren die Freisetzungen aus dem havarierten Reaktor gestoppt. Als Ursachen gelten heute menschliches Versagen, Mängel in der technischen Auslegung des Reaktors und eine unvollkommene Sicherheitskultur.

Tabelle 4: Freisetzungen einiger Radionuklide durch den Reaktorunfall von Tschernobyl [Krüger et al., 1996].

Nuklid	Halbwertszeit	Freisetzung	Freisetzung	Anteil der Freisetzung
		in Bq	in kg	in %
<i>leichtflüchtige Stoffe</i>				
Iod-131	8,02 Tage	$1,8 \cdot 10^{18}$	0,391	50
Cäsium-134	2,06 Jahre	$5,0 \cdot 10^{16}$	1,043	33
Cäsium-137	30,17 Jahre	$8,6 \cdot 10^{16}$	26,873	33
<i>schwerflüchtige Stoffe</i>				
Strontium-89	50,5 Tage	$8,0 \cdot 10^{16}$	0,074	4
Strontium-90	28,64 Jahre	$8,0 \cdot 10^{15}$	1,559	4
Plutonium-238	87,74 Jahre	$3,3 \cdot 10^{13}$	0,052	3,5
Plutonium-239	24,11 Jahre	$3,4 \cdot 10^{13}$	14,811	3,5
Plutonium-240	6,56 Jahre	$5,3 \cdot 10^{13}$	6,311	3,5
Plutonium-241	14,35 Jahre	$6,3 \cdot 10^{15}$	1,647	3,5
Americium-241	432,2 Jahre	$4,9 \cdot 10^{12}$	0,039	3,5
Americium-243	7,37 Jahre	$2,0 \cdot 10^{11}$	0,027	3,5

Große Mengen radioaktiver Stoffe gelangten in die Umwelt und kontaminierten besonders Landstriche in der Ukraine, Weißrußland und Rußland. Hauptsächlich die leichtflüchtigen Elemente Cäsium und Iod breiteten sich weit über die Grenzen der Sowjetunion aus. Die

weniger flüchtigen Elemente wurden in der näheren Umgebung des Reaktors deponiert. Bereits kurz nach dem Unfall wurden erste Abschätzungen zur Menge, Zusammensetzung und dem zeitlichen Verlauf der Aktivitätsfreisetzungen angestrengt. Die Daten wurden nach späteren Untersuchungen der weitgehend zerstörten Anlage und durch Kontaminationsmessungen in der Umwelt präzisiert. Demnach wurden von den 190 Tonnen des Kernbrennstoffs 91 % im Reaktor nachgewiesen. Etwa 71 % des Kernbrennstoffs waren geschmolzen und in die unteren Bereiche des Reaktors vorgedrungen, 20 % wurden als Bruchstücke oder Staub im oberen Teil des Reaktors verteilt [Krüger *et al.*, 1996]. Diese Abschätzungen unterliegen erheblichen Unsicherheiten, Gleiches gilt für das in die Umgebung verteilte Nuklidinventar. Tabelle 4 beschränkt sich in der Darstellung auf die in dieser Arbeit diskutierten Elemente, weiterführende Informationen können gängiger Literatur zum Unfallhergang entnommen werden [Krüger *et al.*, 1996].

Die ^{129}I -Freisetzung belief sich auf 2-6 kg (s. Abschnitt 1.3), das entspricht $1,3 \cdot 10^{10}$ bis $3,9 \cdot 10^{10}$ Bq. Die radioaktiven Edelgase Krypton-85 und Xenon-133 sind vollständig aus dem Reaktor entwichen. Die ^{137}Cs -Freisetzungen aus Tschernobyl liegen etwa den Faktor 20 über den gesamten flüssigen Ableitungen aus Sellafield und um den Faktor 80 über denen aus La Hague. Bis zum Jahr 2006 wurden aus Sellafield $4,1 \cdot 10^{15}$ Bq und aus La Hague $1,0 \cdot 10^{15}$ Bq Cäsium-137 abgeleitet. Die Transurane wurden im Vergleich zu den WAA in deutlich kleineren Mengen aus Tschernobyl emittiert (s. Abschnitt 3.3). Die Freisetzungen des Strontium-90 aus Tschernobyl betragen etwa ein Zehntel der ^{137}Cs -Freisetzungen. Gleichzeitig ist Cäsium deutlich flüchtiger, wodurch weiträumigere Verteilung des Cäsiums verursacht wurde. Die Gesamtmenge der flüssigen ^{90}Sr -Ableitungen aus Sellafield ($6,6 \cdot 10^{15}$ Bq) und La Hague ($1,0 \cdot 10^{15}$ Bq) liegt geringfügig unter der aus Tschernobyl freigesetzten ^{90}Sr -Aktivität.

Abschätzung der ^{99}Tc -Freisetzung durch den Reaktorunfall von Tschernobyl

Um die Menge des in Tschernobyl gebildeten Technetium-99 im Vergleich zum Iod-129 abzuschätzen, kann folgende Rechnung angestellt werden:

$$\frac{A_{\text{I-129}}}{A_{\text{Tc-99}}} = \frac{N_{\text{U-235}} \cdot \sigma_{\text{U-235}} \cdot \Phi(1 - e^{-\lambda_{\text{I-129}} \cdot t_{\text{irr}}}) \cdot Y_{\text{I-129}}}{N_{\text{U-235}} \cdot \sigma_{\text{U-235}} \cdot \Phi(1 - e^{-\lambda_{\text{Tc-99}} \cdot t_{\text{irr}}}) \cdot Y_{\text{Tc-99}}} \quad \text{Gl. 3.3-1}$$

Dabei ist A die Aktivität des betrachteten Nuklids, N die Anzahl der spaltbaren Urankerne, σ der Neutroneneinfangsquerschnitt, Φ die Neutronenflußdichte, t_{irr} die Bestrahlungszeit und Y die Ausbeute des Spaltnuklids bei einer neutroneninduzierten Kernspaltung. Nach Kürzen vereinfacht sich die Gleichung zu:

$$\frac{A_{\text{I-129}}}{A_{\text{Tc-99}}} = \frac{(1 - e^{-\lambda_{\text{I-129}} \cdot t_{\text{irr}}}) \cdot Y_{\text{I-129}}}{(1 - e^{-\lambda_{\text{Tc-99}} \cdot t_{\text{irr}}}) \cdot Y_{\text{Tc-99}}} \quad \text{Gl. 3.3-2}$$

Bei einer angenommenen Verweildauer des Kernbrennstoffs von drei Jahren im Reaktorkern und Spaltausbeuten von 0,757 % für ^{99}Tc und 6,07 % für ^{129}I [England und Rider, 1994] ergibt sich eine etwa zehnmal so große Aktivität für das Technetium-99. Bei einer angenommenen ^{129}I -Freisetzung von 2,0 kg (das entspricht $1,31 \cdot 10^{10}$ Bq) würden demzufolge

$1,31 \cdot 10^{11}$ Bq Technetium-99 freigesetzt werden. In Anbetracht von $6,35 \cdot 10^{14}$ Bq Technetium-99, die in den 1990er Jahren aus Sellafield abgeleitet wurden, ist der Beitrag aus Tscher-nobyl für die ^{99}Tc -Kontamination der marinen Hydrosphäre West- und Mitteleuropas verschwindend gering. Bei dieser Betrachtung sind die unterschiedlichen Halbwertszeiten des ^{99}Tc und des ^{129}I ohne Einfluß, da sich der radioaktive Zerfall dieser langlebigen Nuklide im Zeitraum weniger Jahre nicht bemerkbar macht.

3.4 Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield

Abgebrannte Brennelemente aus Kernkraftwerken können einer Wiederaufarbeitung zugeführt werden. Die Wiederaufarbeitung dient der Rückgewinnung von spaltbarem Material (Uran und Plutonium) sowie der Abtrennung der für weitere Zwecke unbrauchbaren Spaltprodukte. Ein weiterer Vorteil ist die Reduzierung der endzulagernden Abfallmenge. Die Abtrennung erfolgt mit physikalischen und chemischen Trennverfahren. Das zurückgewonnene Uran kann erneut angereichert werden, um es in Brennelementen wieder zu verwenden. Auch das abgetrennte Plutonium kann als Kernbrennstoff eingesetzt werden, ebenso ist es für die Herstellung von Kernwaffen nutzbar. Durch die angewendeten chemischen Verfahren gelangt ein Teil der entstehenden Abwässer und Ablüfte über kontrollierte Ableitungen in die Umwelt. Die flüchtigen Verbindungen wie die radioaktiven Edelgase Krypton-85 und Xenon-133 werden über den Luftpfad abgeleitet. Radioaktives Iod wird über beide Ableitungspfade freigesetzt. Durch Rückhaltesysteme in den WAA wurden deren luftgetragene Ableitungen reduziert. Alle nicht flüchtigen Verbindungen verlassen die Anlagen über den Wasserpfad. Die WAA in Sellafield und La Hague besitzen unterschiedliche Emissionsmuster in bezug auf die im Strahlenschutzvorhaben 4481 [Nies *et al.*, 2008] analysierten und dieser Arbeit diskutierten Radionuklide. Die hier vorgestellten Emissionshistorien der beiden Anlagen unterscheiden sich hinsichtlich der Mengen und des zeitlichen Verlaufs der abgeleiteten Radionuklide. Bezüglich des Iod-129 wird zusätzlich differenziert, ob die Emissionen luftgetragen oder über den Wasserpfad erfolgen.

Die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] behandelten Radionuklide spielen bei der Identifizierung der dominierenden Kontaminationsquelle an einem Beprobungspunkt eine wichtige Rolle (Abschnitt 10.5). Darüber hinaus fließen die Befunde der Nuklide in die Diskussion der Strömungsverhältnisse ein. Für beide Ziele werden die Emissionsdaten benötigt. Die Darstellungen beruhen mit Ausnahme der Iodableitungen auf einer Datenbank der OSPAR, auf die das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH) Zugriff hat. Das BSH stellte die Daten zur Anfertigung des Abschlußberichts [Nies *et al.*, 2008] und dieser Arbeit zur Verfügung. Ergänzende Daten und Abbildungen bezüglich der flüssigen Emissionen sind dem Anhang IV zu entnehmen. Dort finden sich Gegenüberstellungen der Emissionen aus La Hague und Sellafield bezogen auf jedes behandelte Nuklid im zeitlichen Verlauf. Mit Ausnahme des Tritiums und des Iods wurden im Rahmen des Oslo-Paris-Abkommens (s. Abschnitt 3.5) die Emissionen aller Radionuklide durch kerntechnische Anlagen (auch der WAA) in den letzten Jahren deutlich reduziert.

3.4.1 Iod-129-Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen

Wie bereits in den Abschnitten 1.3 und 3.1 angesprochen stellen die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield die wesentlichen Quellen von anthropogenem Iod-129 in

der Umwelt dar. Die Abbildungen 4 und 5 zeigen den zeitlichen Verlauf der luftgetragenen und der flüssigen Ableitungen aus beiden Anlagen. Die Emissionsmuster der beiden Anlagen unterscheiden sich in Hinblick auf den Emissionspfad und die Menge des abgeleiteten ^{129}I . Bei einer Halbwertszeit des Iods von 15,7 Ma entspricht 1 g ^{129}I einer Aktivität von $6,535 \cdot 10^6 \text{Bq}$.

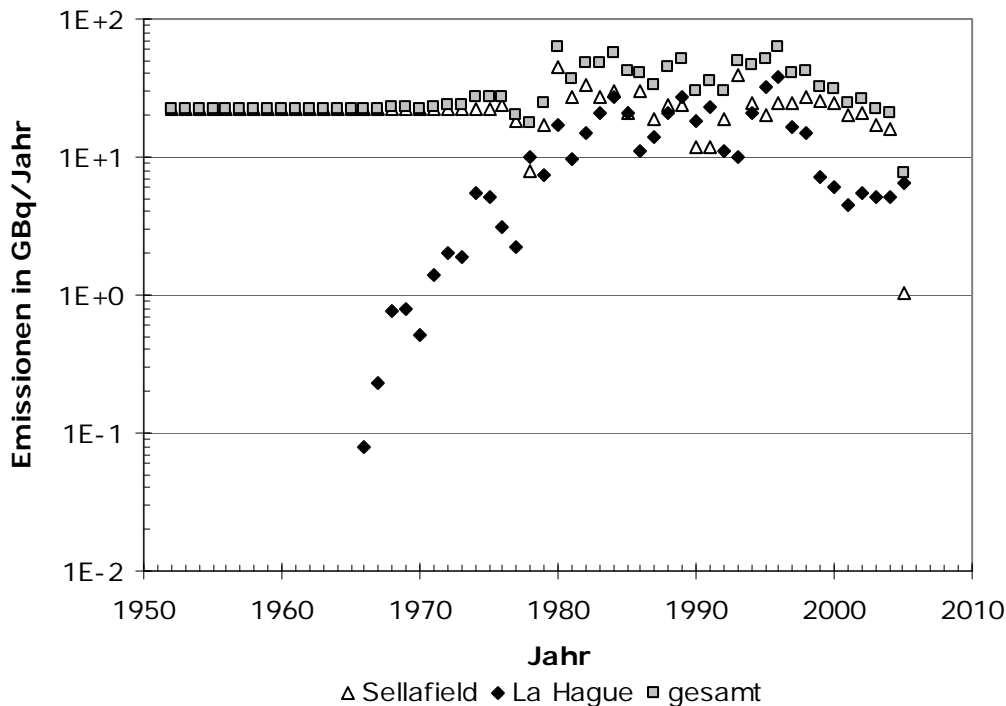


Abbildung 4: Luftgetragene ^{129}I -Ableitungen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield [AREVA, 2006; AREVA, ; BNFL, 1999; Cogema, 2003; Cogema, Feb. 1, 2001; Gray et al., 1995; Nord-Cotentin, 1999; Parker, 2001; Raisbeck et al., 1995].

Betrachtet man die aufsummierten, luftgetragenen Emissionen aus La Hague und Sellafield, so sind diese bis 1979 mit etwas mehr als 20 GBq pro Jahr relativ konstant. Später stiegen sie mit starken zeitlichen Schwankungen auf über 60 GBq pro Jahr an. Das Maximum der luftgetragenen ^{129}I -Emissionen wird 1996 mit 63 GBq erreicht. Während sich die luftgetragenen Freisetzungen aus Sellafield seit 1952 nahezu konstant innerhalb einer Größenordnung hielten, stiegen die aus La Hague in dem Zeitraum von 1966 bis 1996 um mehr als zwei Größenordnungen an und nahmen danach wieder um eine Größenordnung ab. Im Jahr 1997 wurden die luftgetragenen Emissionen aus La Hague deutlich reduziert, seit 2000 liegen die Emissionen zwischen etwa 4 und knapp 7 GBq/a. Auch Sellafield reduzierte die Ableitungen, so daß die Summe der luftgetragenen Ableitungen seit dem Jahr 2001 unter 26 GBq pro Jahr liegt. Bis zum Jahr 2005 ist eine weitere Reduzierung dieser Emissionen zu beobachten. Im Jahr 2005 emittierte La Hague 83 % der flüssigen und 86 % der luftgetragenen Ableitungen. Sellafield hat 2005 im Vergleich zu 2004 die luftgetragenen Ableitungen um den Faktor 15 verringert. ^{129}I wird aus dem Abluftkamin in Form von Methyljodid freigesetzt, dessen mittlere Verweilzeit in der Atmosphäre beträgt zwei Wochen. Diese lange Verweilzeit ermöglicht einen Transport in die Troposphäre und eine globale Verteilung [Santschi und Schwehr, 2004].

Etwa 70 % der gesamten ^{129}I -Emissionen stammen aus La Hague. 85 % der aus Sellafield und 97 % der aus La Hague stammenden Emissionen wurden in flüssiger Form abgeleitet, luftgetragene Emissionen spielen also im Vergleich zu den flüssigen Ableitungen eine untergeordnete Rolle.

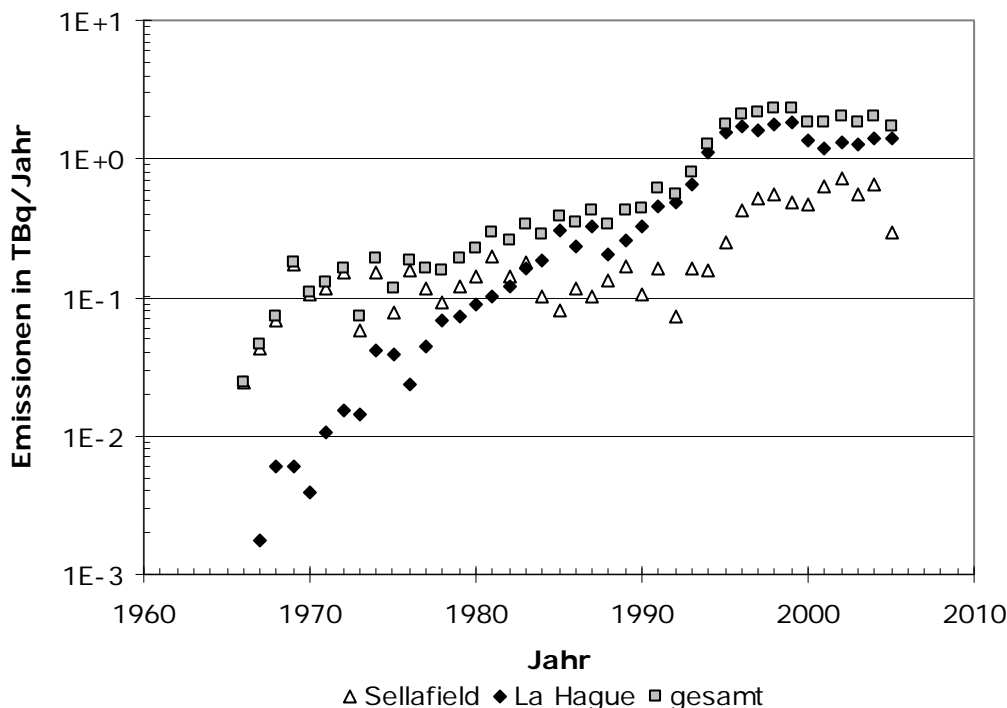


Abbildung 5: Zeitlicher Verlauf der flüssigen Iod-129-Emissionen aus La Hague und Sellafield [AREVA, 2006; AREVA, ; BNFL, 1999; Cogema, 2003; Cogema, Feb. 1, 2001; Gray et al., 1995; Nord-Cotentin, 1999; Parker, 2001; Raisbeck et al., 1995].

Die flüssigen Emissionen aus La Hague stiegen von 1966 bis 1995 nahezu gleichmäßig an, stagnierten dann und nahmen zum Jahr 2001 geringfügig ab und verharren seitdem auf hohem Niveau. Zu Beginn der Freisetzen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen leistete Sellafield einen größeren Beitrag, 1983 zog La Hague gleich und seitdem liegt La Hague bezüglich der flüssigen Emissionsmengen deutlich über denen aus Sellafield. Das Maximum der flüssigen Emissionen wird 1999 mit 1,83 TBq für La Hague erreicht, das entspricht 280 kg ^{129}I und ist 20 kg mehr als das natürliche freie ^{129}I -Inventar. Diese anthropogenen Einflüsse ändern die Häufigkeit des in der Umwelt auftretenden ^{129}I . Es vermischt sich mit dem stabilen ^{127}I , wodurch eine Erhöhung des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses verursacht wird. In direkter Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlagen werden daher auch die größten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Umweltproben beobachtet (s. Abschnitt 5.2).

3.4.2 Emissionen von Tritium, Strontium-90, Cäsium-137 und den Transuranen

Die Abbildungen 6 bis 9 geben einen Überblick über die Ableitungen der Radionuklide, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 untersucht wurden. Die zugrundeliegenden Daten sind auf der Internetseite der OSPAR hinterlegt und können mit einer dem BSH vorliegenden Zugangsberechtigung abgerufen werden.

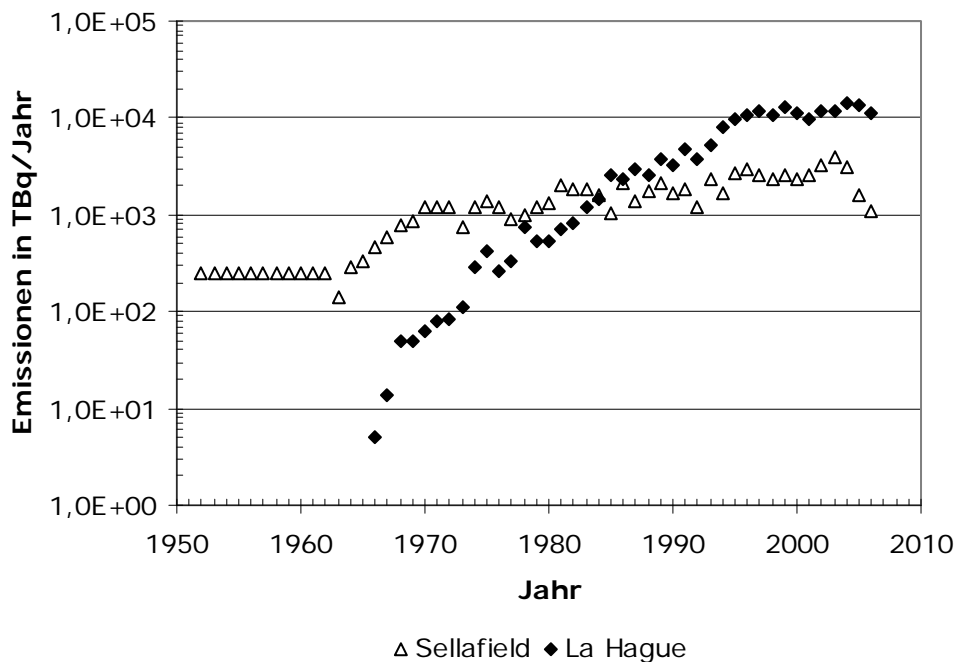


Abbildung 6: Flüssige Tritiumableitungen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield [Nies et al., 2008; www.ospar.org].

Bis Mitte der 1980er Jahre dominierte Sellafield die flüssigen Ableitungen von Tritium, seitdem liegt La Hague klar über den Emissionen Sellafields. Im Zeitraum von 2004 bis 2006 reduzierte Sellafield die Ableitungen des Tritiums deutlich, die aus La Hague verharren auf hohem Niveau. Das Maximum der summierten Emissionen liegt mit mehr als 17000 TBq im Jahr 2004. Tritium ist das einzige Radionuklid, dessen Ableitungsraten bis in die jüngste Vergangenheit (2004) erhöht wurden.

Auch aus kerntechnischen Anlagen wird Tritium in die Umwelt freigesetzt. In Deutschland werden diese Ableitungen nach den Vorgaben der „Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen“ (REI) überwacht. Die Richtlinie wird auf Kernreaktoren und Forschungseinrichtungen angewendet. Typische Tritiumabgaben deutscher Kernkraftwerke lagen in den Jahren 2006 und 2007 in der Größenordnung von 10^{12} bis 10^{13} Bq/a [BMU, 2008]. Die Wiederaufarbeitungsanlagen sind auch die wesentlichen Quellen von Tritium, die Emissionen aller Kernkraftwerke des OSPAR-Raumes waren in den letzten Jahren mit etwa 3000 bis 4000 TBq pro Jahr relativ konstant [Nies et al., 2008]. Die Freisetzungen aus Forschungseinrichtungen spielen keine signifikante Rolle.

Wie den Abbildungen 8 und 9 zu entnehmen ist, werden die Emissionen der meisten in dieser Arbeit besprochenen anthropogenen Radionuklide von Sellafield dominiert. In den 1970er Jahren emittierte Sellafield etwa hundertmal so viel ^{137}Cs wie La Hague. Betrachtet man die Gesamtemissionen, so ist ein starker Rückgang insbesondere der alphastrahlenden Nuklide in der jüngeren Vergangenheit zu verzeichnen.

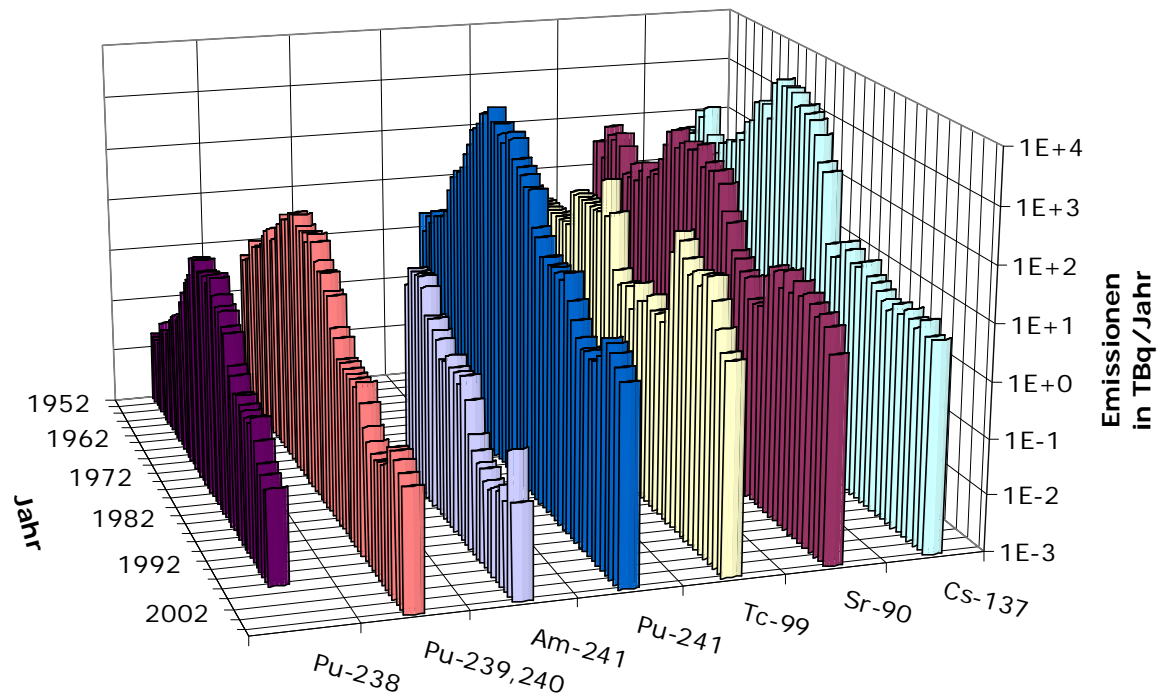


Abbildung 7: Flüssige Ableitungen der in dieser Arbeit diskutierten anthropogenen Radionuklide aus Sellafield (ohne Tritium und Iod-129) [Nies et al., 2008; www.ospar.org].

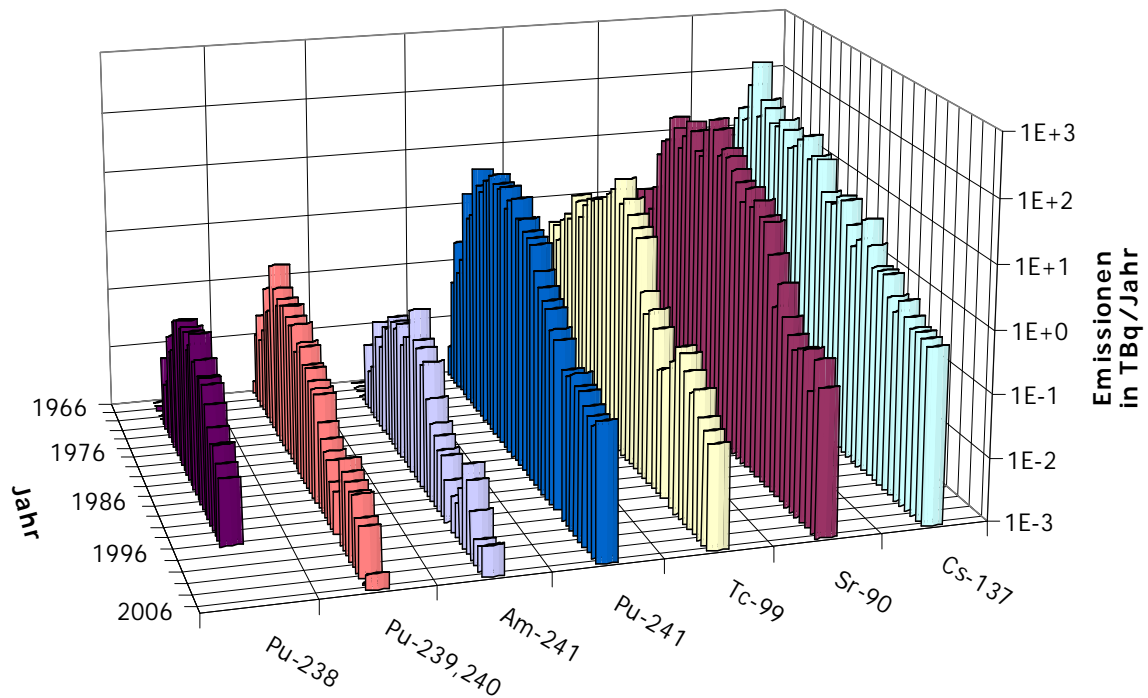


Abbildung 8: Flüssige Ableitungen der in dieser Arbeit diskutieren anthropogenen Radionuklide aus La Hague (ohne Tritium und Iod-129) [Nies et al., 2008; www.ospar.org].

3.4.3 Technetium-99-Emissionen

Die WAA in Sellafield leitete bisher deutlich mehr ^{99}Tc in flüssiger Form ab als die Anlage in La Hague.

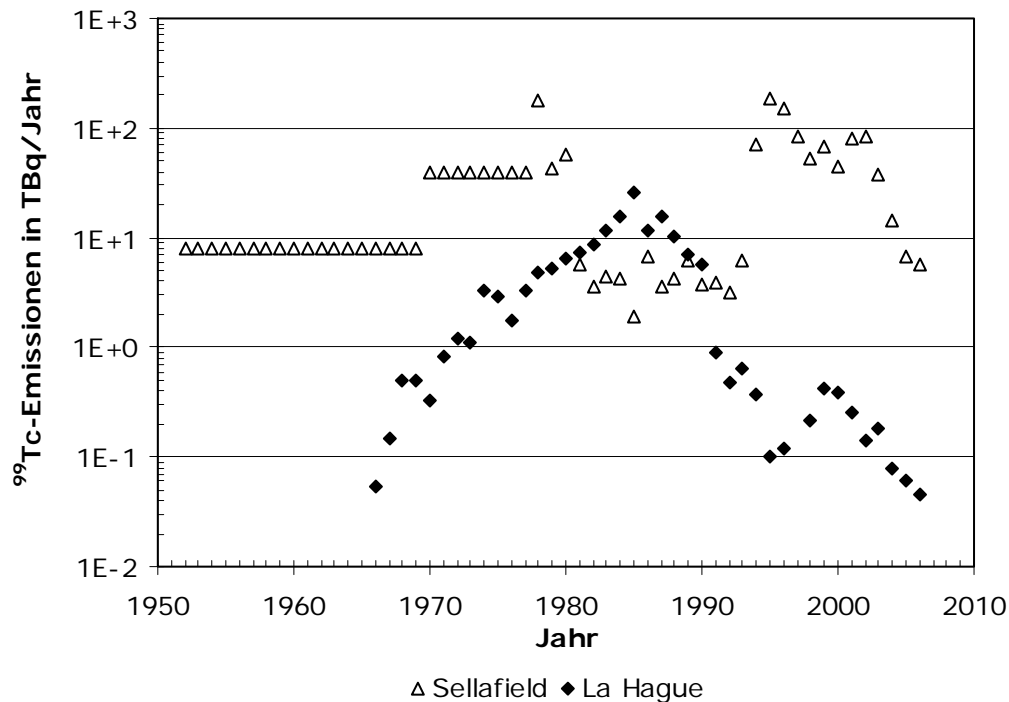


Abbildung 9: Zeitlicher Verlauf der Emissionen von Technetium-99 aus Sellafield und La Hague. Die Graphik beruht auf einer Datenbank der OSPAR [Nies et al., 2008; www.ospar.com].

Von 1965 bis 1980 liegen die Emissionen des ^{99}Tc aus Sellafield über denen aus La Hague. Nachdem La Hague 1981 gleichzog, wurden die Emissionen aus Sellafield im Jahr 1984 deutlich gesteigert und liegen seitdem mindestens eine Größenordnung über denen aus La Hague. Von 1985 bis 1995 wurden die ^{99}Tc -Ableitungen aus La Hague zurückgefahren. Es folgt ein Anstieg von 1995 bis 1999. In Jahren 2000 bis 2006 ist eine kontinuierliche Reduktion der Emissionen aus La Hague zu erkennen. Seit Anfang der 1990er Jahre werden aus Sellafield ein bis zwei Größenordnungen mehr ^{99}Tc emittiert als aus La Hague. Das Maximum der Technetium-99 Emissionen ist mit 190 GBq (304 kg) für Sellafield im Jahre 1995 zu sehen. Die Summe der Emissionen beläuft sich auf 1846 TBq bis zum Jahr 2006. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß Sellafield die dominierende Quelle für Technetium-99 ist, dessen Emissionen belaufen sich allein im Zeitraum von 1990 bis 2006 auf 1449 kg ^{99}Tc , das entspricht 907 TBq.

Aufgrund der großen Steigerung der Emissionsmengen aus Sellafield Mitte der 1990er Jahre stellt Tabelle 5 die Daten der jüngeren Vergangenheit zusammen. Ergänzend sei an dieser Stelle angemerkt, daß die ^{99}Tc -Emissionen von 1981 bis 1990 stets unter 7 TBq pro Jahr lagen. Technetium-99 besitzt eine spezifische Aktivität von $6,367 \cdot 10^8$ Bq/g.

Tabelle 5: Jährliche flüssige Ableitungen von Technetium-99 aus Sellafield in die Irische See [www.ospar.com].

Jahr	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998
Ableitung in TBq/a	3,8	3,9	3,2	6,1	72	190	150	84	53
Ableitung in kg/a	6,08	6,24	5,12	9,77	115	304	240	134	84,8
Jahr	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007
Ableitung in TBq/a	69	44	79	85	37	14	7	6	-
Ableitung in kg/a	110	70,4	126	136	59,2	22,4	11,2	9,61	-

3.5 Das Oslo-Paris-Abkommen (OSPAR-Konvention)

Das Oslo-Paris-Abkommen (OSPAR) wurde 1992 in Paris von den unten genannten Staaten unterzeichnet und ersetzt die vorherigen Übereinkommen von Oslo und Paris. Es ist ein Übereinkommen zur Verhütung der Verschmutzung von Nordsee und Nordatlantik. Die Vertragsparteien haben sich verpflichtet, alle nur möglichen Maßnahmen zu ergreifen, um die Verschmutzung der Meere vom Land aus, über die Luft, durch Verbrennen oder sonstiges Einbringen durch küstennahe Quellen zu verhüten und zu beseitigen [Stagg, 1998]. Die Vertragsparteien sind verpflichtet, den Zustand der Meeresumwelt zu begutachten und die Ergebnisse zu veröffentlichen. Eine eingesetzte Kommission überwacht die Umsetzung und die Wirksamkeit der Maßnahmen [Czybulka und Kersandt, 2000]. Diese Kommission kann bindende Beschlüsse fassen. Neben Belgien, Deutschland, Dänemark, Frankreich, Großbritannien, Irland, Island, Norwegen, den Niederlanden, Portugal, Spanien, Schweden und der Europäischen Union sind auch die nur indirekt über die Ostsee bzw. den Rhein in die Nordsee einleitenden Staaten Finnland, Luxemburg und die Schweiz dem Abkommen beigetreten [Stagg, 1998]. Das Abkommen betrifft alle Arten anthropogener Schadstoffe.

Die Hintergrundaktivitäten von Radionukliden nach dem globalen Fallout der Kernwaffentests werden durch lokale Belastungen überlagert. In Westeuropa betrifft dies die Freisetzungen aus den insgesamt 97 kerntechnischen Anlagen der Nordseeanrainerstaaten, insbesondere Sellafield nahe der Irischen See und La Hague am Englischen Kanal [Nies et al., 2000]. Alle Anlagen befinden sich in Ländern, die dem OSPAR-Abkommen beigetreten sind.

Das "Radioactive Substances Committee" (RSC) tagt in regelmäßigen Abständen, um über den aktuellen Zustand der Meere in Hinblick auf anthropogene Radionuklide zu beraten und Möglichkeiten zu erörtern, die radioaktiv belasteten Ableitungen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen und Kernkraftwerken zu reduzieren. Aufgrund dieser internationalen Anstrengungen wurden die Emissionen insbesondere der alphastrahlenden Nuklide aber auch des ^{90}Sr und des ^{137}Cs deutlich vermindert. Großbritannien erfuhr wegen den in den 1990er Jahren stark erhöhten Ableitungen von ^{99}Tc aus Sellafield internationalen Druck, die ^{99}Tc -Emissionen wurden seit 1995 deutlich vermindert.

Das Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH) in Hamburg und Rostock überwacht im Rahmen der durch das Strahlenschutzvorsorgegesetz (StrVG) übertragenen Aufgaben den Zustand der Nord- und Ostsee. Das Radioaktivitätsmeßnetz des BSH ist Bestandteil des IMIS (Integriertes Meß- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität) des BMU. Die gewonnenen Daten werden bei OSPAR-Tagungen berücksichtigt. Neben den ständig laufenden Untersuchungen werden auch Prognosen für den Ereignisfall erstellt, dies geschieht üblicherweise mit Modellierungsrechnungen. Weitere Informationen können den Internetseiten der OSPAR und des BfS entnommen werden [www.ospar.org; www.bfs.de].

4 Vorkommen und Eigenschaften von Iod-127 und Iod-129 in der Umwelt

In diesem Abschnitt werden Vorkommen und Eigenschaften des Iods vorgestellt, die zum Verständnis über das Verhalten dieses Elements in der Umwelt beitragen. Dabei sind neben den chemischen Besonderheiten auch die Phasentransferübergänge und Verweilzeiten des Iods in den Umweltkompartimenten von Bedeutung. Ein besonderes Augenmerk wird auf die Chemie des Iods im Meerwasser gelegt.

4.1 Vorkommen des Iods in der Umwelt

Das zu den Halogenen zählende Element Iod ist das seltenste stabile Element der siebten Hauptgruppe. Aufgrund seiner Reaktivität kommt es in der Natur nicht elementar, sondern nur gebunden vor. Gegenüber elektropositiven Reaktionspartnern besitzt es die Oxidationsstufe -1 (z. B. HI), gegenüber elektronegativeren Partnern die Oxidationsstufen +1 (IO^- , ICl), +3 (ICl_3 , IO_2^-), +5 (IO_3^-) oder +7 (IO_4^-).

Im Unterschied zum Chlor liegt Iod nicht nur als Halogenid (X^-), sondern auch als Halogenat (XO_3^-) vor. Iod kommt in Gebirgen, Seen, Flüssen, Mineralwässern, im Boden und Meeren vor. In geringen Konzentrationen tritt es nahezu überall in der Umwelt auf [Holleman und Wiberg, 1995], nur selten ist es in stark angereicherter Form anzutreffen. So befindet sich in Chilesalpeter mit 0,02-1 % relativ viel Iod in Form des Lautarits ($\text{Ca}(\text{IO}_3)_2$). In Solwässern sind bis zu 100 ppm (parts per million, $\mu\text{g/g}$) Iod zugegen. Muramatsu und Wedepohl widmen sich in einer oft zitierten Veröffentlichung der Verteilung des Iods in der Erdkruste [Muramatsu und Wedepohl, 1998].

Tabelle 6: Verteilung von Chlor und Iod in der Erdkruste nach Berechnungen von Muramatsu et al. [Muramatsu et al., 2004]. Den Daten liegen vorangegangene Arbeiten von Muramatsu und Wedepohl [Muramatsu und Wedepohl, 1998] sowie von Wedepohl [Wedepohl, 1995] zugrunde.

Teil der Erdkruste	Iod		Chlor	
	Inventar in kg	Anteil in %	Inventar in kg	Anteil in %
Seewasser	$7,00 \cdot 10^{13}$	0,81	$2,66 \cdot 10^{16}$	72,2
ozeanisches Sediment	$5,90 \cdot 10^{15}$	68,2	$3,38 \cdot 10^{14}$	0,92
mafische ozeanische Kruste	$5,40 \cdot 10^{13}$	0,62	$4,20 \cdot 10^{14}$	1,1
sedimentäres Gestein (Kontinent)	$2,40 \cdot 10^{15}$	27,7	$4,40 \cdot 10^{15}$	11,9
metamorphes und magmatisches Gestein	$2,30 \cdot 10^{14}$	2,7	$5,10 \cdot 10^{15}$	13,8
Summe	$8,65 \cdot 10^{15}$	100	$3,69 \cdot 10^{16}$	100

In der Arbeit werden die Eigenschaften von Chlor und Iod miteinander verglichen. Während etwa drei Viertel des gesamten Chlorvorkommens in den Ozeanen gelöst vorliegen, sind es beim Iod nur 0,8 %. Iod verdunstet deutlich leichter aus dem Wasser als Chlor (s. Abschnitt

4.4). Der größte Iodanteil befindet sich mit 68 % in den marinen Sedimenten und mit 28 % im sedimentären Gestein der oberen kontinentalen Kruste [Muramatsu und Wedepohl, 1998]. Im magmatischen Gestein und in tieferen Gesteinsschichten betragen die Massenanteile des Iods knapp 1,5 %. Tabelle 6 zeigt das unterschiedliche Auftreten der Elemente Chlor und Iod in den verschiedenen Teilen der Erdkruste. Die Gesamtmasse des Chlors auf der Erdkruste ist 4,3 mal so groß wie die des Iods, in der ozeanischen Kruste ist das Cl/I-Verhältnis mit 4,5 nahezu identisch mit dem der globalen Vorkommen [Muramatsu und Wedepohl, 1998].

Weiterführende Informationen über Iodvorkommen können auch einer Arbeit von Wedepohl entnommen werden [Wedepohl, 1974]. Fuge und Johnson [Fuge und Johnson, 1986] behandeln in einem Übersichtsbeitrag umfassend Vorkommen, chemische und geochemische Eigenschaften des Iods, den Iodkreislauf und das Verhalten des Iods in den verschiedenen Kompartimenten. Whitehead beschäftigte sich ausführlich mit der Verteilung von Iod und dessen Umwandlungsprozessen in der Umwelt [Whitehead, 1984].

Typische Konzentrationen des Iods liegen im Meerwasser bei etwa 50 ng/g und im sedimentären Gestein bei 1500 ng/g. Im Gegensatz zum Chlor ist der Kreislauf des Iods durch das Wasser und die Sedimente biologisch kontrolliert [Muramatsu und Wedepohl, 1998]. Dies ist auf den biophilen Charakter des Iods zurückzuführen, der in Abschnitt 4.2 ausführlicher beschrieben wird.

4.1.1 Physiologische Eigenschaften des Iods

Iod ist ein essentielles Element, das sich im menschlichen Körper fast komplett gebunden in der Schilddrüse befindet. Jeder Mensch enthält etwa 60-80 mg Iod. Dabei sind hauptsächlich die Schilddrüsenhormone Di- und Triiodthyronin und Thyroxin Träger des Iods. Die Schilddrüse ist eine Hormondrüse und steuert neben dem Stoffwechsel auch das Herz-Kreislaufsystem. Die tägliche Iodzufuhr sollte etwa 0,15-0,2 mg betragen [Holleman und Wiberg, 1995]. Iodmangel verursacht eine Schilddrüsenunterfunktion, deren Folge eine Kropfbildung ist. Zuviel Iod indes kann eine Iodallergie und bisweilen Autoimmunkrankheiten verursachen. Um die Organdosis der Schilddrüse nach einer störfallbedingten Freisetzung von radioaktivem Iod so gering wie möglich zu halten, werden an Anwohner in der Umgebung von Kernkraftwerken Tabletten mit stabilem Iod verteilt. Diese sind möglichst schnell einzunehmen, bevor es zum Kontakt mit radioaktivem Iod (im wesentlichen Iod-131) kommt. Die Schilddrüse ist nach der Einnahme von Iod-127 „gesättigt“, später eintreffendes radioaktives Iod wird schnell wieder aus dem Körper ausgeschieden. Nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl kamen für die Bevölkerung zwei ungünstige Faktoren zusammen: die stark betroffenen Länder Weißrußland und die Ukraine sind Iodmangelgebiete und die Bevölkerung wurde nicht mit Iodtabletten versorgt. Das beim Unfall freigesetzte Iod-131 wurde schnell von den dort lebenden Menschen aufgenommen und in die Schilddrüse eingebaut. Eine spätere Verdrängung durch eine üppige Zufuhr an stabilem Iod ist nicht möglich, da Iod über eine lange biologische Halbwertszeit verfügt.

4.2 Chemische Eigenschaften des Iods im Meerwasser

Wie in Abschnitt 4.1 bereits angesprochen kann Iod in den Oxidationsstufen von -1 bis +7 vorliegen. Dementsprechend sind die chemischen Eigenschaften des Iods sehr vielfältig. Einige Arbeiten haben sich bereits ausführlich der Komplexität der Iodchemie im Meerwasser

angenommen [Fuge und Johnson, 1986; Santschi und Schwehr, 2004; Schwehr und Santschi, 2003; Wong, 1991]. Die wichtigsten Verbindungen des Iods sind bei Betrachtung der Chemie im Meerwasser Iodid (I^-) und Iodat (IO_3^-), Methyljodid (CH_3I) ist beim Phasenübergang zu berücksichtigen und molekulares Iod (I_2) ist als reaktive Zwischenstufe von Bedeutung. Hypoiodid (IO^-) ist nur in stärker alkalischen Lösungen stabil und ist daher für die Chemie im Meerwasser weniger bedeutsam. Darüber hinaus gibt es noch eine Vielzahl weiterer organischer Iodverbindungen, die weiter unten angesprochen werden. Die Bindungsenergie der C-I-Einfachbindung ist mit 209 kJ/mol relativ gering [Wong und Cheng, 2001]. Iod wird als biophil bezeichnet, da es sich in organischen Materialien wie Seetang, Algen oder anderen Meeresorganismen mit einem Faktor von bis zu 10^5 anreichert [Hou et al., 1997; Leblanc et al., 2006; Muramatsu und Wedepohl, 1998; Schink et al., 1995a; Wong, 1991; Wong und Cheng, 1998]. Während das Verhalten der anorganischen Iodspezies schon öfter Gegenstand wissenschaftlicher Untersuchungen war, ist über die Verteilung und genaue Zusammensetzung der gelösten organischen Iodverbindungen weniger bekannt [Wong und Cheng, 1998].

Im Meerwasser herrschen zwischen den verschiedenen Iodverbindungen Gleichgewichtsreaktionen. Es finden kontinuierlich Oxidationen und Reduktionen statt, die sich in Abhängigkeit von den im Wasser herrschenden Bedingungen unterscheiden. Innerhalb der Wassersäule herrschen keine homogenen Verteilungen der unterschiedlichen Iodverbindungen. Es lassen sich erhebliche Konzentrationsunterschiede und -gradienten beobachten [Wong, 1991]. Der durchschnittliche Gesamtjodgehalt kann im Meerwasser mit etwa 50 ng/g an der Oberfläche und etwa 60 ng/g im Tiefenwasser abgeschätzt werden [Fabryka-Martin, 1984; Muramatsu und Wedepohl, 1998; Wedepohl, 1974].

In aquatischen Systemen tritt Iod am häufigsten als Iodid und Iodat auf, organische Iodide kommen nur in geringen Konzentrationen vor [Muramatsu und Ohmomo, 1988]. Die chemische Form des Iods ist von großer Bedeutung, weil sie einerseits die Richtung des Phasenübergangs beeinflusst und andererseits die Verweildauer des Iods in den verschiedenen Kompartimenten maßgeblich bestimmt. Auch bei der Aufnahme durch Pflanzen oder Lebewesen ist die chemische Form des Iods entscheidend. Iodid ist bei der Aufnahme von Meeresorganismen wie Plankton und Algen die bevorzugte Spezies [Fabryka-Martin, 1984; Fuge und Johnson, 1986; Muramatsu und Ohmomo, 1988].

Molekulares, elementares Iod (I_2) hydrolysiert im Meerwasser zu hypoiodiger Säure und Iodid. Nach dieser Disproportionierungsreaktion beträgt die Oxidationsstufe des Iods in HOI +1, im Iodid -1. Im basischen Medium verläuft diese Reaktion schnell, das Gleichgewicht der Reaktion von Gleichung 4.2-1 liegt weitestgehend auf der rechten Seite [Truesdale, 1974; Wong, 1991]. Das in dieser Arbeit untersuchte Meerwasser besitzt im Mittel einen pH-Wert von 8,13, die hypoiodige Säure wird unter diesen Bedingungen nicht nennenswert deprotoniert und ist im Meerwasser relativ stabil.



Elementares Iod wurde bisher in Meerwasser nicht nachgewiesen [Truesdale, 1974], seine Entstehung ist aber nach Wong [Wong, 1991] und den in der Veröffentlichung angegebenen Literaturstellen unstrittig. Die nach Hydrolyse des Iods entstandene hypoiodige Säure (HIO) kann gemäß Gl. 4.2-2 in basischer Lösung disproportionieren, auch hierbei handelt es sich um

eine Gleichgewichtsreaktion, die unter den im Meerwasser herrschenden Bedingungen langsam verläuft.



Neben der Hydrolyse von elementarem Iod in Meerwasser sind Additionsreaktionen an ungesättigte Kohlenstoffbindungen in Lipiden und Kohlenwasserstoffen denkbar, auch sind Oxidationen z. B. von Oxalsäure zu Kohlenstoffdioxid möglich [Truesdale, 1974]. Truesdale bezeichnet diese Reaktionen als verantwortlich für die Reduktionsreaktionen von Iod in Meerwasser [Truesdale, 1974]. Die Bildung von molekularem Iod in der ozeanischen Mischungsschicht ermöglicht einen leichten Übergang in die Atmosphäre. Elementares Iod wird im Meerwasser durch extrazelluläre enzymatische Reaktionen unter Beteiligung von Iodid gebildet. Auch photochemische Reaktionen mit Sauerstoff, Iodid sowie ultravioletter Strahlung lassen elementares Iod entstehen (s. u.) [Truesdale, 1974].

Truesdale nimmt an, daß Hypoiodid (IO^-) in Meerwasser zu Iodid reduziert werden kann oder daß es mit organischer Materie zu organischem Iodid reagiert [Truesdale, 1974]. Diese Reaktionen sollen schneller verlaufen als die oben angesprochene Disproportionierungsreaktion (Gl. 4.2-2). Der biophile Charakter des Iods ist allgemein anerkannt und unstrittig, dennoch ist der exakte Mechanismus der Aufnahme in Meeresorganismen unklar [Fréchet und Calmet, 2003; Fréchet et al., 2001; Santschi und Schwehr, 2004; Schwehr und Santschi, 2003; Wong, 1991; Wong und Cheng, 1998]. Auch sind Änderungen der Iodspezies während dieser Prozesse und der Einfluß von verschiedenen marinen Organismen nicht vollständig verstanden. Die Rolle des Planktons ist weitgehend unklar.

Eine enzymkatalysierte Oxidation von Iodid mit Iodreduktase zu elementarem Iod schlägt Shaw vor. Die bei der schnell folgenden Hydrolyse entstehende hypoiodige Säure kann leicht durch Zellwände in Gewebe von Organismen eindringen [Shaw, 1959; 1960]. Innerhalb der Zellen können Folgereaktionen stattfinden, so daß Iodide oder organische Iodverbindungen entstehen. Eine weitere Quelle von Iodid im Meerwasser ist die enzymatische Reduktion von Iodat mit Nitratreduktase durch Bakterien [Miyake und Tsunogai, 1963] sowie die Reduktion durch Sulfide [Jia-Zhong und Whitfield, 1986; Luther und Tsamakis, 1989]. Vermutlich entsteht dabei molekulares Iod als Intermediat, bevor es der Hydrolyse unterliegt.

Iodat ist die thermodynamisch stabilste Form des Iods im Meerwasser [Fuge und Johnson, 1986; Whitehead, 1984]. Ein signifikanter Anteil des Iods von bis zu 22 % liegt im Meerwasser als Iodid vor. Die Oxidation des Iodids zum Iodat ist im wäßrigen Medium kinetisch gehemmt. Die kinetischen Effekte wirken der thermodynamischen Gleichgewichtslage entgegen. Iodid kann als metastabil bezeichnet werden. Sauerstoff ist im wäßrigen Medium kein effektives Oxidationsmittel. Iodid wird laufend bei der enzymatischen Reduktion von Iodat durch Meeresbakterien nachgebildet, so daß Iodid permanent auch unter leicht basischen Bedingungen im oxigenierten Meerwasser vorliegt [Wong, 1991]. Typische Iodidkonzentrationen liegen nahe der Oberfläche im Bereich von 10 ng/g, das entspricht etwa 20 % des gesamten Iodgehaltes im Meerwasser (s. Abbildung 10). Das durch Meeresorganismen nahe der Wasseroberfläche gebildete Iodid kann durch Einwirkung von Sonnenlicht in der euphotischen Zone photooxidiert werden. Die euphotische Zone ist die vom Sonnenlicht durchdrungene Schicht des Wassers, in der eine effektive Photosynthese möglich ist [Leblanc et al.,

2006]. Frisch entstandenes I_2 ist in der Lage, die Phasengrenzfläche zwischen Wasser und Luft relativ leicht zu passieren.

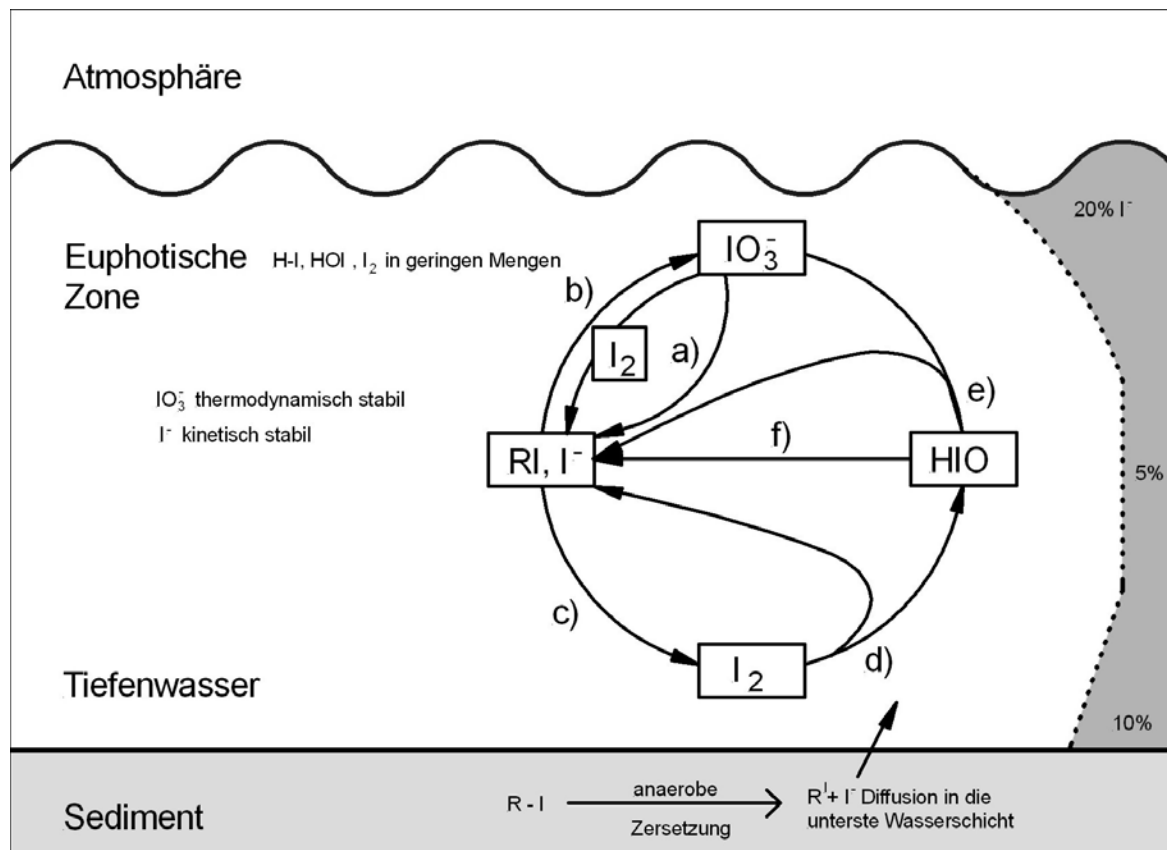


Abbildung 10: Vereinfachtes Schema der Reaktionen von Iod und seinen Verbindungen im Meerwasser [Muramatsu und Ohmomo, 1988; Santschi und Schwehr, 2004; Schwehr und Santschi, 2003; Truesdale, 1974; Tsunogai, 1971; Wong, 1991]. R-I steht für organisch gebundenes Iod.

- a) Reduktion durch Bakterien und Phytoplankton
- b) kinetisch gehemmte Oxidation
- c) extrem langsam verlaufende Autooxidation, H_2O_2 , O_3 und NO_2 wirken katalytisch
- d) schnelle Hydrolyse
- e) langsame Disproportionierung zu Iodid und Iodat
- f) Einbau in organischer Materie

Das durch Bakterien und Phytoplankton aus Iodat erzeugte Iodid wird von Seetang zur Herstellung von Alkyljodiden genutzt. Kurzketten Alkyljodide sind leicht flüchtig und zum Übergang in die Atmosphäre befähigt. In einer dünnen Schicht nahe der Wasseroberfläche werden sie durch Sonnenlicht zu reaktiven Iodspezies photolysiert, die wichtigsten Produkte sind Iodmethan (CH_3I), Diiodmethan (CH_2I_2), Bromiodmethan (CH_2BrI) und Chloriodmethan (CH_2ClI) [Santschi und Schwehr, 2004]. Deren Konzentrationen betragen in der oberen Wasserschicht bis zu einem ppt (parts per trillion), das entspricht $1 \cdot 10^{-12}$ g/g oder 1 pg/g. Aufgrund der großen Reaktivität der eben genannten Verbindungen sind die Vorgänge bei deren Entstehung nicht vollständig verstanden [Leblanc et al., 2006]. Am bedeutendsten ist CH_3I , es wird in Konzentrationen bis zu 30 ppt an der Grenzfläche zur Atmosphäre an-

getroffen und verfügt in der Atmosphäre über eine mittlere Verweilzeit von 14-18 Tagen [Moran *et al.*, 1999]. Über eine abiotische Produktion von CH_3I berichten Moore und Zafiriou [Moore und Zafiriou, 1994], demnach entsteht Methyljodid durch photochemische Vorgänge im wäßrigen Medium ohne Beteiligung von Meeresorganismen.

Die Iodidkonzentration nimmt mit zunehmender Tiefe auf etwa 2 ng/g (5 % der gesamten Iodkonzentration) ab. Am Meeresboden kehrt sich der Trend um und es wird eine auf etwa 5 ng/g (10 %) ansteigende Iodidkonzentration beobachtet [Tsunogai, 1971]. Erklärbar ist dies mit einer anaeroben Zersetzung der organisch geprägten Sedimente, von denen Iodid in die untere Wasserschicht diffundiert, s. Abbildung 10 [Fabryka-Martin, 1984; Muramatsu und Ohmomo, 1988; Santschi und Schwehr, 2004].

Keppler *et al.* [Keppler *et al.*, 2000] beschreiben die Bildung von leichtflüchtigen halogenierten Kohlenwasserstoffen während Oxidationen bei der Zersetzung von organischer Materie. Als Oxidationsmittel kann dabei beispielsweise Fe^{3+} fungieren, welches dann zu Fe^{2+} reduziert wird. Diese Zersetzung findet in Böden und Sedimenten statt. Dabei werden die im Wasser vorliegenden Halogene alkyliert. Eine mikrobielle Reaktionsvermittlung oder Sonnenlicht ist nicht erforderlich. Als Reaktionsprodukte werden Chlormethan (CH_3Cl), Chlorethan ($\text{C}_2\text{H}_5\text{Cl}$), Chlorbutan ($\text{C}_3\text{H}_7\text{Cl}$) und Chlorpropan $\text{C}_4\text{H}_9\text{Cl}$ genannt. Die entsprechenden Iodide und Bromide können bei Gegenwart von Fe^{3+} auch erzeugt werden [Keppler *et al.*, 2000].

Der organisch gebundene Anteil des Iods bezogen auf den gesamten Iodgehalt des Meerwassers liegt im küstennahen Bereich zwischen 9 und 45 %, auf offener See beträgt er weniger als 5 %. Um die Geochemie des Iods zu verstehen, sind daher auch Kenntnisse über die gelösten organischen Iodverbindungen wichtig. Umwandlungen zwischen organischem und anorganischem Iod können dazu beitragen, daß sich Iod nicht mehr konservativ im Meerwasser verhält. Als allgemeinen Trend stellten Wong und Cheng fest, daß der Anteil des organisch gebundenen Iods mit größer werdendem Abstand zur Küste und größerer Tiefe abnimmt [Wong und Cheng, 1998]. Bei dem im Meerwasser vorliegendem pH-Wert verläuft die Reduktion von organischem Iod äußerst langsam [Wong und Cheng, 1998].

Schwehr und Santschi [Schwehr und Santschi, 2003] berichten, daß wenig über den exakten Einbaumechanismus des Iods in organische Materie bekannt ist. Ein Großteil des Iods ist in Seetang an Proteine gebunden. Auch Iodaminsäuren werden in Seetang angetroffen [Hou *et al.*, 1997]. Makroalgen und Phytoplankton produzieren leichtflüchtige halogenierte organische Substanzen. Dazu gehören die oben angesprochenen Spezies Iodmethan, Diiodmethan, Chlorigmethan aber auch Propyl- und Butyliodide. Deren Konzentrationen sind mit wenigen ng/l sehr gering. Das entspricht weniger als 0,1 % bezogen auf die gesamte Iodkonzentration. Die flüchtigen Iodverbindungen gehen leicht in die Atmosphäre über [Schall *et al.*, 1997], siehe auch Abschnitt 4.4. Außerdem spielen sie als Treibhausgas und bei Reaktionen in der Ozonschicht eine wichtige Rolle. Die organo-Iodverbindungen können im Meerwasser unter Einfluß von UV-Licht Transformationsreaktionen eingehen [Schall *et al.*, 1997]. Bei einer photochemischen Zersetzung von organo-Iodverbindungen entsteht Iodid, UV-Strahlung kann aber auch neue organische Iodverbindungen entstehen lassen. Die Reaktionen verlaufen sowohl direkt (Photolyse) als auch über reaktive Zwischenstufen [Santschi und Schwehr, 2004; Schwehr und Santschi, 2003; Wong und Cheng, 2001]. Der Einfluß der UV-Strahlung auf halogenierte Verbindungen ist in Hydro- und Atmosphäre sehr komplex und nicht vollständig verstanden. Bisweilen werden gegenläufige Effekte beobachtet [Santschi und Schwehr, 2004].

In der von UV-Strahlen durchdrungenen oberen Schicht des Meerwassers entstehen neben Ozon auch Peroxide. Diese sind reaktiv und lassen ohne weitere Mitwirkung von Bakterien und Mikroorganismen elementares Iod und hypoiodige Säure (HOI) entstehen [Wong, 1991]. Diese Produkte können einer Reduktion zum Iodid unterliegen, ebenfalls ist ein Einbau in organische Materie begünstigt. Auch ein anschließender Übergang in die Atmosphäre als Methyljodid, HOI oder I_2 ist möglich. Die nach Photolyse entstandenen flüchtigen, reaktiven Iodverbindungen können eine Reihe von Iodoxiden entstehen lassen. Dazu zählen HOI, I_2O_2 und IO_2 , welche als kondensierbare Dämpfe eine Keimzelle für Aerosole sein können oder mit Ozon weiter reagieren [Kolb, 2002]. Nahe der Wasseroberfläche kann atmosphärisches Ozon Iodid zu molekularem Iod oxidieren [Garland und Curtis, 1981; Thompson und Zafriou, 1983]. Palmer et al. beschreiben die Freisetzung von Iodid und halogenierten Kohlenstoffverbindungen durch Braunalgen. Unter oxidativen Bedingungen werden diese zu molekularem Iod umgesetzt [Palmer et al., 2005]. Aufgrund der schnellen Hydrolyse des Iods muß für den Übergang in die Atmosphäre eine zeitnahe Verdampfung erfolgen.

In Flußwasser ist Iodid die am häufigsten vorkommende Iodspezies. Die Umsetzung von organischem Iod zu Iodid kann mit milden Reduktionsmitteln wie Sulfid (SO_3^{2-}) [Reifenhäuser und Heumann, 1990] oder Sulfid (S^{2-}) und Thiosulfat ($S_2O_3^{2-}$) erfolgen [Luther et al., 1991], die die relativ schwache C-I-Bindung angreifen.

Wong [Wong, 1991] faßt in einem Übersichtsbeitrag ausführlich die Eigenschaften und chemischen Reaktionen des Iods im Meerwasser zusammen. Weitere Beschreibungen können in anderen Literaturstellen [Adams und Cox, 2002; Leblanc et al., 2006; Muramatsu und Ohmoto, 1988; Schwehr und Santschi, 2003; Truesdale, 1974; Wong und Cheng, 1998] sowie den darin zitierten Veröffentlichungen nachgelesen werden.

4.3 Der allgemeine Iodkreislauf

Künstliches und natürliches ^{129}I begeben sich mit dem stabilen ^{127}I in der Umwelt in ein Gleichgewicht. Es findet eine Vermischung statt, daher sind die Wege des ^{129}I durch die Umwelt und letztendlich auch zum Menschen nur bei genauer Kenntnis über das Verhalten des ^{127}I zu verstehen. Etliche Veröffentlichungen befassen sich mit Modellen, die den globalen Iodkreislauf beschreiben [Bonka, 1982; Fabryka-Martin, 1984; Fuge und Johnson, 1986; Whitehead, 1984]. Das komplexe Verhalten kann dabei nicht vollständig wiedergegeben werden. Es ist aber möglich, einen ersten Überblick und ein grundlegendes Verständnis über Transportvorgänge in der Umwelt zu erhalten.

Der Iodkreislauf kann anhand eines Kompartiment-Modells von Fabryka-Martin [Fabryka-Martin, 1984] veranschaulicht werden, darin sind in Boxen die Iodgehalte der jeweiligen Kompartimente angegeben und Pfeile kennzeichnen die Iodflüsse zwischen den Kompartimenten (s. Abbildung 11). Innerhalb der Boxen wird eine ideale Durchmischung angenommen. Die Transferraten werden als zeitlich nicht variabel betrachtet. Je nach Einteilung der Atmo-, Hydro-, Pedo-, Bio- und Lithosphäre lassen sich diese Modelle beliebig kompliziert gestalten. Es soll ein grundlegendes Verständnis des Zusammenspiels der Kompartimente vermittelt werden, die Berechnungsgrundlagen von Verweilzeiten usw. sind hier nicht Gegenstand der Diskussion. Kenntnisse über Quellen, Senken und Transferfunktionen sind bei der Verwendung von ^{129}I als Umwelttracer erforderlich. Bei Annahme eines stationären Zustandes, das heißt die Kompartimente befinden sich im Gleichgewicht

zueinander, können solche Kompartimentmodelle genutzt werden, um die Verteilung des ^{129}I in der Geosphäre und die Änderung des globalen Gleichgewichtsisotopenverhältnisses abzuschätzen.

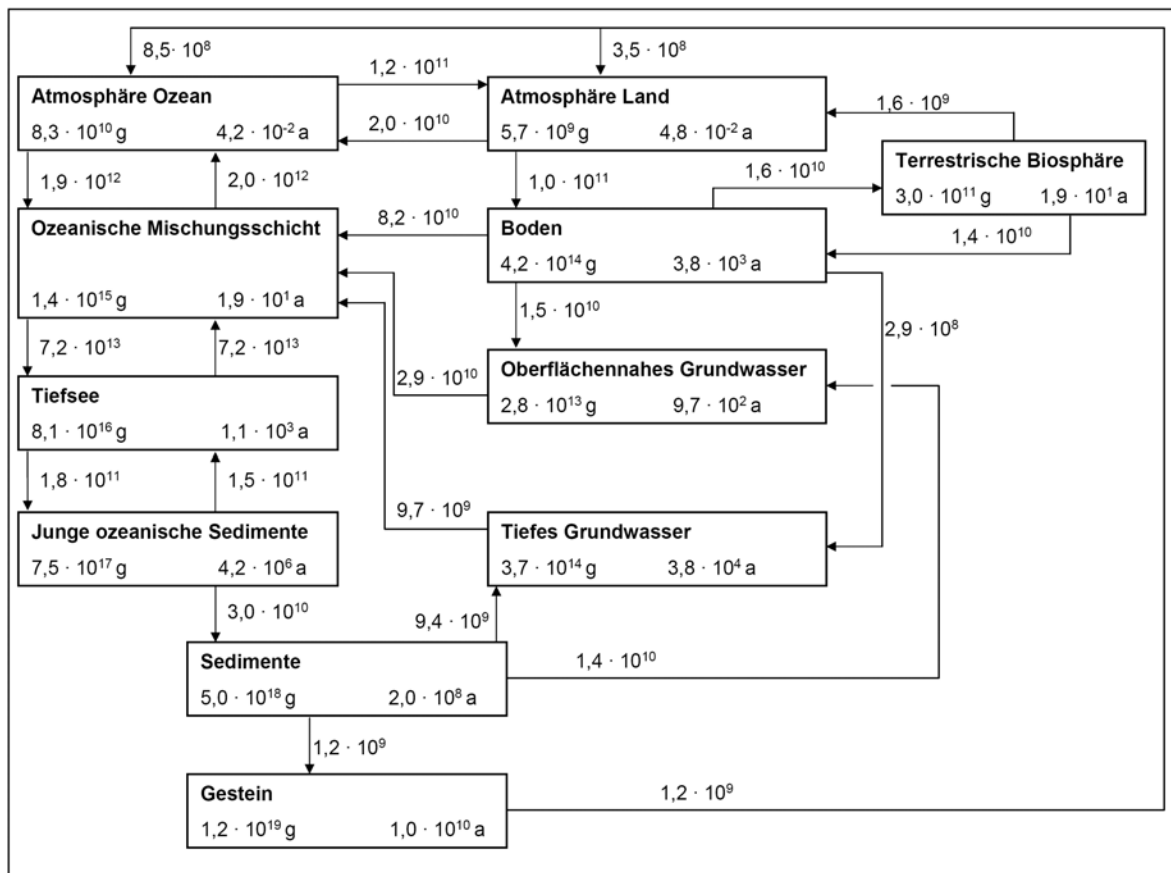


Abbildung 11: Globales Kompartimentmodell nach Fabryka-Martin [Fabryka-Martin, 1984]. An den Pfeilen sind die Stoffflüsse (in Gramm pro Jahr) und innerhalb der Boxen die Iodgehalte in Gramm sowie mittlere Verweilzeiten in Jahren angegeben. Der Transfer vom Gestein in die Tiefsee wurde nicht berechnet.

Man unterscheidet die freien und gebundenen Inventare des Iods in der Umwelt. Das freie Iodinventar ist in der Umwelt beweglich, das gebundene Inventar ist z. B. im Erdinneren oder in Gesteinen so fixiert, daß es nicht am globalen Iodaustausch teilnimmt. Für den Menschen sind bei Ermittlung der Strahlenexposition besonders die terrestrische Biosphäre und die Pedosphäre relevant. Eine ausführliche Betrachtung der terrestrischen Biosphäre ist im Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhabens 4285 [Michel et al., 2004] und weiteren dort angegebenen Literaturstellen zu finden.

Wie im Abschnitt 4.4 ausführlich beschrieben wird, sind Iodverbindungen in der Lage, die Meere an der Phasengrenzfläche flüssig / gasförmig zu verlassen. Die in die Atmosphäre übergegangenen Iodverbindungen werden z. B. durch den Wind ins Landesinnere transportiert. Die Verweilzeiten der unterschiedlichen Iodspezies in der Atmosphäre liegen zwischen 10 Tagen für anorganisches Iod, 14 Tagen für partikulär gebundenes Iod und bei 18 Tagen für organisch gebundenes Iod. Die relativ lange Verweilzeit der Alkyljodide in der Atmosphäre können durch die größere Stabilität der Verbindungen erklärt werden [Rahn,

1976], wodurch eine Verteilung über die Kontinente ermöglicht wird. Andere Schätzungen beziffern die Verweilzeit von Methyliodid in der Atmosphäre auf acht Tage [*Chameides und Davis*, 1980].

Durch nasse und trockene Deposition wird das Iod auf Pflanzen und Böden abgeschieden. Die nasse Deposition durch Regen zeigt als allgemeinen Trend abnehmende Iodgehalte im Regenwasser mit zunehmendem Abstand zum Meer und steigender Höhe. Üblicherweise liegen die Iodkonzentrationen im Regenwasser zwischen 0,2 ng/g und 15 ng/g. Da trockene Deposition ebenfalls mit wachsendem Abstand zum Meer an Bedeutung verliert, sinken die Iodgehalte der Böden in Richtung des Landesinneren [*Fabryka-Martin*, 1984]. Durch Regenwasser kann auf der Pedos- und Biosphäre deponiertes Iod wieder weggespült werden. Es wird über Flüsse ins Meer transportiert. Die Iodkonzentrationen im Flußwasser reichen von 0,1 ng/g bis 40 ng/g [*Fabryka-Martin*, 1984]. Iodid ist im Flußwasser die am häufigsten vorkommende Iodspezies [*Wedepohl*, 1974]. In Böden ist Iod im Vergleich zum Regenwasser um etwa den Faktor 1000 angereichert. Die hohen Iodkonzentrationen von 1 bis 50 µg/g wurden in der Vergangenheit häufig mit der schweren Löslichkeit der Produkte aus der Gesteinsverwitterung erklärt, inzwischen besteht aber weitestgehend darin Einigkeit, daß das Meer bzw. die Seeluft die Quelle des Iods auf dem Festland ist [*Carpenter*, 2003; *Fabryka-Martin*, 1984; *Leblanc et al.*, 2006]. Begründet werden kann dies mit mehreren analytischen Befunden: die Iodgehalte in Böden nehmen mit zunehmendem Abstand zum Meer, mit größer werdender Tiefe und mit abnehmender Niederschlagsintensität ab [*Fabryka-Martin*, 1984]. Bodenkolloide können das Iod aus der Atmosphäre an sich binden. Dabei sind nicht nur physikalische Absorptions- und Ionenaustauschvorgänge von Bedeutung, es finden auch chemische Reaktionen statt. Die bei Gesteinsverwitterungen entstehenden löslichen Iodverbindungen können vom Regenwasser fortgespült und in Flüsse eingetragen werden. Nach der Mobilisierung kann sich das Iod den Weg ins Meer bahnen. Gleichzeitig ist ein vertikaler Transport in Richtung des Grundwassers möglich. Die Mobilität des Iods in Böden und dessen Chemie wird in Veröffentlichungen widersprüchlich diskutiert und ist mit großen Unsicherheiten behaftet. Wasserlöslichkeit und Wanderungsgeschwindigkeit des Iods in Böden entscheiden darüber, ob sich das Iod in Flüsse oder in Richtung Grundwasser bewegt.

In ozeanischen Sedimenten ist Iod stark angereichert, dort erstrecken sich die Iodkonzentrationen von 2 µg/g bei grobkörnigem Sand bis zu 2000 µg/g in der oberen Schicht, die reich an organischen Bestandteilen ist. Die Anreicherung des Iods in den Sedimenten korreliert mit dem Kohlenstoffanteil. Innerhalb der oberen Schicht zwischen 0,1 und 1,0 m nehmen der Kohlenstoffgehalt und damit auch der Iodanteil exponentiell ab. Typische Iodgehalte liegen bei etwa 1 m Tiefe in den Sedimenten zwischen 15 und 200 µg/g. Im Porenwasser der Sedimente dagegen nimmt der Iodgehalt mit größerer Tiefe zu und liegt zwischen ein und zwei Größenordnungen über dem Iodgehalt im Meerwasser. Porenwasser wird bei der schwerkraftbedingten Verdichtung tief liegender Sedimente freigesetzt, es enthält 1 bis 38 % des Iods der ozeanischen Sedimente [*Fabryka-Martin*, 1984].

Iod wird in Seetang, Plankton, Algen und anderen Meeresorganismen angereichert und nach deren Absterben auf dem Meeresboden deponiert. Bei beginnender Zersetzung wird das Iod mobilisiert. Ein Teil geht in Porenflüssigkeit über, ein anderer Teil wird von organischen Komponenten erneut aufgenommen. Durch das Absterben und Sedimentieren der iodtragenden organischen Materie wird Iod aus dem aktiven hydrologischen Kreislauf entfernt. Typische Iodkonzentrationen können mit 50 µg/g Iod in den Sedimenten und mit etwa 1 µg/g in der Porenflüssigkeit der Sedimente angenommen werden. Darauf basierend wird der jährliche

Transfer aus den Ozeanen durch die marine Sedimentation in die Lithosphäre auf etwa $7 \cdot 10^{10}$ g Iod pro Jahr berechnet [Fabryka-Martin, 1984], Muramatsu und Wedepohl schätzten diesen Transfer auf etwa $2,0 \cdot 10^8$ kg pro Jahr [Muramatsu und Wedepohl, 1998]. Der jährliche Übergang aus den Ozeanen in die Atmosphäre wird mit netto $2,0 \cdot 10^{11}$ g Iod pro Jahr angenommen [Fabryka-Martin, 1984]. Das in die Lithosphäre übergegangene Iod kann auf die in Kapitel 4.4 beschriebene Art und Weise wieder mobilisiert werden.

Eine der größten Unsicherheiten bei der Betrachtung des globalen Iodkreislaufs stellen die vulkanischen Aktivitäten dar. Zwischen $2 \cdot 10^9$ und $3 \cdot 10^9$ Tonnen vulkanischen Materials werden so an die Erdoberfläche befördert. Während Lava und grobkörnige Asche nur eine begrenzte räumliche Verteilung erlangen, können feinkörnige Asche und Gase in der Atmosphäre global verteilt werden [Fabryka-Martin, 1984]. Abschätzungen zu den so freigesetzten Iodmengen sind in der Literatur kaum zu finden.

4.4 Meere als Quellen und Senken des Iods

Die Meere mit ihrer Funktion als Quelle und Senke des Iods repräsentieren einen kleinen Ausschnitt des globalen Iodkreislaufs, der in Abschnitt 4.3 besprochen wurde. Die Mischungsschicht der Ozeane und Meere stellt das größte mit der terrestrischen Biosphäre austauschende Iodreservoir dar [Fabryka-Martin, 1984; Muramatsu und Wedepohl, 1998]. Der globale Kreislauf beinhaltet den intensiven Austausch der marinen Mischungsschicht mit der Atmosphäre [Leblanc et al., 2006]. Der Phasenübergang des Iods aus dem Meerwasser in die Atmosphäre verläuft über die direkte Emission von Iod oder Iodverbindungen aus dem Wasser. Molekulares Iod (I_2) verläßt z. B. beim Zerplatzen kleiner Bläschen nahe der Oberfläche oder beim Transport kleiner Tröpfchen mit dem Wind die Wasseroberfläche [Fabryka-Martin, 1984]. Gleichzeitig verdampfen flüchtige, halogenierte organische Komponenten [Carpenter, 2003]. Auch an Partikel gebundene Iodide und Plankton können so einen Phasenübergang ausführen. Sobald gasförmiges Iod (I_2) in die Atmosphäre übergegangen ist, lagert es sich leicht an Partikel oder Aerosole an [Fuge und Johnson, 1986], die klein genug sind, um längere Zeit in der Luft zu verweilen [Fabryka-Martin, 1984; Leblanc et al., 2006]. Sowohl partikuläres als auch gasförmiges Iod folgen den wetterbedingten Luftbewegungen über die Meere und ins Landesinnere. In der Atmosphäre geht Iod eine Vielzahl organischer und anorganischer Verbindungen ein. Unter Einfluß der UV-Strahlung entstehen Radikale und weitere reaktiven Zwischenstufen, die Folgereaktionen eingehen und für die Ozonbildung oder Zersetzung von Bedeutung sind. Diese Umsetzungen sind hier aber nicht Gegenstand der Beschreibung, vielmehr soll ein Verständnis der Transportvorgänge des Iods vom Meer zum Kontinent und vom Meer ins Sediment bzw. Gestein vermittelt werden. In Übersichtsartikeln werden die chemischen Eigenschaften des Iods in der Atmosphäre ausführlich dargestellt [Adams und Cox, 2002; Carpenter, 2003; O'Dowd und Hoffmann, 2005; Vogt, 1999], auch gängige Lehrbücher der Atmosphärenchemie liefern weitreichende Informationen. Neben den chemischen Umsetzungen sind auch Bindungen an Partikel zu beachten. Abbildung 12 zeigt vereinfacht die Funktion der Meere als Quelle und Senke des Iods. Umwandlungsprozesse in der Atmosphäre bleiben hier unberücksichtigt.

Die in Abschnitt 4.2 besprochene Bildung leichtflüchtiger Verbindungen wie Diiodmethan (CH_2I_2), Bromiodmethan (CH_2BrI) und Chloriodmethan (CH_2ClI) in der euphotischen Zone der ozeanischen Mischungsschicht stellt eine wichtige Vorstufe dar, bevor es zum Übergang in die Atmosphäre kommt. Die mittlere Lebensdauer der eben genannten Verbindungen im Wasser ist wegen der Flüchtigkeit und der Reaktivität relativ kurz [Leblanc et al., 2006].

Äußere Faktoren wie Wind und Temperatur beeinflussen, ob Phasenübergänge oder chemische Reaktionen begünstigt sind [Carpenter, 2003]. Die wichtigste iodorganische Verbindung ist Methyljodid. Es wird im Vergleich zu den eben genannten Verbindungen in größeren Mengen gebildet, ist stabiler und verfügt über eine größere Verweilzeit in der Atmosphäre, siehe Abschnitt 4.3 [Carpenter, 2003; Fabryka-Martin, 1984; Leblanc et al., 2006; Moran et al., 1999].

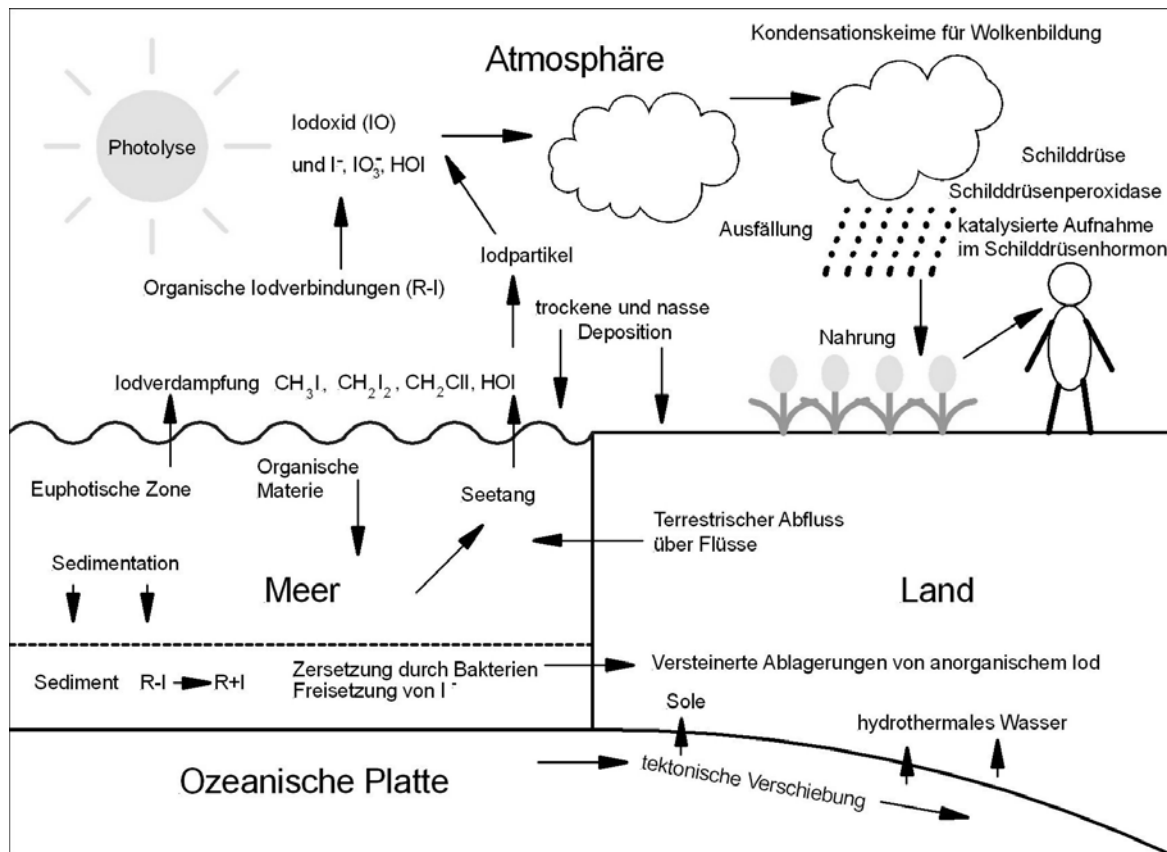


Abbildung 12: Vereinfachte Darstellung der Quell- und Senkenfunktion der Meere nach Muramatsu et al. [Muramatsu et al., 2004].

Iod und seine Verbindungen können in der Atmosphäre wie eingangs bereits erwähnt vielfältige Reaktionen eingehen. Die iodorganischen Verbindungen reagieren nach Photolysereaktionen leicht zu oxidischen Iodverbindungen [Carpenter, 2003]. Eine Keimzelle für die Bildung von Partikeln ist vermutlich eine Polymerisation und anschließende Kondensation von Iodmonoxid (IO). Ein Übersichtsartikel beschreibt genauer Partikel- und Aerosolbildung unter Beteiligung des Iods [O'Dowd und Hoffmann, 2005]. Auch Modellrechnungen befassen sich mit Aerosolbildungen [Pechtl et al., 2007; Saiz-Lopez et al., 2006]. Nach homolytischen Spaltungen von Iod und seinen Verbindungen in der Atmosphäre und der damit verbundenen Entstehung von Radikalen sind vielfältige Folgeraktionen unter Beeinflussung des Ozonhaushaltes zu erwarten. Es bildet sich eine Vielzahl an kurz- und langlebigen Iodverbindungen von denen sich einige an Partikel anlagern und als Kondensationskeim für Wolkenbildung fungieren [Carpenter, 2003]. Durch den Transport gelangen die Iodverbindungen zum Festland und letztendlich über Inhalation und Ingestion in den menschlichen Organismus.

Der globale Fluß des Iods aus den Meeren in die Atmosphäre ist schwierig abzuschätzen. Miyake und Tsunogai [Miyake und Tsunogai, 1963] bezifferten den jährlichen Fluß aus den Ozeanen in die Atmosphäre auf $5 \cdot 10^{11}$ g Iod pro Jahr. Fabryka-Martin schätzte diesen Übergang auf $1,0 \cdot 10^{11}$ g pro Jahr [Fabryka-Martin, 1984] (s. auch Abbildung 11), Muramatsu und Wedepohl [Muramatsu und Wedepohl, 1998] gaben $2,4 \cdot 10^{11}$ g pro Jahr an. Iod verdampft deutlich leichter in die Atmosphäre als Chlor. Während das I/Cl-Verhältnis in der marinen Hydrosphäre bei $2 \cdot 10^{-6}$ liegt, beträgt es in der Atmosphäre $1 \cdot 10^{-2}$ [Miyake und Tsunogai, 1963]. Die Migration des Iods in der Atmosphäre wird durch die Wetterbedingungen bestimmt [Fuge und Johnson, 1986]. Durch trockene und nasse Deposition wird Iod aus der Atmosphäre auf dem Festland abgeschieden. Ebenso wird Iod aus der Atmosphäre in die Meere überführt. Unter trockener Deposition versteht man das Absinken von Iod tragenden Partikeln und die Absorption von gasförmigen Iodverbindungen an Pflanzen und Böden. Anorganische Iodverbindungen haben eine größere Tendenz, sich auf der Erdoberfläche oder an Bewuchs anzulagern als die organisch gebundenen Iodverbindungen. Ebenso lösen sich erstgenannte wesentlich besser in Regenwasser als organisches Iod und werden daher leichter aus der Atmosphäre ausgewaschen [Muramatsu und Wedepohl, 1998].

Die nasse Deposition wird in Washout und Rainout unterteilt. Der Rainout-Prozeß findet innerhalb der Wolkenschicht durch Kondensation von Wasser an den Iod tragenden Aerosolen statt. Partikel mit einem Radius von mehr als $0,2 \mu\text{m}$ werden besonders effektiv durch Rainout aus der Atmosphäre entfernt. Beim Washout werden Aerosolpartikel, deren Radius über $1 \mu\text{m}$ liegt, durch herabfallende Regentropfen zum Boden befördert. Mit Ausnahme der küstennahen Gegenden und über den Ozeanen ist der Rainout-Prozeß vernachlässigbar, da die großen Partikel nicht weit ins Landesinnere eindringen und vorher im Zuge der trockenen Deposition sedimentieren. Rainout und Washout können gasförmige Iodverbindungen nur effizient aus der Atmosphäre zu entfernen, wenn diese an Partikel absorbiert sind [Fabryka-Martin, 1984]. Bei der Akkumulation des Iods in Böden spielen organische Bestandteile und Mikroorganismen eine wichtige Rolle [Muramatsu et al., 2004].

Chamberlain und Chadwick bezifferten die trockene Deposition auf dem Festland auf $5,1 \text{ mg I pro Quadratmeter und Jahr}$, was etwas mehr als das dreifache des berechneten Eintrags durch nasse Deposition ist [Chamberlain und Chadwick, 1966]. Whitehead [Whitehead, 1984] bezifferte die trockene Deposition auf $0,96 \text{ mg Iod pro Quadratmeter und Jahr}$. In Gegenden mit wenig Niederschlag nimmt die trockene Deposition eine noch größere Rolle ein [Fuge und Johnson, 1986]. In küstennahen Gegenden kann die nasse und trockene Depositionsrates auf etwa $7 \text{ mg Iod pro Quadratmeter und Jahr}$ abgeschätzt werden, in kontinentalen Gegenden sind die Depositionsraten geringer [Fuge und Johnson, 1986]. Aufgrund der nassen und trockenen Deposition ist das Meer die Hauptquelle von Iod auf dem Festland. In Böden und im Oberflächenwasser findet eine Verdünnung des radioaktiven Iods mit dem stabilen Iod statt. Auf dem Festland deponiertes Iod kann sich in Richtung Grundwasser bewegen oder es wird mit dem Oberflächenwasser zurück in die Meere gespült, so daß die Meere als Senke fungieren.

Wie in Abschnitt 4.2 bereits angesprochen, wird Iod überwiegend in Form von Iodid durch Meeresorganismen aufgenommen [Muramatsu und Ohmomo, 1988]. Dabei reichert sich das Iod in Algen und Tieren um mehr als den Faktor 10^5 an, nicht selten werden in Algen und Seetang $1000 \mu\text{g/g}$ Iod und mehr angetroffen. Deren Absterben und zu Boden Sinken ist ein grundlegender und wichtiger Mechanismus zur Entfernung des Iods aus dem Meerwasser [Fabryka-Martin, 1984; Santschi und Schwehr, 2004; Schink et al., 1995a; Wong, 1991;

Wong und Cheng, 1998]. Untersuchungen von Muramatsu und Wedepohl an sedimentärem Gestein aus dem Atlantischen Ozean bei 5000 m Wassertiefe ergaben Iodgehalte 1660 bis 5240 ng/g Iod. Der gesamte Iodkreislauf durch die Wassersäule und das Sediment ist wegen der Biophilie biologisch kontrolliert. Die obersten Schichten von Sedimenten tragen den größten Iodgehalt [*Muramatsu und Wedepohl, 1998*]. Insgesamt befinden sich etwa 68 % des gesamten globalen Iodgehaltes in den ozeanischen Sedimenten. Muramatsu und Wedepohl schätzen den jährlichen Iodfluß von Seewasser in die Tiefseesedimente auf mehr als $0,1 \cdot 10^8$ kg und den Fluß aus flachen Meeren in Sedimente auf $2,0 \cdot 10^8$ kg [*Muramatsu und Wedepohl, 1998*].

Ein Teil des sedimentierten Iods kann bei Gesteinsbildung wieder mobilisiert werden. Durch Subduktion, darunter versteht man das Driften einer Lithosphärenplatte in tiefere geologische Formationen, wird Iod zwischenzeitlich aus der marinen Umwelt entfernt. Driftet eine ozeanische Platte in die Tiefe, so kann das Iod durch vulkanische Aktivitäten, hydrothermalen Fluß und durch das in die Hydrosphäre eindringende Solewasser mobilisiert werden [*Muramatsu et al., 2004*]. Die Iodanreicherung des Solewassers während der Subduktion ist entscheidend für eine fortdauernde Mobilität des Iods in der Umwelt.

Hydrothermales Wasser ist aufgrund des in den Gesteinschichten herrschenden Drucks auch noch bei über 100°C flüssig. Während der späten Diagenese oder der beginnenden Metamorphose wird hydrothermales Wasser bei Temperaturen zwischen mehr als 100°C (Diagenese) und mehr als 400°C (Metamorphose) aus großen Teilen der kontinentalen Kruste entfernt. Unter Diagenese versteht man in der Geologie die Gesteinsbildung aus lockeren Sedimenten, Metamorphose steht für Gesteinsumbildung. Durch statischen Auftrieb wird hydrothermales Wasser aus den tieferen Schichten der kontinentalen Kruste an die Oberfläche befördert, wodurch Iod wieder in die Hydrosphäre befördert wird [*Muramatsu und Wedepohl, 1998*]. Die Diagenese setzt etwa 85 % des Iods wieder in die Hydrosphäre frei. Die Menge des mobilisierten Iods hängt unter anderem von Temperatur, Alter der Sedimente, Druck, Tiefe und der Bindungssituation des Iods ab. Durchdringt Grundwasser die Sedimentschicht, transportiert es das frei gewordene Iod in die Hydrosphäre [*Fabryka-Martin, 1984; Muramatsu et al., 2004*].

Der jährliche Iodfluß über hydrothermales Wasser in die Ozeane ist schwer abzuschätzen. Muramatsu und Wedepohl nehmen an, daß dieser hydrothermale Fluß den Iodverlust durch Sedimentation und Verdampfung ausgleicht. Der Eintrag von Iod über die Flüsse in die Ozeane von etwa $1,1 \cdot 10^{11}$ g pro Jahr ist ihrer Ansicht nach zu gering [*Muramatsu und Wedepohl, 1998*].

5 Stand des Wissens

Dieses Kapitel befaßt sich mit den Eigenschaften der im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] untersuchten und in dieser Arbeit besprochenen Radionuklide. Neben Tritium (^3H), ^{90}Sr , ^{99}Tc und ^{137}Cs wurden auch einige Transurane (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{241}Am) im Oberflächenwasser der Nordsee bestimmt. Die Zerfallseigenschaften der Radionuklide und deren Verhalten im Meerwasser werden kurz vorgestellt. Die Präsentation der bisherigen Arbeiten beschränkt sich auf die jüngeren Untersuchungen in der Deutschen Bucht und der Nordsee sowie auf die Veränderungen durch den Reaktorunfall von Tschernobyl. Das BSH untersucht regelmäßig die Aktivitätskonzentrationen der genannten Radionuklide in der Nord- und Ostsee und dokumentiert die Ergebnisse in Zustandsberichten der Nordsee [BSH, 2005; 2006]. Bisher wird Iod-129 nicht routinemäßig überwacht.

Bei Betrachtung der bisherigen Arbeiten zu Iod-129 in der Nord-, Ost- und Irischen See werden in erster Linie Arbeiten zu Wasserproben vorgestellt. Die Untersuchungen zu Iod-129 in Seetang, Algen und sonstigen Meeresorganismen werden nur kurz angesprochen. Die Strömungsverhältnisse in der Nordsee, der Irischen See und dem Europäischen Nordmeer sind für den Transport der Radionuklide mit den Wassermassen verantwortlich und werden am Ende dieses Kapitels beschrieben.

5.1 Eigenschaften der Radionuklide im Meerwasser

Um Transportprozesse von Radionukliden im wäßrigen Medium zu verstehen, sind Kenntnisse über deren Eigenschaften essentiell. Es werden sich konservativ verhaltende Radionuklide von denen unterschieden, die sich in der Biota anreichern oder an Partikel anlagern und schnell sedimentieren. Es ist davon auszugehen, daß sich alle in dieser Arbeit besprochenen Radionuklide genau so verhalten wie die stabilen Isotope. Tritium ist ein ideal konservativer Tracer, es folgt den Strömungen des Wassers ohne sich in Meeresorganismen anzureichern oder sich partikulär zu binden. Tritium gilt als eines der am wenigsten kritischen Nuklide, da es im menschlichen Körper über eine kurze biologische Halbwertszeit verfügt [BSH, 2005; 2006].

5.1.1 Strontium-90

Strontium-90 ist ein reiner β -Strahler mit einer Halbwertszeit von 28,64 Jahren und einer maximalen Zerfallsenergie von 0,5 MeV [Magill *et al.*, 2007]. ^{90}Sr zerfällt in Yttrium-90, das erneut einen Betazerfall ($T_{1/2} = 2,67$ Tage) eingeht und in stabiles Zirkon-90 zerfällt. Strontium besitzt mit ^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{87}Sr und ^{88}Sr vier stabile Isotope, insgesamt sind vom ^{73}Sr bis ^{105}Sr 33 Strontiumisotope bekannt. Die meisten von ihnen werden künstlich hergestellt. Die Spontanspaltung von ^{238}U läßt ^{90}Sr in geringen Mengen entstehen, bei der neutroneninduzierten Spaltung von ^{235}U wird es mit einer relativ großen Ausbeute gebildet (s. Abbildung 2). Typische Strontiumkonzentrationen liegen im Meerwasser bei 8,2 mg/l. Das radioaktive Strontium-90 wird durch die stabilen Isotope gut geträgert. Eine Anlagerung an Partikel ist nicht begünstigt. Es verhält sich weitgehend konservativ und wird nicht nennenswert in der Nahrungskette angereichert. Im Meerwasser liegt es als hydratisiertes und zweifach positiv geladenes Ion vor. Für den Menschen ist ^{90}Sr als „knochensuchendes Nuklid“ bedeutsam, da es leicht in das Knochengerüst des Menschen eingebaut wird und lange im

Körper verweilt. So entsteht eine lange biologische Halbwertszeit bei einer ebenfalls langen physikalischen Halbwertszeit.

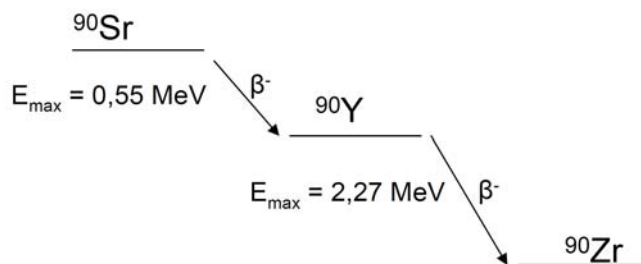


Abbildung 13: Zerfallsschema des Strontium-90.

Hinsichtlich der Quelle des ^{90}Sr unterscheiden sich Nord und Ostsee. Die ^{90}Sr -Kontamination der Nordsee wird seit den 1970er Jahren überwiegend durch die kontrollierten Ableitungen der WAA bestimmt. Als Folge des OSPAR-Abkommens wurden immer weniger Radionuklide, die mit einjähriger bzw. zweijähriger Verzögerung die Deutsche Bucht erreichen, in den Englischen Kanal und die Irische See eingeleitet. Grund für den Rückgang der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen von etwa 30 Bq/m^3 in den 1980er Jahren auf 2 bis 3 Bq/m^3 in den Jahren 2004 bis 2006 ist nicht der radioaktive Zerfall, sondern das Abfließen von kontaminierten Wassermassen in Richtung des Nordostatlantiks. Der Reaktorunfall von Tschernobyl stellt in Hinblick auf die ^{90}Sr -Kontamination der Nordsee nur ein kurzfristiges Ereignis dar. An der Station Borkumriff wurden vorübergehend bis zu 90 Bq/m^3 gemessen, die jedoch schnell wieder abnahmen [BMU, 2008]. In den letzten Jahren stagnieren die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen innerhalb der Nordsee in Größenordnungen des globalen Fallouts [BMU, 2008]. Dabei werden in den durch kontinentalen Abfluß geprägten Bereichen der Stationen Medem und Elbe aufgrund des globalen Fallouts erhöhte ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen von etwa 4 bis 6 Bq/m^3 gemessen, systematische jahreszeitliche Schwankungen sind bei keiner routinemäßig angelaufenen Station in der Deutschen Bucht erkennbar [BSH, 2006]. Die Lage der genannten Stationen kann den Stationsplänen in Abschnitt 6.1 entnommen werden.

Der Austausch von Nordseewasser mit der Ostsee findet nur in sehr geringem Maße statt, daher haben die Ableitungen aus den WAA kaum Einfluß auf die ^{90}Sr -Kontamination der Ostsee. In der Ostsee ist der globale Fallout die Hauptquelle der ^{90}Sr -Kontamination. Bis zum Reaktorunfall von Tschernobyl im Jahre 1986 betragen die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen im Ostseewasser an der Station Schleimündung etwa 20 bis 30 Bq/m^3 . Kurzzeitig nahmen die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen bei dieser Station auf etwa 40 Bq/m^3 zu. Der Schwerpunkt des Tschernobyl-Fallouts lag in der südlichen Bottensee und im Finnischen Meerbusen. Der Bereich um die Lübecker Bucht wurde deutlich weniger kontaminiert. Heute liegen die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen in der Ostsee knapp bei 8 Bq/m^3 [BMU, 2008] und damit etwa Faktor vier über den ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen in der Nordsee.

5.1.2 Technetium-99

Das Element Technetium (Ordnungszahl 43) hat kein stabiles Isotop. Die 34 Technetiumisotope von ^{85}Tc bis ^{118}Tc entstehen beim natürlichen Zerfall von Uran und durch die neutroneninduzierte Spaltung von ^{235}U (s. Abbildung 2). Aufgrund seiner Radioaktivität kommt Tech-

netium in der Natur nicht elementar vor. Technetium-99 hat eine Halbwertszeit von $2,1 \cdot 10^5$ Jahren und zerfällt über einen β^- -Zerfall mit einer Zerfallsenergie von 0,3 MeV in das stabile Ruthenium-99. Im Wasser kommt es überwiegend als Pertechnetat (TcO_4^-) vor. Es hat eine geringe Affinität, sich an Partikel zu binden und verhält sich im Meerwasser weitgehend konservativ. Es folgt damit den Meeresströmungen über weite Strecken [Nies et al., 2000]. Eine Anreicherung des Technetiums in Fisch findet mit geringen Anreicherungsfaktoren von 10-30 l/kg statt, in Krustentieren und Hummern werden Anreicherungsfaktoren von 1000 bzw. mehr als 20 000 beobachtet. In Braunalgen wie dem Sägezahn tang und Blasantang betragen Anreicherungsfaktoren bezogen auf die Volumenaktivität im Wasser mehr als 10^5 [BSH, 2005; 2006; Nies et al., 2000].

Technetium reichert sich über den Hepatopankreas trakt und über den Intestinaltrakt in Hummern an, so wurden in Hummern aus der Irischen See spezifische Aktivitäten von bis zu 20 kBq/kg gemessen, als durchschnittlicher Wert für Technetium-99 wurde in einer Arbeit 13 kBq/kg angegeben [Knowles et al., 1998]. Diese Anreicherungen haben jedoch keinen Einfluß auf die Strahlenexposition der Anwohner im Gebiet um die Irische See, da in den dortigen Bereichen Hummer nur in sehr geringen Mengen verzehrt werden und der Dosisfaktor nach Strahlenschutzverordnung mit $3,9 \cdot 10^{-10}$ Sv/Bq klein ist. Gleichzeitig kann man von einer sehr geringen Chemotoxizität ausgehen, da die leichteren Homologen Rhenium und Mangan wenig toxisch wirken. Für die kritische Gruppe der Bevölkerung wurde die durch ^{99}Tc verursachte Strahlenexposition auf 20 bis 40 $\mu\text{Sv}/\text{Jahr}$ geschätzt [Hunt et al., 1998]. Diese Exposition ist in erster Linie auf den Einsatz von kontaminiertem Seetang als Düngemittel für Gemüse zurückzuführen. In der Literatur werden ^{99}Tc -Befunde von Umweltproben nicht immer einheitlich benannt. Bei Betrachtung von Meerwasser hat sich weitestgehend die Einheit Bq/m^3 durchgesetzt, aber auch andere Einheiten (Atome/l) sind gebräuchlich. Die Umrechnungsfaktoren des Technetium-99 sind in Tabelle 7 aufgeführt.

Tabelle 7: Umrechnungsfaktoren gebräuchlicher Einheiten des Technetium-99. Den Berechnungen liegt eine Halbwertszeit von $2,1 \cdot 10^5$ Jahren zugrunde [Magill et al., 2007].

Technetium-99	Aktivität	Atome	Masse
	in Bq	Anzahl	in g
1 g	$6,367 \cdot 10^8$	$6,083 \cdot 10^{21}$	1
1 mol	$6,303 \cdot 10^{10}$	$6,022 \cdot 10^{23}$	99
1 Bq	1	$9,554 \cdot 10^{12}$	$1,571 \cdot 10^{-9}$

Bevor es zu den massiven Freisetzungen von ^{99}Tc Mitte der 1990er Jahre kam (s Abschnitt 3.4.3), betrug die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen in der Irischen See einige Bq/m^3 , 1994 lagen sie in der Nähe des Abflußrohres bei $1000 \text{ Bq}/\text{m}^3$. Eine Beprobung rund um die britischen Inseln aus dem Jahr 1999 zeigte in der Irischen See ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen von $1000 \text{ Bq}/\text{m}^3$ nahe der Einleitungsstelle, im weiteren nördlichen Verlauf nahm die Aktivitätskonzentration auf etwas mehr als $60 \text{ Bq}/\text{m}^3$ ab. Entlang der Westküste Schottlands wurden 8 bis $30 \text{ Bq}/\text{m}^3$ und an der Nordwestküste wurden knapp $10 \text{ Bq}/\text{m}^3$ gemessen. Dem Verlauf der Strömung um die britischen Inseln folgend nahm die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentration stetig ab. Innerhalb des Kanals wurde nur sehr wenig ^{99}Tc ($0,1 \text{ Bq}/\text{m}^3$) gemessen. ^{99}Tc -Ableitungen aus La Hague ließen sich 1999 im Kanal nicht nachweisen. Das Maximum der durch das BSH gemessenen ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen in der Nordsee wurde 1999 im südlichen zentralen Teil (55°N , 6°E und nordwestlicher Bereich der Deutschen Bucht) mit etwa $7 \text{ Bq}/\text{m}^3$ be-

obachtet [Nies *et al.*, 2000]. 1999 waren die großen Mengen der Freisetzungen aus Mitte der 1990er Jahre in der Deutschen Bucht nachweisbar. Zwei Jahre zuvor betrug die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentration im nordwestlichen Bereich der Deutschen Bucht $2,8 \text{ Bq/m}^3$ [Nies *et al.*, 2000]. Im Abschlußbericht des Forschungsvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] wird ein umfassender Rückblick auf die ^{99}Tc -Analysen in der Deutschen Bucht, der Nordsee, dem Kanal und der Irischen See gegeben.

5.1.3 Cäsium-137

Cäsium-137 ist ein β^- -Strahler mit einer maximalen Zerfallsenergie von 0,5 MeV und einer Halbwertszeit von 30,17 Jahren. Es zerfällt in stabiles und metastabiles ^{137}Ba (Abbildung 14). $^{137\text{m}}\text{Ba}$ hat eine Halbwertszeit von 2,6 Minuten und geht unter Aussendung eines Gammaquants in den Grundzustand über.

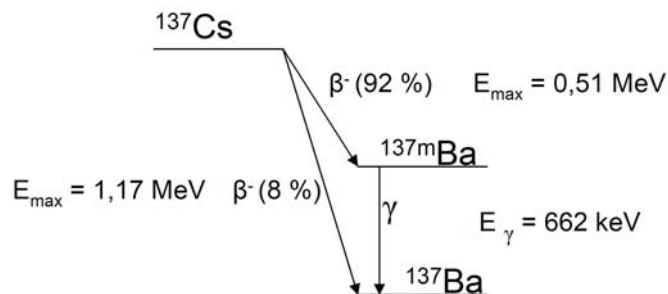


Abbildung 14: Zerfallsschema des Cäsium-137.

Vom Cäsium-112 bis zum Cäsium-152 sind 41 Isotope bekannt. ^{133}Cs ist das einzige stabile und natürlich vorkommende Isotop [Magill *et al.*, 2007], alle anderen werden künstlich hergestellt. Ein wichtiger Unterschied des Cäsiums im Vergleich zu Strontium besteht in der deutlich geringeren Konzentration des Cäsiums im Meerwasser. Übliche Cäsiumgehalte betragen im Meerwasser $4 \mu\text{g/l}$. Es liegt im Wasser als einfach positiv geladenes hydratisiertes Ion vor. Cäsium wird weniger geträgert und sorbiert leicht an Partikel, so daß neben dem gelösten Cäsium auch das an Schwebstoffe gebundene Cäsium zu berücksichtigen ist. Es herrschen Gleichgewichtsreaktionen zwischen Absorption und Desorption an Schwebstoffe sowie deren Sedimentation und Resuspension. Cäsium reichert sich geringfügig in der Biota an, Anreicherungsfaktoren in Fisch liegen bei etwa 50-100 l/kg [BSH, 2006; Nies und Kainisch, 2002]. Durch die begünstigte Anlagerung des Cäsiums an Partikel und die leichtere Sorption an Tonminerale findet eine geochemische Fraktionierung zwischen Strontium-90 und Cäsium-137 statt.

Die Oberflächensedimente der Nordsee sind überwiegend sandig, dies spricht für eine nur schwache Tendenz Radionuklide anzureichern [BSH, 2006]. Bezüglich ^{137}Cs liegen die spezifischen Aktivitäten bei 10 Bq/kg Trockenmasse. Innerhalb der oberen 40 cm der Sedimente besteht eine gute Durchmischung, es lassen sich keine zeitaufgelösten Eintragsfunktionen konstruieren. Daher wird angenommen, daß die Abreicherung der Wassersäule an Radionukliden und deren erneute Freisetzung ein umkehrbarer Vorgang ist. Die seit 2000 nahezu unveränderten Volumenaktivitäten im Meerwasser der Deutschen Bucht könnten auf ein Gleichgewicht dieser Vorgänge hindeuten [BSH, 2006; Kershaw *et al.*, 1999; McCubbin *et al.*, 2002].

Nord- und Ostsee werden durch unterschiedliche Quellen mit ^{137}Cs kontaminiert. Die Nordsee wurde in der Vergangenheit vorwiegend durch die flüssigen Ableitungen der WAA kontaminiert, dabei nahm Sellafield eine größere Rolle ein als La Hague. Heute sind nicht mehr die flüssigen Ableitungen, sondern das Sediment in der Irischen See Hauptquelle des ^{137}Cs in der Nordsee.

^{137}Cs wird wie auch das ^{90}Sr vom BSH seit 1961 in Zeitreihen überwacht. Zu Zeiten der großzügigen Emissionen von ^{137}Cs in den 1970er Jahren wurden in der Deutschen Bucht bei den Stationen Elbe 1 und Briff ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen von kurzzeitig mehr als 100 Bq/m^3 gemessen. In den 1970er Jahren beliefen sich die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen in der Deutschen Bucht langfristig auf $20\text{-}30 \text{ Bq/m}^3$. Im Jahre 1984, als die Emissionen im Vergleich zu den 1970er Jahren bereits reduziert waren, wurde in der südlichen zentralen Nordsee mit 160 Bq/m^3 die größte ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration gemessen. Dieser Spitzenwert konnte mit dem Eindringen von Wassermassen aus den nördlicheren Gebieten erklärt werden. Das Nuklidmuster im Wasser entsprach den flüssigen Ableitungen aus Sellafield. Später nahmen die ^{137}Cs -Gehalte ab [BSH, 2005].

Seit den frühen 1980er Jahren ist ein kontinuierlicher Rückgang der in der Deutschen Bucht gefundenen ^{137}Cs -Kontamination zu beobachten. Der Reaktorunfall von Tschernobyl stellt in Hinblick auf die Situation in der Deutschen Bucht ein Ereignis von kurzfristiger Auswirkung dar und beschränkt sich auf die Jahre 1986 und 1987. 1986 wurden bei den Stationen Briff und bei Elbe 1 ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen von 1224 Bq/m^3 und knapp 600 Bq/m^3 gemessen. Bereits Anfang der 1990er Jahre lagen die bei Elbe 1 und Briff angetroffenen ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen unter 10 Bq/m^3 , heute befinden sie sich geringfügig über dem globalen Fallout [BSH, 2006; Nies et al., 2000]. Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen in der Deutschen Bucht bei der Station Borkumriff liegen seit dem Jahr 2000 zwischen $2,5$ und 5 Bq/m^3 [BMU, 2008].

Die Ostsee war bis 1986 überwiegend durch den globalen Fallout geprägt und wurde nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl stärker mit ^{137}Cs kontaminiert als die Nordsee. Im Vergleich zum ^{90}Sr ist die Zunahme der ^{137}Cs -Kontamination in der Ostsee deutlich größer. Anfang der 1980er Jahre lagen die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen in der Ostsee an der Schleimündung aufgrund des globalen Fallouts bei etwa 30 Bq/m^3 . Es folgte ein Anstieg nach dem Reaktorunfall auf mehr als 400 Bq/m^3 . Bis zum Jahr 2001 wurden an der Schleimündung mehr als 40 Bq/m^3 gemessen, obwohl dort nur ein kleiner Teil des ^{137}Cs deponiert wurde. Der uneffektive Austausch mit der in Hinblick auf ^{137}Cs nur wenig kontaminierten Nordsee ist für einen sehr langsamen Abtransport der ^{137}Cs -Kontamination ins Europäische Nordmeer verantwortlich. Seit 2001 liegen die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen an der Schleimündung bei ca. 30 Bq/m^3 . Die Ursache für die stärkere Kontamination der Ostsee durch ^{137}Cs verglichen mit ^{90}Sr ist die etwa zehnfache Aktivitätsfreisetzung des ^{137}Cs aus Tschernobyl und die größere Flüchtigkeit des Cäsiums. Die Ostsee ist Quelle des ^{137}Cs im nordöstlichen Teil der Nordsee und im Nordatlantik.

Eine großangelegte Beprobung der Deutschen Bucht, des östlichen Kanalbereichs sowie der Nord- und Ostküste Großbritanniens im Jahre 1997 zeigte eine ungleichmäßige Verteilung der ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen. Beginnend im östlichen Bereich des Englischen Kanals und entlang des Küstenstreifens über Belgien, Holland, Deutschland und Dänemark wurden niedrige und ähnliche ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen gemessen. Der Kanal war mit $3,5 \text{ Bq/m}^3$ am geringsten belastet, im weiteren Verlauf stiegen die Werte auf $5,8 \text{ Bq/m}^3$ an. Aber bereits

etwas nördlich des relativ schmalen Küstenstreifens wurden ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen von mehr als 12 Bq/m^3 gefunden. Es wurde eine starke Beeinflussung durch die Ableitungen aus Sellafield in der mittleren und südlichen Nordsee erkennbar, die nicht durch die Wassermassen aus dem Englischen Kanal geprägt sind. Auch an der Nordküste Großbritanniens waren mit mehr als 9 Bq/m^3 die flüssigen Ableitungen Sellafields nachzuweisen. La Hague emittierte zu der Zeit deutlich weniger ^{137}Cs als Sellafield. Ein Großteil der ^{137}Cs -Kontamination in der Nordsee kann daher Sellafield oder dem Sediment der Irischen See zugeschrieben werden. Es ist davon auszugehen, daß ein Teil der ^{137}Cs -Kontamination aus den Sedimenten resuspendiert wurde. Während der üppigen Emissionen aus Sellafield in den 1970er Jahren sedimentierte an Partikel gebundenes Cäsium-137 in der Irischen See. Diese Partikel können durch Stürme und damit verstärkter Wasserbewegung sowie durch Fischereiaktivitäten resuspendiert werden. Schätzungen beziffern die Resuspension auf 50 bis 70 TBq/Jahr [BSH, 2005]. Das entspricht dem fünf- bis zehnfachen der aktuellen Emissionsraten. Das Sediment der Irischen See ist derzeit die Hauptquelle des ^{137}Cs in der Nordsee.

Die bei Zeitreihen festgestellten höheren ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen verglichen mit ^{90}Sr in der Nordsee werden mit der größeren Ausbeute bei der durch thermische Neutronen induzierten Kernspaltung begründet (s. Abbildung 2) [BSH, 2006]. ^{137}Cs ist innerhalb der deutschen Bucht relativ homogen verteilt, zeitliche Schwankungen werden kaum beobachtet.

Das Aktivitätsverhältnis von $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ im globalen Fallout von atmosphärischen Kernwaffentests beträgt etwa 1,5 (s. Abschnitt 3.2). Bis Mitte der 1980er Jahre war es möglich, die Quelle der Kontamination einer Nordseewasserprobe aufgrund des spezifischen Nuklidmusters zu ermitteln. Insbesondere das Aktivitätsverhältnis von $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ konnte zur Identifizierung der ^{90}Sr -Quelle herangezogen werden. Da die Halbwertszeiten des ^{137}Cs mit 30,17 und des ^{90}Sr mit 28,64 Jahren recht ähnlich sind, würde sich das Aktivitätsverhältnis in der Umwelt kaum ändern, wenn nicht geochemische Prozesse das Verhältnis verschieben würden. Es findet eine Art Fraktionierung statt. ^{137}Cs bindet sich stärker an Tonminerale und sedimentiert schneller. Daher ist der Eintrag in die Meere über den Süßwasserpfad von ^{90}Sr wesentlich ausgeprägter als beim ^{137}Cs [BSH, 2005]. Demzufolge wird in Bereich von Flußmündungen deutlich mehr ^{90}Sr als ^{137}Cs gemessen. Heute ist die Identifizierung der ^{137}Cs und ^{90}Sr -Quelle wegen der geochemischen Fraktionierung, des Tschernobylunfalls und wegen der reduzierten Ableitungen aus den WAA nicht mehr ohne Weiteres möglich.

5.1.4 Transurane: Plutonium-238, Plutonium-239+240 und Americium-241

Transurane haben eine größere Ordnungszahl als 92, sie stehen also rechts oder unterhalb vom Uran im Periodensystem. Die hier beschriebenen Transurane sind langlebige Alphastrahler. ^{239}Pu und ^{240}Pu lassen sich alphaspektrometrisch nicht hinreichend unterscheiden, daher werden die Meßergebnisse dieser beiden Nuklide oftmals in summierten Aktivitäten angegeben. Eine Unterscheidung ist mit der Beschleunigermassenspektrometrie möglich.

Plutonium lagert sich besonders effektiv an Partikel an und wird durch Sedimentation aus der Wassersäule entfernt. Auch Americium zeigt diese Eigenschaft. In küstennahen Wasserproben der Deutschen Bucht wurden bei einem hohen Schwebstoffanteil mit 10 bis 20 mBq/m^3 relativ große ^{241}Am -Gehalte gemessen [BSH, 2005; 2006]. In größerer Entfernung zur Küste bei den Stationen Ente 3, Ente 1, URST 5 und SWWBA betragen die ^{241}Am -Aktivitätskonzentrationen weniger als 10 mBq/m^3 .

Die dominierende Quelle einer Kontamination kann nach Ermittlung von Aktivitätsverhältnissen bestimmt werden. Das $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivitätsverhältnis liegt für Emissionen aus den WAA bei 0,5 bis 1,0, das Verhältnis aus dem globalen Fallout durch Kernwaffentests liegt bei 0,04. Es wurden im Englischen Kanal im Jahre 2002 Aktivitätsverhältnisse gefunden, die La Hague als Quelle identifizieren. Beprobungen der Deutschen Bucht von März und November 2004 wiesen $^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationen von 12 bis 15 mBq/m^3 bzw. 8 bis 26 mBq/m^3 auf. Diese Werte liegen etwa um den Faktor 2-6 über dem globalen Fallout, die für das nordatlantische Oberflächenwasser erwartet werden (s. Tabelle 3) [BSH, 2005; 2006]. Die gegenwärtige Kontamination der Nordsee und der Deutschen Bucht durch Transurane stellt eine Mischkontamination aus dem globalen Fallout der Kernwaffentests und den Emissionen der WAA dar. Dabei ist das Sediment als Quelle von Transuranen nach deren Re-suspension zu berücksichtigen.

5.1.5 Zusammenfassung

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, daß sich Strontium und Technetium im Meerwasser überwiegend konservativ verhalten. Tritium kann als ein sich ideal im Meerwasser verhaltender konservativer Tracer betrachtet werden. Cäsium-137 wird leicht an Tonmineralen sorbiert. Wesentliche Quelle der aktuellen Kontamination der Nordsee durch ^{137}Cs ist die Re-suspension von Partikeln aus der Irischen See und nicht die gegenwärtigen Ableitungen aus den WAA. Der Transport des Cäsiums erfolgt im Meerwasser an Partikel gebunden und als hydratisiertes Ion. Transurane neigen besonders stark zur Anlagerung an Schwebstoffe und werden überwiegend partikulär gebunden transportiert. Im Rahmen des Oslo/Paris-Abkommens (OSPAR) wurden die starken Emissionen der WAA, insbesondere Sellafield, deutlich reduziert. Die Kontamination der Nordsee durch anthropogene Radionuklide wird entscheidend durch die WAA bestimmt, die sonstigen 97 kerntechnischen Anlagen in den OSPAR-Staaten tragen nicht nennenswert zur Kontamination bei. Die Ostsee ist in bezug auf die Radionuklide ^{137}Cs und ^{90}Sr stark durch den Kernwaffenfallout geprägt. Der Reaktorunfall von Tschernobyl trug etwas ^{90}Sr und große Mengen ^{137}Cs in die Ostsee ein, so daß dort heute eine Mischkontamination vorliegt. Im Skagerrak und an der Küste Norwegens läßt sich die Kontamination der Nordsee durch ^{80}Sr und ^{90}Sr aus der Ostsee verfolgen. Die Radionuklide sind derzeit radiologisch für den Menschen nicht relevant.

5.2 Bisherige Arbeiten zu Iod-129 in der Nordsee und benachbarten Meeren

Die bisherigen Untersuchungen zu Iod-129 in der Nordsee beschränken sich auf wenige Arbeiten. Eine umfassende Beprobung der gesamten Nordsee wurde bisher nicht durchgeführt. Um die in dieser Arbeit erhaltenen Ergebnisse in ihrer Bedeutung einschätzen zu können, ist ein Überblick über bisherige Messungen betreffend ^{129}I und ^{127}I essentiell. Die Darstellungen der Ergebnisse in verschiedenen Arbeiten sind nicht einheitlich, aus diesem Grund werden in Tabelle 8 zuerst die verknüpfenden Faktoren der gebräuchlichen Einheiten angegeben. Darüber hinaus werden die üblichen SI-Präfixe verwendet. Die Darstellung bisheriger Arbeiten beschränkt sich auf Wasserproben, die aus dem Beprobungsgebieten dieser Arbeit stammen oder sich in räumlicher Nähe zu diesen befinden.

Tabelle 8: Umrechnungsfaktoren gebräuchlicher Einheiten des Iod-129. Den Berechnungen liegt eine Halbwertszeit des Iod-129 von $1,57 \cdot 10^7$ Jahren zugrunde [Magill et al., 2007].

Iod-129	Aktivität	Atome	Masse
	in Bq	Anzahl	in g
1 g	$6,535 \cdot 10^6$	$4,668 \cdot 10^{21}$	1
1 mol	$8,430 \cdot 10^8$	$6,022 \cdot 10^{23}$	129
1 Bq	1	$7,143 \cdot 10^{14}$	$1,530 \cdot 10^{-7}$

Auch die Bezugsgröße Volumen und Masse werden je nach Belieben der Autoren variiert. Es kann vereinfachend eine Dichte des Wassers von 1 g/cm^3 angenommen werden. Den Beginn der Iod-129-Analysen im Nordseeraum, die meistens auch mit der Bestimmung von Iod-127 einhergehen, machten Yiou et al. [Yiou et al., 1994]. Tabelle 9 zeigt die von Yiou et al. veröffentlichten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die Ergebnisse der ^{127}I -Messungen.

Tabelle 9: Ergebnisse der von Yiou et al. untersuchten Wasserproben aus der Nordsee, dem Kanal und der Irischen See. Weiterführende Informationen können der Originalliteratur [Yiou et al., 1994] entnommen werden.

Ort	Lage	Tiefe ^{a)}	Datum	^{127}I	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
		in m		in ng/g	in 10^{-10}
49°52'N, 00°00'E	Englischer Kanal, östl. von La Hague	0	Dez. 91	$55,5 \pm 2,8$	4900 ± 600
Lowestoft	Nähe südl. Ostküste Englands	0	Mrz. 92	$46,5 \pm 2,3$	430 ± 60
56°00'N, 06°00'E	zentrale Nordsee	0	Nov. 91	$52,8 \pm 2,6$	460 ± 60
Lossimouth	nordöstliches Schottland	0	Apr. 92	$57,8 \pm 2,9$	160 ± 20
Heysham	Irische See, südl. Sella- field	0	Apr. 92	$36,5 \pm 1,8$	8900 ± 1200
Maryport	Irische See, nördl. Sella- field	0	Apr. 92	$36,2 \pm 1,8$	5100 ± 600
61°20'N, 7°53'W	südl. der Färöer Inseln	200	Aug. 90	$58,0 \pm 2,9$	$3,1 \pm 0,4$
63°50'N, 6°05'W	nördl. der Färöer Inseln	50	Aug. 90	$52,9 \pm 2,7$	$9,3 \pm 1,1$
		200	Aug. 90	$52,8 \pm 2,6$	$7,4 \pm 1,3$
		1000	Aug. 90	$58,9 \pm 3,0$	$8,4 \pm 1,0$
70°23'N, 31°31'E	Nähe Nordkap	0	Sep. 92	$48,7 \pm 2,5$	110 ± 12
Doélan	südwestlich der Breta- gne, Atlantik	0	Dez. 91	$120 \pm 6,0$	$12,3 \pm 1,8$
		0	Mrz. 92	$52,1 \pm 2,6$	$12,7 \pm 2,1$

a) Tiefe der Probennahme

Südlich der Färöer Inseln wurden in 200 m Tiefe mit $3,1 \cdot 10^{-10}$ die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse angetroffen, etwas weiter nördlich lagen die Verhältnisse bei gleicher Tiefe um den Faktor 2,4 darüber. Bei Doélan im südwestlichen Küstenbereich der Bretagne im östlichen Atlantik wurden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $1,2 \cdot 10^{-9}$ gemessen. Diese liegen eine Größenordnung über dem Isotopenverhältnis, welches fernab der Emittenten erwartet wird. An der nördlichsten Küste Norwegens in der Nähe des Nordkaps lagen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse schon im Bereich von 10^{-8} und in der zentralen Nordsee wurden $4,9 \cdot 10^{-8}$ beobachtet. Der norwegische Küstenstrom transportiert stärker kontaminiertes Wasser entlang der norwegischen Küste, so daß der Einfluß noch im nördlichsten Bereich Norwegens zu sehen ist. Auffallend ist die starke Kontamination der Irischen See. Die flüssigen Emissionen aus Sellafield führten zu Isotopenverhältnissen von $5,1 \cdot 10^{-7}$ bzw. $8,9 \cdot 10^{-7}$ [Yiou et al., 1994]. Yiou et al. bestimmten ferner die $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ -Isotopenverhältnisse der Wasserproben. Diese lagen zwischen 20 und 70 und damit zwei Größenordnungen über dem $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ -Isotopenverhältnis, das für den Fallout aus Tschernobyl erwartet wurde. Die Autoren schließen daraus, daß weniger als 1 % des ^{129}I im Meerwasser aus Tschernobyl stammt. Dies ist konsistent mit der Vorstellung, daß die Kontamination in Westeuropa im wesentlichen durch die Wiederaufarbeitungsanlagen verursacht wird [Yiou et al., 1994].

Raisbeck et al. untersuchten Seetang und Wasserproben auf Iod-129 und Iod-127 [Raisbeck et al., 1995]. Einige der Ergebnisse wurden in der Arbeit von Yiou [Yiou et al., 1994] veröffentlicht, s. Tabelle 9. Die Oberflächenwasserproben wurden zwischen August 1992 und August 1993 entnommen. Bei Florø im nördlichen Bereich der Westküste Norwegens betrug das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis $4,5 \cdot 10^{-8}$, weiter nordöstlich bei Stamsund lag es mit $2,8 \cdot 10^{-8}$ etwas darunter. Die ^{127}I -Konzentrationen dieser beiden Stationen waren mit $40,2 \mu\text{g/l}$ und $43,9 \mu\text{g/l}$ sehr ähnlich. Noch weiter nördlich, bei $73^{\circ}00'\text{N}$ und $58^{\circ}00'\text{E}$ betrug das Isotopenverhältnis $77,8 \cdot 10^{-10}$, $44,0 \mu\text{g/l}$ stabiles Iod wurden gemessen.

Am ZSR wurden auch Wasserproben aus der Nordsee untersucht, dabei handelte es sich um punktuell entnommene Proben, die keinen Rückschuß auf den Zustand der gesamten Nordsee zuließen. Tabelle 10 zeigt die Ergebnisse dieser Untersuchungen. Der Vergleich der ZSR-Ergebnisse (s. Tabelle 9) mit den Nordseeproben von Yiou et al. [Yiou et al., 1994] zeigt eine Zunahme des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses um etwa den Faktor acht. Die Proben sind jedoch nur bedingt vergleichbar, da sie von anderen Orten stammen [Ernst, 2003; Michel et al., 2004; Szidat, 2000; Yiou et al., 1994].

Alfimov et al. [Alfimov et al., 2004b] untersuchten ^{129}I -Konzentrationen in Oberflächenwasserproben, die im Juli 2001 ausgehend vom westlichen Teil Norwegens bis hin zum Nordpol genommen wurden. Es wurde eine starke Abnahme der ^{129}I -Konzentrationen vom norwegischen Küstenstrom entlang der Barentssee bis zum Arktischen Ozean beobachtet [Alfimov, 2005; Alfimov et al., 2004b].

Tabelle 11 gibt einige Ergebnisse aus der Arbeit wieder, die in räumlicher Nähe zu den in dieser Arbeit untersuchten Proben entnommen wurden. Die Proben wurden vor der norwegischen Küste entnommen.

Tabelle 10: Überblick über die am ZSR auf Iod-127 und Iod-129 untersuchten Nordseewasserproben. Weiterreichende Informationen können der in der Tabelle angegebenen Literatur sowie dem Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhaben 4285 [Michel et al., 2004] entnommen werden.

Ort	Datum	^{127}I	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Quelle
		in ng/g	in 10^{-6}	
Vejers	Jun. 99	37 ± 8	$1,41 \pm 0,30$	Szidat, 2000
Spieka-Neufeld	Jul. 99	53 ± 11	$1,53 \pm 0,33$	Szidat, 2000
Spieka-Neufeld	Jan. 00	28 ± 11	$1,54 \pm 0,60$	Szidat, 2000
Amrum Meerseite	Jul. 00	25 ± 5	$2,71 \pm 0,58$	Ernst, 2003
Amrum Wattseite	Jul. 00	102 ± 16	$1,82 \pm 0,32$	Ernst, 2003
Neßmersiel	Dez. 01	45^{a}	$0,92 \pm 0,11$	Ernst, 2003
Neßmersiel	Mrz. 02	50^{a}	$1,18 \pm 0,14$	Ernst, 2003
Amrum Meerseite	Apr. 02	34 ± 4	$0,99 \pm 0,11$	Ernst, 2003
Amrum Wattseite	Apr. 02	65 ± 7	$1,55 \pm 0,19$	Ernst, 2003

a) Unsicherheiten nicht benannt

Tabelle 11: Ergebnisse der von Alfimov et al. untersuchten Wasserproben. Die Beprobung erfolgte vor der norwegischen Küste im Juli 2001. Weitere Informationen finden sich in der Originalliteratur [Alfimov et al., 2004b].

Koordinaten		Iod-129	Unsicherheit	Iod-129	Unsicherheit
Breite	Länge	in fg/g	in fg/g	in 10^7 At/l	in 10^7 At/l
$62^\circ 67' \text{N}$	$5^\circ 55' \text{E}$	8,14	0,21	3800	100
$67^\circ 62' \text{N}$	$11^\circ 87' \text{E}$	7,28	0,21	3400	100
$72^\circ 88' \text{N}$	$21^\circ 40' \text{E}$	1,61	0,06	750	30

At/l = Atome pro Liter

Ausgehend von etwa $3,8 \cdot 10^{10}$ Iod-129-Atomen pro Liter im Oberflächenwasser nördlich des westlichen Teils Norwegens nahmen die ^{129}I -Konzentrationen bis zum Arktischen Ozean etwa um den Faktor 20 auf $1,2 \cdot 10^9$ bis $1,9 \cdot 10^9$ ^{129}I -Atome pro Liter ab. Erklärt werden diese Befunde von den Autoren mit drei einflußnehmenden Faktoren. Die zeitliche Verzögerung durch den ^{129}I -Transport von der norwegischen Küste bis in den zentralen Arktischen Ozean beträgt etwa sechs Jahre. Mit dem Beginn des 21. Jahrhunderts erreichen nach Interpretation von Alfimov et al. die Anfang der 1990er Jahre stark angestiegenen Emissionen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen den zentralen Arktischen Ozean [Alfimov, 2005; Alfimov et al., 2004b]. Weitere Verdünnungseffekte entstehen durch den Eintrag von ^{129}I -armen Wasser. Als ein zusätzlicher Faktor wird das Absinken der ^{129}I -reichen Wassermassen in größere Tiefen genannt. Im Arktischen Ozean herrschen komplexe Strömungsverhältnisse, die noch nicht vollständig verstanden sind.

In einer weiteren Arbeit untersuchten Alfimov et al. [Alfimov et al., 2004a] Wasserproben, die im Juni 1999 auf einer Linie entlang des 60. Breitengrades vom Nordatlantik bis in die Nordsee entnommen wurden. Zusätzlich wurden Proben aus dem Skagerrak und Tiefenprofile aus der Ostsee sowie dem Bottnischen Meerbusen analysiert. Auch diese Ergebnisse wurden ohne die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse veröffentlicht. Tabelle 12 zeigt die von Alfimov gemessenen Iod-129-Gehalte.

Tabelle 12: Ergebnisse der von Alfimov et al. und Hou et al. untersuchten Wasserproben entlang des 60° Breitengrades beginnend im Nordatlantik bis zur Ostsee. Die Probenahmen fanden im Jahr 1999 statt. Ergänzende Informationen befinden sich in der Quellliteratur [Alfimov et al., 2004a; Hou et al., 2001].

Nr.	Koordinaten		Iod-129	Unsicherheit	Iod-129	Unsicherheit
	Breitengrad	Längengrad	in fg/g	in fg/g	in At/l	in At/l
1	58,0° N	20,1° E	0,25	0,01	11,90	0,40
2	59,0° N	21,1° E	0,26	0,01	12,10	0,40
3	61,1° N	19,6° E	0,12	0,00	5,50	0,20
4 ^{a)}	55,0° N	12,9° E	0,90	0,10	42,20	4,80
5 ^{a)}	56,7° N	12,1° E	6,71	0,17	313,20	7,80
6 ^{a)}	56,2° N	11,8° E	6,85	0,31	319,80	14,50
7	57,9° N	10,0° E	11,95	1,02	558,00	47,70
8	57,8° N	8,6° E	11,36	0,91	530,10	42,70
9	58,2° N	5,0° E	10,80	0,85	504,20	39,50
10	59,4° N	1,9° W	0,55	0,06	25,70	2,80
11	59,6° N	7,5° W	0,11	0,01	5,00	0,50
12	59,5° N	14,2° W	0,01	0,001	0,33	0,07
13	59,5° N	21,0° W	0,01	0,001	0,30	0,07

Aufgrund der räumlichen Nähe zu den von Hou et al. untersuchten Wasserproben sind diese ebenfalls in Tabelle 12 eingeordnet. Die Proben von Hou wurden im Juni 1999 genommen [Hou et al., 2001]. Die ersten drei Proben stammen aus der Ostsee und erstrecken sich in südlicher Richtung vom Bottnischen Meerbusen hin zur zentralen Ostsee. Die Proben 4, 5 und 6 wurden im Öresund und im Kattegat entnommen. Die Proben 7-9 gehören zum Skagerrak und zur östlichen Nordsee, 10-13 erstrecken sich in westlicher Richtung von den Orkneyinseln bis zum Atlantischen Ozean.

Die prä nuklearen ^{129}I -Konzentrationen berechnen Alfimov et al. zu $4 \cdot 10^5$ Iod-129-Atomen pro Liter, der „post bomb background“ beläuft sich auf etwas mehr als $2 \cdot 10^9$ Iod-129-Atome pro Liter basierend auf $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von $1,5 \cdot 10^{-12}$ (prä nuklear) und 10^{-10} für den globalen Fallout [Alfimov et al., 2004a; Moran et al., 1998]. Die ^{129}I -Konzentrationen erstrecken sich über etwa vier Zehnerpotenzen. Mit etwa $3 \cdot 10^7$ bis $5 \cdot 10^7$ Iod-129-Atomen pro Liter werden im westlichen Teil des Nordatlantikstromes die kleinsten Konzentrationen beobachtet. Diese liegen etwas über den ^{129}I -Gehalten des marinen Hintergrundes. Weiter östlich in Richtung Nordsee und Skagerrak nehmen die ^{129}I -Konzentration auf $5,6 \cdot 10^{10}$ zu,

nehmen aber dann in weiterer östlicher Richtung zum Bottnischen Meerbusen hin wieder ab. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden in der Arbeit [Alfimov et al., 2004a] nicht experimentell ermittelt, sondern anhand von Truesdale et al. erstellter ^{127}I -Daten berechnet [Truesdale et al., 2000; Truesdale et al., 2001]. Die berechneten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser zeigen die gleiche Systematik wie die ^{129}I -Konzentrationen. Die höchsten Kontaminationen werden mit mehr als $5 \cdot 10^{10}$ Iod-129-Atomen pro Liter im Skagerrak und in der Nordsee beobachtet. Das entspricht einem berechneten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa $3 \cdot 10^{-7}$. Die starken Kontaminationen im Skagerrak und der Nordsee werden von den Autoren [Alfimov et al., 2004a] durch die ^{129}I -Ableitungen aus Sellafield erklärt.

Untersuchte Tiefenprofile der Stationen 1-3 aus der Ostsee weisen mit zunehmender Tiefe größere ^{129}I -Kontaminationen auf. In Richtung des Bottnischen Meerbusens nimmt die Kontamination ab. Die Befunde sind konsistent mit der Vorstellung des in der Tiefe in die Ostsee eindringenden Nordseewassers, welches eine größere Kontamination in sich trägt. Im Bottnischen Meerbusen, der bereits süßwassergeprägt ist und weniger Wasser mit der zentralen Ostsee austauscht, sind die geringsten ^{129}I -Gehalte beobachtet worden [Alfimov et al., 2004a].

Schnabel et al. [Schnabel et al., 2007] untersuchten Oberflächenwasserproben, die nahe der schottischen Küste von Juni 2003 bis Juli 2005 genommen wurden. Einige Punkte wurden innerhalb dieser Zeit mehrfach beprobt, so daß kleine Zeitreihen entstanden. Die ^{127}I -Konzentrationen lagen mit 21 ng/g und 52 ng/g unter den durchschnittlichen Werten für Meerwasser, die in anderen Arbeiten [Ernst, 2003; Raisbeck et al., 1995] bestimmt wurden. Als eine mögliche Ursache wird das Ausfallen eines Niederschlags nach Zugabe von NaOH genannt, daher werden die in der Arbeit erhaltenen ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen als die unteren Grenzen der tatsächlichen Gehalte bezeichnet. An der Oberfläche des küstennahen Meerwassers der Irischen See lagen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen $7,1 \cdot 10^{-8}$ und $3,3 \cdot 10^{-6}$ [Schnabel et al., 2007]. Die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden an der Ostküste der Orkneyinseln (South Ronaldsay und Orkney Mainland NE) sowie bei Dornoch im Nordosten Schottlands angetroffen und betragen $7 \cdot 10^{-8}$. Die größten Isotopenverhältnisse wurden mit $1,1 \cdot 10^{-6}$ (bei Troon) und $3,3 \cdot 10^{-6}$ (bei Garlieston) nördlich von Sellafield an der schottischen Küste beobachtet. In weiterer nördlicher Richtung nahm das Isotopenverhältnis ab. Tabelle 13 zeigt die Ergebnisse der von Schnabel et al. untersuchten Meerwasserproben. Die gleichen Isotopenverhältnisse an der West- und Ostküste Schottlands bei gleichzeitiger Abnahme der ^{99}Tc -Kontamination erklären die Autoren nicht mit dem Eintrag von ^{129}I aus La Hague, da nur eine begrenzte Anzahl an Proben vorlag. Mit Hilfe des ^{99}Tc -Anteils ist eine Unterscheidung der Herkunft des ^{129}I , bzw. welche WAA die ^{129}I -Kontamination dominiert, möglich. Der Vergleich mit Proben, die Yiou et al. [Yiou et al., 1994] untersuchten zeigt eine Zunahme des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses in der Zeit von 1992 bis 2003 um den Faktor sechs (s. Tabelle 9). Im Nordosten Schottlands bei Lossiemouth betrug im April 1992 das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis $1,6 \cdot 10^{-8}$ [Yiou et al., 1994], während es im Januar 2003 ganz in der Nähe (Aberdour Bay) bei $9,0 \cdot 10^{-8}$ [Schnabel et al., 2007] lag. Im Südwesten Schottlands bei Garliston nahm das Isotopenverhältnis auf $3,3 \cdot 10^{-6}$ zu, das entspricht einer Steigerung um den Faktor vier gegenüber dem, was Yiou et al. 1992 in der Irischen See festgestellt haben [Yiou et al., 1994]. Gleichzeitig liegt es um den Faktor drei unter dem Isotopenverhältnis, das 2004 von Atarashi-Andoh et al. in der Irischen See gemessen wurde [Atarashi-Andoh et al., 2007]. Im Zeitraum von 2003 bis 2005 ist kein einheitlicher Trend der Isotopenverhältnisse in schottischen Küstengewässern zu beobachten. Dies wird mit den im zeitlichen Verlauf gleichmäßigen flüssigen ^{129}I -Emissionen aus Sellafield begründet. Proben, die in örtlicher und zeit-

licher Nähe zueinander genommen wurden, weisen in den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen bessere Übereinstimmungen auf als in den ^{129}I -Konzentrationen, da sich die Isotopenverhältnisse beim Eintrag von Süßwasser (z. B. aus Flüssen) nicht ändern.

Tabelle 13: Ergebnisse der von Schnabel et al. untersuchten Wasserproben aus der Irischen See und der schottischen Küste. Die Unsicherheiten der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen zwischen 4 und 12 %, die der ^{127}I -Gehalte zwischen 3 und 11 %. Nähere Informationen sind der Veröffentlichung zu entnehmen [Schnabel et al., 2007].

Ort	Datum	Koordinaten		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Iod-127
		Breite	Länge	in 10^{-10}	in ng/g
Garliston	Jan 05	54°46' N	04°22' W	33600	29,30
Girvan	Jun 04	55°14' N	04°52' W	7130	32,90
Girvan	Jan 05	55°14' N	04°52' W	9670	36,90
Troom	Aug 03	55°32' N	04°40' W	4900	50,30
Troom	Jan 05	55°32' N	04°40' W	11400	34,90
Sannox Bay	Apr 03	55°40' N	05°10' W	3130	47,20
Sannox Bay	Nov 04	55°40' N	05°10' W	8330	35,30
Sanna Bay	Okt 04	56°45' N	06°11' W	2990	43,90
Vatersay	Jun 03	56°55' N	07°31' W	855	34,50
Pollachar	Jun 03	57°06' N	07°24' W	886	52,10
Barra	Mai 05	56°56' N	07°22' W	1250	38,50
Gruinard Bay	Jul 03	57°52' N	05°28' W	1280	49,60
Gruinard Bay	Jul 04	57°52' N	05°28' W	808	21,50
Gruinard Bay	Jul 05	57°52' N	05°28' W	1380	35,90
Dornoch	Jul 03	57°53' N	04°01' W	1150	49,20
Dornoch	Jul 04	57°53' N	04°01' W	814	42,30
Dornoch	Jul 05	57°53' N	04°01' W	713	41,10
Aberdour Bay	Jan 03	57°40' N	02°12' W	901	34,80
Orkney Mainland NW	Jul 05	59°08' N	03°18' W	974	39,90
Orkney Mainland NE	Jul 05	58°55' N	02°47' W	734	32,20
South Ronaldsay	Jul 05	58°44' N	02°58' W	717	29,90

NW = Nordwesten

NE = Nordosten

In Zeitreihen von Proben, die jeweils im Juli 2003, 2004 und 2005 bei Gruinard Bay und Dornoch entnommen wurden, zeigt sich eine erhebliche Abnahme von Juli 2003 bis 2004, die einer starken Verminderung der ^{129}I -Emissionen aus Sellafield im Jahr 2003 gegenüber 2002 folgt. Die Daten der Emissionen beziehen sich auf López-Gutiérrez et al. und Atarashi-Andoh et al. [Atarashi-Andoh et al., 2007; López-Gutiérrez et al., 2004]. Bei Gruinard Bay verringerte sich das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,3 \cdot 10^{-6}$ auf $8,1 \cdot 10^{-7}$, bei Dornoch nahm es von $1,1 \cdot 10^{-6}$ auf $8,1 \cdot 10^{-7}$ ab. Diese Ergebnisse legen eine Transportzeitabschätzung der Wassermassen von Sellafield bis zu diesen Orten von etwa einem Jahr nahe. Schnabel et al. diskutieren auch die Transportzeiten zwischen einigen anderen Probeentnahmeorten, dies soll hier aber nicht weiter vertieft werden und kann der entsprechenden Originalliteratur [Schnabel

et al., 2007] entnommen werden. Schnabel et al. schlagen die erhaltenen ^{129}I -Resultate als Eingabedaten für Modellierungen des Transfers von ^{129}I aus dem Meer ins Landesinnere vor.

Atarashi-Andoh et al. untersuchten Proben von Oberflächenwasser aus dem „English Lake District“, dem südlichen Schottland und der Umgebung von Sellafield [Atarashi-Andoh et al., 2007]. Das wesentliche Ziel war es bei der Untersuchung von Fluß-, See- und Meerwasser einen Überblick über die ^{129}I -Konzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Proben aus der direkten Umgebung von Sellafield zu erhalten. Darüber hinaus sollten die relativen Beiträge von flüssigen und gasförmigen Emissionen zur gesamten ^{129}I -Deposition beurteilt werden. Umfangreiches Probenmaterial wurde von Dezember 2004 bis 2005 aus Seen und Flüssen im Binnenland nahe Sellafield und von der Küstenlinie der Irischen See gewonnen. Hier soll in erster Linie auf die Ergebnisse der vier Proben aus der Irischen See eingegangen werden, die in Tabelle 14 zusammengefaßt sind.

Die von Atarashi-Andoh et al. (2007) gemessenen ^{127}I -Konzentrationen liegen zwischen 25 ng/g und 34 ng/g. Die Autoren erklären die für Meerwasser relativ geringen ^{127}I -Konzentrationen mit dem Süßwassereintrag aus Flüssen, da die Proben in der Nähe von Flußmündungen genommen wurden. Die ^{127}I -Befunde sind ähnlich zu denen, die Yiou et al. (1994) in der Irischen See gemacht haben. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aus der Irischen See liegen alle über 10^{-6} , die am stärksten kontaminierten Proben besitzen Isotopenverhältnisse von mehr als $8 \cdot 10^{-6}$. Auffallend ist auch die Zunahme des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses um etwa eine Größenordnung seit 1992. Ein in 15 km Entfernung zu Brighthouse Bay bei Garlieston gemessene $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis lag mit $3,6 \cdot 10^{-6}$ [Schnabel et al., 2007] recht dicht bei dem von Atarashi-Andoh et al. gefundenen Isotopenverhältnis von $2,78 \cdot 10^{-6}$ [Atarashi-Andoh et al., 2007].

Tabelle 14: Ergebnisse der von Atarashi-Andoh et al. untersuchten Seewasserproben aus der Irischen See [Atarashi-Andoh et al., 2007].

Ort	Datum	Iod-127	Iod-129	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
		in ng/g	Atome/kg	in 10^{-6}
Brighthouse Bay	Dez 04	$25,1 \pm 1,7$	$(3,31 \pm 0,24) \cdot 10^{11}$	$2,78 \pm 0,07$
Parton	Mrz 04	$33,5 \pm 1,9$	$(1,28 \pm 0,26) \cdot 10^{12}$	$8,08 \pm 1,56$
Millom	Jun 05	$32,7 \pm 1,3$	$(8,75 \pm 0,18) \cdot 10^{11}$	$5,64 \pm 0,25$
Heysham	Dez 04	$26,5 \pm 2,0$	$(1,03 \pm 0,08) \cdot 10^{12}$	$8,20 \pm 0,19$
	April 92 ^{a)}	$36,5 \pm 1,8$	$(1,54 \pm 0,22) \cdot 10^{11}$	$0,89 \pm 0,12$
Maryport	April 92 ^{a)}	$36,2 \pm 1,8$	$(8,75 \pm 1,12) \cdot 10^{10}$	$0,51 \pm 0,06$

a) Daten von Yiou et al. [Yiou et al., 1994].

Exkurs Salinität

Die Salinität S beschreibt vereinfachend den Salzgehalt einer Wasserprobe und ist eine dimensionslose Größe. Oftmals wird aber PSU (PSU = Practical Salinity Unit, basierend auf der Practical Salinity Scale) als „Einheit“ angegeben, um Verwechslungen mit anderen Salinitätskonzepten zu vermeiden. Die Salinität ist keine physikalische Einheit, sie wird aus dem

Verhältnis der Leitfähigkeiten einer Probenlösung und einer Standard-Kaliumchloridlösung berechnet. Die Referenzlösung besitzt eine Kaliumchloridmasse von 32,4356 g in einem Kilogramm Lösungsmittel. Das Verhältnis der Leitfähigkeit beider Lösungen wird bei 15°C und bei einem Druck von 1 atm gemessen und mit K_{15} bezeichnet. Beträgt diese Verhältnis 1, so beträgt die Salinität definitionsgemäß 35,00. Die Berechnung der Salinität S erfolgt nach der folgenden Gleichung

$$S = 0,008 - 0,1692 \cdot K_{15}^{\frac{1}{2}} + 25,3851 \cdot K_{15} + 14,0941 \cdot K_{15}^{\frac{3}{2}} - 7,0261 K_{15}^2 + 2,7081 K_{15}^{\frac{5}{2}}.$$

Da die Leitfähigkeit eine Funktion von Temperatur und Druck ist, wurde dieses Verfahren auf die oben genannten Bedingungen vereinheitlicht. Der Einfluß der Temperatur kann auch rechnerisch korrigiert werden. In der Ozeanographie wird zur Bestimmung der Leitfähigkeit meistens ein CTD-System eingesetzt, darunter versteht man eine Leitfähigkeits-Temperatur-Tiefensonde.

Auch über Iod-129 im Ostseewasser existieren wissenschaftliche Arbeiten. Eine umfassende Kartierung der gesamten Ostsee wurde bisher noch nicht durchgeführt. In einigen Aufsätzen werden Einzelproben vorgestellt. Buraglio untersuchte drei Proben aus dem Jahre 1999, die aus der zentralen Ostsee und dem Bottnischen Meerbusen stammten [Buraglio, 2000]. In der zentralen Ostsee lag die ^{129}I -Konzentration bei $1,2 \cdot 10^9$ Atome/l, weiter nördlich im Bottnischen Meerbusen bei $5,5 \cdot 10^8$ Atome/l. Weitere Wasserproben aus der Ostsee zeigten ^{129}I -Gehalte zwischen $1,1 \cdot 10^9$ und $5,1 \cdot 10^9$ Atomen pro Liter [Buraglio et al., 2000].

Hou et al. analysierten Wasserproben von der dänischen Küste, aus dem Skagerrak, dem Kattegat und der Ostsee, die von November 1999 bis März 2000 genommen wurden [Hou et al., 2002]. An einigen Orten wurden neben Oberflächenwasser auch Tiefenwasserproben untersucht. Zusätzlich zogen die Autoren einige Wasserproben aus Binnenseen des angrenzenden Festlands heran. Allerdings werden lediglich die ^{129}I -Konzentrationen genannt, ^{127}I -Konzentration fehlen ebenso wie die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Dadurch wird die Vergleichbarkeit der Daten mit anderen Arbeiten erheblich erschwert. Erwartungsgemäß nahmen die ^{129}I -Konzentrationen von der Nordsee in Richtung der Ostsee stark ab. An der dänischen Küste zum Skagerrak werden die größten ^{129}I -Gehalte gemessen. In Bornholm wurden nur noch $6 \cdot 10^{-13}$ g Iod-129 pro Liter angetroffen, das sind zwei Größenordnungen weniger als in der Nordsee und entspricht einem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $5 \cdot 10^{-8}$. Binnengewässer zeigten auch eine wesentlich geringere Kontamination als das jeweils in der Nähe entnommene Meerwasser aus dem Kattegat oder der Ostsee. Im wesentlichen stehen die Ergebnisse von Hou et al. [Hou et al., 2002] mit denen von 2001 [Hou et al., 2001] im Einklang. Es wird das Eindringen des kontaminierten Nordseewassers aufgrund der größeren Salinität und Dichte in den tieferen Wasserschichten in die Ostsee beobachtet, während das Ostseewasser an der Oberfläche verbleibt. So wurden im November 1999 im Fehmarnbelt ($54^{\circ}57'$ N, $11^{\circ}04'$ E) beispielsweise $5,15 \cdot 10^{-12}$ g ^{129}I pro Liter bei einer Salinität von 14,0 an der Oberfläche gemessen. Die Salinität in der Tiefe lag bei 23,0 und die ^{129}I -Konzentration bei $9,7 \cdot 10^{-12}$ g ^{129}I pro Liter. Tabelle 15 zeigt die Ergebnisse der Iod-129-Bestimmungen von küstennahem Oberflächenwasser und einigen Tiefenwasserproben.

Tabelle 15: Ergebnisse der von Hou et al. untersuchten küstennahen Wasserproben aus dem Ostseeraum. Ergänzende Informationen können der Originalliteratur [Hou et al., 2002] entnommen werden.

Ort	Datum	Koordinaten		Iod-129	U (abs.)
	Probennahme	Breite	Länge	in fg/g	in fg/g
Hesselø	Nov 99	56°10'N	11°47'E	11,52	0,16
Hesselø ^{a)}	Nov 99	56°10'N	11°47'E	16,02	0,19
Kattegat-413	Nov 99	56°40'N	12°07'E	6,31	0,16
Kattegat-414 ^{a)}	Nov 99	56°40'N	12°07'E	17,41	0,37
Boeslum	Jun 00	56°12'N	10°44'E	11,11	0,30
Sæby	Jun 00	57°20' N	10°32'E	27,17	0,41
Skagen	Jun 00	57°44'N	10°34'E	57,38	0,69
Hirtshals	Jun 00	57°36'N	9°56'E	49,93	0,55
Hanstholm	Jun 00	57°07'N	8°35'E	41,47	0,46
Nørre Vorupør	Jun 00	56°57'N	8°21'E	45,04	0,63
Hvide sand	Jun 00	56°00'N	8°06'E	40,72	0,57
Klint	Mrz 00	56°58'N	11°36'E	6,66	0,21
Kullen	Nov 00	56°12'N	12°22'E	13,42	0,39
Kullen ^{a)}	Nov 00	56°12'N	12°22'E	21,93	0,31
Ansæs rev	Nov 00	55°39'N	10°46'E	7,55	0,28
Ansæs rev ^{a)}	Nov 00	55°39'N	10°46'E	17,71	0,41
Femarnbelt	Nov 00	54°36'N	11°04'E	9,7	0,28
Femarnbelt ^{a)}	Nov 00	54°36'N	11°04'E	5,15	0,16
Møen	Nov 00	54°57'N	12°41'E	1,61	0,06
Öresund	Nov 00	55°25'N	12°36'E	1,72	0,07
Bornholm	Mrz 00	55°08'N	15°10'E	0,597	0,03

a) Tiefenwasser

U (abs.) = absolute Unsicherheit

Die Salinitäten bei Ansæs rev, Kullen, Hesselø und im Kattegat betragen im Oberflächenwasser 17, 21, 21 und 20, in der Tiefe waren es 25, 28, 31 und 34. Diese Werte und die in Tabelle 15 zusammengefaßten Meßwerte untermauern die Annahme des in der Tiefe in die Ostsee einströmenden Nordseewassers. Neben den Meßergebnissen diskutieren Hou et al. auch die Herkunft des Iod-129 in den beprobten Gebieten. Nach der Berechnung sind etwa 0,02 % des Iod-129 in der Ostsee natürlicher Herkunft [Hou et al., 2002].

Nach Berechnungen von Paul et al. beläuft sich die ¹²⁹I-Freisetzung aus dem Reaktorunfall in Tschernobyl auf 1,3 kg [Paul et al., 1987]. Hou et al. gehen in ihrer Abschätzung von annähernd gleichem Verhalten des ¹³⁷Cs und ¹²⁹I bei der Deposition und ihrem Transport in die

Ostsee aus. Basierend auf einem $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von 0,18 aus dem Tschernobylunglück und der Auswertung vorangegangener ^{137}Cs -Bestimmungen kann das aus Tschernobyl stammende ^{129}I zu $5 \cdot 10^{-15}$ g/l berechnet werden [Hou et al., 2002 und darin angegebene Literaturstellen]. Dies beinhaltet sowohl die direkte Deposition als auch den Eintrag aus der Umgebung nach der Deposition auf dem Kontinent. Demnach sind 4 % im nördlichen Ostseeraum, 1 % des ^{129}I im südlichen Ostseeraum und 0,1 % des ^{129}I im Kattegat Tschernobyl zuzurechnen. Zusammenfassend stellen Hou et al. fest, daß sowohl der atmosphärische Fallout durch Kernwaffentests als auch der Reaktorunfall von Tschernobyl bei Betrachtung der gesamten Kontamination des Ostseeraumes eine untergeordnete Rolle spielen. Ein Beitrag der umliegenden Kernkraftwerke in Schweden, Rußland, Finnland und Litauen wird als nicht signifikant bezeichnet [Hou et al., 2002].

In einer weiteren Arbeit nahmen Hou et al. eine Speziesanalyse des Iods in Meerwasser vor [Hou et al., 2001]. Die Wasserproben wurden auf die Iodide und Iodate von ^{127}I und ^{129}I untersucht. Die experimentelle Vorgehensweise und Trennung der Iodspezies kann dem Aufsatz entnommen [Hou et al., 2001] werden. Die Quantifizierung von ^{127}I und ^{129}I erfolgte mittels RNAA. An drei Probenahmeorten (zwei im Kattegat und einer in der Ostsee) wurden im Juni sowohl Tiefen- als auch Oberflächenwasserproben entnommen. Bei Hesselø im Kattegat ($56^{\circ}10'$ N, $11^{\circ}47'$ E, nördlich von Seeland) wurden Wasserproben aus 2 und 24 m Tiefe entnommen, im Kattegat nordöstlich von Hesselø ($56^{\circ}40'$ N, $12^{\circ}07'$ E) bei 2 und 40 m Tiefe und bei Møn ($54^{\circ}57'$ N, $12^{\circ}41'$ E) in der Ostsee bei 2 und 23 m Tiefe.

Allen Proben gemein ist, daß die Salinitäten in den tieferen Wasserschichten größer sind als an der Oberfläche. Bei Hesselø lagen die Salinitäten bei 15,3 und 34,8 (2 bzw. 24 m), im Kattegat bei 15,8 und 34,0 (2 bzw. 40 m) und bei Møn in der Ostsee wurden 7,5 (2 m) und 7,8 (23 m) angetroffen. Die Iodid-127-Konzentrationen waren an der Oberfläche mit etwa $0,11 \mu\text{mol/l}$ bei allen drei Stationen relativ konstant. Iodid-129 im Oberflächenwasser war dagegen in der Ostsee mit $0,005 \cdot 10^{-13}$ mol/l deutlich weniger stark vertreten als in den beiden anderen Proben im Kattegat mit $0,298 \cdot 10^{-13}$ mol/l bzw. $0,279 \cdot 10^{-13}$ mol/l bei Hesselø. Bei Møn in der Ostsee wurden die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse angetroffen. Diese liegen mit $5 \cdot 10^{-8}$ etwa zwei Größenordnungen über dem globalen Hintergrund, der durch Kernwaffentests verursacht wird. Dennoch liegen die Verhältnisse um etwa den Faktor fünf deutlich unter den Verhältnissen, die im Kattegat gemessen wurden. Als wesentliche Quelle des Iod-129 in der Ostsee werden die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield genannt, der Einfluß nuklearer Anlagen in der damaligen Sowjetunion kann vernachlässigt werden. Im Ostseewasser sind keine nennenswerten Unterschiede im Oberflächen- und Tiefenwasser bezüglich Iodid und Iodat für ^{127}I und ^{129}I zu erkennen. Im Gegensatz zum Ostseewasser stellt in der Tiefe des Kattegats Iodat die vorherrschende Form des Iods dar. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für Iodat in der Ostsee sind wesentlich größer als für Iodid und liegen dicht bei denen aus dem Kattegat. Die Autoren [Hou et al., 2001] schlußfolgern daraus, daß sowohl Iodat-127 als auch Iodat-129 in der Ostsee aus dem Kattegat stammen. Die geringeren $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Ostsee werden mit Verdünnungseffekten begründet. Außerdem erklären Hou et al. (2001) die geringeren Konzentrationen von Iodat-127, Iodid-129 und Iodat-129 im Oberflächenwasser des Kattegats mit der Vermischung von Nordseewasser mit Ostseewasser. Aufgrund der Befunde sehen die Autoren in der Speziesanalyse von Iodid und Iodat kombiniert mit ^{127}I - und ^{129}I -Quantifizierungen eine gute Möglichkeit, den Transport, die Verteilung und Mischungsprozesse von Wassermassen zu untersuchen.

Relativ umfangreich ist eine neue Arbeit, die sich mit den beiden Iodisotopen im Oberflächenwasser und in Tiefenprofilen beschäftigt [Aldahan *et al.*, 2007c]. Beginnend bei Gotland über den westlichen Bereich der Ostsee, Bornholm, dem Fehmarnbelt bis in das Kattegat wurden in den Jahren 2000 bis 2001 Oberflächenwasserproben und Tiefenprofile entnommen. Erwartungsgemäß wurde im östlichen Skagerrak mit $8 \cdot 10^{10}$ Iod-129-Atomen die größte Kontamination festgestellt, im Kattegat war sie mit $6 \cdot 10^{10}$ Iod-129-Atomen pro Liter geringer. Es wurde ein Anstieg der Kontamination von Gotland nach Bornholm auf das doppelte beobachtet, bis zum Fehmarnbelt verdreifachte sich die ^{129}I -Konzentration. Der Vergleich mit Proben, die von Hou in den Jahren 1999 und 2000 entnommen wurden, zeigt eine vergleichbare aber geringfügig höhere Kontamination [Aldahan *et al.*, 2007c; Hou *et al.*, 2002]. Es wurde eine Korrelation der Salinitäten mit den ^{129}I -Konzentrationen festgestellt, der Korrelationskoeffizient betrug 0,9 [Aldahan *et al.*, 2007c]. Aldahan *et al.* beobachten im Kattegat zwei nicht gut miteinander vermischte Wasserkörper. Demnach gibt es einen ostseewassergeprägten Bereich und einen der durch Nordseewasser charakterisiert ist.

Bezugnehmend auf den Zusammenhang zwischen Iodgehalt und Salinität in Meerwasser [Truesdale und Jones, 2000] und dem steigenden Iodgehalt im Tiefenwasser bei gleichzeitig abnehmender Sauerstoffkonzentration in der Ostsee [Truesdale *et al.*, 2001], erklären die Autoren [Aldahan *et al.*, 2007c] größere ^{129}I -Konzentrationen in der Tiefe eines Fjords nahe der schwedisch-norwegischen Grenze am Skagerrak mit dem dortigen Sauerstoffmangel in den tieferen Wasserschichten. Der in der Arbeit [Aldahan *et al.*, 2007c] beschriebene Fjord ist für seine anoxischen Bedingungen im Tiefenwasser bekannt. Unter anoxischen Bedingungen ist Iodid die dominierende Iodspezies und nicht das leichter aus dem Wasser entfernbare Iodat [Aldahan *et al.*, 2007c; Hou *et al.*, 2001; Truesdale *et al.*, 2001]. Iodat lagert sich schneller als Iodid an Mineralien oder organische Materie an und sedimentiert damit auch schneller [Hu *et al.*, 2005; Kaplan, 2003].

Der ^{129}I -Eintrag über Flüsse zum gesamten ^{129}I -Inventar der Ostsee wird auf weniger als 1 % beziffert, etwa genau so viel sind dem Niederschlag und den oberirdischen Kernwaffentests zuzuschreiben. Der Reaktorunfall von Tschernobyl verursacht weniger als 5 % der ^{129}I -Kontamination. Über die Meeresströmung gelangen mit etwa 95 % die größten ^{129}I -Anteile in die Ostsee [Aldahan *et al.*, 2007c]. Das gesamte Iod-129-Inventar der Ostsee wird auf $7,1 \cdot 10^{25}$ Atome berechnet, davon entfallen $2,3 \cdot 10^{25}$ auf das Kattegat, $3,9 \cdot 10^{25}$ Atome auf den Finnischen und Rigaischen Meerbusen sowie die eigentliche Ostsee. Im Bottnischen Meerbusen und den Belten befinden sich $0,4 \cdot 10^{25}$ bzw. $0,5 \cdot 10^{25}$ ^{129}I -Atome [Aldahan *et al.*, 2007c].

5.3 Bisherige Arbeiten zu Iod-127 Iod-129 in Sedimenten

Sedimente stellen unter Umständen Archive der nuklearen Historie der darüberliegenden Wassersäule dar. Die sich im Sediment befindlichen Nuklide können für Datierungen und für die Geschichte des Eintrages anthropogener Radionuklide genutzt werden. Dafür unabdingbar sind Kenntnisse über die Sedimentationsrate und über geochemische Prozesse innerhalb des Sediments. Der natürliche Zerfall des ^{210}Pb sowie der Eintrag von ^{137}Cs durch aus dem globalen Fallout oder aus Tschernobyl werden bei der Bestimmung der Sedimentationsrate und bei Datierungen genutzt.

^{239}Pu und ^{240}Pu zeigen in Sedimenten oft den sogenannten Bombenpeak, der durch die zeitlich eng begrenzten aber starken Freisetzungen dieser anthropogenen Radionuklide verursacht

wird. Iod-129 weist keinen Bombenpeak in Westeuropa auf, da das Iod-129 aus dem Kernwaffenfallout von dem Iod-129 aus den WAA überlagert wird. Die wesentlich größeren ^{129}I -Emissionen verursachen einen hohen Hintergrundwert, so daß die geringen ^{129}I -Mengen aus dem Kernwaffenfallout nicht sichtbar sind. Bisher wurde erst in einem Sediment im Mississippi-Delta ein vom Iod-129 verursachter Bombenpeak entdeckt, der sich mit den in gleicher Tiefe gehäuft auftretenden Nukliden $^{239+240}\text{Pu}$ und ^{137}Cs deckt [Oktay et al., 2000].

Aldahan et al. untersuchten zwei 1997 aus der Ostsee entnommene Sedimente [Aldahan et al., 2007b]. Das erste Sediment wurde bei einer Wassertiefe von 144 m an der Position 59.06°N, 19.11°E entnommen, das zweite bei 75 m Tiefe (59.22°N, 18.66°E). Die Sedimente reichten in eine Tiefe von 55 cm bzw. 50 cm. Für beide Sedimente wird übereinstimmend in 10-12 cm Tiefe ein ^{137}Cs -Maximum entdeckt, das dem Reaktorunfall von Tschernobyl und damit dem Jahre 1986 zugeordnet wird. Demzufolge wird eine Sedimentationsrate von etwa einem Zentimeter pro Jahr angenommen. Die ^{129}I -Konzentrationsprofile der beiden Sedimente waren nahezu identisch und spiegeln die Historie der flüssigen Emissionen der WAA wider. In den oberen Schichten wurde 50-70 mal so viel ^{129}I gefunden wie in den tieferen. Die Maxima der ^{129}I -Gehalte betragen $35 \cdot 10^8$ und $37 \cdot 10^8$ Iod-129-Atome pro Gramm Trockenmasse und lagen in 3-4 cm bzw. 2-3 cm Tiefe. Die geringste Kontamination wurde erwartungsgemäß in den tiefsten Sedimentschichten festgestellt. Im erstgenannten Profil finden sich in 50-51 cm $0,5 \cdot 10^8$ ^{129}I Atome pro Gramm und beim zweiten in 45-46 cm $3,0 \cdot 10^8$ Iod-129-Atome pro Gramm. Eine signifikante Beeinflussung durch Tschernobyl bei einer Tiefe von 10-12 cm wurde hinsichtlich Iod-129 nicht beobachtet. $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden nicht angegeben [Aldahan et al., 2007b]. Auch die ^{127}I -Konzentrationen sind in den obersten Sedimentschichten größer als in der Tiefe. Bis $75 \mu\text{g/g}$ ^{127}I werden in den oberen Schichten angetroffen, in der Tiefe sind es $43 \mu\text{g/g}$. Damit wird auch in der Ostsee eine starke Anreicherung von Iod in den Sedimenten um mehr als Faktor 1000 gemessen. Die mit zunehmender Tiefe des Profils kleiner werdenden ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen werden mit Zersetzungsprozessen aufgrund von Oxidationen und Reduktionen erklärt [Aldahan et al., 2007b].

Bezugnehmend auf Truesdale [Truesdale et al., 2001] und die im Tiefenwasser herrschenden anoxischen Reaktionsbedingungen erwarten die Autoren [Aldahan et al., 2007b] eine Zersetzung von N-iodorganischen Verbindungen im Sediment durch Sulfat zu Schwefelwasserstoff, NO_x und Iodid. Das Iodid kann sich nach seiner Mobilisierung in Richtung des Wassers bewegen oder nach Oxidation zum Iodat an Partikel angelagert werden [Aldahan et al., 2007b; Hu et al., 2005; Kaplan, 2003]. Der Zersetzungsprozess soll innerhalb der ersten 5 cm des Sediments besonders effektiv sein und ist temperaturabhängig [Ullman und Aller, 1983]. ^{127}I und ^{129}I zeigten erwartungsgemäß ein sehr ähnliches geochemisches Verhalten. Die Freisetzung von Iod aus organischer Materie kann auch unter oxidierenden Bedingungen durch mikrobielle Aktivitäten geschehen. Auf diese Weise können Iodide zum leichter flüchtigen molekularem Iod oxidiert werden [Amachi et al., 2005].

Eine Veröffentlichung von Gallagher et al. befaßt sich mit einem Sediment aus dem Ballywillan See im Nordosten Irlands [Gallagher et al., 2005]. Es wird nach retrospektiven Beweisen für den Brand im damaligen Windscale-Reaktor gesucht. Bei dem Feuer im Oktober 1957 wurden eine Reihe anthropogener Radionuklide in die Umwelt freigesetzt, Informationen dazu können der Arbeit [Gallagher et al., 2005] und den darin angegebenen Quellen entnommen werden. Der etwa 8 m tiefe See liegt nahe der Irischen See. Eine im Jahr 2000 entnommene Sedimentprobe wurde auf ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{210}Pb und ^{129}I untersucht. Tiefen-

profile von Sedimenten aus Seen existierten bis dahin noch nicht [Gallagher et al., 2005]. Die Wetterbedingungen zum Zeitpunkt des Feuers lassen nur eine geringe Kontamination des Ballywillan Sees vermuten. Aufgrund der für Binnengewässer relativ großen Sedimentationsrate von 0,37 bis 0,45 cm/a ist die Geschichte des Eintrages von Radionukliden ziemlich gut aufgelöst. ^{137}Cs zeigte den klassischen Bombenpeak und einen weiteren Peak, der Tschernobyl zuzuordnen ist. Dagegen ist ^{241}Am nur im Bombenpeak zu sehen. Dem Jahr des Brandes 1957 wird eine Tiefe von 19 cm zugewiesen. Ein durch den Windscale-Brand verursachter ^{129}I -Eintrag ist nicht festgestellt worden. Ein leichter Anstieg der ^{129}I -Konzentrationen wurde bei 15 cm durch den Kernwaffenfallout verursacht. Der Beitrag aus Kernwaffentests ist im Vergleich zu den WAA als sehr gering zu bezeichnen [Gallagher et al., 2005]. Das gesamte ^{129}I -Inventar des Ballywillan Sees wurde auf 29 mBq/m² geschätzt. ^{129}I ist das einzige Radionuklid, dessen Konzentration in diesem Sediment einen signifikanten Anstieg der Aktivitätskonzentration in Richtung der oberen Schichten zeigt. Dieser Anstieg folgt den zunehmenden Emissionen der WAA [Gallagher et al., 2005].

Ein im Jahre 1984 vor der Küste Schwedens aus dem Kattegat entnommenes Tiefenprofil wurde von López-Gutiérrez et al. untersucht. Die Probenahme erfolgte damit vor dem Reaktorunfall von Tschernobyl. Das Sediment reichte bis in eine Tiefe von 17 cm und wurde in 1 cm dicke Scheiben zerlegt. ^{137}Cs wurde mit hochauflösender Gammaskopie bestimmt, Iod-129 wurde mit Beschleunigermassenspektrometrie gemessen [López-Gutiérrez et al., 2000]. Sowohl ^{137}Cs -Konzentrationen als auch die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nehmen in Richtung der oberen Sedimentschichten zu und dokumentieren den Eintrag anthropogener Radionuklide vergangener Jahre. Das höchste $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis liegt mit etwa $3 \cdot 10^{-8}$ in 1-2 cm Tiefe. Ungünstigerweise fehlen die Daten der obersten Schicht und zwischen 2 und 3 cm, dadurch wird eine Vergleichbarkeit zu dieser Arbeit erschwert. Bis 9 cm Tiefe liegen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bei etwas mehr 10^{-8} , ab 12 cm liegen sie unter $5 \cdot 10^{-9}$. In den untersten Schichten werden Isotopenverhältnisse von 10^{-10} gemessen. Der Anstieg der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bei 13-14 cm kann nach Ansicht der Autoren nicht alleine mit dem Kernwaffenfallout erklärt werden, aufgrund der Transportzeit von La Hague bis in das Kattegat von drei Jahren sind die WAA als signifikante Quellen zu nennen [López-Gutiérrez et al., 2000].

5.4 Iod-127 und Iod-129 in der Biota

Die Biophilie des Iods und damit dessen Anreicherung in Seetang, Algen und Schilddrüsen sorgte dafür, daß zahlreiche Untersuchungen über Iod-129 in diesen Probenmaterialien durchgeführt wurden. Die starke Anreicherung von Iod machte eine Quantifizierung von Iod-127 und Iod-129 mit RNAA (radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse) möglich, so daß bereits vor Entwicklung der AMS in den 1980er Jahren Arbeiten zu diesem Thema angefertigt werden konnten.

Fréchou und Calmet untersuchten unter Zuhilfenahme der γ -X-Spektrometrie marine und terrestrische Proben entlang der französischen Küste aus dem nördlichen Teil Cotentins. Cotentin ist eine Halbinsel im Norden Frankreichs, auf der sich die Wiederaufarbeitungsanlage La Hague befindet. Bei der γ -X-Spektrometrie werden neben der γ -Linie bei 39,6 keV auch die Röntgenlinien (X-ray-Linien) zur Detektion verwendet. Die Röntgenlinien liegen bei 29,78 und 29,46 keV, weitere Linien treten nur mit einer sehr geringen Wahrscheinlichkeit auf. Näheres zum verwendeten Analyseverfahren und zu der notwendigen Korrektur der

Selbstabsorption der Röntgenstrahlung durch die Probenmatrix können der Veröffentlichung [Fréchou und Calmet, 2003] und den darin angegebenen Quellen entnommen werden.

Verschiedene Seetangspezies wurden entlang des Englischen Kanals in den Jahren 1998 und 1999 entnommen. Auch wurden Flechten untersucht, welche als Bioindikator für die atmosphärische Kontamination gelten, da sie Radionuklide aus der Luft anreichern. Damit sollte sowohl der Transfer des ^{129}I von der See zum Land und schließlich zum Menschen als auch die räumliche Variabilität des ^{129}I untersucht werden. Zufällig ausgewählte Proben wurden aliquotiert und für RNAA, AMS und γ -X-Spektrometrie vorbereitet. Es wurden keine signifikanten Unterschiede dieser Analysemethoden festgestellt. Die mit der γ -X-Spektrometrie erreichte Nachweisgrenze für ^{129}I lag bei 0,5 Bq/kg Trockenmasse [Fréchou und Calmet, 2003]. Die Isotopenverhältnisse von Seetangproben bei Goury erstreckten sich von $7 \cdot 10^{-7}$ bis $3 \cdot 10^{-5}$. Diese Ergebnisse gehören neben den weiter unten angesprochenen Rinderschildrüsen [Fréchou et al., 2002] zu den größten gemessenen Isotopenverhältnissen, die bisher in Umweltproben gefunden wurden. Die spezifischen Aktivitäten lagen zwischen 4,4 und 316,2 Bq/kg Trockenmasse [Fréchou und Calmet, 2003]. Goury befindet sich stromabwärts von La Hague und unterliegt der Beeinflussung durch die flüssigen Emissionen. Auch bei Flamanville wurden mit $1,2 \cdot 10^{-5}$ sehr große $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse angetroffen. Weitere Seetangproben von Granville, Carteret, Luc sur Mer und Saint Valery waren weniger stark kontaminiert, diese lieferten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $1,2 \cdot 10^{-6}$ bis $8,5 \cdot 10^{-6}$. Eine starke Verdünnung der ^{129}I -Konzentrationen in der direkten Umgebung von La Hague wurde festgestellt. Im größeren Abstand zur WAA finden sich der Strömung in die Nordsee folgend nahezu konstante Aktivitätskonzentrationen im Seetang. Verschiedene Isotopenverhältnisse unterschiedlicher Seetangspezies, die an gleicher Stelle entnommen wurden, werden mit den ungleichen Stoffwechseleigenschaften der Seetangspezies erklärt. Als allgemeiner Trend wurde festgestellt, daß die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Seetang mit kürzer werdendem Abstand zu der Emissionsstelle ansteigen. Daher werden in Luc sur Mer, St Valery und Wimerieux mit mehr als 10^{-6} die kleinsten Isotopenverhältnisse angetroffen. Fréchou und Calmet (2003) sehen in der Analyse von Seetangproben auch die Möglichkeit, Zirkulationsmuster des Wassers innerhalb der Nordsee zu ergründen und die Daten für Simulationsrechnungen zu verwenden.

Die spezifischen ^{129}I -Aktivitäten der untersuchten Flechten vom Festland lagen mindestens eine Größenordnung unter denen, die im Seetang in direkter Nähe und zu gleicher Zeit angetroffen wurden. Dagegen lagen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Flechten in der gleichen Größenordnung wie die der Seetangproben und zeigten eine Abnahme mit zunehmendem Abstand zur Wiederaufarbeitungsanlage. Die ähnlichen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Seetang und Flechten erklären Fréchou und Calmet (2003, siehe auch dortige Literaturstellen) mit dem permanenten Transfer von ^{129}I vom Meer zum Land durch kleinste Wassertröpfchen aus dem Kanal. Deren Zusammensetzung repräsentiert die oberste Schicht des Meerwassers, wodurch das terrestrische Ökosystem entlang der Küste und im Landesinneren kontaminiert wird. Diese Tröpfchen werden nur ein kurzes Stück ins Binnenland transportiert. Damit wird auch die Beeinflussung durch die flüssigen Emissionen im Landesinneren schnell geringer [Fréchou und Calmet, 2003].

Die direkte Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage wird zusätzlich durch die luftgetragenen ^{129}I -Emissionen kontaminiert, dies gilt in besonderem Maße für den Bereich in der vorherrschenden Windrichtung. Obwohl die Anteile der luftgetragenen Emissionen gegenüber den flüssigen Ableitungen von etwa 10 % in den Jahren 1966 bis 1997 auf 1 % in den Jahren

1998 und 1999 abgenommen haben, zeigten terrestrische Proben in unmittelbarer Nähe zur Wiederaufarbeitungsanlage größere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als diejenigen, die von der Küste entnommen wurden. Einen verstärkenden Effekt sehen die Autoren in der abnehmenden Konzentration des stabilen Iods in Richtung des Landesinneren. In der marinen Umwelt findet eine stärkere Verdünnung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse statt als in der terrestrischen Umwelt [Fréchou und Calmet, 2003].

Eine weitere Arbeit von Fréchou beschäftigt sich mit Iod-129 in Schilddrüsen von Rindern [Fréchou et al., 2002]. Bei Säugetieren reichert sich Iod in Schilddrüsen an und ist für die Hormonbildung und den Stoffwechsel von Bedeutung. Fréchou et al. (2002) sehen in Schilddrüsenanalysen eine gute Möglichkeit, die räumliche und zeitliche Beeinflussung durch die luftgetragenen Emissionen zu überwachen. Eine weitere Anwendung besteht in der Abschätzung der Strahlenexposition des Menschen, der durch Inhalation und Ingestion dem radioaktiven ^{129}I ausgesetzt ist. In der Arbeit [Fréchou et al., 2002] wurden Rinderschilddrüsen aus dem Norden der Halbinsel Cotentin in direkter Umgebung zur Wiederaufarbeitungsanlage untersucht. Es wurden sowohl archivierte Proben aus den 1970er und 1980er Jahren als auch aktuelle Schilddrüsen herangezogen. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Rinderschilddrüsen aus den 1980er Jahren streuten um den Faktor 20 von $1,0 \cdot 10^{-6}$ bis $21,4 \cdot 10^{-6}$. Rinderschilddrüsen aus dem Jahr 1999 zeigten eine Streuung um mehr als zwei Größenordnungen ($0,91 \cdot 10^{-6}$ bis $251 \cdot 10^{-6}$) und liegen damit deutlich über dem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis, das 1975 mit $0,13 \cdot 10^{-6}$ (s. im Aufsatz zitierte Literatur) in einer Schilddrüse gemessen wurde. Die am stärksten kontaminierte Schilddrüse besaß ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von mehr als 10^{-4} und wurde im März 1999 bei einem Rind aus der Ortschaft Digulleville vorgefunden. Der Ort liegt etwa 3 km nordöstlich von der Wiederaufarbeitungsanlage. Das extrem hohe Isotopenverhältnis erklären die Autoren mit dem Einfluß der luftgetragenen Emissionen [Fréchou et al., 2002]. Digulleville liegt sowohl für regnerische als auch für trockene Witterungsbedingungen in der Hauptausbreitungsrichtung der Fortluft. Ein weiterer verstärkender Einfluß wird darin gesehen, daß sich die Weidetiere fast ganzjährlich im Freien aufhalten und somit kontinuierlich stark kontaminiertes Gras zu sich nehmen. Schilddrüsenproben aus den 1980er Jahren zeigten bezüglich der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und der spezifischen Aktivität dieselben räumlichen Tendenzen wie Schilddrüsen aus dem Jahre 1999. Bei den archivierten Proben wurden ebenfalls bei Digulleville die höchsten Kontaminationen beobachtet [Fréchou et al., 2002].

Die Autoren stellten außerdem fest, daß die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von 1973 bis 1999 in den Schilddrüsen aus Digulleville den luftgetragenen Emissionen folgen [Fréchou et al., 2002]. Diese Beobachtung konnte bisher nur in der unmittelbaren Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen gemacht werden, so stieg das Isotopenverhältnis von 1980 bis 1999 um eine Größenordnung. Schilddrüsen, die von Rindern in größerer Entfernung gewonnen wurden, zeigten keine so deutliche Beeinflussung durch die Fortluft aus La Hague. Es wurde ein geringerer Anstieg des Isotopenverhältnisses und der spezifischen Aktivität beobachtet als bei Digulleville. Zwischen 1973 und 1980 stieg das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in Proben aus Flamanville, Héauville und Flottenmanville um den Faktor 6,3, in den darauf folgenden 19 Jahren um den Faktor 2,3. Diese Faktoren in den zwei Zeiträumen werden auch in der Entwicklung der gasförmigen Emissionen angetroffen, wenn man den von Fréchou et al. (2002) als gleitenden Mittelwert bezeichneten Wert über jeweils 4 Jahre heranzieht. Dabei werden die Emissionen in den Zeiträumen 1973 – 1976, 1974 – 1977, 1975 – 1976 usw. gemittelt. Es wird in den Meßergebnissen der Schilddrüsen eine Möglichkeit gesehen, die Emis-

sionen längerer Zeiträume über die langfristige Akkumulation in Schilddrüsen zu verfolgen [Fréchou *et al.*, 2002].

Hou *et al.* untersuchten Zeitreihen archivierter Seetangproben auf ^{129}I , um Transportzeiten des ^{129}I aus den Wiederaufarbeitungsanlagen und dessen Transferfaktoren abzuschätzen. Die Arbeit [Hou *et al.*, 2000a] umfaßt mehrere, relativ große Datensätze. Von Klint auf der Insel Seeland am Kattegat wurden von 1986 bis 1999 zwei bis vier Seetangproben pro Jahr entnommen, so daß insgesamt 39 Proben zur Verfügung standen. Zusätzlich wurden bei Utsira in Norwegen (1980 – 1995), Bornholm in Dänemark an der Ostsee (1995 – 1999), dem Roskildefjord auf Seeland (1995-1998) und von der Nordwestküste Dänemarks (1997) Seetangproben auf ihren Gehalt an ^{127}I und ^{129}I untersucht. Die Quantifizierungen erfolgten mittels radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) [Hou *et al.*, 2000a]. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse waren bei Klint am Kattegat ähnlich derer, die bei Utsira an der norwegischen Küste angetroffen wurden. Es wird deshalb ein etwa gleichzeitiges Erreichen des kontaminierten Wassers von den WAA an beiden Orten vermutet. Im Zeitraum von 1986 bis 1999 stieg das Isotopenverhältnis bei Klint um eine Größenordnung von etwa $4 \cdot 10^{-8}$ auf $3,7 \cdot 10^{-7}$ an, in Utsira von etwa $2 \cdot 10^{-8}$ auf $1,8 \cdot 10^{-7}$ [Hou *et al.*, 2000a].

Seetang von Bornholm in der Ostsee war deutlich geringer kontaminiert als von Klint und Utsira. Erst 1999 wurden dort die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse angetroffen, die bereits 1985 und 1986 bei Klint zu sehen waren. Die Meßwerte bei Bornholm lagen mit $5 \cdot 10^{-8}$ (1999) um den Faktor 500 über dem postnuklearen Hintergrund. Hou *et al.* gehen bezugnehmend auf Andersson und Rydberg [Andersson und Rydberg, 1988] davon aus, daß nur wenig kontaminiertes Wasser von der Nordsee den Weg durch das Kattegat in die Ostsee findet und ein Großteil wieder zurück in die Nordsee fließt. Quelle der ^{129}I -Kontamination ist aber trotzdem die Nordsee [Hou *et al.*, 2000a].

In dem zweiten Teil der Arbeit widmen sich Hou *et al.* den Transportzeiten des Wassers. Mit Hilfe der sogenannten Kreuzkorrelationsfunktion werden zwei zeitverschobene Signale (Eintrag der Nuklide und gemessene $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse) ausgewertet. Mehrere Faktoren schwächen jedoch diese Vorgehensweise. Die Eintragsfunktion ist zeitlich nur mittelmäßig aufgelöst (jährliche Emissionsdaten), die Distanz von La Hague bis Utsira ist relativ kurz und der Eintrag von La Hague ist wesentlich größer als der von Sellafield [Hou *et al.*, 2000a]. Die ermittelten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Seetang bei Utsira und Klint folgen den Emissionen mit ein- bis zweijähriger Verzögerung. Unter Einbeziehung der $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$ -Isotopenverhältnisse schätzten Hou *et al.* die Transportzeit von La Hague nach Utsira auf etwa 1,5 Jahre. Der Vorteil bei der Nutzung des $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$ -Isotopenverhältnisses liegt in der größeren zeitlichen Variation der Emissionen. Ein starkes Ansteigen der ^{99}Tc -Emissionen im Jahre 1999 wurde etwa 1,5 Jahre später in Utsira nachgewiesen [Hou *et al.*, 2000a].

Eine umfangreiche Arbeit, die sich neben Iod-127 und Iod-129 auch mit ^{137}Cs und ^{99}Tc in archivierten Seetangproben aus den Jahren 1980 bis 1998 befaßt, zeigt eine Zunahme des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses im Seetang von der norwegischen Küste um den Faktor 20 [Yiou *et al.*, 2002]. Bei Utsira an der Westküste Norwegens und bei Kiberg am äußersten Norden Norwegens in der Nordsee wurden seit 1980 jährlich, später monatlich Seetangproben entnommen. Dahlgaard *et al.* bestimmten die ^{99}Tc -Gehalte dieser Proben in einer vorangegangenen Arbeit [Dahlgaard *et al.*, 1997]. Kleine Schwankungen der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden mit zeitlichen Variationen der Emissionen erklärt, von La Hague bis Utsira wurde eine Transportzeit von 14 Monaten ermittelt. Für die drei diskutierten Radionuklide kommen drei

verschiedene Quellen in Betracht. Das ^{137}Cs in der Ostsee stammt nach Ansicht von Yiou et al. hauptsächlich aus Tschernobyl, ^{129}I wird überwiegend von der WAA La Hague und ^{99}Tc von der WAA Sellafield freigesetzt [Yiou et al., 2002]. Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen in Utsira stiegen bis 1986 kontinuierlich aufgrund der steigenden Emissionen aus Sellafield an, es folgte eine sprunghafte Zunahme nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl. Seit den späten 1990er Jahren liegt der Anteil des ^{137}Cs aus Tschernobyl bei Utsira konstant bei etwa 75 %. Die Befunde von Yiou et al. (2002) stehen damit im Widerspruch zu den Zeitreihen des BSH, die für ^{137}Cs in der Ostsee einen großen Anteil aus dem globalen Fallout nahelegen.

Eine Reihe weiterer Aufsätze beschäftigt sich mit Iod-129 in Seetang. Es soll an dieser Stelle ausreichen, eine Auswahl der Arbeiten zu nennen: [Hou et al., 1997; Hou et al., 2000c; Ker-shaw et al., 1999; Muramatsu et al., 1988; Osterc und Stibilj, 2008; Raisbeck et al., 1995]. Genannt sei auch eine von Hou et al. angefertigte Arbeit, die sich mit ^{129}I in chinesischen Schilddrüsen und Seetang beschäftigt [Hou et al., 2000b]

5.5 Strömungsverhältnisse in der Nordsee und im Nordatlantik

Radionuklide können als Tracer, das heißt als Spurenstoff für Wasserbewegungen und Strömungsverhältnisse verwendet werden. Tracer sollten sich konservativ verhalten, d. h. sie sollen dem Transportweg des Wassers folgen. Neben den beobachteten Quellen sollte es keine weiteren Quellen oder Senken geben. Ein gut zu handhabender Tracer verfügt über eine kleine Nachweisgrenze und ist idealerweise leicht experimentell zu bestimmen. Verfügt ein Tracer über eine lange Halbwertszeit, wie z. B. das Iod-129, so ist der radioaktive Zerfall seit Beginn anthropogener Freisetzungen vernachlässigbar.

Erfüllen ein oder mehrere Tracer in hinreichendem Maße diese Anforderungen, können sie zur Bestimmung von Transport- und Verweilzeiten verwendet werden. Bei Eintrag einer bekannten Menge des Tracers an einem bestimmten Ort und zu einer bekannten Zeit kann die Transportzeit zu einem der Strömung folgenden Punkt nach Bestimmung des dortigen Meßsignals berechnet werden. Grundsätzlich ist eine zeitlich hochaufgelöste Eintragsfunktion hilfreich, ebenso trägt ein engmaschiges Meßprogramm am Beprobungspunkt zur Genauigkeit der Ergebnisse bei. Dabei können anstelle von Radionukliden ebenso Nährstoffe oder sonstige organische Substanzen genutzt werden, wenn diese im Wasser hinreichend stabil und gut löslich sind [Andersson und Rydberg, 1988; Jones et al., 1998].

Anthropogenes ^{129}I und ^{99}Tc aus La Hague und Sellafield sind für Transportzeitberechnungen besonders nützlich, weil es bis auf diese WAA in Westeuropa derzeit keine weiteren signifikanten Quellen gibt. Ferner sind die natürlichen Hintergrundkonzentrationen und der Beitrag aus Kernwaffentests sehr gering. Oftmals werden neben ^{129}I auch weitere Radionuklide wie z. B. ^{90}Sr , ^{125}Sb , ^{137}Cs und das angesprochene ^{99}Tc quantifiziert, da sich aufgrund der unterschiedlichen Emissionsmuster der beiden WAA die dominierende Quelle der Kontamination an einem Probenahmepunkt ermitteln läßt. Dabei sind $^{129}\text{I}/\text{X}$ -Isotopenverhältnisse hilfreich, wobei X für ein weiteres, gut lösliches anthropogenes Radionuklid steht [Raisbeck et al., 1995]. Es werden häufig Mischkontaminationen angetroffen, die durch die Emissionen beider WAA verursacht werden.

Die Strömungsverhältnisse in der Nordsee und im Nordatlantik können auf Grundlage der eben beschriebenen Traceranalytik ermittelt werden. Dabei wird auf die Historie der Techn-

tiumanalysen nicht im Detail eingegangen. Eine Auswahl einiger Arbeiten, die sich mit Technetium-99 als Tracer beschäftigen, liefert Informationen zur experimentellen Vorgehensweise und Berechnungen [Aarkrog *et al.*, 1988; Dahlgaard, 1995a; Dahlgaard *et al.*, 1995a; Dahlgaard *et al.*, 1995b; Dahlgaard *et al.*, 1995c; Dahlgaard *et al.*, 1995d; Kershaw *et al.*, 1999; Mas *et al.*, 2004; Nies *et al.*, 2000]. Die für diese Arbeit wichtigsten Erkenntnisse werden kurz vorgestellt.

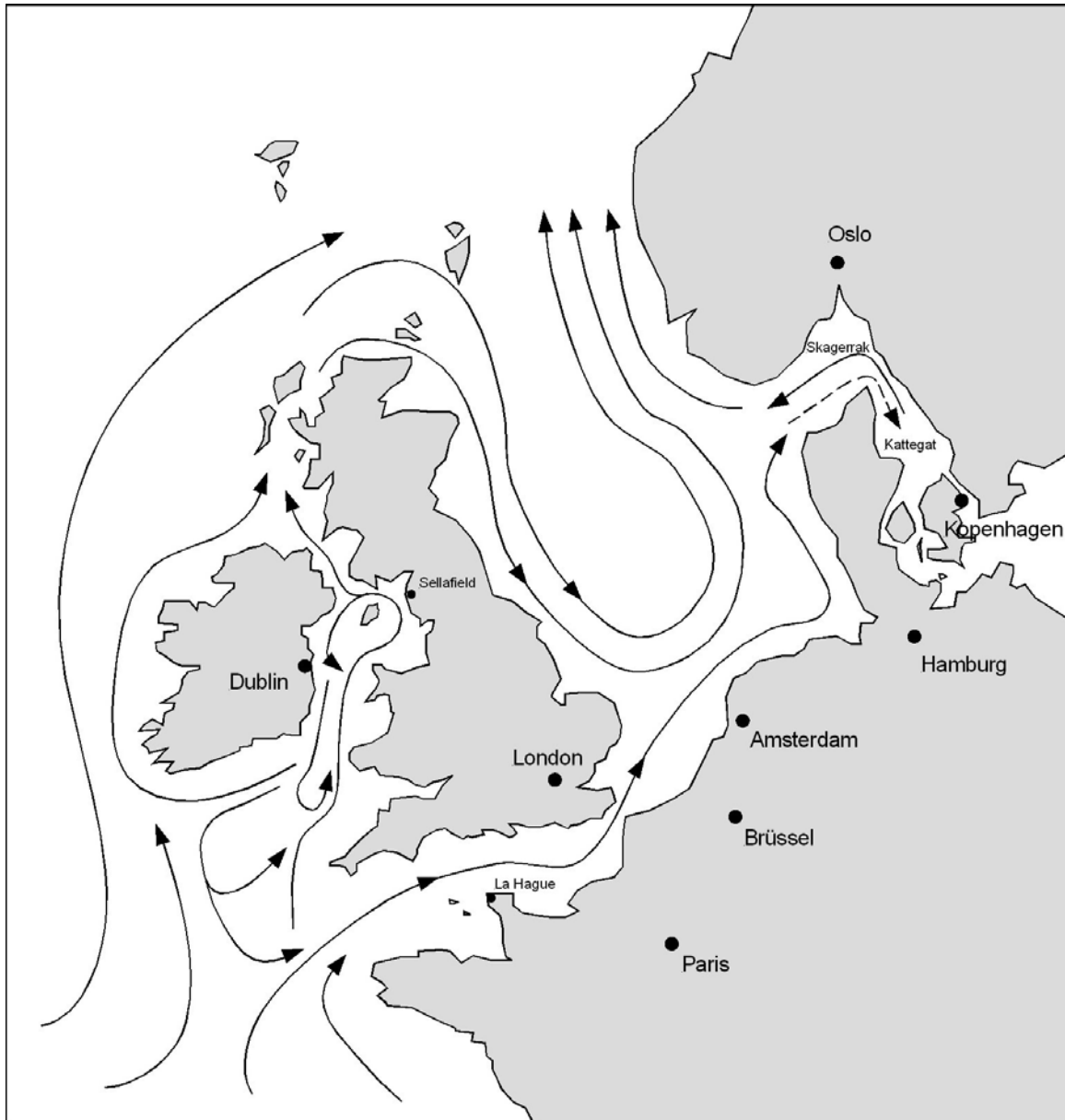


Abbildung 15: Vereinfachte Darstellung der Strömungsverhältnisse in der Nordsee und der Irischen See. Durchgezogene Pfeile zeigen die Strömungsrichtung des Oberflächenwassers, der gestrichelte Pfeil steht für die Bewegung des Tiefenwassers.

Abbildung 15 zeigt vereinfacht die Strömungsverhältnisse in der Irischen See, der Nordsee, im Skagerrak und im Kattégat. Aus dem Golf von der Biscaya und dem Atlantischen Ozean kommend dringen die Wassermassen in den Englischen Kanal ein. Der Europäische Küstenstrom führt an La Hague vorbei entlang der französischen, belgischen, niederländischen und

deutschen Küste bis nach Dänemark. Aus dem südöstlichen Teil der Nordsee (Bereich Elbmündung) erfolgt der weitere Transport in nördlicher Richtung zum Skagerrak. Der Skagerrak ist zusammen mit dem Kattegat der Übergangsbereich von der Nordsee zur Ostsee. Das aufgrund der größeren Salinität eine größere Dichte besitzende Nordseewasser dringt in den unteren Wasserschichten in diesen Bereich ein. Wegen der dortigen geographischen Gegebenheiten findet nur ein schleppender Austausch zwischen Nord- und Ostseewasser statt [Andersson und Rydberg, 1988; Hou et al., 2000a]. Nur etwa 10 % der aus La Hague und 2 % der aus Sellafield stammenden Emissionen finden den Weg in das Kattegat. Ein Drittel des in der Tiefe in das Kattegat strömenden Wassers stammt aus dem Europäischen Küstenstrom, der am westeuropäischen Festland vorbeifließt [Dahlgaard, 1995a]. Der Rest ist anderen Quellen wie der zentralen Nordsee aber auch dem Nordatlantik zuzurechnen.

Ausgehend von Sellafield fließt ein Großteil der Wassermassen in Richtung Norden durch den Nordkanal zwischen Irland und Schottland. Dort vereinigt sich das aus der Irischen See stammende Wasser mit Wasser aus dem Atlantischen Ozean, das von dem Nordatlantischen Strom, auch NAC (North Atlantic Current) genannt, transportiert wird. Das Wasser fließt um die Nordküste Schottlands und tritt an der Ostküste Schottlands in die Nordsee ein. Relativ dicht an der Ostküste erfolgt der Transport in südlicher Richtung, bevor der Strom nach Osten abknickt. Dieses Abknicken der Strömungsrichtung unterliegt mehreren Faktoren und ist je nach Wetterlage, Gezeiten usw. variabel [Herrmann et al., 1995], so daß die Darstellung in Abbildung 15 nur das grundlegende Transportmuster wiedergeben kann. Innerhalb der zentralen Nordsee verweilen die Wassermassen sehr lange, während in den näher zur Küste gelegenen Bereichen ein zügiger Weitertransport stattfindet. Radionuklide können in der zentralen Nordsee über viele Jahre verharren.

Aus der Irischen See fließt neben der nach Norden gerichteten Hauptströmungsrichtung auch ein Teil gen Süden in den Sankt-Georgs-Kanal zwischen Irland und Wales. Die Strömungsverhältnisse in diesem Bereich sind kompliziert und noch nicht vollständig verstanden. Vom Sankt-Georgs-Kanal aus fließt ein Teil des Wassers zurück in die Irische See, ein anderer Teil strömt noch weiter südlich in den Englischen Kanal und ein dritter Teil bahnt sich seinen Weg um Irland herum und vermischt sich an der Westküste Schottlands mit dem aus der Irischen See stammenden Wasser [Keogh et al., 2007].

In einer umfangreichen und oft zitierten Arbeit bestimmte Dahlgaard die Transportzeiten einiger Radionuklide von den WAA zu verschiedenen Bereichen der Nordsee und des Nordatlantikraumes. Von Sellafield bis in die Deutsche Bucht ist eine Transportzeit von drei Jahren anzunehmen, bis in das Kattegat dauert es vier Jahre. Von Sellafield bis zur Teilung des norwegischen Küstenstroms in Höhe der Lofoten werden vier Jahre benötigt, nach Spitzbergen dauert es ein und in die Barentssee ein bis zwei weitere Jahre [Dahlgaard, 1995c].

Von La Hague aus nehmen die Transportzeiten zu den oben genannten Orten zwei Jahre weniger in Anspruch. Von La Hague in die Deutsche Bucht dauert der Transport demnach nur ein Jahr [Dahlgaard, 1995c]. Dahlgaard löste die Transportzeiten von La Hague ausgehend genauer auf. Bis zur Straße von Dover werden vier bis sieben Monate, zur Station Borkumriff elf und bis zur Station Elbe 1 werden 14 Monate benötigt [Dahlgaard, 1995a]. Bis zur Südwestküste Norwegens benötigt das Wasser aus La Hague 17 bis 18 Monate [Dahlgaard et al., 1995c].

Aus der Ostsee in die Nordsee einströmendes Wasser vermischt sich wegen der angesprochenen Dichteunterschieds nur langsam mit dem Nordseewasser. Es fließt in der oberen Wasserschicht um die norwegische Küste in das Europäische Nordmeer, welches bisweilen auch als Nordostatlantik bezeichnet wird.

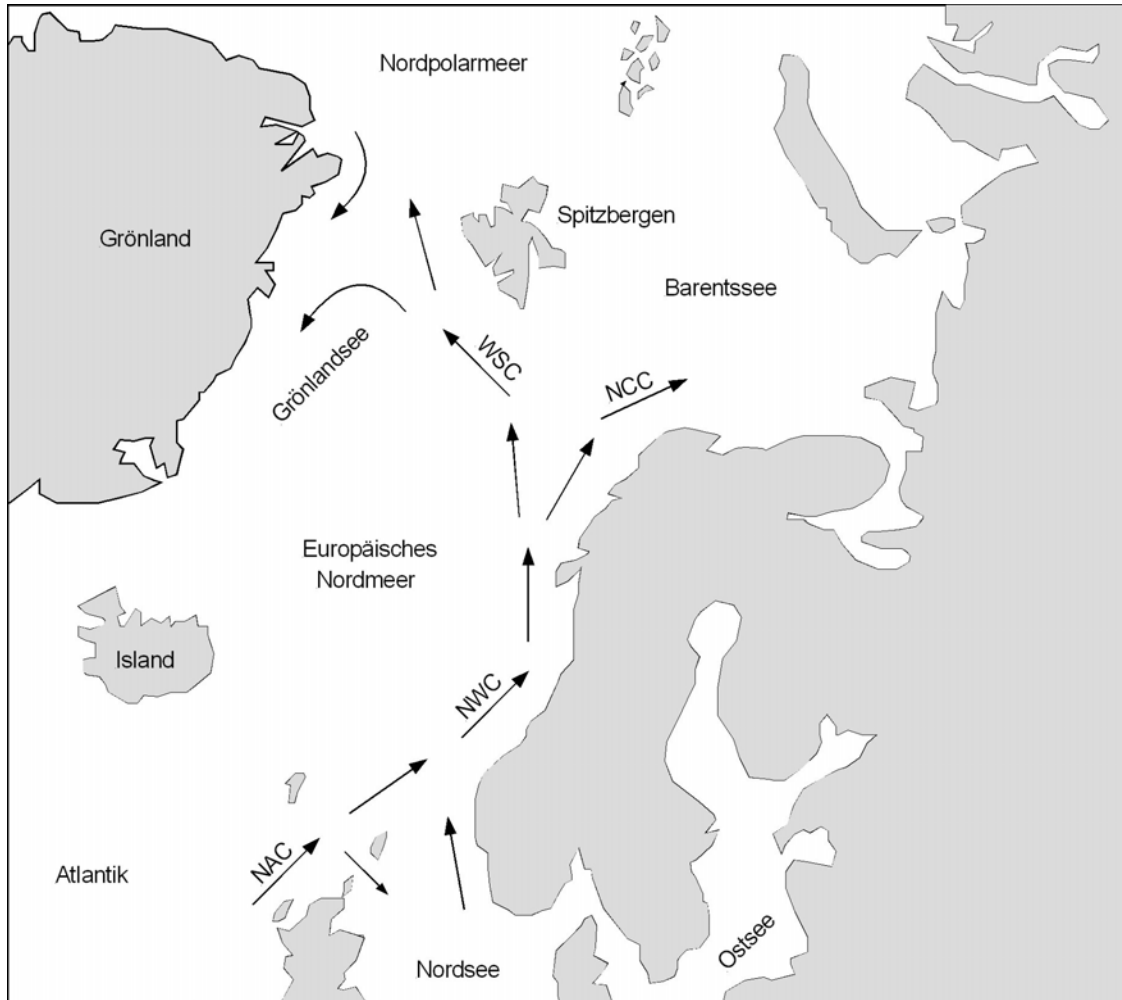


Abbildung 16: Strömungsverhältnisse des Oberflächenwassers im Nordostatlantik (Europäisches Nordmeer) nach Dahlggaard [Dahlggaard, 1995c].

NAC = North Atlantic Current

NWC = Norwegian Coastal Current

WSC = West Spitsbergen Current

NCC = North Cape Current.

Abbildung 16 zeigt die Strömungsrichtungen des Oberflächenwassers in dem Europäischen Nordmeer. Dort ist für die wesentliche Strömung der in der Literatur als NWC bezeichnete Norwegische Küstenstrom (Norwegian Coastal Current) verantwortlich, der sich in Höhe der Lofoten in den Westspitzbergen Strom (WSC) und den Nordkapstrom (NCC) teilt. Der Nordkapstrom passiert das Nordkap und mündet in der Barentssee. Die Westspitzbergen Strömung ist nördlich gerichtet und transportiert das Wasser westlich von Spitzbergen, wo es zu Verwirbelungen kommt, in das zentrale Nordpolarmeer [Dahlggaard et al., 1995a; Edmonds et al., 2001; Yiou et al., 2002]. Etwa ein Viertel des Wassers findet den Weg von Norwegen in

Richtung Spitzbergen, drei Viertel fließen entlang der norwegischen Küste mit dem North Cape Current in die Barentssee [Alfimov, 2005; Gascard et al., 2004].

Die Strömungsverhältnisse an der Oberfläche und im Tiefenwasser des Nordpolarmeeres sind noch nicht vollständig verstanden, einige Arbeiten beschäftigen sich mit dieser interessanten Materie [Alfimov, 2005; Alfimov et al., 2004b; Edmonds et al., 2001; Jones, 2001; Jones et al., 1995]. Das Nordpolarmeer liegt außerhalb des Beprobungsgebietes dieser Arbeit, so daß darauf nicht weiter eingegangen wird. Auch über Radionuklide in der Barentssee und der Grönlandsee gibt es wissenschaftliche Arbeiten [Aarkrog et al., 1987; Aarkrog et al., 1983; Holm et al., 1983]. Die Grönlandsee liegt zwischen Grönland, Spitzbergen und Island. Von Sellafield bis in die Grönlandsee wird der Wassertransport auf 7-10 Jahre beziffert, Aarkrog et al. sowie Raisbeck und Yiou beschäftigen sich mit den dortigen Wasserbewegungen. [Aarkrog et al., 1983; Raisbeck und Yiou, 1999].

6 Probenherkunft und Probennahme

In diesem Kapitel werden die Probennahmen und die beprobten Gebiete vorgestellt. Im Anhang III befinden sich einige ergänzende Abbildungen, die die Probennahme dokumentieren. Umfangreiche Beprobungsfahrten von Forschungsschiffen (FS) sind in Kartenwerken mit Stationsnetzen visualisiert. Einige Karten wurden vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg bereitgestellt.

6.1 Probennahme und Lagerung: Seewasser

Die zu untersuchenden Wasserproben wurden im Zeitraum von Mai 2005 bis August 2008 während mehrerer Beprobungsfahrten der „Gauß“, der „Polarstern“, der „Deneb“ und der „Endeavour“ sowie zwei gesonderter Probennahmekampagnen durch das ZSR gewonnen. Während der Augustreise im Jahr 2005 wurden die gesamte Nordsee und der Englische Kanal beprobt, Abbildung 18 zeigt das Stationsnetz dieser Reise. Die auf dieser Fahrt genommenen Wasserproben stellen den überwiegenden Teil des zu analysierenden Materials. Tabelle 16 zeigt eine Zusammenfassung der umfangreichsten Probennahmen. Darüber hinaus existieren noch einige exotische Einzelproben von Hawaii, Spitzbergen, aus dem Indischen Ozean und aus dem Nil.

Tabelle 16: Zusammenstellung der Beprobungen für die in dieser Arbeit durchgeführten Seewasseranalysen.

Beprobung	Zeitraum	Beprobungsgebiet	Forschungsschiff, Fahrtnummer
1	25.05.-05.06.2005	Deutsche Bucht	Gauß, 440
2	10.08.-28.08.2005	Nordsee, Englischer Kanal	Gauß, 446a
3	29.08.-05.09.2005	Deutsche Bucht	Gauß, 446b
4	16.08.-16.09.2005	Nordostatlantik/Nordmeer	Polarstern
5	18.11.-28.11.2005	Deutsche Bucht	Gauß, 451
6	15.06.-16.06.2006	Ostsee	Gauß, 461
7	23.06.-25.06.2006	Irische See	Endeavour 13/06
8	30.07.-06.08.2006	Irische See, schottische Küste	a)
9	12.06.-19.06.2007	Ostsee	Deneb, 80
10	09.08.2008	Spiekeroog, See- und Wattseite	b)

a) Probennahme durch das ZSR in Ufernähe.

b) Probennahme durch das ZSR und Frau Rita Land in Ufernähe

Seit 2005 wurden immer wieder Proben aus der Deutschen Bucht an das ZSR verbracht, die bei Routinefahrten des Forschungsschiffes Gauß entnommen wurden. So existieren von einigen Punkten kleine Zeitreihen. Abbildung 17 zeigt die Lage der Stationen in der Deutschen Bucht, die regelmäßig vom BSH angelaufen werden. Für die Iodanalytik wurde

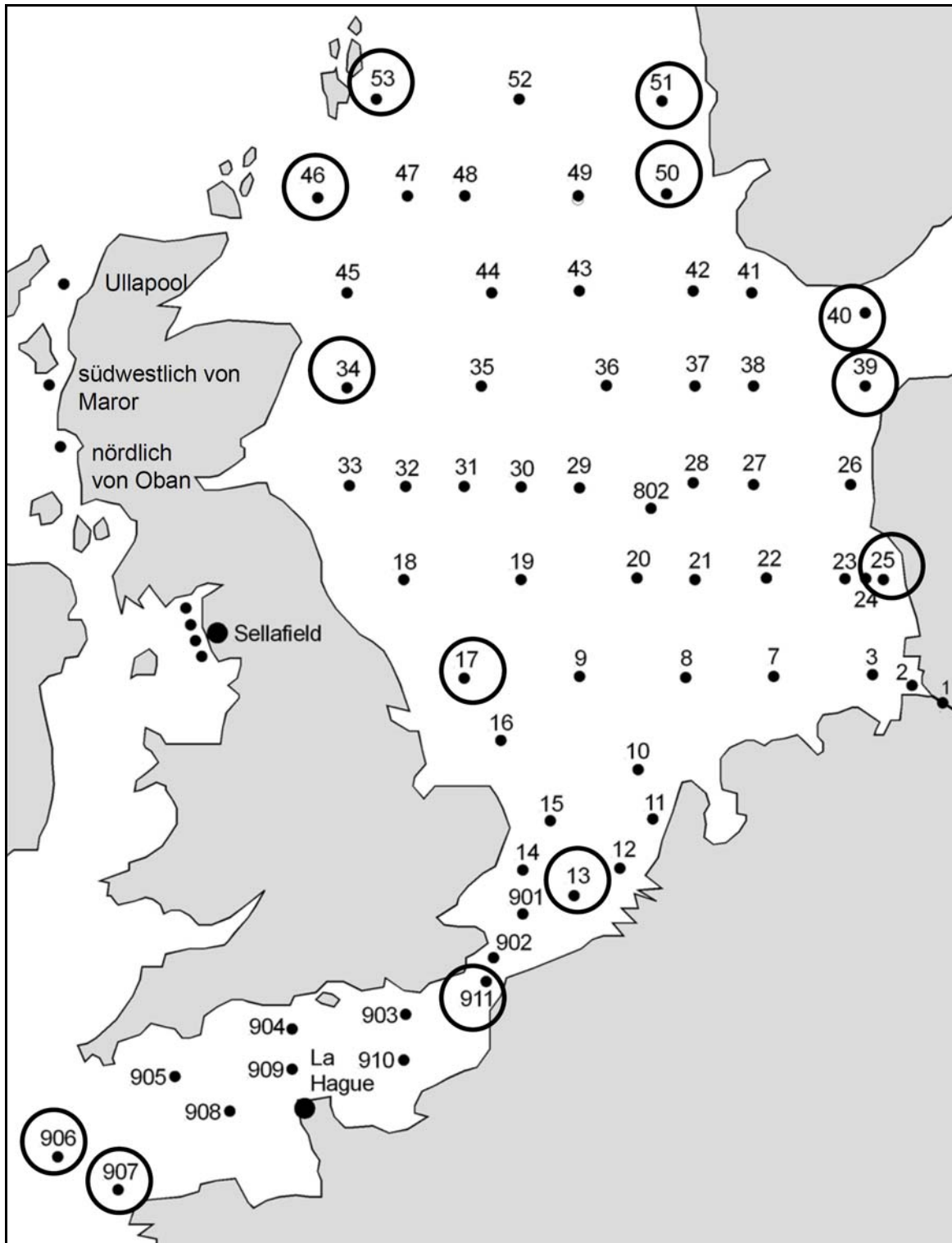


Abbildung 18: Stationsnetz und Stationsnummern der Nordseereise vom August 2005. Zusätzlich sind die Probeentnahmeorte der Irischen See und von der schottischen Küste aus dem Jahre 2006 eingezeichnet. Bei den eingekreisten Stationen wurden Tiefenprofile entnommen.

Ein weiterer großer Datensatz wurde nach der Beprobung der Ostsee durch das Forschungsschiff Deneb im Juni 2007 geschaffen. Neben der in dieser Arbeit durchgeführten Iodanalytik

erfolgte vom BSH im Rahmen der Gewässerüberwachung eine Kartierung der Radionuklide ^{134}Cs , ^{137}Cs und an ausgewählten Stationen auch von ^{90}Sr in der Ostsee.

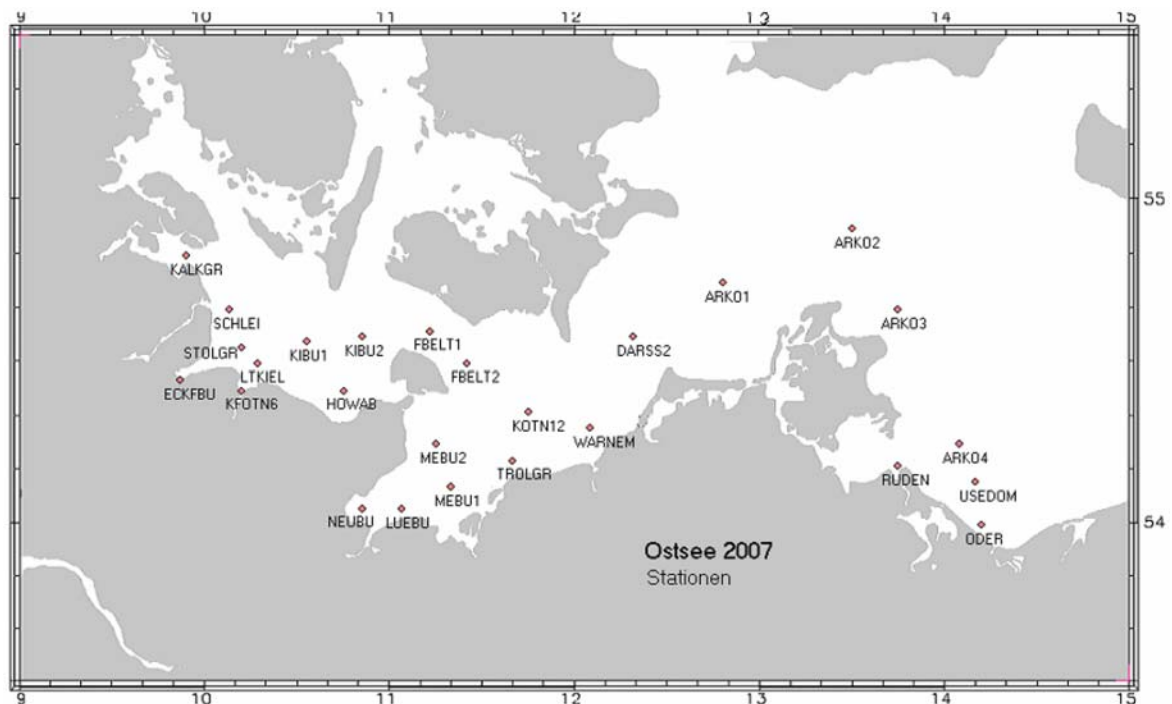


Abbildung 19: Stationsnetz und Stationsnamen der Ostseebeprobung vom Juni 2007 durch das FS Deneb (Fahrtnummer 80).

Die vom BSH vergebenen Stationsnamen und -nummern aus Nord- und Ostsee werden für die in Abschnitt 10 geführte Diskussion verwendet.

6.2 Probennahme und Lagerung: Sedimente

Die prä nuklearen Sedimente wurden vom BSH in Hamburg aus dem dortigen Archiv zur Verfügung gestellt. Über die Probennahmebedingungen ist mit Ausnahme der Koordinaten und Datumsangaben nichts bekannt. Die prä nuklearen Ostseesedimente wurden im BSH in Pappschachteln gelagert, die Sedimente aus der Nordsee wurden zwischenzeitlich in PE-Beutel umgefüllt. Tabelle 17 faßt die zu den Ostseesedimenten gehörigen Daten zusammen. Unter dem Gewicht ist die gesamte Trockenmasse des Sediments zu verstehen. Bezüglich des fünften Ostseesediments ist die Dokumentation lückenhaft.

Tabelle 17: Vom BSH bereitgestellte prä nukleare Sedimente aus dem Ostseeraum.

ZSR-Nr.	Nr. BSH	Entnahmedatum	Koordinaten	Gewicht in g
1	215/56a	10.05.1938	55°8,0 N 16°45,0 E	307,76
2	215/99	20.08.1937	59°3,5 N 19°0,0 E	829,38
3	215/58b	15.07.1939	55°32,5 N 18°3,0 E	268,79
4	215/57b	21.09.1938	55°13,5 N 17°43,0 E	745,41
5	215/66	1939	56° ? N 16° ? E	834,10

Auch die Dokumentation über die Sedimente aus der Nordsee ist unvollständig. Entscheidend ist, daß die Probennahmen vor Beginn der Freisetzungen von anthropogenen Radionukliden stattfanden. Tabelle 18 zeigt die zu den Sedimenten gehörigen Daten. Für die weitere Diskussion wird die ZSR-Numerierung verwendet.

Tabelle 18: Vom BSH bereitgestellte prä nukleare Sedimente aus der Nordsee

ZSR-Nr.	Nr. BSH	Entnahmedatum	Koordinaten	Gewicht in g
6	216/45b	20.07.1937	54° ? N 5° ? E	134,18
7	216/51	1937	55° ? N 1° ? E	224,71
8	216/41	10.06.1937	54° ? N 1° ? E	244,88
9	216/40	08.06.1937	54° ? N 0° ? E	223,49

Das zu untersuchende aktuelle Sediment von Station KS 11 wurde mit einem Kastengreifer entnommen, der in Abbildung 92 im Anhang III zu sehen ist. Das Sediment war nahezu schwarz und aufgrund von Zersetzungsprozessen roch es nach Schwefelwasserstoff, Abbildung 94 im Anhang III zeigt eine Seitenansicht des Sedimentes.

In das Sediment wurde gemäß Abbildung 93 im Anhang III ein unter Unterdruck stehendes Kunststoffrohr getrieben. Danach wurde der Kasten geöffnet und das Rohr, welches nun mit dem Sedimentprofil gefüllt war, entnommen. Unten beginnend erfolgte aus dem Rohr die Abtrennung von 3 cm dicken Scheiben, die in Gefrierdosen überführt wurden. Die verschlossenen Dosen wurden in Polyethylenbeutel eingeschweißt. Die gewählte Art der Zerlegung minimiert Verschleppungen und Kreuzkontaminationen, denn es war anzunehmen, daß sich in den untersten Schichten des Sediments die geringsten ^{129}I -Konzentrationen befanden. Von den oberen Schichten wurden 1 cm dicke Scheiben angefertigt, um den jüngeren Eintrag von anthropogenem Iod-129 möglichst gut aufzulösen. Die Scheiben des Profils wurden eingefroren und später am ZSR beginnend bei den untersten Sedimentschichten gefriergetrocknet. Die Gefrierdrying gewährleistet eine schonende Entfernung der Feuchtigkeit, unter den herrschenden Bedingungen wird nicht mit einem Verlust des Iods gerechnet. Der Trocknungsprozeß minimiert zusätzlich die biologische Aktivität, so daß die Bildung flüchtiger Iodspezies weitgehend verhindert wird. Das getrocknete Sediment war sehr feinpulverig und ließ sich ohne Weiteres homogenisieren. Ein Iodverlust vor der Aufarbeitung würde das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in der Probe nicht verändern, da anzunehmen ist, daß

Iod-127 und Iod-129 gleichermaßen verloren gingen. Minderbefunde in der Iod-127-Bestimmung wären die Folge. Letztendlich bleibt aber das Isotopenverhältnis bei Beurteilung der Ergebnisse relevant, da es das Ausmaß der Veränderung durch den Menschen angibt (s. Abschnitt 1.2). Die getrockneten Sedimente wurden in Gefrierdosen gefüllt und eingeschweißt. Die Lagerung erfolgte bei Standardbedingungen unter Lichtausschluß.

6.3 Allgemeine Probenparameter

Den Schwerpunkt dieser Arbeit und auch des Strahlenschutzvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] stellt das Probenmaterial der Nordseereise von August 2005 dar. Während dieser Reise wurde eine ozeanographisch-chemisch-radiologische Gesamtaufnahme der Deutschen Bucht, des Englischen Kanals und der Nordsee mit Hilfe eines geschleppten CTD Systems („Conductivity, Temperature, Depth“) durchgeführt. Darunter versteht man eine Sonde, mit der Leitfähigkeit, Temperatur und Tiefe gemessen werden können.

Folgende für die Iodanalytik relevanten Geräte wurden bei der Augustreise 2005 des FS Gauß verwendet:

- CTD/Rosette (Seabird SBE 19 mit Sauerstoffsensor und Fluorometer, 12poliger Kranzwasserschöpfer mit 10 l Schöpfern)
- Delphin (Standardversion mit CTD, Fluorometer, AMT-Sauerstoffsensor)
- Thermosalinograph Seabird mit Trübungs- und Gelbstoffsensor

Die Untersuchung der Wasserproben umfaßt neben der Radioanalytik auch umfangreiche Nährstoffanalysen. Orthophosphat-, Silikat-, Nitrat-, Nitrit- und Ammoniumgehalte wurden in einem für Nährstoffanalysen hergerichteten BSH-Container, der an die Strom- und Wasserversorgung der Gauß angeschlossen war, photometrisch bestimmt. Diese Messungen erfolgten parallel an einem SFAS (Segmented Flow Analysis System). Es wurden routinemäßig mit einem Thermosalinographen Temperatur und Salinität bei jeder Station ermittelt, zusätzlich wurden Sauerstoffgehalte aufgezeichnet. Bei nahezu allen Tiefenprofilen stehen die Werte auch für die entsprechenden Tiefen zur Verfügung, so daß ein sehr großer Datensatz vorhanden war, bevor mit den eigentlichen Arbeiten der Iodanalytik begonnen wurde (s. Tabelle 58 im Anhang II).

Die Ergebnisse der Iodanalysen werden nicht in Hinblick auf die Nährstoffgehalte und die organische Schadstoffanalytik diskutiert, daher wird hier auf deren Ergebnisse nicht näher eingegangen. Neben den allgemeinen Probenparametern wie Datum und Ort (Stationsname oder -nummer, Koordinaten) werden Temperaturen, Salinitäten, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen, ^{127}I -Konzentrationen und die ^{129}I -Konzentrationen in den Ergebnistabellen im Anhang I zusammengefaßt.

Die anderen Probenahmekampagnen in der Deutschen Bucht, Irischen See, Ostsee und dem Nordatlantik liefern weitere Informationen über den Zustand der benachbarten Meere, allerdings stehen bei diesen Proben, wie auch bei den durch das ZSR entnommenen Proben, weniger begleitende Probenparameter zur Verfügung.

6.4 Analysen weiterer Radionuklide im Oberflächenwasser der Nordsee im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481

In Zusammenarbeit mit mehreren an dem Strahlenschutzvorhaben 4481 beteiligten Institutionen wurden die Oberflächenwasserproben der Nordsee und dem Englischen Kanal von der Augustreise 2005 auf weitere anthropogene Radionuklide untersucht [Nies *et al.*, 2008]. Neben Iod-129 sowie dem stabilen Iod-127 sind dies Tritium (^3H), Strontium-90, Technetium-99, Cäsium-137, Plutonium-238, Plutonium-239+240 und Americium-241. Zusätzlich wurden einige Proben aus der Irischen See analysiert. Unter Projektleitung des BSH in Hamburg waren das ZSR, die ETH Zürich, die norwegische Strahlenschutzbehörde NRPA und das Forschungszentrum Risø in Dänemark an dem Strahlenschutzvorhaben 4481 beteiligt. Ein Teil der Erkenntnisse wurde in dem Abschlußbericht des Forschungsvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] veröffentlicht, das vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), einer dem Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) untergeordneten Behörde, gefördert wurde. Auf die experimentellen Arbeiten der Projektpartner wird nur kurz eingegangen, deren Ergebnisse werden für die Diskussion und Interpretation der Iodergebnisse verwendet.

Der Bedarf an Probenwasser war je nach Nuklid unterschiedlich. Die Analysen von ^{137}Cs , ^{99}Tc und den Transuranen erforderten jeweils 100 l Wasser. Bei ^{90}Sr reichten 70 l und bei Tritium wurde 1 l Probenwasser benötigt. Die Kanister wurden mit Wasser aus der Bordseewasserleitung (BSWL) gefüllt, damit herrschen für die genannten Nuklide dieselben Probenahmebedingungen.

6.4.1 Quantifizierung von Tritium

Vor der Bestimmung der Tritiumaktivität mußte die Salzmatrix durch eine Destillation abgetrennt werden. 0,5 bis 1,0 l Probenwasser wurden für die Aufarbeitung eingesetzt. Es folgte eine elektrolytische Anreicherung. Die Messung der Betaaktivität geschah in einem low-level Flüssigszintillationszähler (Quantulus), dessen Wirkungsgrad mit internationalen Standards bestimmt wurde.

6.4.2 Quantifizierung von Technetium-99

Technetium-99 wurde über einen Ionenaustauscher aus dem Meerwasser abgetrennt, mit 14,4 M HNO_3 eluiert, radiochemisch gereinigt und auf einem Edelstahlplättchen elektrolytisch abgeschieden. Metastabiles $^{99\text{m}}\text{Tc}$ wurde als chemischer Ausbeutetracer verwendet. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ kann mit einem kommerziell hergestellten Generator erzeugt werden, es verfügt über eine Halbwertszeit von sechs Stunden.

Aufgrund der langen Halbwertszeit des ^{99}Tc von $2,1 \cdot 10^5$ Jahren sind Meßzeiten von einer Woche auf einem low-level Betacounter erforderlich. Wassermengen von 100 l müssen für die Analytik eingesetzt werden. Internationale Standards wurden zur Qualitätssicherung eingesetzt.

6.4.3 Quantifizierung von Strontium-90 und Cäsium-137

Strontium-90 wurde mit einem low-level Betacounter und Cäsium-137 gammaspektrometrisch bestimmt. Cäsium-137 wurde mit $K_2Co(Fe(CN)_6)$ aus 100 l Wasser entfernt und anschließend der Gammaspektrometrie unterzogen.

Die Bestimmung von Strontium-90 erfolgt durch Abtrennung des Tochternuklids ^{90}Y aus den Seewasserproben nach Flüssig-Flüssig-Extraktion mit DEHP (Diisooctyl-hydrogenphosphat). Nach radiochemischer Reinigung wurde das Yttrium-90 als Oxalat gefällt, thermisch zersetzt und der Aktivitätsabfall in einem low-level Betacounter gemessen.

6.4.4 Quantifizierung der Transurane: Plutonium-238, Plutonium-239+240, Americium-241

Aus 100 bis 200 l der ungefilterten Seewasserproben werden die Transurane an Eisenhydroxid mitgefällt und danach nuklidspezifisch isoliert. Als interne Standards wurden Plutonium-242 und Americium-243 zugesetzt. Ein sogenanntes „masseloses Meßpräparat“ wird nach elektrolytischer Abscheidung an Edelstahlplättchen erhalten. Darunter versteht man eine so dünne Belegung der Edelstahlplättchen, daß die Selbstabsorption der Alphastrahlung durch das Meßpräparat vernachlässigbar ist. Die Quantifizierung der alphastrahlenden Nuklide erfolgte an einem Oberflächensperrschichtdetektor. Der Wirkungsgrad der Detektoren wurde mittels international rückführbarer Normalien bestimmt.

7 Experimentelle Quantifizierung von Iod-127 und Iod-129

In diesem Abschnitt werden die Merkmale und Prinzipien der Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) und der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) vorgestellt. Es folgt eine Beschreibung der Probenaufarbeitung, Auswertung und der Qualitätskontrolle. Die bisher am ZSR angefertigten Arbeiten [Ernst, 2003; Klipsch, 2005; Szidat, 2000] und der Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhabens 4285 [Michel *et al.*, 2004] beschäftigen sich ebenfalls mit den angewendeten statistischen Verfahren, die jedoch nicht Schwerpunkt dieser Arbeit sind.

Die ^{127}I -Gehalte wurden unter Zuhilfenahme der Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) am Institut für Anorganische Chemie, Lehrgebiet Analytische Chemie, der Leibniz Universität Hannover bestimmt. Die Analysen bezüglich ^{129}I erfolgten mit Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) am Institut für Ionenstrahlphysik der ETH Zürich am Standort Höggerberg. Die Beschleunigermassenspektrometrie lieferte die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, aus denen nach Bestimmung der ^{127}I -Gehalte an der ICP-MS die Konzentrationen des ^{129}I berechnet wurden.

7.1 Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS)

Ein Massenspektrometer (MS) besteht prinzipiell aus einem Probeneinlaßsystem, Ionisator, Massenseparator und einem Detektor. Das MS trennt im Hochvakuum beschleunigte Ionen in der Gasphase aufgrund ihrer unterschiedlichen Verhältnisse von Masse zu Ladung (m/z). Zu den wichtigsten Anwendungsgebieten zählen die Strukturaufklärung in der organischen Chemie, die Bestimmung von relativen Molekülmassen, die Ermittlung von Isotopenhäufigkeiten und die anorganische Elementanalytik.

Eine wichtige Größe zur Beschreibung eines Massenspektrometers ist dessen Auflösung R .

$$R = \frac{m}{\Delta m} \qquad \text{Gl. 7.1-1}$$

Δm ist dabei die Massendifferenz zu einem benachbarten Peak der Masse m , der gerade noch aufgelöst werden kann. Hochauflösende Geräte besitzen eine Auflösung von $R > 10000$, in niedrigauflösenden Geräten wird nur nach der nominellen Masse getrennt. Man unterscheidet die gängigsten Gerätetypen: Sektorfeld, Quadrupol, time of flight (TOF) und die Ionenfalle. Ein Massenspektrometer kann mit Trennsystemen gekoppelt werden, ein Beispiel dafür ist die in der organischen Analytik viel verwendete GC-MS (Gaschromatographie mit Massenspektrometrie). Je nach Anforderungsprofil finden unterschiedliche Probenzuführungssysteme, Ionisationstechniken, Massenauftrennungssysteme und Detektoren Verwendung. Die Beschreibung in Abschnitt 7.1.1 beschränkt sich auf das bei den Analysen dieser Arbeit verwendete Gerät.

7.1.1 Aufbau und Funktionsweise der ICP-MS

Abbildung 20 zeigt den Aufbau eines Massenspektrometers mit induktiv gekoppeltem Plasma. Die zu analysierende Flüssigkeit wird mit einer peristaltischen Pumpe in die Sprühkammer geleitet. Das Aerosol wird mit dem Trägergasstrom in das Plasma transportiert, wo es zur Atomisierung und Ionisation kommt. Die Massenauftrennung erfolgt durch Ionenlinsen im Vorvakuum und einem Quadrupolmassenfilter im Hochvakuum, bevor der Analyt zum Detektor gelangt.

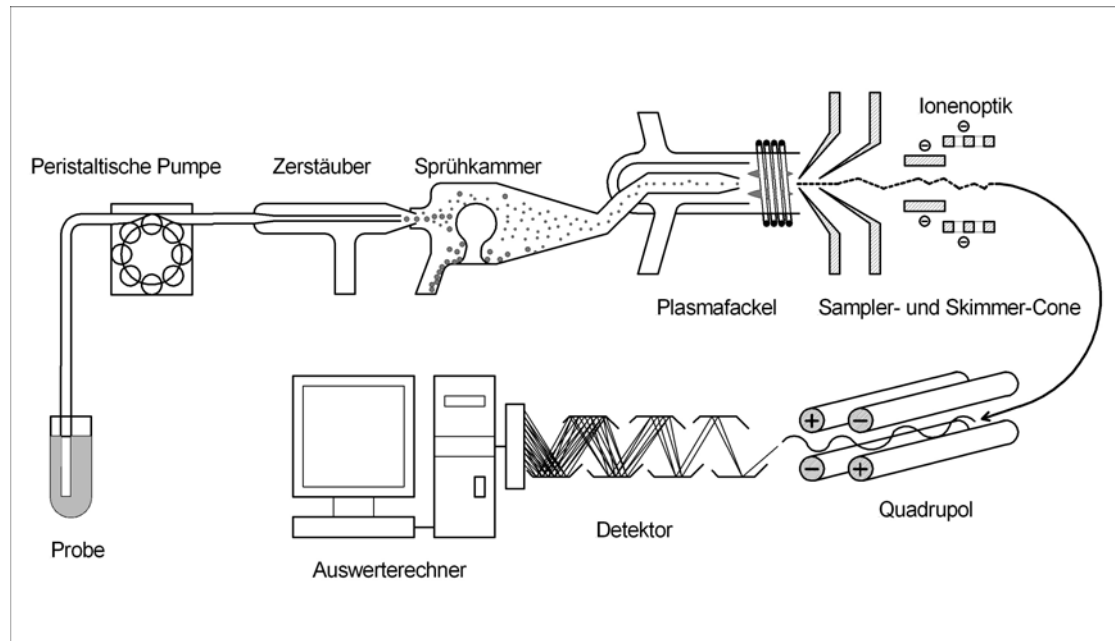


Abbildung 20: Schematischer, nicht maßstabgerechter Aufbau eines ICP-MS-Systems.

Probenzuführung

Die Probenzuführung erfolgt über eine peristaltische Pumpe in einen Meinhard-Zerstäuber, der den Analyten in ein Aerosol überführt. Die zu analysierende Lösung tritt aus einer vom Trägergas konzentrisch umströmten Kapillarspitze aus. In einer Sprüh- oder auch Mischkammer genannten Vorrichtung werden zu große Tropfen abgetrennt und der Analyt mit Hilfe des Trägergases in das Plasma transportiert. Durch zu große Tröpfchen im Plasma wird dessen Stabilität gestört. Kleine Aerosole verdampfen schneller und werden leichter ionisiert. Die Aerosolausbeute liegt bei etwa 5-10 % und wird mit steigendem pH-Wert aufgrund zunehmender Oberflächenspannung verringert.

Ionisation

Das bei Atmosphärendruck arbeitende Plasma ist die Ionisationseinheit. Die Plasmafackel besteht aus drei konzentrischen Quarzröhren mit drei verschiedenen Gasströmen. Im innersten Rohr dringt das Proben-aerosol ins Plasma ein, im mittleren Rohr strömt mit geringer Geschwindigkeit ein Hilfsgasstrom ein. Das äußere Rohr wird vom Plasmaargon durchströmt. Das Argon übt dabei eine kühlende Wirkung aus.

Es wird von Plasma gesprochen, wenn gasförmige Materie in Form freier Moleküle, Ionen und Elektronen vorliegt. Durch den Funken einer Teslaspule werden erste Paare aus freien Elektronen und Ionen generiert. Mit einer Hochfrequenzspule, deren Windungszahl meist zwischen zwei und fünf liegt, wird ein elektromagnetisches Feld erzeugt. Die Frequenz des Feldes liegt bei etwa 20 bis 40 MHz. Das Plasma besitzt eine Leistung von 700-2000 Watt. Die Elektronen werden durch das oszillierende Hochfrequenzfeld beschleunigt und übertragen ihre Bewegungsenergie auf andere Atome, so daß neue Paare von Elektronen und Ionen gebildet werden. Auf diese Weise entstehen die sehr hohen Temperaturen, wodurch eine nahezu vollständige Atomisierung und eine effektive Ionisierung erreicht werden. Durch Stoßionisationen erhöht sich die Anzahl der Ladungsträger, die dem Wechselfeld ausgesetzt sind. So steigt der Anteil der Ladungsträger mit dieser Art Kettenreaktion an, bis sich durch Rekombinationsprozesse ein dynamisches Gleichgewicht bildet. Die verwendete Plasmaleistung lag bei 1200 Watt.

Interface und Ionenoptik - Übergang zum Hochvakuumbereich

An die Ionisationseinheit schließt sich ein Interface an, welches die Übergangsstelle des bei Atmosphärendruck arbeitenden Plasmas und des im Hochvakuum betriebenen Massenspektrometers ist. Es besteht aus einem Probenkonus, auch Sampler-Cone genannt und einem Skimmer-Cone. Es herrscht ein Druck von etwa 1 mbar (Vorvakuum). Der wassergekühlte Sampler-Cone wird direkt in das Plasma eingebracht. Zwischen Sampler-Cone und Skimmer-Cone befindet sich eine kleine Metallplatte, die neutrale Teilchen vom Eindringen in den Hochvakuumbereich abhält. Die aus Ionenlinsen bestehende Ionenoptik lenkt die zu analysierenden Teilchen um diese Metallplatte herum. An den Ionenlinsen liegt ein negatives Potential an, das die Kationen in Richtung des Quadrupols beschleunigt. Es folgt der Übergang in den Hochvakuumbereich. Der Anteil des Analyten, der bis zum Massenseparator vordringt, bestimmt im wesentlichen die Leistungsfähigkeit und Nachweiswahrscheinlichkeit des ICP-MS.

Massenauftrennung im Hochvakuum durch einen Quadrupolmassenfilter

Im Hochvakuumbereich erfolgt die Auftrennung nach dem Masse- zu Ladungsverhältnis (m/z) unter Verwendung eines Quadrupolmassenfilters. Dieser besteht aus vier Metallstäben als Elektroden, die an eine Gleichspannung angeschlossen sind. Die jeweils gegenüberliegenden Elektroden bilden ein Paar gleicher Ladung. Zusätzlich zu der Gleichspannung wird eine um 180° phasenverschobene Hochfrequenzspannung angeschlossen. In Abhängigkeit von der Gleichspannung sowie Frequenz und Amplitude der Wechselspannung erfolgt eine Auftrennung der Ionen nach ihrem m/z -Verhältnis. Die beschleunigten Ionen beschreiben im Quadrupol eine spiralförmige Bahn. Bei vorgegebener Spannung und Amplitude ist nur ein bestimmtes m/z -Verhältnis in der Lage, eine stabile Schraubenbahn zu bilden und zum Detektor zu gelangen. Durch das Variieren dieser Spannungen lassen sich innerhalb kurzer Zeit große Massenbereiche spektrometrisch erfassen.

Die Vorteile des Quadrupols sind seine Robustheit, kurze Meßzeiten und der geringe Preis. Darüber hinaus beansprucht er nur wenig Platz. Im Vergleich zu anderen Massenauftrennungssystemen ist er am weitesten verbreitet. In doppelt fokussierenden Massenspektrometern, in denen eine Auftrennung in einem Magnetfeld und einem elektrischen Feld erfolgt,

können wesentlich höhere Auflösungen erreicht werden. Weit verbreitet sind auch einfache Magnetfeld-Sektorfeld Geräte.

Detektion mit Sekundärelektronenvervielfacher (SEV)

Sekundärelektronenvervielfacher besitzen eine kurze Ansprechzeit und eine große Empfindlichkeit. Das Ion trifft auf eine Konversionsdynode und löst dort analog dem Photoeffekt in einem Photomultiplier 2-3 Elektronen heraus, die in einer nachgeschalteten Dynodenkaskade eine Elektronenlawine auslösen. An einer Auffanganode wird der Strom gemessen. Es wird eine effektive Verstärkung von 10^5 bis 10^8 erreicht. Das Signal wird von einer Auswerteeinheit an einen Rechner übermittelt. Dabei wird die Häufigkeit der Impulse eines m/z -Verhältnisses ausgewertet.

Nachteile des SEV sind der hohe Preis und die beschränkte Lebensdauer aufgrund von Ablagerungen der Neutralteilchen auf der Konversionsdynode. Weitere verbreitete Detektoren sind der Faraday-Becher (Faraday Cup, FC) und der Kanalelektronenvervielfacher. Der FC wird bei der AMS zur Bestimmung der Transmission eingesetzt, s. Abschnitt 7.2.

Störungen und Interferenzen der ICP-MS

Die ICP-MS unterliegt Störungen durch spektrale und nicht spektrale Interferenzen. Spektrale Interferenzen entstehen durch dasselbe m/z -Verhältnis des gesuchten Analyten und einem anderen Ion. Dazu zählen isobare Interferenzen, die bei Isotopen der gleichen Massenzahl auftreten. Die Störung kann prinzipiell umgangen werden, indem man ein Isotop des untersuchten Elements mit einer anderen Massenzahl mißt oder ein hochauflösendes Massenspektrometer verwendet. Die einflußreichsten spektralen Interferenzen werden durch Molekülionen aus der Probenmatrix, dem Plasmagas und der Lösungsmatrix verursacht. Dabei sind etliche Kombinationen verschiedener Isotope und unterschiedlicher Elemente zu berücksichtigen. Einige dieser Störungen lassen sich durch den Einsatz einer Kollisionszelle beseitigen, dies geschieht allerdings auf Kosten einer geringeren Nachweiswahrscheinlichkeit. Diese spektralen Interferenzen sind dafür verantwortlich, daß Iod-129 in Umweltproben bisher nicht mit hochauflösender ICP-MS gemessen werden kann, da das Signal des Iods beim $m/z = 129$ von störenden Ionen (isobare Interferenzen) und Molekülionen überlagert wird (s. dazu auch Abschnitt 7.2). Da Iod-127 in Umweltproben im Vergleich zu Iod-129 mit dem Faktor 10^6 bis 10^{10} im starken Überschuß zugegen ist, stören Peakverbreiterungen des Iod-127 das deutlich schwächere Signal des Iod-129. Zusätzlich überlagern $\text{H}_2^{127}\text{I}^+$ -Ionen das Signal des $^{129}\text{I}^+$. Neben diesen aus der Probenmatrix entstehenden Molekülionen macht das im Plasmagas als Verunreinigung vorhandene Xenon den Einsatz der AMS erforderlich. Natürliches Xenon besteht zu 26,4 % aus ^{129}Xe [Magill et al., 2007]. Die Isotope $^{129}\text{I}^+$ ($m/z = 128,904988$) und $^{129}\text{Xe}^+$ ($m/z = 128,904780$) lassen sich mit der heutigen Gerätetechnik noch nicht trennen.

Nicht spektrale Interferenzen umfassen Änderungen der Aerosolausbeute, des Ionisationsgerades und des Ionenstromes. Auch Memoryeffekte werden zu den nicht spektralen Interferenzen gezählt, sie können durch gründliche Spülgänge minimiert werden. Die Auswirkungen lassen sich durch einen Untergrundabzug beseitigen und stellen somit eine leicht zu korrigierende Störung dar. Die Probenzuführung unterliegt Matrixeffekten, die z. B. durch unterschiedliche Oberflächenspannungen, Viskositäten usw. verursacht werden (s. o.). So

verringert ein zunehmender pH-Wert den Anteil des Analyten, der in das Plasma gelangt. Folglich verringert sich auch der Anteil der entstehenden Ionen. Auch stören hohe Salzfrachten die Probenzuführung. Es kann in den dünnen Schläuchen und der Sprühkammer zu Ablagerungen kommen. Durch das Verdünnen der Proben werden Ablagerungen umgangen. Schwebstoffe führen schnell zu Verstopfungen im Probenzuführungssystem, die sich aber durch ein vorheriges Filtern des Probenmaterials vermeiden lassen. Bei Durchführung der Kalibrierung ist grundsätzlich die Verwendung matrixangepaßter Standards zu empfehlen, da dann annähernd gleiche Bedingungen im Probenzuführungssystem und in der Sprühkammer herrschen. Umfangreiche Untersuchungen bezüglich der Iodanalytik mit ICP-MS wurden von Ernst [Ernst, 2003] vorgenommen.

7.1.2 Vorbereitung und Durchführung der ICP-MS-Messungen

Probenvorbereitung salzreicher Seewasserproben

Die Vorbereitung zur ICP-MS-Analyse beschränkt sich auf das Filtern der Wasserprobe durch einen Zellulosenitratfilter mit einer Porengröße von 0,8 µm. Vor der Messung wurden die Proben üblicherweise im Verhältnis 1:10 verdünnt, um die Salzfrachten zu reduzieren. Eine eingestellte NaOH-Konzentration von 0,01 mol/l gewährleistet eine Hydrolyse der organischen Komponenten. Gleichzeitig verhindert die zugesetzte Base ein Verdampfen des Iods, da keine Umsetzung zu molekularem Iod stattfindet [Ernst, 2003]. Die Ionisierung im Plasma ist nur in sehr geringem Ausmaß durch Matrixeffekte beeinflusst. Die Spezies des vorliegenden Iods (Iodid, Iodat, organisch oder anorganisch gebunden) hat keinen signifikanten Einfluß auf das Ergebnis der ICP-MS Messung [Ernst, 2003], so daß keine Matrixabtrennung nötig ist. Die Probenzuführung unterliegt im Gegensatz zur Ionisierung Matrixeffekten. Das Spülen mit einer Base dient auch der Anpassung des Probenzuführungssystems an die folgende Probe. Die Nachweiswahrscheinlichkeit eines Analyten beschreibt den Anteil der aus der Probe zum Detektor gelangenden Analytionen. Um die Nachweiswahrscheinlichkeit zu verbessern, werden vor Beginn einer Meßreihe die Geräteparameter optimiert. Dabei werden die Einstellungen u. a. an den Cones und Ionenlinsen so variiert, daß eine sogenannte Tuninglösung, die ^9Be , ^{115}In und ^{208}Pb enthält, möglichst hohe Zählraten liefert. Alternativ kann die Optimierung auch mit einem Iodstandard erfolgen.

Durchführung

Zu Beginn jeder Meßreihe und nach jeweils vier Messungen wurde ein Iodstandard (5 ng/g) gemessen, um ein mögliches Gerätedriften zu korrigieren. Die Iodkonzentrationen der zu messenden Proben lagen nach der Verdünnung geringfügig unter 5 ng/g. Die Kalibrationslösungen wurden zur Matrixanpassung in 0,01 molarer Natronlauge angesetzt. Der Kalibrationsbereich lag üblicherweise zwischen 0,5 und 20 ng/g, die Iodgehalte der Kalibrationslösungen betragen 0,5, 1, 2, 5, 10 und 20 ng/g. Nach jeder Messung wurde mit verdünnter Salpetersäure und 0,01 molarer Natronlauge gespült, bis das Detektorsignal im Bereich des am Anfang gemessenen Untergrundes lag und stabil war. Die Salpetersäure entfernt aufgrund ihres Oxidationspotentials mögliche Iodablagerungen in der Sprühkammer. Falls beim Spülen mit Natronlauge ein Driften oder eine relative Standardabweichung des Meßsignals von mehr als 3 % beobachtet wurde, ist ein zusätzlicher Spülgang eingelegt worden. Bei jeder Probe wurden sechs Durchläufe (Runs) mit einer Dwell-time von 3 ms auf-

genommen. Der Gang der Auswertung und Qualitätskontrolle wird im Abschnitt 7.1.3 beschrieben.

Durch Ablagerungen auf den Cones wird die Nachweiswahrscheinlichkeit im Laufe eines Meßtages verringert, so daß die Cones jeden Abend am Ende der Messungen ausgebaut und gründlich gereinigt werden müssen. Die den Wasserproben zugesetzte Natronlauge verursacht recht schnell hartnäckige Beläge. Die in späteren Meßreihen verwendete Base Tetramethylammoniumhydroxid (TMAH) verursacht deutlich weniger Schmutz auf den Cones. Die Salzfrachten werden durch den Einsatz von TMAH reduziert. Gegenüber NaOH bietet TMAH den weiteren Vorteil, daß der Detektor nicht so stark durch einen Natriumeintrag verunreinigt wird. Diese Umstellung führt zu stabileren Meßsignalen. Augenscheinlich waren deutlich geringere Ablagerungen auf den Cones zu sehen. Es wurde so viel TMAH zugesetzt, daß eine Hydroxidionenkonzentration von 0,01 mol/l erhalten wurde. Die Spülgänge verliefen wie oben mit verdünnter Salpetersäure und der neu eingeführten TMAH-Lösung.

Vorbereitung der Ostseewasserproben

Auch die Ostseeproben wurden im Verhältnis 1:10 verdünnt, allerdings wurde hier aufgrund der geringeren Iodgehalte ein Standard mit einer Iodkonzentration von 2 ng/g nach jeweils vier Proben gemessen. Die Kalibrierung erfolgte im Bereich von 0,5 bis 10 ng/g. Wie bei den Nordseewasserproben betrug die mit TMAH eingestellte Hydroxidionenkonzentration 0,01 mol/l.

Sedimente

Die Vorbereitung der Sedimente zur Bestimmung der ^{127}I -Gehalte beschränkt sich auf eine Verdünnung (meistens im Verhältnis 1:1000) und Basenzugabe der nach Verbrennung erhaltenen Absorptionslösung. Die Verdünnungen erfolgten so, daß die zu messende Probe im mittleren Kalibrierungsbereich lag, der sich von 0,5 bis 20 ng/g erstreckte. Die Sedimentverbrennung wird in Abschnitt 7.2.3 beschrieben. Der Auswertegang entspricht dem der Seewasserproben.

7.1.3 Auswertegang der ICP-MS-Messungen

Die ICP-MS-Messung unterliegt verschiedenen Einflüssen, die die Ergebnisse im Laufe einer langen Meßreihe verfälschen können. Dies sind insbesondere Geräteriften und eine nachlassende Nachweiswahrscheinlichkeit aufgrund von Ablagerungen auf dem Probenzuführungssystem und den Cones. Der Änderung der Nachweiswahrscheinlichkeit wird durch Einsatz eines internen Standards Rechnung getragen. Als interner Standard wurde das im Argon des Plasmas vorhandene ^{129}Xe verwendet. Unter Annahme einer gleichen Nachweiswahrscheinlichkeit für $m/z = 127$ und $m/z = 129$ ändert sich das Verhältnis der ^{127}I -Zählraten gegenüber den ^{129}Xe -Zählraten auch bei nachlassender Nachweiswahrscheinlichkeit bei derselben Probe im Laufe eines Meßtages nicht. In den untersuchten Wasserproben ist im Vergleich zum ^{127}I nur sehr wenig ^{129}I zugegen, die Isotopenverhältnisse liegen etwa zwischen 10^{-10} und 10^{-6} . Es kann daher davon ausgegangen werden, daß bei der Bildung des Zählratenverhältnisses von $m/z = 127$ und $m/z = 129$ keine signifikanten Störungen durch ^{129}I auftreten. Das Verhältnis der Zählraten wird für jeden Durchlauf (Run, Index r) aufgenommen, s. Gleichung 7.1-2.

$$Q_r = \frac{N_{127,r}}{N_{129,r}} \quad \text{Gl. 7.1-2}$$

Dabei werden m/z -Bereiche von 126,5 bis 127,3 und 128,5 bis 129,3 detektiert. In jedem Durchlauf wird der vorgegebene m/z -Bereich 100 mal vermessen, die dwell-time, also die Zeit für einen dieser 100 dieser Durchläufe, betrug dabei 3 ms. Sechs Runs werden mit 100 Meßwiederholungen durchgeführt. Die Ergebnisse der Runs werden gemittelt.

$$Q_{\text{brutto}} = \frac{1}{n} \sum_{r=1}^n Q_r \quad \text{Gl. 7.1-3}$$

Das obige, gemittelte Verhältnis wurde für jede Lösung (Proben, Standards und Spüllösungen) aufgenommen. Als Unsicherheit des gemessenen Verhältnisses von $m/z = 127$ und $m/z = 129$ wird die Standardabweichung verwendet.

$$u(Q_{\text{brutto}}) = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{r=1}^n (Q_r - Q_{\text{brutto}})^2} \quad \text{Gl. 7.1-4}$$

Diese Unsicherheit geht in die folgenden Berechnungen nach dem „ISO Guide to the expression of uncertainty in measurement“ in die Fortpflanzung der Unsicherheiten mit ein [ISO, 1995]. Wenn sich ein Wert Y aus mehreren Eingangsgrößen gemäß

$$Y = f(x_1, x_2, \dots, x_n) \quad \text{Gl. 7.1-5}$$

berechnet, so gilt für die Unsicherheit u bzw. das Quadrat der Unsicherheit der berechneten Größe Y :

$$u^2(Y) = \sum_{i=1}^n \left[\left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 \cdot u^2(x_i) \right]. \quad \text{Gl. 7.1-6}$$

Durch Beobachtung des Verhältnisses von $m/z = 127$ und $m/z = 129$ kann verfolgt werden, ob ein Spülvorgang ausreichend war. Zusätzlich wurden auch die Nettointensitäten beobachtet, so daß die hinreichende Entfernung des Iods aus dem Probenzuführungssystem durch die Spülvorgänge kontrolliert werden konnte. Gegebenenfalls mußten weitere Spülgänge eingelegt werden (s. Abschnitt 7.1.2). Der beim Spülen mit Natronlauge vorhandene Untergrund Q_{Base} wird bei der anschließenden Messung (Probe oder Standard) abgezogen, so daß ein Q_{netto} erhalten wird. Ein weiterer Nutzen des Spülvorgangs mit Lauge liegt in der Matrixanpassung des Probenzuführungssystems an die zu messende Probe. In späteren Meßreihen wurde TMAH als Base verwendet, der Auswertegang bleibt davon unberührt. Die Unsicherheit des Untergrundabzugs berechnet sich nach Gl. 7.1-6.

$$Q_{\text{netto}} = Q_{\text{brutto}} - Q_{\text{Base}} \quad \text{Gl. 7.1-7}$$

Eine Meßreihe beginnt mit dem zuerst angeschlossenen Standard (meistens 5 ppb). Jedem Meßwert wird eine genaue Zeit t_x zugeordnet. Die zu Beginn und nach jeweils vier Proben gemessenen Q_{netto} -Werte des mitlaufenden Standards variieren infolge von Gerätedriften. Dieses Driften wird durch eine lineare Regression, die zwischen den gemessenen Standards durchgeführt wird, berücksichtigt. Dabei wird angenommen, daß zwischen den Messungen der Drift linear verläuft. Jeder gemessenen Lösung wird auf diese Weise ein hypothetischer Standard $Q_{\text{netto}}(\text{Std}_{\text{hyp}, t_x})$ als Referenz und die angesprochene Zeit t_x zugewiesen. Es erfolgt eine Normierung auf den zuletzt gemessenen 5ppb Standard, dessen $Q_{\text{netto}, \text{Ende}}$ -Werte während der Kalibrierung am Ende eines Meßtages bestimmt wird. Der Normierungsfaktor $f_{\text{norm}}(t_x)$ zu einer Zeit t_x ist gegeben durch:

$$f_{\text{norm}}(t_x) = \frac{Q_{\text{netto}}(\text{Std}_{\text{hyp}, t_x})}{Q_{\text{netto}}(\text{Std}_{t=\text{Ende}})} \quad \text{Gl. 7.1-8}$$

Die Normierung der Probe P berechnet sich wie folgt:

$$Q_{\text{norm}}(P_{t_x}) = \frac{Q_{\text{netto}}(P_{t_x})}{f_{\text{norm}}(t_x)} \quad \text{Gl. 7.1-9}$$

Dieser normierte Wert wäre zu erwarten, wenn die Probenlösung am Ende des Meßtages während der Kalibrierung bei $t = t_{\text{Ende}}$ gemessen worden wäre. Für alle Proben und für die Standards wird diese Normierung gleichermaßen durchgeführt. Die Kalibrierung geschieht mit selbst angesetzten Standardlösungen, deren Q_{norm} gegen die Konzentrationen aufgetragen werden. Mit der in Excel vorhandenen RGP-Funktion werden neben Steigung m_{Kal} und Achsenabschnitt b_{Kal} auch deren Unsicherheiten berechnet. Die Kalibrierung wird nach

$$Q_{\text{norm}}(\text{Std}_{\text{rd}}) = m_{\text{Kal}} \cdot c_{1-127, \text{Std}_{\text{rd}}} + b_{\text{Kal}} \quad \text{Gl. 7.1-10}$$

durchgeführt. Die Konzentration $c_{127, \text{Probe}}$ des Iod-127 in der Probe ergibt sich zu

$$c_{127, \text{Probe}} = f_{\text{Verd.}} \cdot \frac{Q_{\text{norm}}(P_{t_x}) - b_{\text{Kal}}}{m_{\text{Kal}}}, \quad \text{Gl. 7.1-11}$$

dabei ist $f_{\text{Verd.}}$ der Verdünnungsfaktor, der bei den Meerwasserproben üblicherweise 10 betrug. Die Unsicherheit des Verdünnungsfaktors wurde bei den Berechnungen vernachlässigt. Die Unsicherheit der ^{127}I -Konzentration in der Probenlösung berechnet sich nach dem oben angegebenen Gesetz zur Fortpflanzung der Meßunsicherheiten (Gl. 7.1-6) zu:

$$u(c_{127, \text{Probe}}) = \left[\left(\frac{Q_{\text{norm}}(P_{t_x}) - b_{\text{Kal}}}{m_{\text{Kal}}^2} \right)^2 \cdot u^2(m_{\text{Kal}}) + \left(\frac{-1}{m_{\text{Kal}}} \right)^2 \cdot u^2(b_{\text{Kal}}) + u^2(Q_{\text{norm}}(P_{t_x})) \cdot \left(\frac{1}{m_{\text{Kal}}} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}$$

Gl. 7.1-12

Üblicherweise betragen die relativen Unsicherheiten der ICP-MS-Messungen etwa 3 %.

7.2 Aufbau und Funktionsweise der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) stellt eine besondere Form der Massenspektrometrie dar. Erst seit Anfang der 1980er Jahre steht diese sehr aufwendige Technik zur Verfügung. Bauartbedingt lassen sich mit der AMS nur die Verhältnisse von Isotopen zueinander messen. Oftmals werden ein stabiles Isotop und ein langlebiges Isotop desselben Elements nebeneinander bestimmt. Dabei liegt meistens ein Isotop im großen Überschuss neben dem zweiten Isotop vor. Eine besondere Art der Ionisierung, Unterdrückung der Molekülerferenzen und der Detektion wird in der AMS genutzt. Auf diese Weise werden Nachweisgrenzen in Bereich des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses von 10^{-14} erreicht [Fehn et al., 1986; Stocker et al., 2004; Stocker et al., 2005].

In diesem Abschnitt wird ein Überblick über die wichtigsten Bauteile der AMS und die zugrundeliegenden Prinzipien gegeben. Auf die in früheren Arbeiten verwendete große 6 MV AMS-Anlage, die in Zürich noch in Betrieb ist, wird nur am Rande eingegangen. Alle Messungen wurden an der kleinen Niederenergiemaschine „Tandy“ durchgeführt. Diese kleine Anlage wurde ursprünglich zur Radiocarbonbestimmung entwickelt, Synal et al. beschreiben den Aufbau des Vorläufermodells ausführlich [Synal et al., 2000].

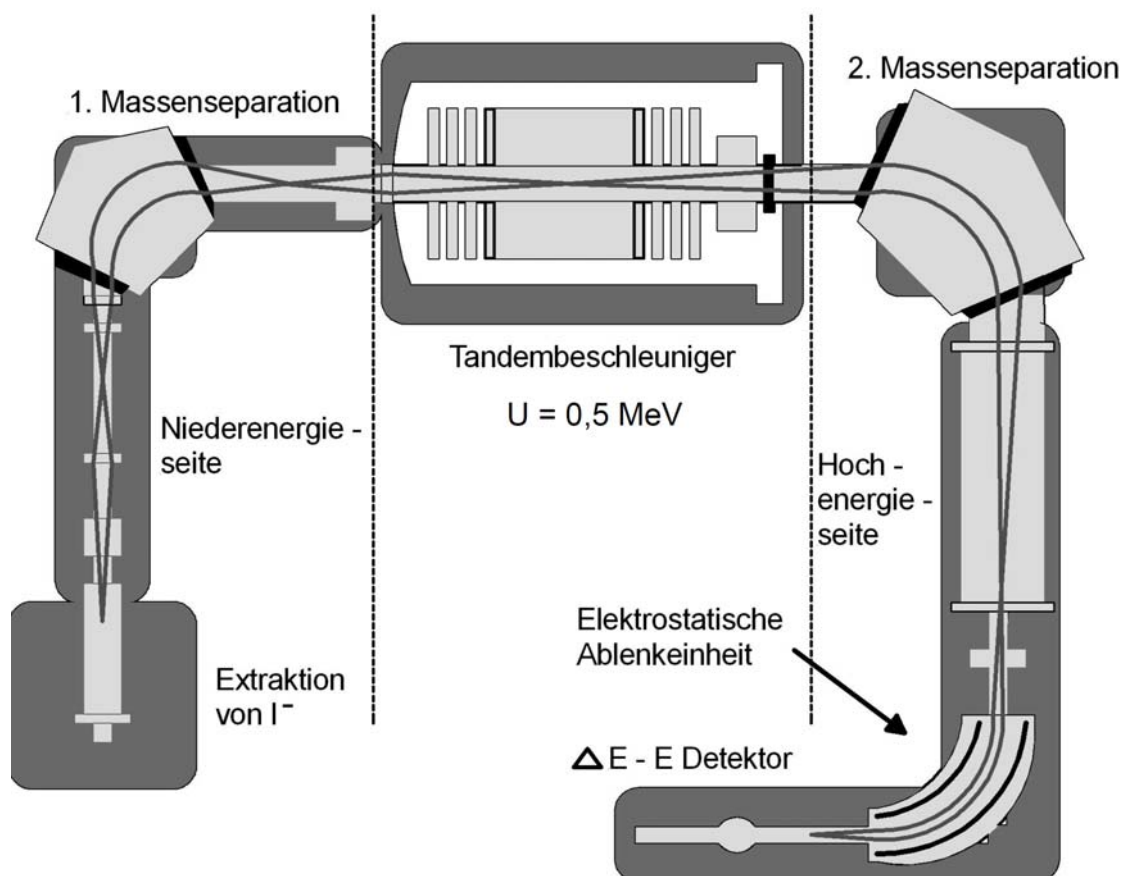


Abbildung 21: Aufbau der an der ETH in Zürich verwendeten AMS-Anlage.

Verbesserungen an mehreren Bauteilen und die Verwendung einer neuen Gasionisationskammer erlauben eine breite Anwendung über die Quantifizierung der Nuklide ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{129}I , ^{236}U und mehrerer Plutoniumisotope. Dabei ist die Leistungsfähigkeit bei Beschleunigungsspannungen von 500 kV vergleichbar mit der der großen 6 MV Anlage, insbesondere störende Blindwerte konnten reduziert werden [Stocker *et al.*, 2005].

Die an der ETH Zürich genutzte AMS-Anlage wird in Niederenergie- und Hochenergiebereich unterteilt. Sie besteht aus einer Ionenquelle, Niederenergiemassenspektrometer, Tandembeschleuniger mit Stripper, Hochenergiemassenspektrometer elektrostatischer Ablenkeinheit und einem Detektorsystem. Abbildung 21 zeigt den Aufbau der für die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Messungen verwendeten AMS-Anlage. Im Vergleich zu älteren Beschleunigermassenspektrometern beansprucht diese neue Maschine deutlich weniger Platz, die Abmessungen betragen etwa $4,5\text{ m} \cdot 6,5\text{ m}$.

Ionenquelle

Von einer Cäsium-Sputterionenquelle, einer Multikathode vom Typ SNICS II des Herstellers NEC (National Eleostatics Corp.), treten einfach positiv geladene Cäsiumionen aus. Die Cäsiumionen werden mit 25-60 kV beschleunigt und mit Ionenlinsen auf die Proben targets fokussiert. Der Durchmesser des Cäsiumionenstrahls beträgt 1 mm. Aus den Targets wird Iod als Iodid herausgelöst und mittels elektrostatischer Linsen in Richtung des ersten Massenfilters gelenkt. Diese Art der Ionisierung trennt alle Atome ab, die keine stabilen negativen Ionen bilden.

Niederenergiemassenspektrometer

Eine zweite Separierung erfolgt im Niederenergiemassenspektrometer, dessen Radius 0,5 m beträgt. Die magnetische Feldstärke kann bis zu 0,8 Tesla betragen. Dabei erfolgt eine Ablenkung des Ionenstrahls um 90° . Alle Ionen, deren m/z -Verhältnisse einen vorgegebenen Bereich über- oder unterschreiten, werden herausgefiltert. Die Ablenkung auf einem Viertelkreis gehorcht den Gesetzen von Zentripetal- und Lorentzkraft. Wenn sich ein Ladungsträger Q mit der Geschwindigkeit v im Magnetfeld senkrecht zur magnetischen Flußdichte B bewegt, wirkt auf ihn die Lorentz-Kraft F_L (Gl. 7.2-1):

$$F_L = Q \cdot v \cdot B. \quad \text{Gl. 7.2-1}$$

Die Ladung Q ergibt sich aus dem Ladungszustand n und der elektrischen Elementarladung e ($Q = n \cdot e$). Die Lorentzkraft hat den gleichen Betrag wie die Zentripetalkraft F_Z , die nötig ist, um den Ladungsträger mit der Masse m auf der gekrümmten Flugbahn mit dem Radius r zu halten:

$$F_Z = \frac{m \cdot v^2}{r}, \quad \text{Gl. 7.2-2}$$

damit gilt:

$$\frac{m \cdot v^2}{r} = Q \cdot v \cdot B. \quad \text{Gl. 7.2-3}$$

Der Radius r des vom Ladungsträger im Magnetfeld beschriebenen Kreisbahn ergibt sich zu:

$$r = \frac{m \cdot v}{Q \cdot B}. \quad \text{Gl. 7.2-4}$$

Dabei sind m die Masse des bewegten Teilchens und r der Radius der kreisförmigen Bahn. Im Niederenergiebereich der AMS beträgt die Ladung der Iodteilchen -1.

Der Ionenstrahl wird hinter dem ersten Massenspektrometer gepulst und es wird der Strom des ^{127}I in einem Faradaybecher auf der Niederenergieseite der AMS-Anlage vor dem Tandembeschleuniger gemessen. Der Faraday-Becher, auch Faraday-Cup (FC) genannt, ist ein Detektor zur Messung größerer Elektronen- oder Ionenströme. Ein an einer Seite offener Becher ist über einen hochohmigen Widerstand geerdet, an dem Becher selbst liegt ein konstantes Potential an. Treffen Ladungsträger auf den Becher, fließen diese über den Widerstand ab. Die Meßgröße ist die Spannung über dem Widerstand.

Tandembeschleuniger mit Stripper

Am Einlaß des Tandembeschleunigers befindet sich eine $4 \cdot 4 \text{ mm}^2$ große Blende, um eine möglichst gute Massenseparation bereits auf der Niederenergieseite zu erreichen. In dem Tandembeschleuniger erfolgt eine zweifache Beschleunigung der Teilchen. Es handelt sich um einen Pelletron Beschleuniger mit einer Nennspannung von 500 kV des Herstellers NEC (National Eleostatics Corp.). Die angelegte Potentialdifferenz betrug in den durchgeführten Meßreihen 0,5 MV, größere Potentialdifferenzen bis zu 0,6 MV sind mit dem Beschleuniger ohne Probleme zu erreichen [Stocker *et al.*, 2004; Stocker *et al.*, 2005]. Die in den Beschleuniger eintretenden einfach negativ geladenen Ionen werden in Richtung des positiven Potentials (Terminal) beschleunigt und treffen mit einer Energie von 0,5 MeV auf den sogenannten Stripper. Dabei handelt es sich hier um einen mit Argongas gefüllten Bereich, der Elektronen von der äußeren Atomhülle abstreift. Sensoren überwachen den Argondruck, über Pumpen wird ein Großteil des Strippergases abgeführt und kann so wieder verwendet werden. Durch die Ladungsumkehr werden die Ionen vom positiven Potential weg beschleunigt. Im Stripper fragmentiert eine Vielzahl störender Molekülonen. Üblicherweise wurde I^{4+} zur Detektion genutzt. Die I^{4+} -Teilchen besitzen nach dem Verlassen des Tandembeschleunigers eine Gesamtenergie von 2,5 MeV (Gl. 7.2-7). Der Stripper arbeitet nach dem Prinzip eines van de Graaff-Beschleunigers, allerdings wird in diesem System kein Gummiband, sondern eine Kette verwendet, die außen aus Metall und innen aus Plastik besteht. Diese rotierende Kette transportiert die positiven Ladungsträger zum Terminal und generiert so die große Potentialdifferenz. Die großen Energien sind zur weiteren Massenauftrennung und Detektion im Hochenergiebereich nötig.

Massenseparation im Hochenergiebereich

Vom Tandembeschleuniger kommend trifft der Ionenstrahl auf der Hochenergieseite des AMS auf ein magnetisches Massenspektrometer. Es besitzt einen Radius von 75 cm und lenkt den Ionenstrahl um 90° ab. Bei einer Betriebsspannung von 500 kV können Ionen bis zu der atomaren Masseneinheit 27 in diesem Magneten beim Ladungszustand +1 abgelenkt werden. Bei schwereren Ionen müssen höhere Ladungszustände gewählt werden, damit die Feldstärke des Magneten von 1 Tesla die Ionen auf der gewünschten Bahn halten kann (Gl. 7.2-4). Alternativ kann auch die Beschleunigerspannung reduziert werden [Stocker et al., 2005].

Hinter dem Hochenergiemassenspektrometer befindet sich ein Faraday-Becher, der für die Bestimmung der Transmission verwendet wird. Aufgrund von Streueffekten des Ionenstrahls und der Festlegung auf einen Ladungszustand kann nur ein geringer Teil der erzeugten ^{129}I -Ionen zur Detektion genutzt werden. Die Transmission ist in diesem System definiert als das Verhältnis des Ionenstroms des für die Detektion gewählten Ladungszustandes hinter dem Hochenergiemassenspektrometer und des negativen Ionenstroms direkt vor dem Beschleuniger [Stocker et al., 2004]. Die Transmission wird durch die Dichte des Strippergases sowie dem gewählten Ladungszustand bestimmt und üblicherweise in Prozent angegeben. Bei zu hoher Strippergasdichte führen Streueffekte zu Verlusten. Ist die Gasdichte zu gering, werden weniger Ionen des gewünschten Ladungszustandes erzeugt. Bei sehr kleinen Gasdrücken folgt die Transmission der Ausbeute am Stripper, nach einem Maximum gewinnen die Verluste durch Streueffekte an Bedeutung [Stocker et al., 2004]. Auch die Dicke des Strippers beeinflusst die Transmission. Diese muß groß genug sein, um störende Molekülonen zu entfernen, was wiederum die Transmission verringert. Stocker et al. veröffentlichten einige Meßergebnisse zur Abhängigkeit der Transmission von Strippergasdichte und Ladungszustand [Stocker et al., 2004]. Bei der großen 6 MV-Anlage liegt die Transmission des $^{129}\text{I}^{5+}$ bei 6 %, die des $^{129}\text{I}^{4+}$ der kleinen Anlage bei 4 % [Stocker et al., 2004; Stocker et al., 2005].

Es folgt der Übergang in eine elektrostatische Ablenkeinheit, die die Ionen um 90° ablenkt und dabei beschleunigt. Diese Ablenkeinheit besitzt einen Radius von 75 cm und ist auf eine Betriebsspannung von 75 kV ausgelegt. Die Breite der Lücke zum Verlassen der Einheit beträgt 4 cm, üblicherweise werden Feldstärken von 5 MV/m nicht überschritten.

Detektorsystem

Das Detektorsystem besteht aus einem Time of Flight (TOF) Detektor und einem Gasionisationsdetektor (GID). Der Time of Flight Detektor unterscheidet die Ionen nach der Flugzeit, die für eine bestimmte Strecke benötigt wird. Im Gasionisationsdetektor werden der Energieverlust über eine Flugstrecke und die Gesamtenergie gemessen.

Der TOF-Detektor besteht aus einem Start- und einem Stopdetektor. Dies sind üblicherweise dünne Folien, aus denen Elektronen beim Durchgang von Teilchen herausgelöst werden. Die Elektronen werden detektiert und verstärkt. Die Zählraten werden in Abhängigkeit der Flugzeit der Teilchen gemessen. Die kinetische Energie E_{kin} eines Teilchens der Masse m und der Geschwindigkeit v ist wie folgt definiert:

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} \cdot m \cdot v^2. \quad \text{Gl. 7.2-5}$$

Durchläuft ein Teilchen der Ladung Q ein elektrisches Feld mit der Spannung U , so besitzt es die elektrische Energie E_{el} :

$$E_{\text{el}} = U \cdot Q, \quad \text{Gl. 7.2-6}$$

Nach dem Passieren des Tandembeschleunigers besitzt ein Teilchen eine größere Energie, die wieder vom Ladungszustand und der Spannung abhängt. Q_{Strip} sei der Ladungszustand nach dem Passieren des Strippers:

$$E = U \cdot (Q + Q_{\text{Strip}}). \quad \text{Gl. 7.2-7}$$

Somit beträgt die Energie des I^{4+} -Teilchens nach Durchlaufen des Tandembeschleunigers 2,5 MeV.

Gleichsetzen der Gleichungen 7.2-5 und 7.2-7 liefert:

$$U \cdot (Q + Q_{\text{Strip}}) = \frac{1}{2} \cdot m \cdot v^2. \quad \text{Gl. 7.2-8}$$

Aufgrund der bekannten Energie der einfliegenden Ionen kann den Ionen eine Masse zugeordnet werden. Nach Substitution der Geschwindigkeit v durch den Quotienten aus der Strecke s und der Zeit t erhält man nach Umstellen von Gleichung 7.2-8:

$$m = \frac{2 \cdot (Q + Q_{\text{Strip}}) \cdot U \cdot t^2}{s^2}. \quad \text{Gl. 7.2-9}$$

Im Spektrum werden die Zählraten in Abhängigkeit von der Zeit aufgetragen. Der Unterschied in der Flugzeit von ^{26}Al und ^{27}Al beträgt im TOF-System des „Tandy“ mehr als 3000 ps, diese Signale lassen sich vollständig voneinander trennen. Mit dem System wird eine sehr gute Zeitauflösung erreicht, allerdings liegt die Nachweiswahrscheinlichkeit nur bei 20 % [Stocker et al., 2004].

Der Übergang in den Gasionisationsdetektor (GID) erfolgt durch ein 50 nm dünnes Siliciumnitridfenster (Si_3N_4). Die Vorteile gegenüber der früher verwendeten Plastikfolie bestehen in der besseren Homogenität und der geringeren Dicke. Peakverbreiterungen konnten durch Einsatz dieses Fensters deutlich reduziert werden, daraus ergibt sich eine deutlich bessere Energieauflösung. Stocker et al. beschreiben die Verbesserung der Energieauflösung in einer Veröffentlichung [Stocker et al., 2004], besonders gut gelang durch den Einsatz des Si_3N_4 -Fensters die Unterscheidung des $^{97}\text{Mo}^{3+}$ von $^{129}\text{I}^{4+}$.

Der Gasionisationsdetektor (GID) ermittelt den Energieverlust der Teilchen über eine Strecke und die Restenergie der Teilchen. Dies geschieht in einer mit Gas gefüllten Ionisationskammer, deren Innenwand mit Elektroden ausgekleidet ist. In der Kammer wird Energie durch Ionisation an die Gasteilchen abgegeben, die ionisierten Teilchen wandern zur Kathode des elektrischen Feldes und werden als Strom detektiert. Die Stromstärke ist ein Maß für die abgegebene Energie. Mehrere Elektroden in dieser Ionisationskammer gewährleisten eine Bestimmung des Energieverlusts über eine gegebene Strecke. Am Ende des Detektors wird die Restenergie des Teilchens detektiert. Trägt man den Energieverlust gegen die Gesamtenergie auf, erlaubt dies eine Unterscheidung der Ionen mit unterschiedlicher Ladung, die ein ähnliches m/z -Verhältnis besitzen. Als Ionisationsgas wird Isobutan verwendet.

Grundlage der Auswertung ist die Bethe-Bloch-Gleichung, die den Energieverlust eines geladenen Teilchens beim Durchgang durch Materie beschreibt. Demnach ist der Energieverlust dE über eine Wegstrecke dx proportional zum Quadrat der Ladungszahl n und umgekehrt proportional zum Quadrat der Geschwindigkeit v .

$$-\frac{dE}{dx} \sim \frac{n^2}{v^2} \quad \text{Gl. 7.2-10}$$

Mit der Gleichung für die kinetische Energie eines Teilchens (Gl. 7.2-5) ergibt sich:

$$-\frac{dE}{dx} \sim \frac{m \cdot n^2}{E} \quad \text{Gl. 7.2-11}$$

Die Detektion des Iods erfolgte über den Ladungszustand +4. Möglich sind auch Detektionen von I^{3+} und I^{5+} , I^{4+} lieferte aber stabilere Signale und die Molybdänstörung konnte effektiver unterdrückt werden. Ein weiterer Vorteil ist, daß die Störung durch Tellur-128 umgangen werden konnte. Molybdän gelangt als $^{97}\text{Mo}^{16}\text{O}_2$ in den Stripper, dort werden Elektronen und die Sauerstoffatome abgestreift, so daß es als $^{97}\text{Mo}^{3+}$ den Detektor erreicht. Stocker et al. beschreiben dies in ihren Veröffentlichungen [Stocker et al., 2004; Stocker et al., 2005]. Da nur ein Ladungszustand für die Detektion genutzt werden kann, reduziert sich die Nachweiswahrscheinlichkeit. Der Maschinenhintergrund der ^{129}I -Messungen lag bei $3 \cdot 10^{-13}$, in der großen 6 MV-Anlage liegt der Hintergrund eine Größenordnung darunter [Stocker et al., 2005]. Das Detektorsystem wird in einigen Aufsätzen in Hinblick auf die Besonderheiten anderer Nuklide besprochen [Döbeli et al., 1998; Grajcar et al., 2007; Klein et al., 1982], bezüglich der Ioddetektion ist die Literatur sehr rar.

Die kleine Anlage „Tandy“ zeigt übereinstimmende Messungen mit der großen Anlage. Die Leistungsfähigkeit der kleinen Anlage wird noch durch Umladungsprozesse und Streuungen im Ionenstrahl vermindert. Verbesserungen des Vakuums und der Ionenoptik lassen weitere Fortschritte erwarten.

7.2.1 Erfordernis des AMS-Systems

Der große apparative Aufwand ist nötig, weil selbst in hochauflösenden Massenspektrometern in Kombination mit weiteren Bauteilen (Kollisions- oder Reaktionszelle) nicht die nötigen Nachweisgrenzen für Iod-129 erreicht werden. Das im Plasmagas in Spuren vorhandene Xe-

non-129 und das störende Molekülion $^{127}\text{IH}_2$ können durch bisherige ICP-MS-Techniken zwar vom Iod-129 unterschieden werden, allerdings verschlechtert sich dadurch die Nachweiswahrscheinlichkeit. Da in Umweltproben kleine ^{129}I -Konzentrationen vorhanden sind, ist derzeit keine ^{129}I -Bestimmung mittels ICP-MS möglich.

Neben massenspektrometrischen Untersuchungen kann auch die γ -X-Spektrometrie verwendet werden, die sich den radioaktiven Zerfall des Iods zunutze macht. ^{129}I zerfällt über einen β^- -Zerfall in ^{129}Xe und metastabiles $^{129\text{m}}\text{Xe}$ ($T_{1/2} = 8,89$ Tage). Beim Übergang des $^{129\text{m}}\text{Xe}$ in den Grundzustand wird ein Gammaquant mit einer Energie von 39,58 keV ausgesandt. Die zur Analyse herbeigezogenen Röntgenlinien der höchsten Intensitäten liegen bei 29,78 keV und 29,49 keV. Fréchou et al. analysierten Umweltproben aus der direkten Umgebung von La Hague mit der γ -X-Spektrometrie und erzielten Nachweisgrenzen von 0,5 Bq/kg [Fréchou und Calmet, 2003; Fréchou et al., 2002; Fréchou et al., 2001] (s. Abschnitt 5.4). Aufgrund der langen Halbwertszeit des Iod-129 und dessen geringer Anreicherung in Umweltproben ist dieses Verfahren jedoch nur begrenzt geeignet und wurde bisher nur auf stark kontaminierte Umweltproben bei gleichzeitig großer Iodanreicherung erfolgreich angewendet. Auch die Bestimmung des ^{129}I mittels herkömmlicher Gamma-spektrometrie ist nach Abtrennung des Iods möglich, allerdings betragen die Nachweisgrenzen bei einer Meßzeit von 13 Stunden 56 Bq/l [Geckeis et al., 1995]. Diese NWG liegt sechs Größenordnungen über den im Meerwasser erwarteten ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen. Für Flüssigkeitsszintillationsmessungen (Liquid Scintillation Counting, LSC) wird Iod-129 in hoher Reinheit benötigt, dabei werden mit 13 Bq/l etwas niedrigere Nachweisgrenzen erreicht [Geckeis et al., 1995]. Beide Methoden sind für ^{129}I -Analysen in Meerwasserproben ungeeignet.

Die sich dem β^- -Zerfall zunutze machende Betaspektrometrie kann für die Messung von ^{129}I in Umweltproben nicht verwendet werden. Eine vollständige Abtrennung von allen störenden Nukliden (auch alpha- und gammastrahlende Nuklide) ist notwendig. Wegen seiner großen Halbwertszeit verfügt Iod-129 über eine geringe spezifische Aktivität von 6,54 Bq/ μg (s. Tabelle 8), demzufolge wären sehr lange Meßzeiten erforderlich. Zudem müßte ^{129}I stark aufkonzentriert werden, was einen sehr großen Probenmaterialeinsatz und eine aufwendige Aufarbeitung nach sich zöge.

7.2.2 Aufarbeitung der Wasserproben für die AMS

Die Vorbereitung zur AMS-Analyse ist wegen der notwendigen Matrixabtrennung aufwendiger als die Vorbereitung zur ICP-MS. Üblicherweise wurden von den Seewasserproben 50-100 ml eingesetzt. 100 μl einer Woodwardiodlösung wurden als Trägeriodid und zur Verringerung des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses zugegeben. Isotopenverhältnisse im Bereich von etwa 10^{-11} lassen sich in der AMS-Anlage relativ gut messen. Die Isotopenverhältnisse der Proben dürfen nicht über 10^{-10} liegen, da sonst der Detektor nicht mehr zuverlässig arbeitet und eine Kontamination der Anlage einsetzt.

Da in Seewasser mit nur 40 bis 50 ng/g relativ wenig Iod vorhanden ist und für die AMS-Messung Silberiodid in Milligrammbereich benötigt wird, mußte Woodwardiod (WWI) als Träger hinzugesetzt werden. Es hat am globalen Iodaustausch nicht teilgenommen und besitzt ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-14}$ [Boaretto et al., 1994]. Die WWI-Zugabe bewirkt darüber hinaus eine Verdünnung des Isotopenverhältnisses. Die ver-

wendete Woodwardiodlösung wurde aus 3 ml frisch angesetzter 1 M Natriumhydrogensulfatlösung, 0,1 g WWI und 550 µl Natronlauge (7 M) hergestellt. Die zu verwendende Wassermenge richtete sich nach der zu erwartenden Kontamination bzw. des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses. Bei einigen Nordseewasserproben erwiesen sich bereits 50 ml als problematisch, da sich die Isotopenverhältnisse im obersten Meßbereich der Anlage befanden.

Das gesamte Iod (Woodwardiod und Iod der Probe) wurde mit Calciumhypochlorit ($\text{Ca}(\text{OCl})_2$) zu Iodat oxidiert. Die anschließende Reduktion erfolgte mit Natriumhydrogensulfat (NaHSO_3) und Hydroxylammoniumchlorid (NH_3OHCl). Bevor man die Probe auf eine Ionenaustauschersäule gab, wurde mit Natronlauge wird der pH-Wert auf 5-6 eingestellt. 5 g Ionenaustauscherharz (DOWEX® 1X8, analytical grade) waren mit 25 ml 0,5 M Kaliumnitratlösung zu beladen. Nach Aufbringen der Probe auf die Säule eluierte man mit zunächst 20 ml Reinstwasser, 50 ml Kaliumnitratlösung (0,5 M) und 10 ml gesättigter KNO_3 -Lösung (2,25 M). Anschließend wurde in jeweils 10 ml-Schritten gesättigte Kaliumnitratlösung auf die Säule gegeben und die Fraktionen in Zentrifugengläsern aufgefangen, in denen 100 µl konzentrierte Salpetersäure und 200 µl 0,5 M Silbernitratlösung vorgelegt waren. Dabei fiel grünelbes Silberiodid aus. Nach dem Vereinigen der augenscheinlich reinen Silberiodid tragenden Fraktionen zentrifugierte man das Silberiodid ab. Der Überstand wurde dekantiert und der Niederschlag mit Hilfe eines Hahn'schen Trichters und einem Zellulosenitratfilter (Porengröße 0,8 µm) abgesogen und gründlich mit Reinstwasser gewaschen. Die Trocknung der auf diese Weise erhaltenen Silberiodidproben erfolgte im Trockenschrank, die anschließende Lagerung unter Lichtausschluß.

Zur Vorbereitung der Messung an der AMS wurden die Silberiodidproben zur Erhöhung der Leitfähigkeit mit etwa der fünffachen Menge Silberpulver versetzt und mit einem Achatmörser innig verrieben. Das erhaltene Pulver wurde in einen kleinen Titanbecher, auch Target genannt, gepreßt. Die Targets wurden in Probenräder eingesetzt, welche dann zur Messung in die AMS-Anlage gelangten. In jedem Probenrad befanden sich vier Standards mit definiertem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis und vier Woodwardiodproben zur Ermittlung des Maschinenblindwertes. Die Maschinenblindwerte liefern den Untergrund der Anlage, diese Blanks sind von den Blindwerten zu unterscheiden, die bei der Aufarbeitung der Wasserproben angefertigt werden, s. dazu Abschnitt 7.3.3.

7.2.3 Aufarbeitung der Sedimente

Die eingefrorenen Schichten des Sediments wurden am ZSR ohne Auftauen direkt gefriertrocknet. Die angewendete Gefriertrocknung bietet gegenüber der Trocknung im Trockenschrank den Vorteil der lockeren Beschaffenheit des Sediments. Es läßt sich leicht homogenisieren und verklumpt nicht. Ein Sieben der Probe war nicht notwendig, da das Sediment als sehr feinkörniges Pulver erhalten wurde und keine Steinchen oder größere Partikel zugegen waren. Nach Homogenisierung der Probe wurde 1 g Substanz für die Verbrennung eingesetzt.

Die im folgenden beschriebene Aufarbeitung erfüllt drei Zwecke: das gesamte Iod wird aus der Probenmatrix ausgetrieben und die Verdünnung mit Woodwardiod senkt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis so ab, daß eine Messung in der AMS stattfinden kann. Gleichzeitig wird nach WWI-Zugabe genug Probenmaterial zur weiteren Verarbeitung erhalten.

Die Verbrennungen wurden im Rahmen der am ZSR zu untersuchenden Umweltproben weitgehend automatisiert, so daß für alle Sedimente reproduzierbare und nahezu gleiche Bedingungen herrschen. Die in Abbildung 22 schematisch gezeigte Verbrennungsapparatur besteht aus einem Ofen, zwei ineinander liegenden Quarzrohren mit Gasleitungen und einer Waschflasche mit Absorptionslösung. Zusätzlich ist an die erste Waschflasche eine weitere Entsorgungsflasche angebracht, um evtl. durchtretendes Iod aufzufangen. Mit einer Pumpe, die an die zweite Waschflasche angeschlossen ist, wird innerhalb der Apparatur ein leichter Unterdruck gehalten.

Für die Verbrennung werden Stickstoff und Sauerstoff mit technischer Reinheit benötigt. Die Minderung des Druckes erfolgt über zwei Stufen. Die fest installierten Druckminderer werden auf einen Ausgabedruck von maximal 1 bar eingestellt. Dieser Druck wird danach mit Hilfe von einfachen Membranreglern auf konstant 50 mbar herabgesetzt. Nachfolgend werden die Gase über Kapillarröhrchen einer bestimmten Länge geleitet, so daß sich ein konstanter Gasfluß einstellt, der nicht weiter geregelt werden muß.

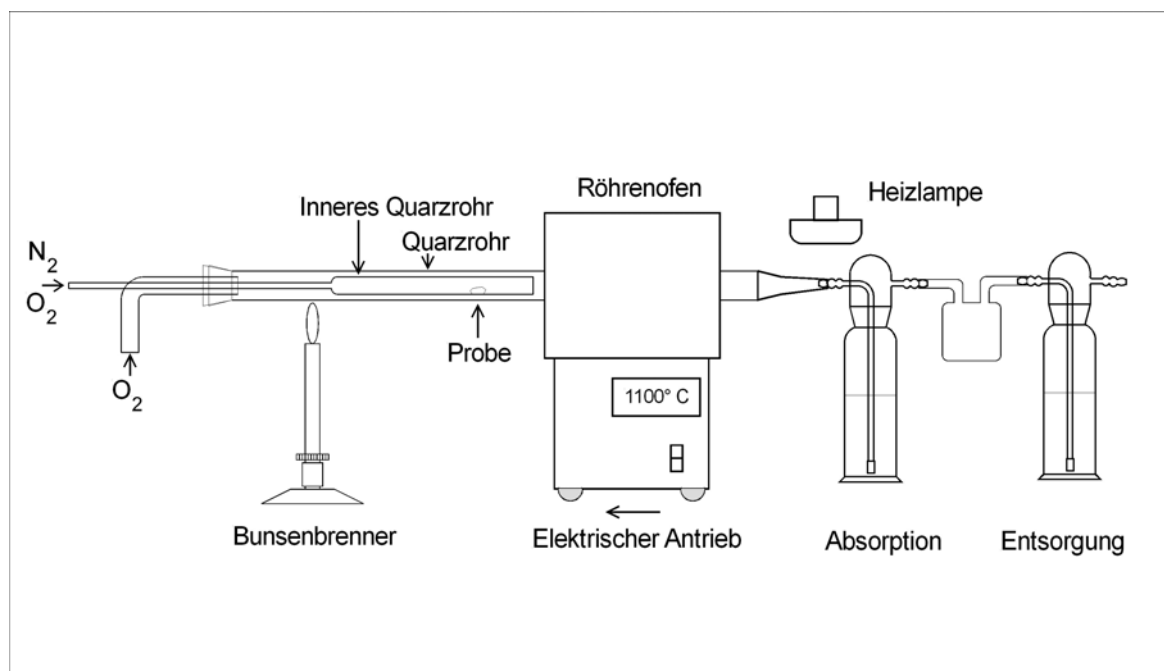


Abbildung 22: Verbrennungsapparatur zur Aufarbeitung der Sedimente.

Das innen liegende Quarzrohr wurde mit 1 g feinpulverigem Sediment gefüllt und mit $100 \mu l$ Iod-125 als Ausbeutetracer versetzt. Dieses Rohr wurde von einem Sauerstoff-Stickstoff-Gasgemisch im Verhältnis 1:1 durchströmt, damit es nicht zur Entzündung der Probe kommt. Das Mantelrohr erhält reinen Sauerstoff in gleicher Menge wie das Innenrohr. Ein Röhrenofen wurde auf $1100^\circ C$ hochgeheizt und mit einem elektrisch angetriebenen Motor langsam über die Probe bewegt. Am äußeren Ende der Apparatur befand sich ein Bunsenbrenner, um Iodablagerungen und eine Kondensation von Wasserdampf zu verhindern. Der Ofen wurde einmal über die Probe hin- und zurückbewegt, um ggf. abgeschiedenes Iod komplett aus der Apparatur auszutreiben. Ein Heizstrahler bestrahlte den Übergangsbereich zu den Waschflaschen, der nicht mit dem Ofen erreicht wurde. Die hohen Temperaturen sind nötig, um eine vollständige Oxidation der organischen Komponenten zu erreichen und um zu gewährleisten,

daß I_2O_5 zu Sauerstoff und molekularem Iod zerfällt. Iod wird zunächst in oxidischer Form freigesetzt.

Der aus der Apparatur austretende Gasstrom wurde durch eine Waschflasche mit Absorptionslösung geleitet. Die in der Waschflasche vorliegenden basischen und reduktiven Bedingungen bewirken eine Reduktion des molekularen Iods zu Iodid. Die Absorptionslösung bestand aus 65 ml Reinstwasser, 6 ml Ammoniumsulfidlösung (1 M) und 400 μ l TMAH. Es war darauf zu achten, daß genug Base zugegen ist, da sonst der pH-Wert der Lösung im Laufe der Verbrennung abnimmt. In Vorversuchen wurde beobachtet, daß bereits absorbiertes Iod nach Absinken des pH-Wertes aus der Absorptionslösung ausgetrieben wurde. Die Lösung wurde in PE-Flaschen überführt und die Ausbeute mit einem handelsüblichen NaI-Detektor ermittelt. Es wurde angenommen, daß sich das Iod aus dem Tracer genau so wie das Iod aus der Probe verhält. Dieselbe Menge des Tracers (gleiche Stammlösung mit gleicher Aktivität) wurde in eine Referenzlösung gegeben, die in einer PE-Flasche mit der Absorptionslösung angesetzt wurde. Es war auf gleichen Füllstand der Gefäße zu achten, da die Geometrie bei der Detektion eine wichtige Rolle spielt. Die Ausbeute der Verbrennung wurde aus dem Verhältnis der Zählraten von Probe und Referenz berechnet.

Nach der Ausbeutebestimmung wurden etwa 6 ml der Lösung für die zeitnahe ICP-MS-Analyse abgetrennt. Von der Absorptionslösung wurden zwischen 1 und 40 ml zur Fällung verwendet. Hier mußte intuitiv gehandelt werden, denn die ausgefällte Silberiodidprobe durfte kein zu großes Isotopenverhältnis besitzen, aber auch nicht zu stark verdünnt sein. Erwartet wurde eine von unten nach oben im Sediment zunehmende Kontamination, gleichzeitig mußte bei der Auswahl des Aliquots die Ausbeute der Verbrennung berücksichtigt werden. Zum Füllen wurden 100 μ l der in Abschnitt 7.2.2 beschriebenen Woodwardiodlösung (entspricht etwa 3 mg WWI) sowie eine Silbernitratlösung (0,5 M) und konzentrierte Salpetersäure verwendet. Die Aliquotierungen waren mit einer Waage zu dokumentieren. Das Silberiodid wurde mit einem Hahn'schen Trichter abgesogen, mit Reinstwasser gewaschen und im Trockenschrank getrocknet. Die Lagerung der AMS-Probe und des ICP-MS-Aliquots erfolgte unter Lichtausschluß. Um mögliche Kreuzkontaminationen so gering wie möglich zu halten, begann die Aufarbeitung bei den unteren Sedimentschichten. Die Aufarbeitung der prä nuklearen Sedimente unterschied sich nur in der Menge des eingesetzten Probenmaterials und es wurde eine engere Blindwertüberwachung angefertigt. Nach einer Aufarbeitung wurden die Glasgeräte gespült und über Nacht (ca. 16 Stunden) bei 500°C im Muffelofen ausgeheizt. Die Quarzrohre wurden ebenfalls gespült und über Nacht mit 1200°C bei Stickstoffdurchströmung mit dem Röhrenofen ausgeheizt. Der Stickstoffstrom wurde durch eine Entsorgungswaschflasche geleitet.

7.2.4 Auswertung der AMS-Messungen

In jedem gemessenen Probenrad befanden sich neben vier Blanks vier Standardproben. Die Blanks wurden aus Woodwardiod in Zürich angefertigt und dienen zur Kontrolle des Maschinenhintergrundes, der zur Korrektur der Messung benötigt wird. Die Standards dienen der Bestimmung der $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse. Diese Standards werden aus einer NIST-Stammlösung (NIST = National Institute of Standards and Technology) hergestellt, deren $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnis 10^{-10} beträgt. Durch Verdünnungsschritte können Standards unterschiedlicher $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse angesetzt werden. Bei den durchgeführten Messungen betrug das $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnis der Standards $4 \cdot 10^{-11}$. Der Maschinenhintergrund lag zwischen $3 \cdot 10^{-12}$ und $5 \cdot 10^{-12}$ und beeinflusste den Auswertegang nicht. Der

zur Detektion herangezogene Ladungszustand war +4, dies entspricht einer Gesamtenergie der Teilchen von 2,5 MV [Stocker et al., 2005]. Die Interferenzen des ^{129}I mit dem störenden $^{97}\text{Mo}^{3+}$ konnten im Detektor weitgehend separiert werden, nur wenige Ergebnisse mußten aufgrund der Molybdänstörung verworfen werden.

Im folgenden wird der Auswertegang beginnend mit den aus Zürich erhaltenen Daten beschrieben. Alle Unsicherheiten pflanzen sich gemäß des im „Iso Guide to the expression of uncertainty in measurement“ (GUM) [ISO, 1995] beschriebenen Gesetzes fort. Die Ergebnisse der AMS-Messung werden mit den ICP-MS-Ergebnissen verknüpft, so daß unter Berücksichtigung aller relevanten Schritte der Aufarbeitung die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen und die ^{127}I -Gehalte der Ausgangsproben berechnet werden.

Wasserproben

Aus der mittels ICP-MS bestimmten ^{127}I -Konzentration ($c_{127, \text{ICP-MS}}$) und der für die AMS-Aufarbeitung eingesetzten Wassermenge (m_{Einwaage}) wird die Masse des Iod-127 vor der Woodwardiodzugabe berechnet ($m_{127, \text{Probe}}$):

$$m_{127, \text{Probe}} = c_{127, \text{ICP-MS}} \cdot m_{\text{Einwaage}} \quad \text{Gl. 7.2-12}$$

Dabei wurde die Unsicherheit der Einwaage auf 0,1 g abgeschätzt. Das zugefügte Woodwardiod m_{WWI} setzt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis herab, denn es kann angenommen werden, daß sich kein Iod-129 im Woodwardiod befindet. Diese Näherung ist aufgrund des extrem niedrigen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses berechtigt. Die Masse des stabilen Iods in der aufzuarbeitenden Probe ergibt sich zu:

$$m_{127, \text{ges}} = m_{\text{WWI}} + m_{127, \text{Probe}} \quad \text{Gl. 7.2-13}$$

Die Konzentration des Iod-127 in der Woodwardiodlösung ist bekannt, üblicherweise wurden 100 μl zugegeben, das entspricht 3 mg WWI. Die Masse der zugesetzten Lösung wird mit dem persönlichen Pipettierfaktor berechnet. Dieser wurde ermittelt, indem zehnmal die Masse von 100 μl der pipettierten Lösung bestimmt wurde. Da immer Woodwardiodlösungen einer nahezu gleichen Zusammensetzung verwendet wurden, kann angenommen werden, daß der Pipettierfaktor konstant bleibt. Die Masse des Iod-129 in der aufgearbeiteten Lösung berechnet sich aus dem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis der AMS-Messung, den Molmassen der Isotope und dem gesamten Iod (Iod-127 aus der Probe und das zugesetzte WWI):

$$m_{129, \text{Probe}} = \left(\frac{N_{129}}{N_{127}} \right)_{\text{AMS}} \cdot \frac{128,9}{126,9} \cdot m_{127, \text{ges}} \quad \text{Gl. 7.2-14}$$

Für die Blindwerte erfolgt die Berechnung analog. Details zur Anfertigung der Blindwertproben sind in Abschnitt 7.3.3 zu finden. Die Massen des Iod-129 in den Blindwerten wurden für jede Meßkampagne gemittelt. Die gemittelte Masse des Iod-129 in den Blanks ($\bar{m}_{129, \text{BLW}}$) wird von den übrigen Proben abgezogen:

$$m_{129,\text{Ende}} = m_{129,\text{Probe}} - \overline{m}_{129,\text{BLW}} \quad \text{Gl. 7.2-15}$$

Diese Blankkorrektur hatte bei den meisten Wasserproben keinen signifikanten Einfluß auf das Endergebnis. Da aber die Blindwerte streuten, vergrößerten sich die Unsicherheiten der am Ende des Auswertgangs erhaltenen Ergebnisse. Als Unsicherheit der Blindwerte wurde die Standardabweichung der gemittelten ^{129}I -Gehalte in den Blanks verwendet. Das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis der Ausgangsprobe berechnet sich aus der Masse des Iod-129 nach der Blindwertkorrektur und dem ^{127}I -Gehalt vor Zugabe des Woodwardiods sowie den Molmassen der Isotope:

$$\frac{N_{129}}{N_{127}} = \frac{m_{129,\text{Ende}}}{m_{127,\text{Probe}}} \cdot \frac{126,9}{128,9} \quad \text{Gl. 7.2-16.}$$

Die Iod-127-Konzentration wird üblicherweise in g/g angegeben. Sie ergibt sich aus dem Quotienten des Iods in der aufzuarbeitenden Probe und der Einwaage des Wassers. Für die Berechnung der ^{129}I -Konzentration wird entsprechend die um den Blindwert korrigierte Masse des Iod-129 in der Probe verwendet und diese durch die Einwaage des zu analysierenden Wassers geteilt, so daß auch die ^{129}I -Ergebnisse in g/g bezogen auf die Ausgangsprobe zusammengefaßt werden können.

Sedimente

Die Auswertung der Sedimentergebnisse erfolgt im Grunde genommen wie die der Wasserproben. Zusätzlich muß die Ausbeute der Verbrennung berücksichtigt werden. Zu diesem Zweck wird das Verhältnis der Nettozählimpulse $N_{\text{Standard, netto}}$ von einem Standard (Absorptionslösung mit 100 µl ^{125}I -Tracer) und der Probe $N_{\text{Probe, netto}}$ zueinander gebildet:

$$\text{Ausbeute} = \frac{N_{\text{Probe, netto}}}{N_{\text{Standard, netto}}} \quad \text{Gl. 7.2-17}$$

Die Meßzeit wurde so gewählt, daß etwa 10000 Impulse des Standards gezählt wurden. Üblicherweise waren 100 Sekunden ausreichend. Die Unsicherheit der Ausbeute berechnet sich aus der absoluten Unsicherheit der Standardzählimpulse

$$u_{\text{abs,Standard}} = \sqrt{N_{\text{Standard, netto}} + 2 \cdot (N_{\text{Standard, brutto}} - N_{\text{Standard, netto}})} \quad \text{Gl. 7.2-18}$$

und der absoluten Unsicherheit der Probenzählimpulse, die analog berechnet wird. Nach Berechnung der relativen Unsicherheiten ergibt sich für die Unsicherheit der Ausbeute

$$u_{\text{rel, Ausbeute}} = \sqrt{u_{\text{rel, Standard}}^2 + u_{\text{rel, Probe}}^2} \quad \text{Gl. 7.2-19}$$

Alle weiteren Berechnungen werden unter Berücksichtigung der Fehlerfortpflanzung durchgeführt. Die Blindwertkorrektur erfolgte in gleicher Weise wie bei den Wasserproben. Die der

Berechnung zugrunde liegenden statistischen Modelle werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

7.3 Qualitätskontrolle und charakteristische Grenzen

7.3.1 Einleitung und Grundlagen

Ein wesentlicher Teil der Qualitätssicherung sind die Berechnungen der Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen. Diese als charakteristischen Grenzen bezeichneten Größen und die mit dem Analyseverfahren verbundenen Unsicherheiten lassen eine Aussage über die Belastbarkeit von Ergebnissen zu. Bei Auswertungen von Messungen stellen sich die Fragen, ob unter dem gemessenen Signal ein Beitrag der Probe vorliegt, welcher kleinste Beitrag zuverlässig nachgewiesen werden kann und welcher Wertebereich einer Meßgröße mit möglichst großer Wahrscheinlichkeit den wahren Wert der Meßgröße enthält (sofern ein Probenbeitrag erkannt wurde) [Michel und Kirchhoff, 1999]. Diese Fragen werden unter Verwendung der folgenden Definitionen der charakteristischen Grenzen beantwortet.

- Die Erkennungsgrenze y^* (EKG) macht eine Aussage darüber, ob unter dem gemessenen Ereignis ein Beitrag der Probe vorliegt
- Die Nachweisgrenze $y^\#$ (NWG) legt fest, welcher kleinste Wert einer Meßgröße mit dem verwendeten Verfahren nachgewiesen werden kann.
- Die Vertrauensgrenzen y^\triangleleft und y^\triangleright legen einen Vertrauensbereich fest, der mit einer vorher gewählten Wahrscheinlichkeit den wahren Wert der Meßgröße enthält.

In unterschiedlichen Normen und auch im internationalen Sprachgebrauch sind die Definitionen nicht immer einheitlich, in dieser Arbeit gelten die eben genannten Begriffsbestimmungen. Szidat wies in seiner Arbeit auf diese Problematik hin [Szidat, 2000]. Heute stellen der ISO Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM) [ISO, 1995], ein kürzlich erschienenes Supplement zum GUM [ISO, 2005; 2008] und die Norm ISO 11929 „Determination of the detection limit and decision threshold for ionizing radiation measurements“ [DIN-ISO, 2009; ISO, 2005; 2009] eine konsistente, international standardisierte Methodik für Bestimmung der Meßunsicherheiten und der charakteristischen Grenzen zur Verfügung. Auf der Grundlage der Bayes-Statistik und einer Bayesischen Theorie der Meßunsicherheiten [Weise und Wöger, 1992] können charakteristische Grenzen unter Berücksichtigung aller Quellen der Unsicherheit berechnet werden. Das Vorgehen besteht aus einer vollständigen Auswertung der Messung nach dem GUM und der nachfolgenden Bestimmung der charakteristischen Grenzen unter Nutzung der aus der Auswertung erhaltenen Information über die Standardmeßunsicherheit [Weise et al., 2006].

Dabei setzt die Wahl des Vertrauensbereiches voraus, daß ein Probenbeitrag vorliegt. Die Nachweisgrenze macht eine Aussage, ob das gewählte Verfahren den Ansprüchen genügt und ob es für den Meßzweck oder auch zu erwartenden Meßbereich geeignet ist [Michel und Kirchhoff, 1999]. Die Erkennungsgrenze y^* ist eine charakteristische Grenze, bei deren Überschreitung durch einen Meßwert y man die Entscheidung trifft, das das Element oder Radio-

nuklid in der Probe vorhanden ist. Wenn $y < y^*$ ist, entscheidet man sich für die Nullhypothese $H_0: \tilde{y} = 0$ und folgert, daß das Element oder Radionuklid in der Probe nicht gefunden wurde (\tilde{y} ist der wahre Wert der Meßgröße). Die Erkennungsgrenze ist festgelegt durch Gleichung 7-3.1:

$$P(y > y^* | \tilde{y} = 0) = \alpha . \quad \text{Gl. 7.3-1}$$

Die Wahrscheinlichkeit, die Nullhypothese berechtigt zu verwerfen, beträgt $1-\alpha$. Wenn aber kein Probenbeitrag vorliegt und die Nullhypothese nicht verworfen wird, so begeht man mit der Wahrscheinlichkeit α einen Fehler 1. Art.

Dagegen bezeichnet ein Fehler 2. Art ein fälschliches Annehmen der Nullhypothese bei einem vorliegenden Probenbeitrag zum Meßergebnis. Die Wahrscheinlichkeit, einen Fehler 2. Art zu begehen, wird mit β bezeichnet. Fehler 2. Art stellen die Basis zur Berechnung der Nachweisgrenze $y^\#$ dar. Die Nachweisgrenze $y^\#$ wird hinreichend größer als die Erkennungsgrenze y^* festgelegt, so daß die Wahrscheinlichkeit, einen Meßwert $y < y^*$ zu erhalten, vorausgesetzt für den Wert der Meßgröße gilt $\tilde{y} = y^\#$ nicht größer als eine vorher festgelegte Wahrscheinlichkeit β ist. Die Definitionsgleichung für die Nachweisgrenze ist so durch Gleichung Gl. 7.3-2 gegeben:

$$P(y < y^* | \tilde{y} = y^\#) = \beta . \quad \text{Gl. 7.3-2}$$

Die Nachweisgrenze $y^\#$ (Abbildung 23) ist der kleinste (wahre) Wert der Meßgröße, der mit hoher Zuverlässigkeit gemessen werden kann.

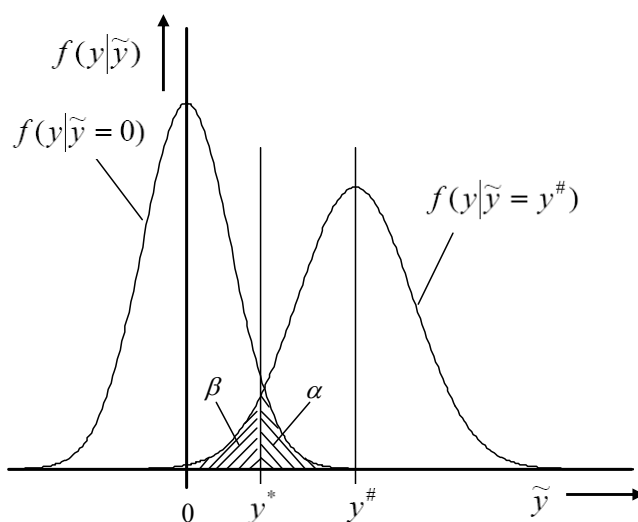


Abbildung 23: Illustration der Erkennungsgrenze y^* und der Nachweisgrenze $y^\#$.

Hohe Zuverlässigkeit bedeutet hier, daß die Wahrscheinlichkeit, fälschlicherweise die Nullhypothese anzunehmen, kleiner als eine vorab festgelegte Wahrscheinlichkeit β ist.

Für ein Meßergebnis y , das die Erkennungsgrenze y^* übersteigt, schließt das Konfidenz- oder Überdeckungsintervall den wahren Wert \tilde{y} der Meßgröße mit der vorab festgelegten Wahrscheinlichkeit $1-\gamma$ ein. Das Überdeckungsintervall wird durch die untere und obere Grenze des Konfidenz- oder Überdeckungsintervalls definiert, die mit y^{\triangleleft} bzw. y^{\triangleright} bezeichnet werden.

$$\int_0^{y^{\triangleleft}} f(\tilde{y}|x) dy = \int_{y^{\triangleright}}^{\infty} f(\tilde{y}|x) dy = \gamma / 2, \quad \text{Gl. 7.3-3}$$

so daß
$$\int_{y^{\triangleleft}}^{y^{\triangleright}} f(\tilde{y}|x) dy = 1 - \gamma \text{ gilt.} \quad \text{Gl. 7-3.4}$$

Die Schwierigkeit bei der Auswahl einer geeigneten Norm für ein Meßverfahren und die bisweilen auftretenden Widersprüche in den Normen wurden bereits in einigen am ZSR angefertigten Arbeiten angesprochen [Ernst, 2003; Klipsch, 2005; Schmidt, 1998; Szidat, 2000]. In dieser Arbeit soll diese Problematik nicht wiederholend diskutiert werden. Alle in dieser Arbeit berechneten charakteristischen Größen wurden unter Verwendung von $\alpha = \beta = \gamma = 0,05$ nach ISO 11929-7 [ISO, 2005]. Es werden die Symbole nach [DIN-ISO, 2009; ISO, 2009] benutzt.

7.3.2 Bayes-Statistik

Die Bayes-Statistik, die dem GUM und ISO 11929 zugrunde liegt, unterscheidet sich in ihrer Sichtweise von der früher benutzten konventionellen Statistik. Die konventionelle Statistik geht der Frage der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Meßwerte y bei einem gegebenen wahren Wert \tilde{y} einer Meßgröße Y nach. Die Bayes-Statistik hingegen trifft eine Aussage über die Wahrscheinlichkeit, daß eine Meßgröße Y den wahren Wert \tilde{y} bei einem gegebenem Meßwert y enthält [Michel und Kirchhoff, 1999]. Damit unterscheiden sich die beiden Statistiken, die ihre Wurzeln in der Wahrscheinlichkeitstheorie haben, nach ihrem Verständnis des Begriffes der Wahrscheinlichkeit. Bei der konventionellen Statistik wird mit der Wahrscheinlichkeit $P(A)$ eine relative Häufigkeit bezeichnet, mit der das Ereignis A bei mehrfach wiederholten Experimenten unter denselben Versuchsbedingungen auftreten wird. $P(A)$ ist dabei größer oder gleich Null und kleiner oder gleich eins. Die konventionelle Statistik macht bei einem Meßproblem die Aussage über die Wahrscheinlichkeit P eines Auftretens des Meßwertes y , wenn die zugehörige Meßgröße Y den wahren Wert \tilde{y} besitzt.

Die Bayes-Statistik beschreibt hingegen mit der Wahrscheinlichkeit $P(A)$, unter Berücksichtigung aller verfügbaren Informationen, den Grad des Vertrauens dafür, daß A auftreten wird, bevor das Experiment durchgeführt wird [Michel und Kirchhoff, 1999]. Zusätzlich läßt die Bayes-Statistik Aussagen darüber zu, mit welcher Wahrscheinlichkeit P eine Hypothese H zutrifft. Es kann also eine Aussage derart formuliert werden, daß aufgrund eines Meßwertes y die Meßgröße Y den wahren Wert \tilde{y} mit der Wahrscheinlichkeit P enthält. Damit gibt die konventionelle Statistik die Wahrscheinlichkeiten in der Form $f(y|\tilde{y})$ an, die Bayes-Statistik trifft Aussagen über $f(\tilde{y}|y)$. Dabei wird $f(\tilde{y}|y)$ als ein Produkt zweier Wahrscheinlichkeiten, dem Daten-Prior und dem Modell-Prior, dargestellt:

$$f(\tilde{y}|y, \mathfrak{T}) = C \cdot f_0(\tilde{y}|y) \cdot f(\tilde{y}|\mathfrak{T}). \quad \text{Gl. 7.3-5}$$

Der Daten-Prior $f_0(\tilde{y}|y)$ ist die Wahrscheinlichkeit dafür, daß die Meßgröße Y bei gegebenem Meßergebnis y den wahren Wert \tilde{y} hat. Dabei sind ausschließlich die Meßwerte von Bedeutung. Er beinhaltet also nur die Informationen, die aus den Meßwerten y der Messung über den wahren Wert \tilde{y} der Meßgröße Y erhalten werden. Der Daten-Prior $f_0(\tilde{y}|y)$ liefert aus einem Meßwert y eine Wahrscheinlichkeitsdichte für den wahren Wert \tilde{y} . Der Modellprior $f(\tilde{y}|\mathfrak{T})$ berücksichtigt alle Informationen \mathfrak{T} , die vor Durchführung des Experimentes über die Meßgröße vorhanden sind.

Jedem Meßwert y ist die Standardunsicherheit $u(y)$ zugeordnet. Unsicherheiten können in Typ A und Typ B Unsicherheiten unterteilt werden. Typ A Unsicherheiten sind nach dem ISO Guide [ISO, 1995] Standardabweichungen von einem bei wiederholenden Messungen bestimmten Mittelwert. Typ B Unsicherheiten sind solche, die nicht in der Hand des Experimentators liegen und nicht durch wiederholte Messungen gewonnen werden können. Sie entstammen beispielsweise Literatur- oder Gerätedaten.

Der Daten-Prior $f_0(\tilde{y}|y)$ bezieht nur Daten aus dem aktuellen Experiment mit ein. Es gelten die Beziehungen

$$y = E(\tilde{y}) \quad \text{Gl. 7.3-6}$$

und
$$u^2(y) = \text{Var}(\tilde{y}) \quad \text{Gl. 7.3-7}$$

mit der Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $f_0(\tilde{y}|y)$. Dabei sind $E(\tilde{y})$ und $\text{Var}(\tilde{y})$ der Erwartungswert bzw. die Varianz von $f_0(\tilde{y}|y)$.

Die Wahrscheinlichkeit $f(\tilde{y}|y, \mathfrak{T})$ kann mit Hilfe des Prinzips der maximalen (Informations-) Entropie berechnet werden [Weise et al., 2006; Weise und Wöger, 1992] und soll hier als gegeben angenommen sein und wird aufgrund der Komplexität dieser Theorie nicht hergeleitet. Die benötigte Wahrscheinlichkeitsverteilung $f(\tilde{y}|y, \mathfrak{T})$ setzt sich aus dem Produkt des Modell-Priors und einer Normalverteilung zusammen. Bei der Schätzung des wahren Wertes \tilde{y} einer Meßgröße Y durch den Meßwert y gilt:

$$f(\tilde{y} | y; \mathfrak{T}) = C \cdot f(\tilde{y}|\mathfrak{T}) \cdot \exp\left(-\frac{(\tilde{y} - y)^2}{2 \cdot u^2(y)}\right). \quad \text{Gl. 7-3.8}$$

Charakteristische Grenzen auf Basis der Bayes-Statistik

Basierend auf der Bayes-Statistik und unter Verwendung des Prinzips der maximalen (Informations-) Entropie können die Wahrscheinlichkeitsverteilungen $f(\tilde{y}|y, \mathfrak{I})$, $f_0(\tilde{y}|y)$ und auch $f_{(y|\tilde{y})}$ sowie die charakteristischen Grenzen der Verteilungen als dessen Quantile festgelegt und bestimmt werden [Weise et al., 2006]. Für die Bestimmung der Meßunsicherheiten sei auf den in dieser Arbeit verwendeten GUM [ISO, 1995] verwiesen.

Ohne eine detaillierte mathematische Begründung, die anderenorts zu finden ist [Weise et al., 2006; Weise und Wöger, 1992], können jetzt die charakteristischen Grenzen, Erkennungsgrenze und Nachweisgrenze, für eine nicht-negative Meßgröße Y , die z. B. die Konzentration eines Elementes oder die Aktivität einer Probe ist, festgelegt und berechnet werden. Der Wert \tilde{y} der Meßgröße ist Null, wenn das Element oder die Aktivität nicht vorhanden sind. Die Erkennungsgrenze und die Nachweisgrenze werden auf der Basis einer statistischen Entscheidung über die Annahme der Nullhypothese $H_0: \tilde{y} = 0$ anstatt der Alternativhypothese $H_1: \tilde{y} > 0$ definiert.

ISO 11929 geht davon aus, daß zuerst eine Messung durchgeführt wurde, die einen Meßwert y als Schätzwert des (wahren) Wertes \tilde{y} der Meßgröße Y als Ergebnis hat. Das Ergebnis der Messung y und die ihm zugeordnete Standardunsicherheit, die nach den Vorgaben des GUM [ISO, 1995] zu bestimmen ist, stellt das vollständige Meßergebnis dar. y und $u(y)$ werden durch Auswertung von Meßgrößen und anderer verfügbarer Information mittels eines mathematischen Modells G ermittelt, das alle relevanten Größen beinhaltet. Die Auswertung macht im allgemeinen keinen Gebrauch von der Tatsache, daß die Meßgröße nicht-negativ ist. Daher kann y negativ werden, besonders dann, wenn der (wahre) Wert der Meßgröße nahe bei Null liegt.

Für die Bestimmung der Erkennungsgrenze und der Nachweisgrenze muß die Standardunsicherheit als Funktion $\tilde{u}(\tilde{y})$ des (wahren) Wertes der Meßgröße \tilde{y} berechnet werden. In Fällen, wo dies nicht möglich ist, sind in ISO 11929 geeignete Näherungsverfahren beschrieben. Die Erkennungsgrenze ist gegeben durch

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0). \quad \text{Gl. 7.3-9}$$

wobei $k_{1-\alpha}$ das $(1-\alpha)$ -Quantil der Standardnormalverteilung ist. $\tilde{u}(0)$ ist die Unsicherheit der Meßgröße Y , wenn der (wahre) Wert Null ist.

Mit der Entscheidungsregel der Erkennungsgrenze und der Definitionsgleichung der Nachweisgrenze ergibt sich die implizite Gleichung 7.3-10 für die Berechnung der Nachweisgrenze $y^\#$

$$y^\# = y^* + k_{1-\beta} \cdot \tilde{u}(y^\#), \quad \text{Gl. 7.3-10}$$

wobei $k_{1-\beta}$ das $(1-\beta)$ -Quantil der Standardnormalverteilung ist. Die Nachweisgrenze kann aus Gleichung Gl. 7.3-10 unter Annahme des Startwertes $y^\# = 2 \cdot y^*$ mittels Iteration berechnet werden.

Explizit werden die untere und obere Grenze des Überdeckungsintervalls, y^\triangleleft und y^\triangleright , über Gleichung 7.3-11 berechnet:

$$\begin{aligned} y^\triangleleft &= y - k_p \cdot u(y) & \text{mit} & & p &= \omega \cdot (1 - \gamma/2) & \text{und} \\ y^\triangleright &= y + k_q \cdot u(y) & \text{mit} & & q &= 1 - \omega \cdot \gamma/2 & \text{Gl. 7.3-11} \end{aligned}$$

mit

$$\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{y/u(y)} \exp(-z^2/2) dz = \Phi(y/u(y)). \quad \text{Gl. 7.3-12}$$

Dabei sind die Funktion $\Phi(t)$, die Verteilungsfunktion der Standardnormalverteilung und k_p die Quantile der Standardnormalverteilung.

Allgemeine Messung einer Netto-Größe mit Kalibrierung

Sowohl für die ICP-MS Messungen als auch für die AMS Messungen werden Erkennungs- und Nachweisgrenzen durch die Blindwerte der Analysen wesentlich bestimmt. Daher soll hier beispielhaft die Berechnung für ein Modell in der Form von Gleichung Gl. 7.3-13 dargestellt werden, das die Auswertung einer beliebigen Messung beschreibt, bei der die Meßgröße als Differenz einer Bruttomessung und einer Untergrund- oder Blankmessung ermittelt wird. Der Wert y der Meßgröße Y ist die Differenz des Bruttosignals x_g und des Blanksignals x_0 multipliziert mit einem Kalibrierfaktor w , mit ihren jeweils zugeordneten Standardunsicherheiten $u(x_g)$, $u(x_0)$ und $u(w)$:

$$y = (x_g - x_0) \cdot w. \quad \text{Gl. 7.3-13}$$

Dann ist die dem Meßwert y zugeordnete Standardunsicherheit $u(y)$ gegeben durch:

$$u^2(y) = w^2 \cdot (u^2(x_g) + u^2(x_0)) + y^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(w)$$

mit $u_{\text{rel}}(w) = u(w)/w. \quad \text{Gl. 7.3-14}$

Die minimal erforderliche Information zur Berechnung der Erkennungsgrenze und der Nachweisgrenze ist, daß das Experiment sowohl für die Bruttomessung als auch für die Blankmessung zumindest einmal erfolgreich durchgeführt wurde. Das bedeutet, daß x_g , $u(x_g)$, x_0 , $u(x_0)$, w , und $u(w)$ verfügbar sind. Es ist hier nicht erforderlich, daß x_g und x_0 aus einem Poisson-Prozeß stammen.

Für $\tilde{y} = 0$ erwartet man $x_g = x_0$ und erhält mit Gleichung Gl. 7.3-14 $\tilde{u}(0) = 2 \cdot u(x_0)$. Damit ergibt sich die Erkennungsgrenze zu:

$$y^* = k_{1-\alpha} \cdot w \cdot \sqrt{2} \cdot u(x_0). \quad \text{Gl. 7-3.11}$$

Wenn keine weitere Information über das Meßverfahren und über $\tilde{u}(\tilde{y})$ vorliegt, kann die Nachweisgrenze nur näherungsweise mittels der Interpolationsformel

$$\tilde{u}^2(\tilde{y}) = \tilde{u}^2(0) \cdot (1 - \tilde{y}/y) + u^2(y) \cdot \tilde{y}/y \quad \text{Gl. 7-3.12}$$

berechnet werden und man erhält eine explizite Formel für die Nachweisgrenze:

$$y^\# = a + \sqrt{a^2 + (k_{1-\beta}^2 - k_{1-\alpha}^2) \cdot \tilde{u}^2(0)} \quad \text{Gl. 7-3.13}$$

mit
$$a = k_{1-\alpha} \cdot \tilde{u}(0) + \frac{1}{2}(k_{1-\beta}^2 / y_1)(u^2(y_1) - \tilde{u}^2(0)). \quad \text{Gl. 7-3.14}$$

Man beachte allerdings, daß die explizite Formel für die Nachweisgrenze lediglich eine Näherung ist, die am besten für $y \approx \geq 2y^*$ ist. Wenn $\alpha = \beta$, folgt $y^\# = 2y^*$.

An dieser Stelle muß angemerkt werden, daß es zwei Gelegenheiten gibt, bei denen das Konzept von Nachweis- und Erkennungsgrenzen anzuwenden ist. Es ist die Blindwertproblematik der reinen AMS-Messung in Zürich und die der gesamten Analyse einschließlich der Aufbereitungsblanks zu betrachten. Die AMS-Anlage an der ETH in Zürich wird mit dortigen, hauseigenen Blindwertproben und Standards versehen. Das als Hintergrund gemessene $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis lag reproduzierbar in der Größenordnung von 10^{-13} [Stocker et al., 2004; Stocker et al., 2005]. Die im Rahmen der Wasser- und Sedimentanalytik angefertigten Blindwertproben werden als Probe und nicht als Blindwert betrachtet, so daß sich die Erkennungs- und Nachweisgrenze dieser Arbeit auf die durchgeführte Aufarbeitung am ZSR und die Messung an der ETH in Zürich bezieht. Die Nachweisgrenzen für ^{129}I im Meerwasser und im Niederschlag lagen unter $1,2 \cdot 10^{-18}$ g/g. Das entspricht einer ^{129}I -Aktivitätskonzentration von weniger als $7,7 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ und damit weniger als 5600 Atome/g.

7.3.3 Blindwerte der Wasserproben

Jede Messung muß unter genauer Beobachtung der Blindwerte ausgewertet werden. Darunter ist der Beitrag eines Meßsignals zu verstehen, der ohne eine gewollte Zugabe des Analyten detektiert wird. Der Blindwert wird von dem Meßwert des Analyten abgezogen.

Es werden die ^{127}I -Blindwerte (für die ICP-MS) und die die Beschleunigermassenspektrometrie betreffenden ^{129}I -Blindwerte unterschieden. Bei der ICP-MS beschränkt sich die Blindwertkorrektur auf das Abziehen des Meßsignals einer 0,01 M Natronlauge von der darauf folgenden Messung einer Probe oder eines Standards. Sowohl in den verdünnten Proben als auch in den Standards wurde eine Hydroxidionenkonzentration von 0,01 mol pro

Liter eingestellt. In späteren Messungen wurde statt Natronlauge TMAH als Base verwendet, s. dazu Abschnitt 7.1.2 und 7.1.3.

Die Blindwerte bezüglich ^{129}I werden nach der Aufarbeitung einer Reinstwasserprobe erhalten. Diese Aufarbeitung entspricht der einer Meerwasserprobe (Zugabe von Woodwardiod, Oxidation, Reduktion, Matrixabtrennung mittels Säulenchromatographie und anschließende Fällung als AgI). Die AMS-Blindwerte wurden in regelmäßigen Abständen und nach dem Verwenden neuer Chemikalien aufgenommen. Die Blindwerte durchlaufen den kompletten Analysegang und erfassen so Kontaminationen durch Chemikalien, Glasgeräte usw. Da die Mehrzahl der untersuchten Wasserproben stark kontaminiert war, wirkte sich die Blindwertkorrektur nicht signifikant auf die am Ende des Auswertegangs erhaltenen Ergebnisse aus, lediglich die Unsicherheiten vergrößerten sich leicht. Kreuzkontaminationen bei gleichzeitiger Aufarbeitung und Trocknung von Blindwerten und stark kontaminierten Proben wurden nicht beobachtet.

Von nahezu jeder WWI-Lösung wurden ebenfalls Blindwertproben angefertigt, um eine denkbare Kontamination dieser Lösung zu erfassen. Zu diesem Zweck wurden $100\ \mu\text{l}$ WWI-Lösung mit $300\ \mu\text{l}$ konzentrierter Salpetersäure und $600\ \mu\text{l}$ $0,5\ \text{M}$ Silbernitratlösung versetzt. Das ausgefallene Silberiodid wurde wie üblich weiterverarbeitet. Diese Woodwardiodblindwerte lieferten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $3 \cdot 10^{-12}$ und weniger.

Aufgrund einer Kontamination durch eine unbekannte Iod-129 Quelle mußte die erste Meßreihe der Ostseeproben verworfen werden. Bei nur wenigen Proben lagen die Iod-129 Gehalte über den Erkennungsgrenzen. Die WWI-Lösung war nicht kontaminiert. Denkbar ist, daß Chemikalien verunreinigt waren. Um dieses Problem zu beheben, wurden alle Lösungen in gereinigten Flaschen neu angesetzt. Mit diesen Maßnahmen und einem erhöhten Einsatz der zu analysierenden Wassermenge konnte das Problem behoben werden.

7.3.4 Blindwerte der Sedimente

Die begleitend zur Sedimentverbrennung aufgenommenen Blindwerte durchlaufen den kompletten Gang der Aufarbeitung. Dabei wurden die für die Probenaufarbeitung verwendeten Chemikalien und Glasgeräte genutzt, so daß eine mögliche Kontamination durch diese Quellen erfaßt wird. Zu Beginn der Sedimentaufarbeitung und nach jeweils vier Probenaufarbeitungen wurden zwei unterschiedliche Blindwerte aufgenommen. In der ersten Variante wird ein halbes Filterpapier mit $100\ \mu\text{l}$ der ^{125}I -Tracerlösung betropft und dem beschriebenen Verfahren der Verbrennung unterzogen. Die danach mit der ICP-MS bestimmte Iod-127-Konzentration in einem abgenommenen Aliquot diente als Blindwert des Iod-127. Zur Kontrolle wurde der Rest der Absorptionslösung mit WWI versetzt und mit Salpetersäure und Silbernitrat gefällt. Der ^{127}I -Blindwert brauchte bei den untersuchten prä-nuklearen und aktuellen Sedimenten nicht berücksichtigt werden, da der BLW mehrere Größenordnungen unter den ^{127}I -Gehalten der Sedimente lag.

Bei der zweiten Variante werden neben dem ^{125}I -Tracer $100\ \mu\text{l}$ einer 1:1000-verdünnten WWI-Lösung auf das Filterpapier getropft. Die etwa $3\ \mu\text{g}$ Woodwardiod dienen als Träger, um die Iod-129 Atome aus der Apparatur zu schleppen. Mit der AMS wurde der Iod-129-Blindwert ermittelt und die beschriebene Blindwertkorrektur vorgenommen.

7.3.5 Analyse von Referenzmaterialien: Seewasser

Da es für ^{129}I und ^{127}I im Meerwasser noch keine Referenzmaterialien gibt, konnten noch keine vergleichenden Untersuchungen stattfinden. In dem Strahlenschutzbericht 4285 [Michel *et al.*, 2004] wurde auf diese Problematik bereits hingewiesen. Im Jahr 2008 wurden von der IAEA Seewasserproben aus der Irischen See (IAEA-443) und dem Mittelmeer (IAEA-418) bereitgestellt, die als Ringprobe aufgearbeitet werden. Ziel ist die Erstellung von zwei zertifizierten Referenzmaterialien für Iod-129 in Seewasser.

Als Vergleichsmöglichkeit der Wasserproben können von Hou *et al.* [Hou *et al.*, 2007] unabhängig untersuchte Proben herangezogen werden, die während der Gaußreise im August 2005 aus dem Englischen Kanal und dem südlichen Nordseeraum genommen wurden. Es handelt sich jedoch nicht um identische Proben. Diese Unterscheidung ist wichtig, da in dieser Arbeit Oberflächenwasser mit NaOH versetzt wurde und in 1 l Polyethylenflaschen gekühlt und unter Lichtausschluß aufbewahrt wurden. Die von Hou *et al.* untersuchten Proben wurden nach der Probennahme in 5 m Tiefe mit einem $45\ \mu\text{m}$ Membranfilter filtriert und unter normalen Laborbedingungen ohne weitere Zusätze aufbewahrt.

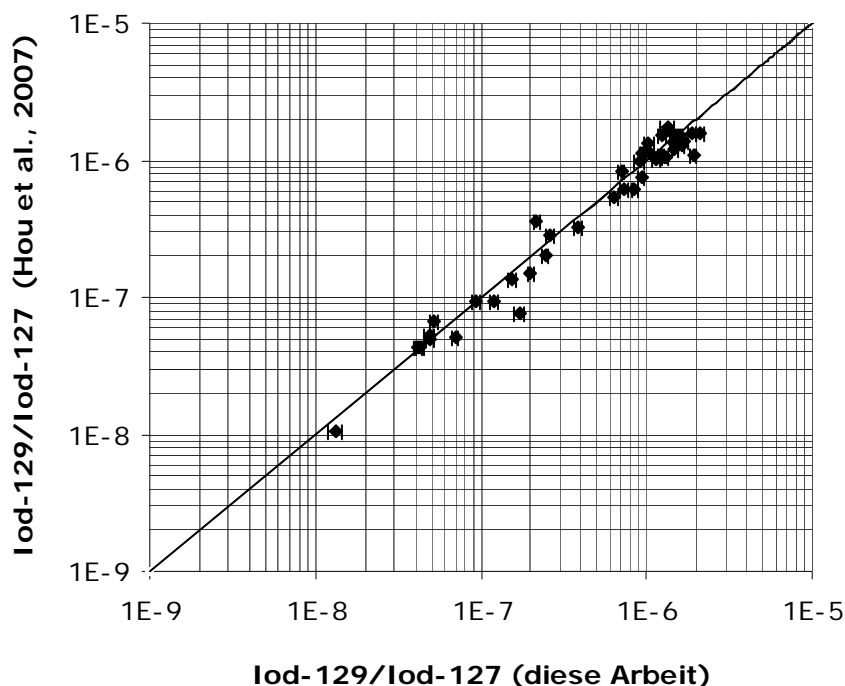


Abbildung 24: Auftragung der von Hou *et al.* [Hou *et al.*, 2007] gefundenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die in dieser Arbeit bestimmten Isotopenverhältnisse.

Die in dieser Arbeit analysierten Proben wurden für die ^{127}I -Bestimmung gefiltert, die Aufarbeitung zur Bestimmung des Isotopenverhältnisses erfolgte mit ungefiltertem Wasser. Auf die von Hou *et al.* [Hou *et al.*, 2007] durchgeführte Speziesanalyse soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden, die Ergebnisse werden in Hinblick auf die Isotopenverhältnisse sowie die ^{127}I - und ^{129}I -Bestimmungen miteinander verglichen.

Eine gute Übereinstimmung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aus dieser Arbeit mit denen aus Hou et al. (2007) ist zu beobachten (s. Abbildung 24). Die Verhältnisse streuen nicht stark um die Gerade, die eine optimale Übereinstimmung darstellt. Setzt man die Ergebnisse dieser Arbeit ins Verhältnis zu denen von Hou et al., ergibt sich ein Mittelwert von 1,11 bei einer relativen Standardabweichung von 25 %. Dieser Wert erscheint aufgrund des relativ großen Meßbereichs als annehmbar, die Isotopenverhältnisse erstrecken sich über vier Zehnerpotenzen.

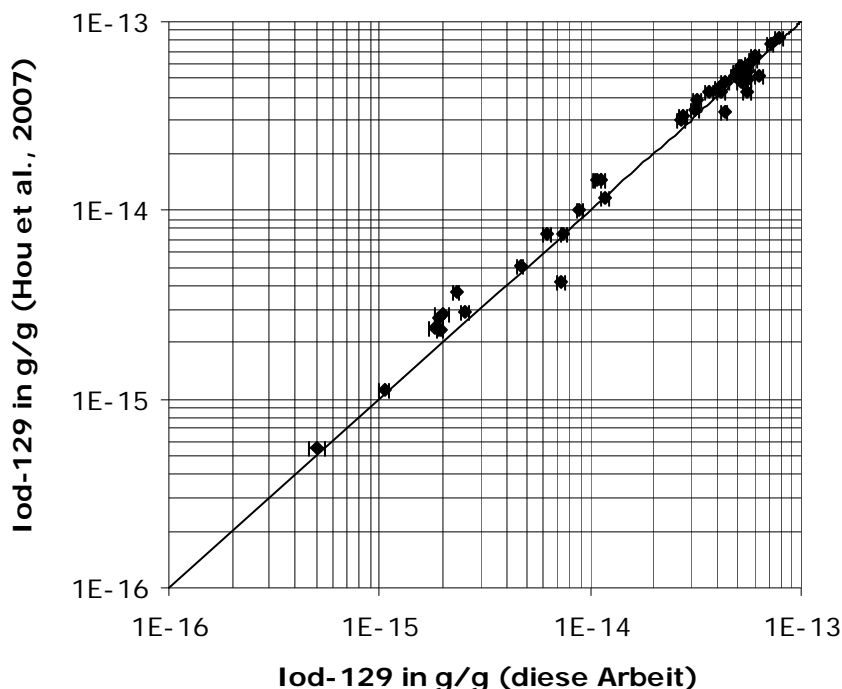


Abbildung 25: Auftragung der von Hou et al. [Hou et al., 2007] gefundenen ^{129}I -Konzentrationen gegen die in dieser Arbeit gemessenen ^{129}I -Konzentrationen, jeweils in g/g.

Ein etwas anderes Bild zeigt der Vergleich der ^{129}I -Konzentrationen (s. Abbildung 25). Die Mehrzahl der Punkte dieser Arbeit liegt über der Geraden, die eine totale Übereinstimmung vorgibt. In dieser Arbeit werden bei vielen Proben geringere ^{127}I -Konzentrationen gemessen als bei denen, die von Hou et al. [Hou et al., 2007] untersucht wurden (s. Abbildung 26). Das Verhältnis der ^{129}I -Konzentrationen aus dieser Arbeit zu denen von Hou et al. (2007) beträgt 0,95, die relative Standardabweichung liegt bei 19,8%. Die Unsicherheiten der ^{127}I -Bestimmungen wurden von Hou et al. [Hou et al., 2007] auf 3-7 % beziffert, die relativen Unsicherheiten dieser Arbeit liegen bei 1-7 %. Das Verhältnis der ^{127}I -Gehalte aus dieser Arbeit zu denen von Hou et al. [Hou et al., 2007] beträgt 0,88, die relative Standardabweichung 23,6%. Die Minderbefunde bezüglich des Iod-127 in dieser Arbeit spiegeln sich auch in den Auftragungen der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I - bzw. ^{129}I -Konzentrationen wieder (s. Abbildung 75 und Abbildung 76 im Anhang I). Nach Messung des Isotopenverhältnisses und der ^{127}I -Konzentration wird der ^{129}I -Gehalt berechnet, so daß sich die Minderbefunde fortpflanzen.

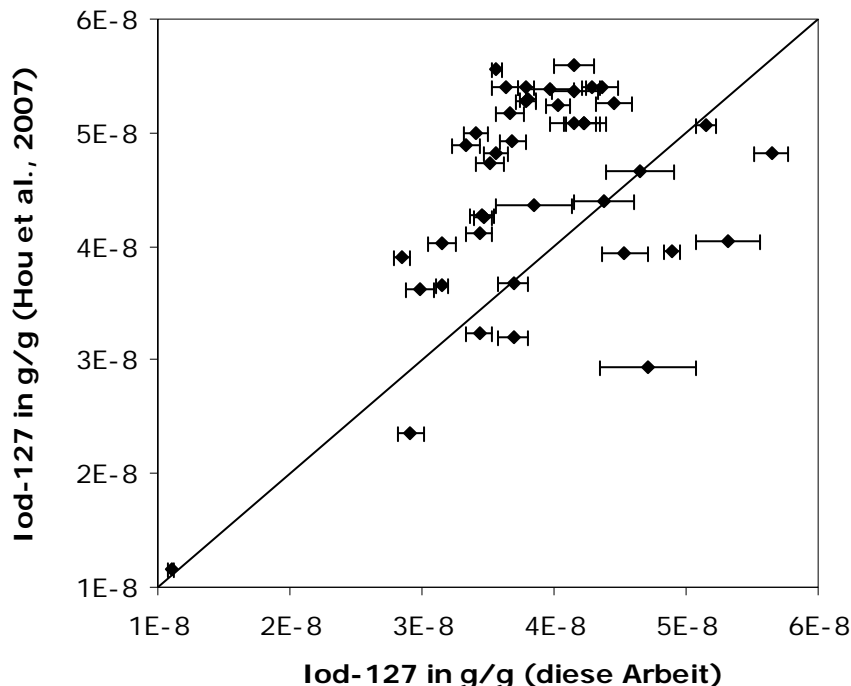


Abbildung 26: Auftragung der von Hou et al. [Hou et al., 2007] gemessenen ^{127}I -Konzentrationen gegen die in dieser Arbeit ermittelten ^{127}I -Gehalte.

Offensichtlich sind größere Unsicherheiten vorhanden als es die Meßwerte suggerieren. Um diesem nachzugehen, tauschte das ZSR mit der Arbeitsgruppe von Hou am Risø einige Proben aus. Vom ZSR wurden See-, Regen-, Brack- und Oberflächenwasserproben zum Risø gesendet und von der dortigen Arbeitsgruppe untersucht. Das ZSR erhielt vom Risø Regen- und Seewasser. Die Ergebnisse sind in Abbildung 77 im Anhang I graphisch gegenübergestellt. Der Austausch der Proben zeigte sowohl positive als auch negative Abweichungen. Die Verhältnisse der vom ZSR ermittelten Iod-127-Gehalte zu denen, die von Hou gefunden wurden, liegen im Mittel bei 0,95, die relative Standardabweichung beträgt 18,8 %. Die Quellen dieser Unsicherheiten sind noch nicht vollständig geklärt. Bei den ausgetauschten Proben gibt es eine bessere Übereinstimmung als bei den untersuchten Meerwasserproben. Dort lagen die Verhältnisse der Iod-127-Gehalte vom ZSR zu denen von Hou bei 0,88 mit einer Standardabweichung von 23,6 %.

Eine mögliche Erklärung für die unterschiedlichen ^{127}I -Ergebnisse in Meerwasserproben ist, daß es sich nicht um exakt dasselbe Probenwasser handelt. Die in dieser Arbeit untersuchten Wasserproben wurden mit Natriumhydroxidplättchen versetzt, um das Iod zu stabilisieren. Die Lagerung erfolgte unter Lichtausschluß. Hou et al. (2007) verwendeten keine weiteren Zusätze, das Wasser wurde gefiltert und lagerte bei normalen Laborbedingungen. Dies würde jedoch dafür sprechen, daß bei den Proben von Hou et al. (2007) weniger Iod gefunden werden mußte. Iod reagiert lichtempfindlich und wird durch Basenzusatz stabilisiert [Ernst, 2003]. Denkbar ist, daß Iodgehalte an der direkten Wasseroberfläche wegen des Phasentransferübergangs in die Atmosphäre etwas geringer ausfallen. Auch könnte Regenwasser die Iodgehalte an der Oberfläche verdünnt haben.

7.3.6 Analysen weiterer Referenzmaterialien

In der Vergangenheit wurde die Richtigkeit der am ZSR durchgeführten Analysen mit wiederkehrenden Untersuchungen gleicher Proben und eines Bodenstandards (IAEA soil-375) untermauert, Genaueres dazu findet sich im Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhabens 4285 [Michel et al., 2004]. Sowohl die am ZSR untersuchten Proben als auch die Standards zeigten relativ große Unsicherheiten. Die Unsicherheiten bezüglich der ^{129}I -Konzentrationen lagen bei 13 % (ZSR) und bei 11 % (Referenz). Bei Untersuchung des Standardreferenzmaterials 2709, San Joaquin soil, wurde eine gute Übereinstimmung mit den ^{127}I -Gehalten beobachtet. Bezüglich der ^{129}I -Konzentrationen gab es aufgrund der geringen ^{129}I -Gehalte keine zufriedenstellenden Übereinstimmungen. Weitere Referenzmaterialien, die jedoch nur die ^{127}I -Konzentrationen betrafen (BCR-279 sea lettuce und Standardreferenzmaterial 1648 urban particulate matter) zeigten gute Übereinstimmungen bei der Bestimmung mittels Ionenchromatographie und ICP-MS [Michel et al., 2004].

Roberts et al. von der AMS-Gruppe am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) organisierten Ringversuche für ^{129}I -Bestimmungen in Standards und Umweltproben [Roberts und Caffee, 2000; Roberts et al., 1997]. An diesen Ringversuchen nahmen sieben Laboratorien teil. Als Standards wurden neben Silberiodidproben auch Umweltproben herausgegeben. Das ZSR nahm auch an dem Ringversuch teil [Schmidt, 1998]. Vier vorbereitete Silberiodidstandards, Bodenproben, Ahornblätter, Tannennadeln, Seetang und Woodwardiod wurden an die verschiedenen Laboratorien verteilt. Die zu bestimmenden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse lagen zwischen 10^{-8} und 10^{-14} . Nicht alle beteiligten Labore waren in der Lage, die Umweltproben zu untersuchen, so daß der Datensatz nicht ganz komplett ist. Während die Silberiodidproben eine sehr gute Übereinstimmung zeigten, wichen die Ergebnisse der Umweltproben um bis zu zwei Zehnerpotenzen voneinander ab. Als Ursache wurde die unterschiedliche Chemie der Aufarbeitung der verschiedenen Institute in Betracht gezogen. Eine weitere mögliche Ursache kann nach Ansicht der Autoren die unterschiedliche Kontamination der Labore und der Chemikalien sein [Roberts et al., 1997].

In der zweiten Phase des Ringversuchs [Roberts und Caffee, 2000] stellten drei verschiedene Laboratorien Silberiodidproben nach Aufarbeitung von zwei Umweltproben her. Zum einen wurde der Standard „IAEA 375 soil“ aufgearbeitet, zum anderen wurden Ahornblätter für die AMS-Messung vorbereitet. Dabei nutzte jedes Labor seine eigene Probenvorbereitung, Chemikalien usw. Jede der Methoden wies damit Unterschiede auf. Die vorbereiteten Proben wurden auf die Laboratorien verteilt und die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bestimmt. Bezüglich des Bodenstandards IAEA 375 wurde unabhängig von der Art und Weise der Probenvorbereitung eine recht gute Übereinstimmung der Isotopenverhältnisse mit den erwarteten Werten beobachtet. Anders sah es bei den untersuchten Ahornblättern aus. Diese streuten um den Faktor zehn. Eine Erklärung sehen Roberts und Caffee (2000) in der unterschiedlichen chemischen Aufarbeitung. Störende Nuklide werden demnach unter Umständen nicht vollständig entfernt. Hinzu kommt außerdem, daß die verschiedenen AMS-Labore unterschiedliche Ladungszustände für die Detektion nutzen und damit auch störende Nuklide nicht gleich effizient abgetrennt werden. Als problematisch in Zürich haben sich Tellur-128 aufgrund schlechter Massenauftrennung und Molybdän-97 erwiesen. Ausführlichere Informationen sind der angegebenen Originalliteratur und dem Abschlußbericht 4285 zu entnehmen [Michel et al., 2004; Roberts und Caffee, 2000; Roberts et al., 1997].

Da es für Seesedimente keine Standardreferenzmaterialien gibt, wurde in dieser Arbeit der Bodenstandard „IAEA 375 soil“ in regelmäßigen Abständen aufgearbeitet. Die Verbrennung des feinpulverigen Bodens geschah in gleicher Weise wie die der Sedimente. Zur Aufarbeitung wurden 4 und 5 g des Standards eingesetzt, da von wesentlich geringeren Iodgehalten und geringerer ^{129}I -Kontamination verglichen mit den Sedimenten ausgegangen wurde. Die spezifische ^{129}I -Aktivität des Standards wird auf $0,0017 \pm 0,0004 \text{ Bq}/(\text{kg TM})$ beziffert, dabei betrug der Vertrauensbereich 95 %. Die in dieser Arbeit gefunden spezifischen Aktivitäten aus vier Verbrennungen lagen im Mittel bei $0,0018 \text{ Bq}/\text{kg}$ mit einer relativen Standardabweichung von 20,5 %, in Abbildung 27 sind die Ergebnisse der Untersuchungen des Referenzmaterials zusammengefaßt, s. dazu auch Tabelle 51 im Anhang I. Die außerhalb des Vertrauensbereichs liegende vierte Analyse ist möglicherweise auf die schlechte Ausbeute der Verbrennung von nur 47 % zurückzuführen. Die übrigen drei Ergebnisse liegen innerhalb des 95 %-Vertrauensbereichs.

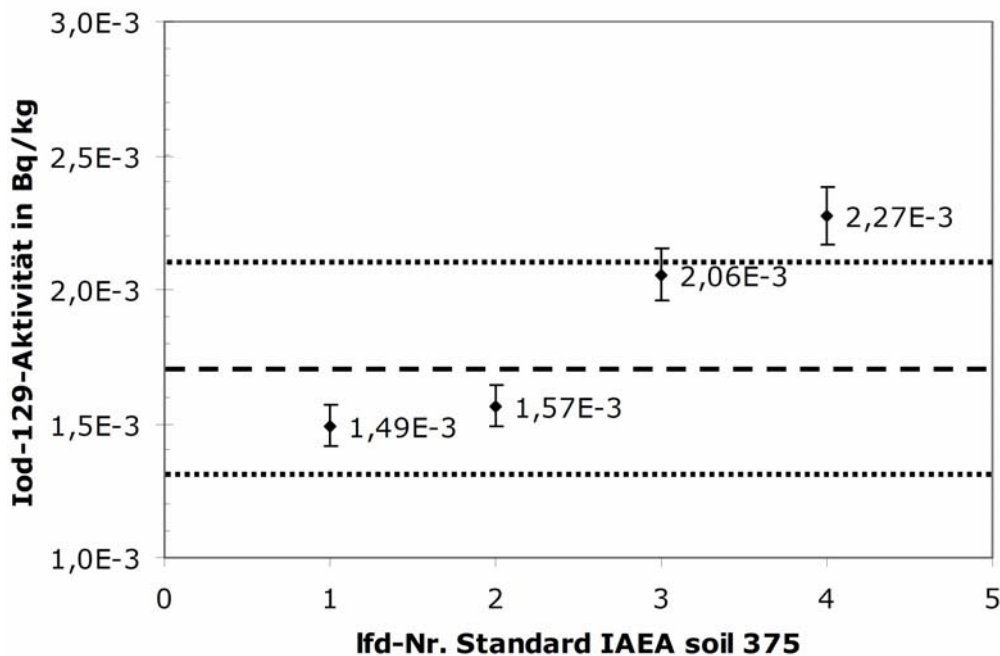


Abbildung 27: Ergebnisse der Analysen des Standards „IAEA 375 soil“. Die gestrichelte Linie gibt den Referenzwert an, die beiden gepunkteten Linien schließen das 95 %-Konfidenzintervall ein.

Entnahmetiefe von etwa 5 m unter der Wasseroberfläche. Abbildung 28 zeigt die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der ersten Beprobungsfahrt über die Deutsche Bucht von vom 25.05.05 bis zum 05.06.05. Die Tiefenprofile zeigen für die Stationen Wbank, Ngw 8, Elbe 1 und Swwba eine gute Durchmischung in der Wassersäule in bezug auf die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen sowie die Salinitäten. Daher wird auf eine gesonderte Darstellung der Tiefenprofile verzichtet und auf die Tabellenwerke im Anhang I verwiesen. Das während dieser Reise entnommene Sediment stammt von Station KS 11.

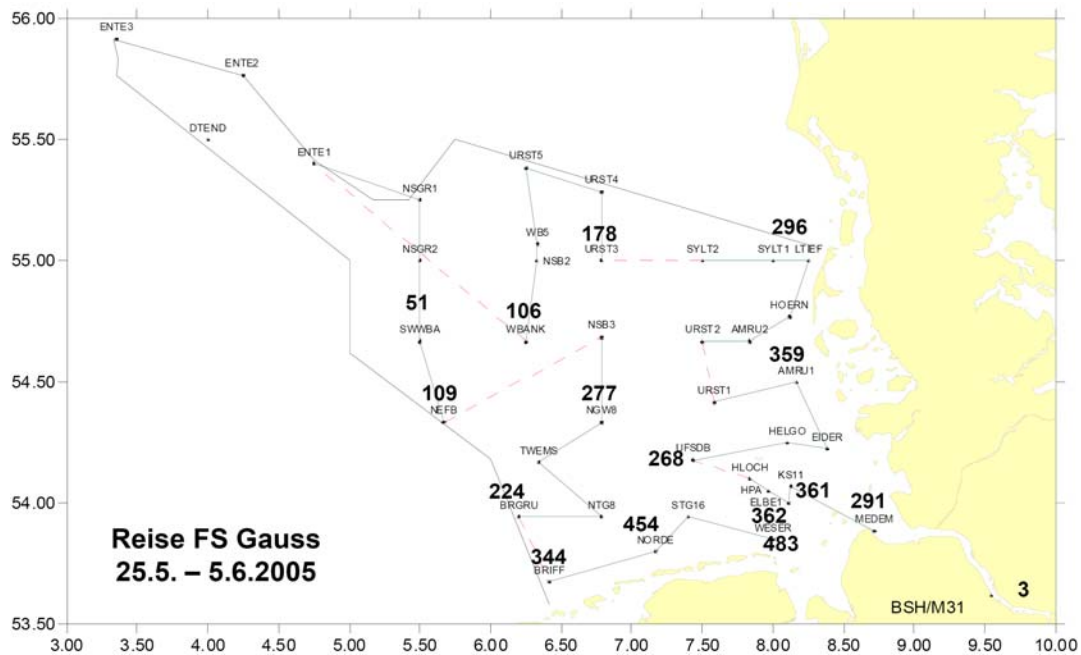


Abbildung 29: ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m^3 im Oberflächenwasser (Entnahmetiefe 5 m) der Deutschen Bucht (Gaußfahrt 440 vom 25.05.05 bis zum 05.06.05). Diese Karte wurde vom BSH bereitgestellt [Nies *et al.*, 2008].

Die Angabe der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m^3 entspricht der ebenfalls üblichen Angabe in $\mu\text{Bq}/\text{l}$.

Tabelle 19: Vergleich zweier Seewasserproben aus der Deutschen Bucht, die sich nur durch die NaOH-Zugabe unterscheiden. Alle vier Proben wurden aus der Bordseewasserleitung (BSWL) während der Gaußfahrt 440 (Mai bis Juni 2005) entnommen.

Station	NaOH-Zugabe	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Iod-127
		in 10^{-6}	in ng/g
BRIFF	nein	$1,22 \pm 0,06$	$40,73 \pm 0,90$
BRIFF	ja	$1,24 \pm 0,09$	$41,66 \pm 1,60$
NGW 8	nein	$1,02 \pm 0,05$	$38,91 \pm 0,94$
NGW8	ja	$1,10 \pm 0,05$	$37,73 \pm 0,84$

Wie in Abschnitt 6.1 beschrieben wurden die Wasserproben unmittelbar nach der Entnahme mit zwei NaOH-Plättchen versetzt, um das Iod zu stabilisieren. Bei den Stationen Borkumriff

(BRIFF) und NGW 8 wurde jeweils einer Probe kein NaOH zugegeben, um den Einfluß der Natronlauge zu untersuchen. Der Unterschied zu den mit NaOH versetzten Proben ist nicht signifikant. Tabelle 19 zeigt den Vergleich der alkalisch konservierten Proben mit denen, die nicht mit NaOH versetzt wurden. Da alle übrigen Proben aus der Deutschen Bucht mit Natriumhydroxidplätzchen versehen wurden, sind in Abbildung 28 und Abbildung 29 von den Stationen BRIFF und NGW 8 die Daten verwendet worden, die auf den alkalisierten Meerwasserproben beruhen.

Im Anschluß an die Nordseereise erfolgte eine weitere Beprobung mit dem FS Gauß vom 29.08. bis zum 05.09.2005 über die Deutschen Bucht, Fahrtnummer 446 b. Im Unterschied zur ersten Reise wurden die Wasserproben mit Plastikflaschen direkt an der Wasseroberfläche entnommen und es wurden zum Teil andere Stationen angelaufen. Abbildung 30 und Abbildung 31 zeigen die Ergebnisse dieser Beprobungsfahrt als $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und als ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen.

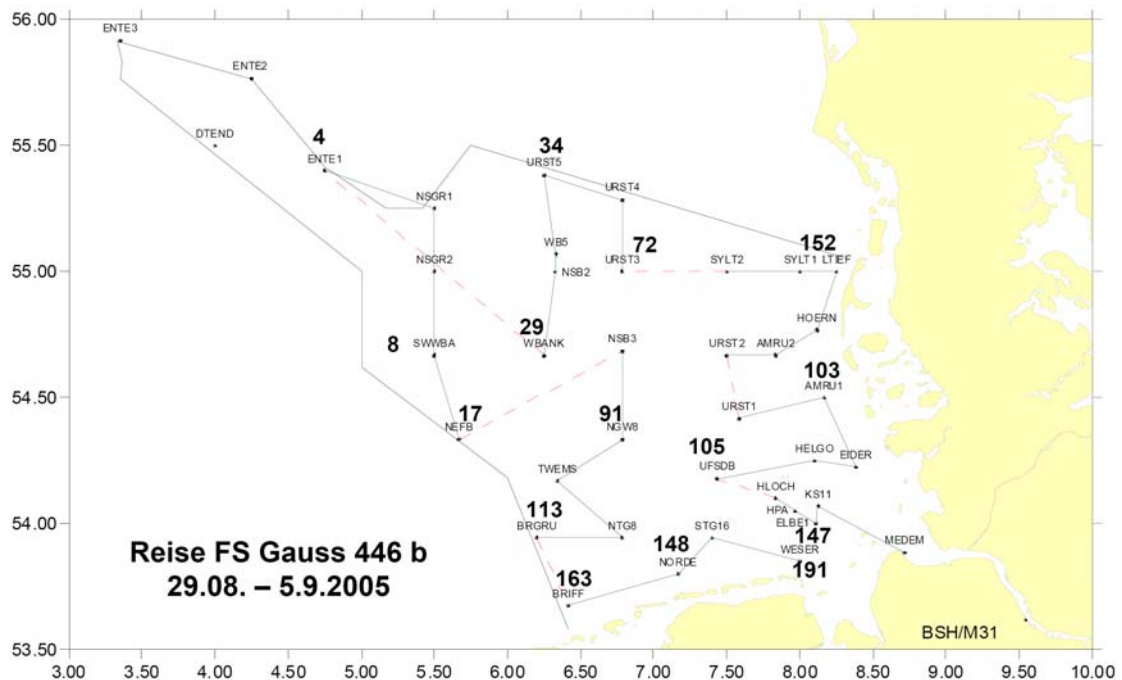


Abbildung 30: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in 10^{-8} im Oberflächenwasser der Deutschen Bucht, Gaußfahrt 446 b vom 29.08.05 bis 05.09.05.

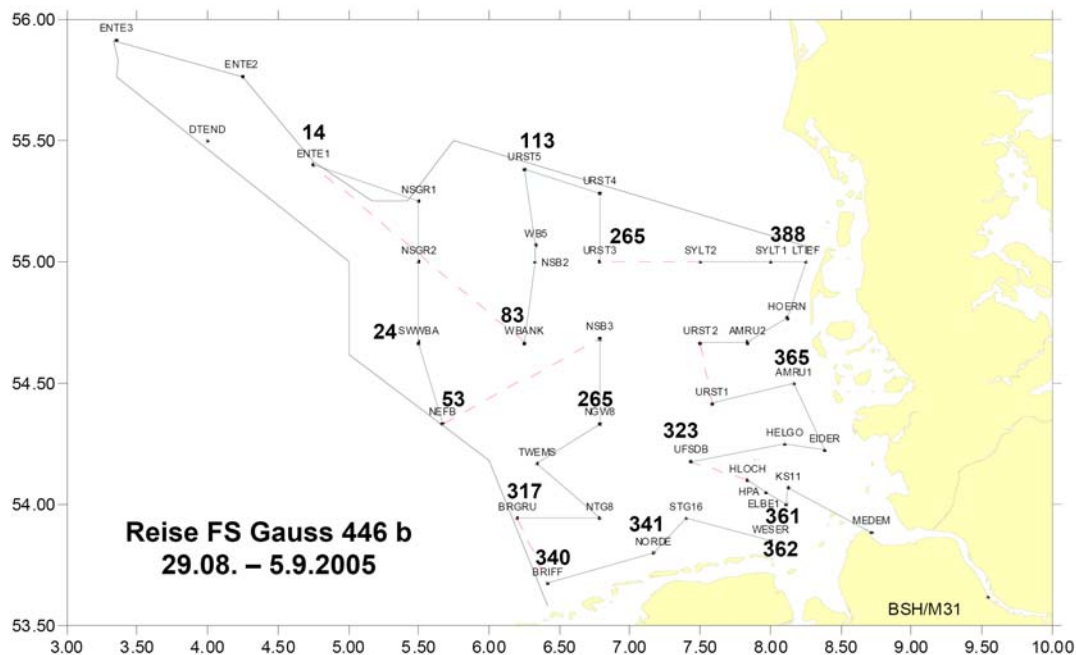


Abbildung 31: ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m^3 im Oberflächenwasser der Deutschen Bucht, Gaußfahrt 446 b vom 29.08.05 bis 05.09.05.

Eine weitere, weniger umfangreiche Beprobung der Deutschen Bucht fand im November 2005 statt. Da nur vier Proben entnommen wurden, soll an dieser Stelle eine kurze Ergebnispräsentation in Tabelle 20 ausreichen, ergänzende Probenparameter und die Aktivitätskonzentrationen befinden sich im Anhang I.

Tabelle 20: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und ^{127}I -Konzentrationen im Oberflächenwasser der Deutschen Bucht, Gaußfahrt 451 vom 18.11.05 bis 28.11.05.

Station	Datum	Iod-129/Iod-127	Iod-127
		in 10^{-8}	in ng/g
Elbe 1	19.11.2005	$121,77 \pm 7,70$	$36,07 \pm 1,73$
URST 5 ^{a)}	22.11.2005	$19,71 \pm 0,97$	$41,60 \pm 1,02$
URST 5 ^{a)}	22.11.2005	$18,70 \pm 0,92$	$41,60 \pm 1,02$
Ente 3	23.11.2005	$5,27 \pm 0,38$	$42,44 \pm 1,86$
BRIFF	25.11.2005	$161,85 \pm 9,16$	$39,57 \pm 1,53$

a) identische Probe, zweimal aufgearbeitet

Die erste Aufarbeitung der Wasserprobe von Station URST 5 lieferte einen augenscheinlich schmutzigen, grauen Silberiodidniederschlag. Aus diesem Grund wurde die Aufarbeitung wiederholt. Es zeigt sich eine gute Reproduzierbarkeit der Probenvorbereitung. Die ICP-MS-Analyse verlief davon unabhängig und wurde einmal durchgeführt.

Eine Einzelprobe der Station Elbe 1 von der Gaußfahrt 465 vom Oktober 2006 zeigt ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,57 \cdot 10^{-6}$ und eine ^{127}I -Konzentration von 35,15 ng/g. Die relativen Unsicherheiten betragen 5 % und 3 %. Elbe 1 ist eine der Stationen, die mehrfach beprobt wurde, so daß kleine Zeitreihen zugänglich sind, s. Tabelle 30.

8.2 Iod-127 und Iod-129 in der Nordsee und in der Irischen See

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Nordseereise von August 2005 zusammengefaßt, die auch Bestandteil des Strahlenschutzvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] sind. Abbildung 32 und Abbildung 33 zeigen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in der Nordsee und dem Englischen Kanal. In den Karten sind zusätzlich die Ergebnisse von der Irischen See und der schottischen Küste angegeben, die ein Jahr später durch das ZSR und das Forschungsschiff Endeavour entnommen wurden.

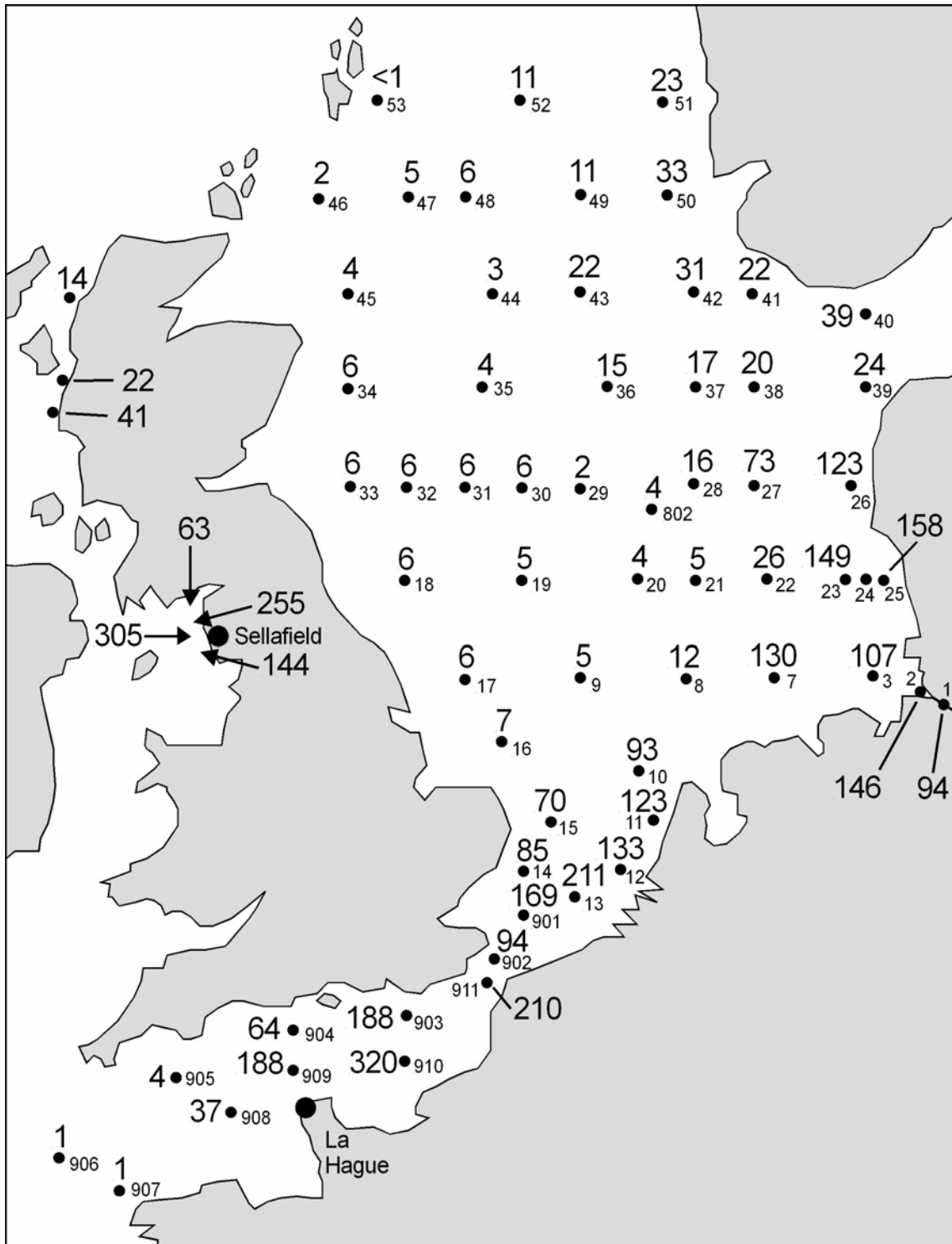


Abbildung 32: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in 10^{-8} im Oberflächenwasser des Englischen Kanals und der Nordsee, die während der Augustreise 2005 beprobt wurden. Ergänzt sind die Ergebnisse aus der Irischen See und von der schottischen Küste (Probennahme durch das FS Endeavour und das ZSR im Sommer 2006). Die kleinen Ziffern beschreiben die Stationsnummern, die größeren Zahlen geben die Ergebnisse an.

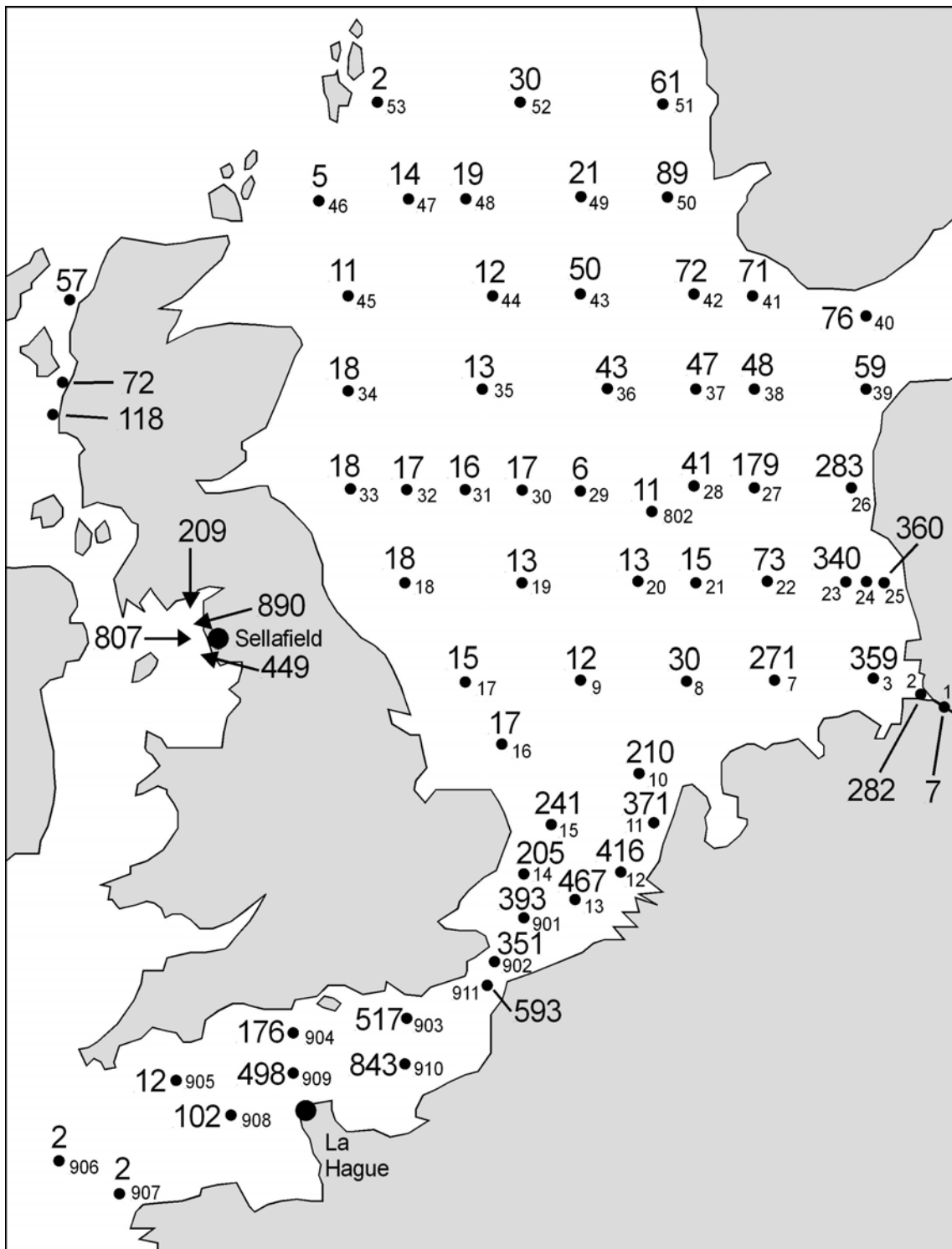


Abbildung 33: ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen im Oberflächenwasser des Englischen Kanals und der Nordsee, die während der Augustreise 2005 beprobt wurden. Ergänzt sind die Ergebnisse aus der Irischen See und von der schottischen Küste (Probennahme durch das FS Endeavour und das ZSR im Sommer 2006). Kleinen Ziffern stehen für die Stationsnummern die größeren beschreiben die experimentellen Daten in mBq/m³.

Da die Iod-127-Konzentrationen im Meerwasser nahezu konstant sind und nur in küstennahen Gegenden größere Variationen aufweisen, wird hier auf eine Darstellung in einem Stationsplan verzichtet. In Abschnitt 10.1 wird diese Thematik ausführlicher besprochen.

8.3 Tiefenprofile

Während der Gaußfahrten 440 und 446 a wurden an ausgewählten Stationen Tiefenprofile entnommen, die Aufschluß über die Durchmischung und die Strömungsverhältnisse im Tiefenwasser geben sollen. Da innerhalb der Deutschen Bucht eine gute Durchmischung festgestellt wurde, wird auf eine detaillierte tabellarische Darstellung verzichtet. Die Ergebnisse der Tiefenprofile aus der Deutschen Bucht (Stationen Elbe 1, Swwba, Wbank und Ngw 8) sind den Tabellenwerken im Anhang I zu entnehmen.

Abbildung 18 zeigt das Stationsnetz der Nordseereise vom August 2005 und kennzeichnet die Orte, an denen Tiefenprofile entnommen wurden. Die Stationen 13 (Bligh Bank), 34, 17 (Neptune Gas Field), 911 (Cap Griz Nez) und 25 (Lister Tief) zeigen innerhalb der Wassersäule eine gute Durchmischung. Die ^{127}I -Konzentrationen und die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen sind von der Oberfläche bis in die Tiefe nahezu konstant, demzufolge variieren auch die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nicht. Auch hier sei auf das umfangreiche Datenmaterial im Anhang I dieser Arbeit verwiesen. Üblicherweise wurden neben einer Oberflächenwasserprobe je eine weitere Probe bei etwa der halben Tiefe und wenige Meter über dem Meeresboden entnommen. Es stehen nicht für exakt jede beprobte Tiefe die Salinitäten zur Verfügung. Es wurden Salinitäten ergänzt, die in nächster Nähe zur entnommenen Wasserprobe ermittelt wurden und aus dem vom BSH übermittelten Datensatz zur Verfügung stehen (s. Tabelle 58 im Anhang II).

Tabelle 21: Ergebnisse des bei Station 907 (VTG-Quessant) entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe in m	Iod-129/Iod-127 in 10^{-9}	^{129}I -Konzentration in $\text{g/g} \cdot 10^{-16}$	^{127}I -Konzentration in ng/g	Salinität
0	7,37 ± 0,36	2,53 ± 0,10	33,75 ± 0,89	35,32
50	3,49 ± 0,17	1,11 ± 0,05	31,17 ± 0,88	35,34
100	4,78 ± 0,21	2,43 ± 0,10	50,05 ± 0,78	35,34 ^{a)}

^{a)} in 104 m Tiefe

Stationen aus dem Englischen Kanal sind nach der BSH-Numerierung mit 900er Nummern gekennzeichnet. Die Wassertiefe bei Station 907 beträgt 104 m. Es werden sehr hohe und konstante Salinitäten beobachtet.

Tabelle 22: Ergebnisse des bei Station 906 (nordwestlich Quessant) entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁹	in g/g · 10 ⁻¹⁶	in ng/g	
0 ^{a)}	13,48 ± 1,18	5,44 ± 0,43	39,69 ± 1,35	35,30
50	7,50 ± 0,99	2,86 ± 0,38	37,61 ± 0,45	35,33
100 ^{a)}	36,05 ± 1,98	13,84 ± 0,70	37,80 ± 0,82	35,33

^{a)} Mittelwert aus zwei Aufarbeitungen

Tabelle 23: Ergebnisse des bei Station 53 (östlich der Shetlandinseln) entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁹	in g/g · 10 ⁻¹⁶	in ng/g	
0	5,99 ± 0,83	2,72 ± 0,37	44,71 ± 0,85	35,31
60	5,79 ± 0,81	2,71 ± 0,37	46,02 ± 1,02	35,37
120	4,71 ± 0,80	2,18 ± 0,37	45,61 ± 1,09	35,37

Tabelle 24: Ergebnisse des bei Station 46 entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁹	in g/g · 10 ⁻¹⁶	in ng/g	
0	15,66 ± 1,05	7,72 ± 0,49	48,53 ± 1,07	35,29
45	10,25 ± 0,92	4,77 ± 0,41	45,80 ± 1,02	35,28
97	6,72 ± 0,90	2,83 ± 0,37	41,42 ± 0,78	35,31 ^{a)}

^{a)} in 101 m Tiefe

Diese Ergebnisse der Tiefenprofile von Station 53 und 46 (Tabelle 23 und Tabelle 24) können Aufschluß über den Eintrag des aus Sellafield stammenden Iod-129 in die Nordsee geben. Es gilt als gesichert, daß die Wassermassen aus der Irischen See um die Nordküste Schottlands in die Nordsee eindringen (s. Abschnitt 5.5). Alle eben vorgestellten Profile zeigen hinsichtlich der Salinitäten keine Auffälligkeiten.

Tabelle 25: Ergebnisse des bei Station 51 (östlich Bergenbank) entnommenen Tiefenprofils

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁹	in g/g · 10 ⁻¹⁶	in ng/g	
0	230,69 ± 10,77	93,19 ± 3,89	39,77 ± 0,84	33,00
100	37,74 ± 2,02	17,21 ± 0,82	44,89 ± 1,12	35,23
250	33,66 ± 1,98	14,73 ± 0,73	43,09 ± 1,39	35,23 ^{a)}

^{a)} in 256 m Tiefe

Tabelle 26: Ergebnisse des bei Station 50 (westlich Boknafjord) entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁹	in g/g · 10 ⁻¹⁶	in ng/g	
0	331,72 ± 14,42	136,54 ± 5,67	40,52 ± 0,52	32,58
100	19,62 ± 1,21	8,97 ± 0,53	45,00 ± 0,84	35,29
230	30,81 ± 1,66	13,57 ± 0,68	43,38 ± 0,83	35,24

Die Lagen der Stationen 51 (Tabelle 25), 50 (Tabelle 26) und 40 (Tabelle 27) verlaufen beginnend in der nordöstlichen Nordsee um die norwegische Küste bis in den Skagerrak. Im Oberflächenwasser ist der Einfluß der Ostsee zu beurteilen und es gilt die Herkunft des Tiefenwassers zu klären. Dieser Bereich umfaßt den Ausfluß aus dem Skagerrak in Richtung des Nordatlantiks. Station 39 befindet sich an der nordwestlichen Küste Dänemarks nahe dem Skagerrak. Hier trifft die aus südlicher Richtung kommende Strömung auf Ostseewasser. Im Skagerrak (Station 40) wird eine starke Zunahme der Salinitäten bei größeren Tiefen festgestellt.

Tabelle 27: Ergebnisse des bei Station 40 (Skagerrak) entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁹	in g/g · 10 ⁻¹⁶	in ng/g	
0	384,61 ± 20,93	116,60 ± 4,85	29,84 ± 1,05	29,12
200	37,20 ± 2,12	14,06 ± 0,70	37,21 ± 1,03	35,25
512 ^{a)}	53,54 ± 2,77	21,62 ± 1,00	40,03 ± 0,82	35,17 ^{b)}

^{a)} gemittelter Wert aus zwei Aufarbeitungen

^{b)} bei 498 m

Station 39 liegt nur wenig südlich von Station 40, dennoch werden stark unterschiedliche Ergebnisse erhalten.

Tabelle 28: Ergebnisse des bei Station 39 (Hansthalm) entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁸	in g/g · 10 ⁻¹⁵	in ng/g	
0 ^{a)}	23,66 ± 1,05	8,97 ± 0,34	37,42 ± 0,85	31,45
15	53,45 ± 2,34	22,05 ± 0,91	40,61 ± 0,59	33,66
30	52,29 ± 2,47	21,44 ± 0,89	40,38 ± 0,92	33,65 ^{b)}

^{a)} gemittelter Wert aus zwei Aufarbeitungen

^{b)} bei 27 m Tiefe

Zu beachten ist, daß in Tabelle 28 und Tabelle 29 die ¹²⁹I/¹²⁷I-Isotopenverhältnisse in 10⁻⁸ und nicht mehr in 10⁻⁹ angegeben werden. Auch die ¹²⁹I-Konzentration ist um eine Größenordnung gestiegen.

Tabelle 29: Ergebnisse des bei Station 34 entnommenen Tiefenprofils.

Tiefe	Iod-129/Iod-127	¹²⁹ I-Konzentration	¹²⁷ I-Konzentration	Salinität
in m	in 10 ⁻⁸	in g/g · 10 ⁻¹⁵	in ng/g	
0 ^{a)}	6,24 ± 0,40	2,82 ± 0,14	44,44 ± 1,82	34,97
39 ^{a)}	6,08 ± 0,38	2,74 ± 0,13	44,31 ± 1,78	34,98
70	7,35 ± 0,46	3,29 ± 0,15	44,05 ± 1,80	34,98

^{a)} gemittelter Wert aus drei Aufarbeitungen

Um die Reproduzierbarkeit der Aufarbeitungen zu testen, wurden die Wasserproben von 0 m und 39 m Tiefe je dreimal aufgearbeitet. Es zeigte sich eine sehr gute Übereinstimmung der Meßergebnisse und damit eine gute Reproduzierbarkeit der Aufarbeitungen. Die relative Standardabweichung der ¹²⁹I/¹²⁷I-Isotopenverhältnisse der drei Analysen lag bei nur 2,4 % (0 m) und 4 % (39 m). Gute Reproduzierbarkeiten wurden bei nahezu allen Wasserproben beobachtet, die mehrfach aufgearbeitet wurden. Die dazugehörigen Daten können dem Anhang I entnommen werden.

8.4 Zeitreihen

Einige Stationen wurden während mehrerer Beprobungsfahrten angelaufen, so daß kleine Zeitreihen vorhanden sind. Elbe 1 ist vierfach und die Station Briff ist dreifach beprobt worden. Die Probennahme erstreckt sich bei diesen Stationen über den größten Zeitraum. Die Ergebnisse sind Tabelle 30 bis Tabelle 32 zu entnehmen. Die Stationen Stade, Medem, Urst 3, Urst 5, Ngw 8, Nefb, Norde, Weser und Wbank wurden nur zweimal angelaufen, deren Ergebnisse sind den Tabellenwerken im Anhang I zu entnehmen. Bei allen der eben erwähnten Stationen sind gleichbleibend hohe Kontaminationen festzustellen. Alle Wasserproben wurden an der Oberfläche entnommen.

Tabelle 30: Ergebnisse der mehrfach beprobten Station Elbe 1.

Datum	Iod-129/Iod-127	Iod-127	Iod-129-Aktivitätskonz.
	in 10^{-6}	in ng/g	in $\mu\text{Bq/l}$
26.05.2005	1,61 \pm 0,07	33,75 \pm 0,53	361,74 \pm 14,14
29.08.2005	1,47 \pm 0,08	36,92 \pm 1,17	361,31 \pm 14,92
19.11.2005	1,22 \pm 0,08	36,07 \pm 1,73	291,52 \pm 12,04
14.10.2006	1,58 \pm 0,08	35,15 \pm 1,08	368,14 \pm 15,20

Tabelle 31: Ergebnisse der Station Borkumriff (Briff).

Datum	Iod-129/Iod-127	Iod-127	Iod-129-Aktivitätskonz.
	in 10^{-6}	in ng/g	in $\mu\text{Bq/l}$
04.09.2005	1,24 \pm 0,09	41,66 \pm 1,60	343,72 \pm 19,63
04.06.2005	1,63 \pm 0,07	31,51 \pm 0,50	340,03 \pm 14,04
25.11.2005	1,62 \pm 0,09	39,96 \pm 1,53	425,08 \pm 17,55

Die Ergebnisse der dreifach beprobten Station Borkumriffgrund (Brgru) zeigt Tabelle 32. Von August 2005 bis November 2006 wurden drei Proben entnommen.

Tabelle 32: Ergebnisse der mehrfach beprobten Station Borkumriffgrund (Brgru).

Datum	Iod-129/Iod-127	Iod-127	Iod-129-Aktivitätskonz.
	in 10^{-6}	in ng/g	in $\mu\text{Bq/l}$
29.08.2005	1,13 \pm 0,06	42,34 \pm 1,58	224,47 \pm 1,58
07.09.2006	0,91 \pm 0,05	37,29 \pm 0,82	271,02 \pm 0,82
15.11.2006	1,30 \pm 0,07	31,53 \pm 1,09	317,20 \pm 1,09

8.5 Iod-127 und Iod-129 in der Ostsee

Den Startpunkt der Ostseeuntersuchungen auf Iod-129 in dieser Arbeit setzen zwei Einzelproben aus dem Arkonabecken und der Kieler Bucht (Stationsnamen nach der BSH-Nomenklatur: Arko 2 und Kibu 1). Diese wurden während der Gaußreise der Fahrnummer 461 am 15. und 16. Juni 2006 gewonnen, s. Tabelle 33. Im Rahmen der Diskussion werden die vom BSH vergebenen Stationsnamen verwendet. Wie auch innerhalb der Deutschen Bucht sind den Stationen feststehende Koordinaten und Namen zugeordnet. Alle auf Iod-127 und Iod-129 untersuchten Wasserproben stammen von der Oberfläche. Tiefenwasser oder Profile aus der Ostsee sind nicht vorhanden.

Tabelle 33: Ergebnisse zweier Einzelproben aus der Ostsee (Oberflächenwasser) vom Juni 2006.

Station	Datum	Iod-129/Iod-127	Iod-127
		in 10^{-7}	in ng/g
Arko 2	15.06.2006	1,06 ± 0,13	9,69 ± 0,74
Kibu 1	16.06.2006	2,29 ± 0,17	19,37 ± 1,09

Die Lage der Probeentnahmeorte wird in Abbildung 34 dargestellt.

Im Jahre 2007 wurde eine umfangreiche Beprobung der Ostsee mit dem Forschungsschiff Deneb durchgeführt. Bei allen Proben sind auch ^{137}Cs -Daten vom BSH ermittelt worden, Strontium-90 wurde nur an ausgewählten Stationen bestimmt. Cäsium-137 wurde auch im Tiefenwasser analysiert. Abbildung 34 zeigt deutlich, daß im Gegensatz zu den Nordseewasserproben keine konstanten ^{127}I -Konzentrationen beobachtet werden. Diese streuen um mehr als den Faktor zwei (11,7 ng/g bei Usedom bis 25,2 ng/g bei KFOTN 6). Die Variation der Iod-127-Gehalte spiegelt sich auch in den Salinitäten wieder, die in Abbildung 35 dargestellt sind. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind in Abbildung 36 zu finden. Um der Vollständigkeit genüge zu tun, sei an dieser Stelle auf den Anhang I beginnend bei Tabelle 47 verwiesen, in dem neben den Koordinaten, Meßunsicherheiten und begleitenden Probenparametern auch die Ergebnisse der übrigen Radionuklide zusammengestellt sind.

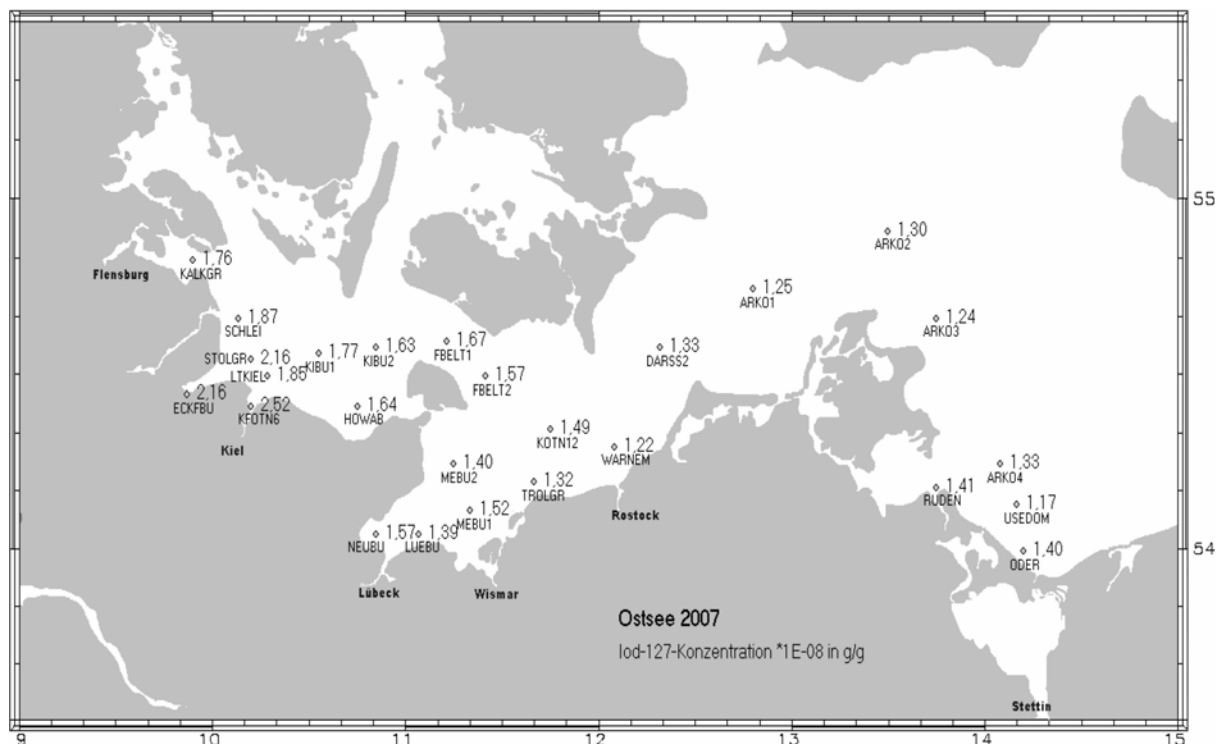


Abbildung 34: Iod-127-Konzentrationen in 10^{-8} g/g im Oberflächenwasser der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb (Fahrnummer 80) im Juni 2007.

Der Zusammenhang von Salinitäten (Abbildung 35) und ^{127}I -Gehalten (Abbildung 34) sowie alle weiteren Ergebnisse der Ostseeproben werden in Abschnitt 10.6 diskutiert.

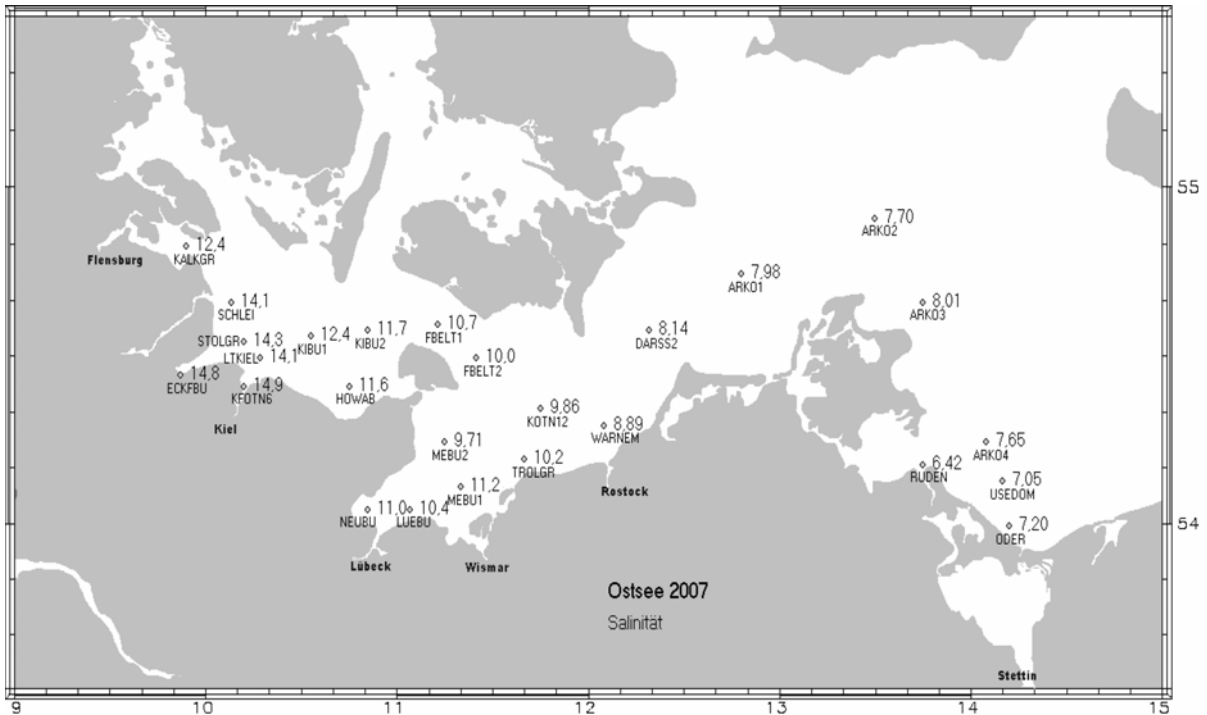


Abbildung 35: Salinitäten im Oberflächenwasser der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb (Fahrnummer 80) im Juni 2007.

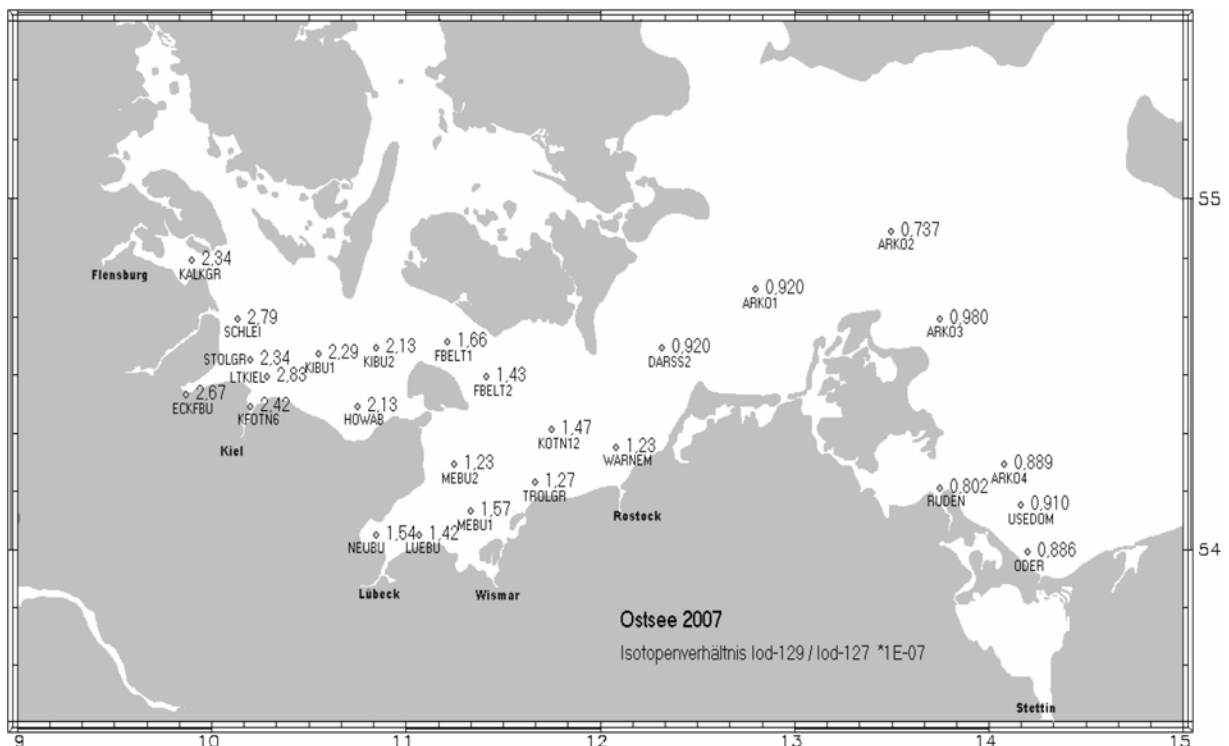


Abbildung 36: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in 10^{-7} im Oberflächenwasser der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb (Fahrnummer 80) im Juni 2007

8.6 Iod-127 und Iod-129 im Nordatlantik

Im August und September 2005 wurden von dem Forschungsschiff Polarstern Proben aus dem Nordostatlantik entnommen. An zwei Stationen wurde neben dem Oberflächenwasser auch Tiefenwasser untersucht. Alle anderen Proben wurden bei 11 m unter der Wasseroberfläche genommen. Zwei weitere Proben von Brandalpynten, die im September 2005 an der Westküste Spitzbergens genommen wurden, ergänzen die Ergebnisse aus dem Nordostatlantik. Abbildung 37 faßt die Ergebnisse zusammen.



Abbildung 37: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in 10^{-9} (links) und ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m^3 (rechts) im Europäischen Nordmeer. Die Probennahme erfolgte im August und September 2005 bei einer Wassertiefe von 11 m, davon abweichende Tiefen sind extra ausgewiesen.

8.7 Einzelproben von Spiekeroog

Am 09.08.2008 wurden von der ostfriesischen Insel Spiekeroog zwei Wasserproben entnommen (s. Tabelle 34). Auf der Wattseite erfolgte die Probennahme bei ablaufendem Wasser, auf der Seeseite kurz vor Hochwasser. Die Koordinaten sind im Format Grad, Minuten und Hundertstel Minuten angeben.

Tabelle 34: Ergebnisse zweier Wasserproben von Spiekeroog, Meer- und Wattseite vom 09.08.2008.

Spiekeroog	Koordinaten		Iod-129/Iod-127	Iod-127
	nördliche Breite	östliche Länge	in 10^{-6}	in ng/g
Seeseite	53,4686	7,4163	$1,43 \pm 0,73$	$51,55 \pm 1,63$
Wattseite	53,4579	7,4168	$1,26 \pm 0,64$	$56,44 \pm 2,00$

8.8 Exotische Wasserproben: Iod-127 und Iod-129 fernab der Emittenten

Neben Meerwasserproben standen auch Oberflächen- und Flußwasserproben zur Verfügung, die fernab der westeuropäischen ^{129}I -Emittenten entnommen wurden. Es handelt sich hierbei um Einzelproben, umfangreiches Probenmaterial war bisher noch nicht erhältlich. Ein negatives Vorzeichen der Breitengrade steht für südliche Breite, ein negatives Vorzeichen der Länge bedeutet westliche Länge. Positive Koordinaten befinden sich auf nördlicher Breite und östlicher Länge. Die verfügbaren Koordinaten sind in dem Format Grad, Minuten und hundertstel Minuten angegeben.

Tabelle 35: Ergebnisse der ^{127}I - und ^{129}I -Analysen von Wasserproben fernab der Emittenten.

Ort	Koordinaten		Iod-129/Iod-127	Iod-127
	Breite	Länge	in 10^{-10}	in ng/g
Maui / Hawaii ^{a)}	20,5380	-156,3116	$4,71 \pm 3,66$	$3,30 \pm 0,09$
Maui / Hawaii ^{a)}	20,5380	-156,3116	$3,73 \pm 3,35$	$3,30 \pm 0,09$
Maui / Hawaii ^{b)}	20,3844	-156,2682	$1,58 \pm 0,33$	$48,96 \pm 0,14$
Ind. Ozean ^{c)}	-6,35158	103,2357	$3,22 \pm 0,89$	$41,55 \pm 0,58$
Ind. Ozean ^{c)}	-6,35158	103,2357	$1,63 \pm 0,18$	$41,55 \pm 0,12$
Nil, Assuan ^{d)}	-	-	$8,14 \pm 1,92$	$8,53 \pm 0,24$
Nil, Assuan ^{d)}	-	-	$7,48 \pm 1,80$	$8,53 \pm 0,24$

^{a)} Oberflächenwasser, identische Probe zweimal aufgearbeitet

^{b)} Meerwasser

^{c)} Meerwasser, identische Probe zweimal aufgearbeitet

^{d)} Flußwasser, identische Probe zweimal aufgearbeitet. Genaue Koordinaten sind nicht bekannt.

Die einzige in dieser Arbeit untersuchte Probe von der Südhalbkugel stammt aus dem Indischen Ozean. Aufgrund der zu erwartenden niedrigen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden einige Proben doppelt aufgearbeitet. Maui gehört zur Inselgruppe Hawaii. Die Probe aus dem Indischen Ozean wurde in der Nähe Sumatras entnommen. Assuan liegt in der Nähe des bekannten Assuanstaudamms im oberen Verlauf des Nils (Ägypten).

8.9 Ergebnisse der Sedimentuntersuchungen

Neben dem aktuellen Sediment, das in der Deutschen Bucht bei Station KS 11 entnommen wurde, standen einige prä nukleare Sedimente aus Nord- und Ostsee zur Aufarbeitung bereit (s. Tabelle 17 und Tabelle 18). Bei dem aktuellen Sediment wurde ein Profil erstellt, wobei die ^{127}I -Konzentrationen, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und ^{129}I -Konzentrationen in Abhängigkeit von der Tiefe ermittelt wurden. Bei den prä nuklearen Sedimenten war dies weder möglich noch notwendig.

8.9.1 Prä nukleare Sedimente

Tabelle 36: Ergebnisse der untersuchten prä nuklearen Sedimente aus Nord- und Ostsee. Alle Ergebnisse beziehen sich auf die Trockenmasse.

ZSR-Nr.	Iod-129/Iod-127	Iod-127	Iod-129-Aktivitätskonz.
Ostsee	in 10^{-12}	in $\mu\text{g/g}$	in nBq/kg
1	$136,79 \pm 6,28$	$2,84 \pm 0,06$	$2582,99 \pm 0,11$
2	$34,43 \pm 2,25$	$3,04 \pm 0,10$	$694,53 \pm 0,04$
3	$1,21 \pm 0,25$	$197,17 \pm 6,98$	$1581,40 \pm 0,32$
4 ^{a)}	$4,12 \pm 0,75$	$16,53 \pm 0,58$	$451,28 \pm 0,08$
5	$11,74 \pm 1,24$	$5,06 \pm 0,15$	$394,24 \pm 0,04$
Nordsee			
6	$40,94 \pm 1,85$	$14,93 \pm 0,29$	$4058,16 \pm 0,17$
7	$34,81 \pm 1,53$	$13,15 \pm 0,22$	$3039,48 \pm 0,12$
8	$18,74 \pm 1,05$	$13,27 \pm 0,25$	$1650,75 \pm 0,09$
9	$38,18 \pm 1,99$	$14,44 \pm 0,45$	$3659,19 \pm 0,15$

^{a)} Mittelwert aus zwei Aufarbeitungen

8.9.2 Aktuelles Sedimentprofil aus der Deutschen Bucht

Das während der ersten Reise über die Deutsche Bucht am 25.05.2005 entnommene Sediment zeigt die in Abbildung 38 bis Abbildung 40 dargestellten analytischen Befunde. Hier werden zunächst Graphiken zwecks besserer Anschaulichkeit verwendet. Tabelle 52 im Anhang I zeigt die dazugehörigen Meßergebnisse und Unsicherheiten. Die meisten Verbrennungen lieferten Ausbeuten in der Größenordnung von 90 %. Dies ist auf das neue, automatisierte Verfahren der Verbrennung zurückzuführen, das eine langsame, gleichmäßige und reproduzierbare Probenaufarbeitung möglich macht. Neben den Iodanalysen wurden gammaspektrometrische Messungen bezüglich ^{137}Cs an den gefriergetrockneten Substanzen des Tiefenprofils durchgeführt. Diese Ergebnisse werden im Rahmen der Diskussion (Abschnitt 10.10.2) vorgestellt. Die Tiefenangabe wurde für die Darstellungen gemittelt. Für die erste 0-1 cm Schicht wird 0,5 cm als Tiefe verwendet, für die zweite (1-2 cm) 1,5 cm usw. Die ersten sechs Zentimeter des Sedimentes sind zentimetergenau aufgelöst, anschließend wurden drei Zentimeter dicke Sedimentscheiben untersucht. Alle Ergebnisse beziehen sich auf die Trockenmasse (TM) des Sediments.

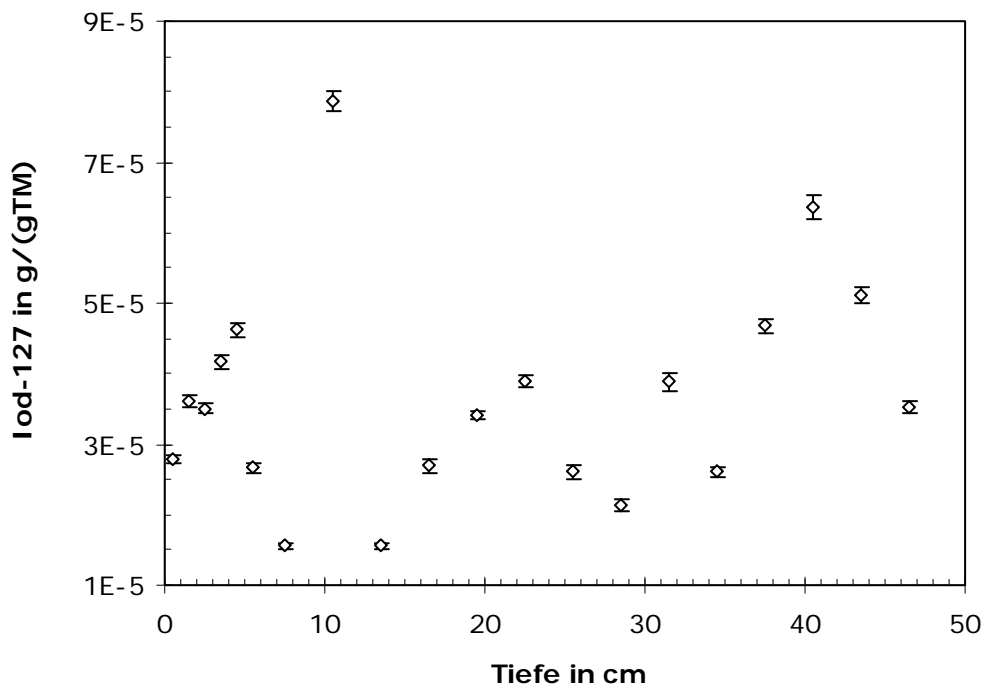


Abbildung 38: Auftragung der Iod-127-Gehalte im Sediment der Station KS 11 aus der Deutschen Bucht in g/g gegen die Tiefe im Sediment.

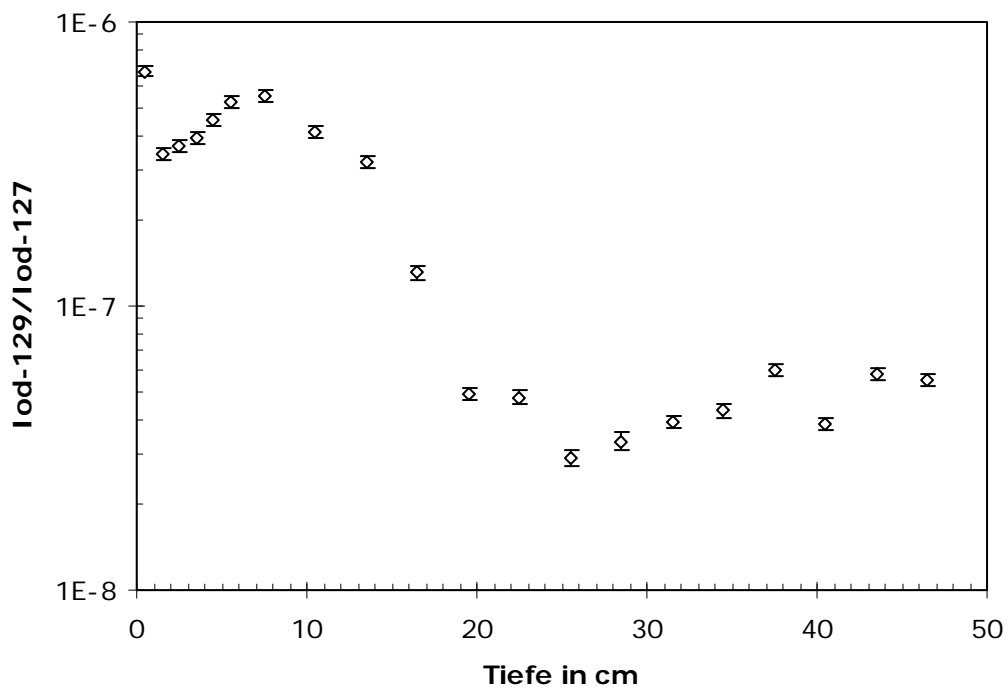


Abbildung 39: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Sediment der Station KS 11 aus der Deutschen Bucht gegen die Tiefe.

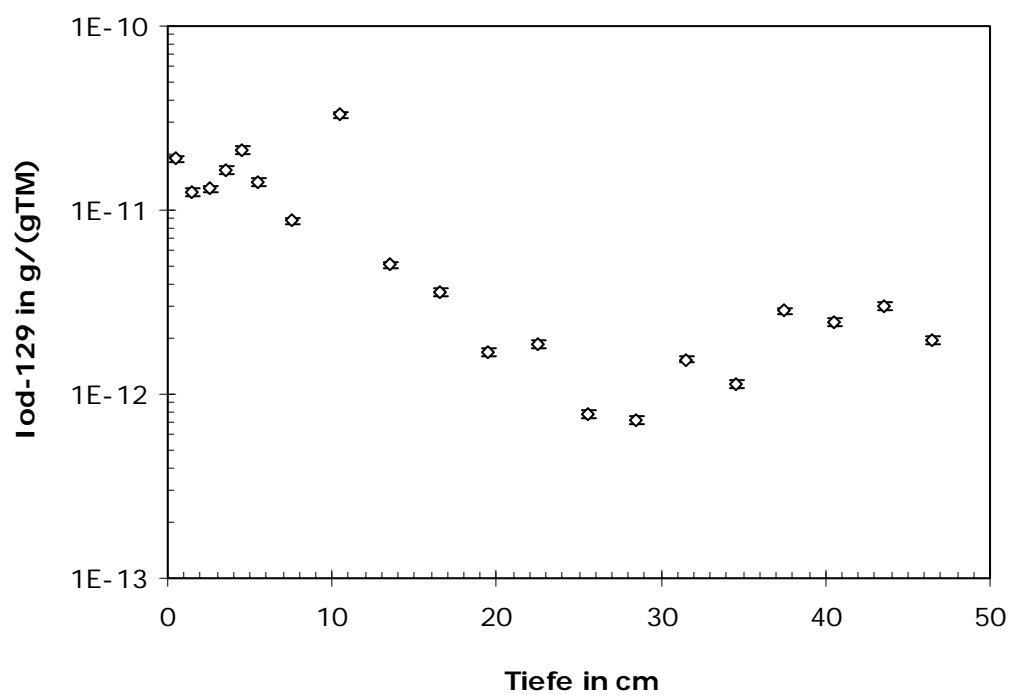


Abbildung 40: Auftragung der Iod-129-Gehalte in gg gegen die Tiefe im Sediment der Station KS 11 aus der Deutschen Bucht.

9 Ergebnisse des Strahlenschutzvorhabens 4481

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 [Nies *et al.*, 2008] untersuchten anthropogenen Radionuklide vorgestellt. Die Ergebnisse sind für die in Abschnitt 10 geführte Diskussion von Relevanz und tragen entscheidend zum Verständnis der Strömungsverhältnisse im Meerwasser bei. Neben den nuklidspezifischen Befunden werden auch verschiedene $X/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in den Kartenwerken dargestellt, wobei X ein im Strahlenschutzvorhaben 4481 bestimmtes Radionuklid ist. Alle Ergebnisse und Aktivitätsverhältnisse beruhen auf der Analyse von Oberflächenwasserproben. Wie auch in Kapitel 8 beschränkt sich die Darstellung auf die Präsentation der Ergebnisse und einige erläuternde Anmerkungen. Der komplette Datensatz befindet sich im Anhang II. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg zur Verfügung gestellt. Kleine Ziffern stehen für die Stationsnummern, die Zahlen im Fettdruck geben die analytischen Befunde an.

9.1 Tritium, Strontium-90, Technetium-99 und Cäsium-137 in der Nordsee

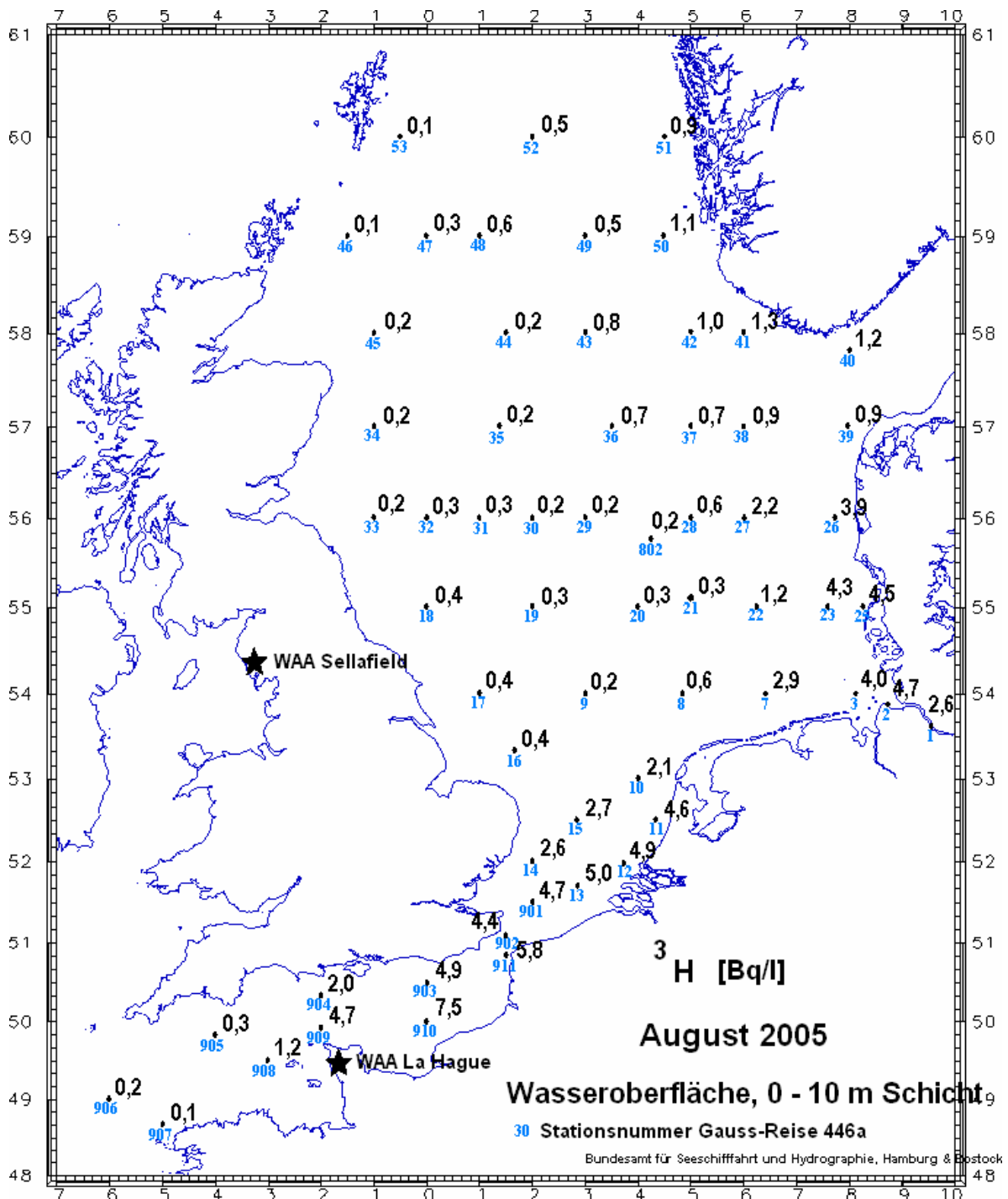


Abbildung 41: Aktivitätskonzentrationen des Tritiums im Oberflächenwasser des Englischen Kanals und der Nordsee (Augustreise 2005) in Bq/l [Nies et al., 2008].

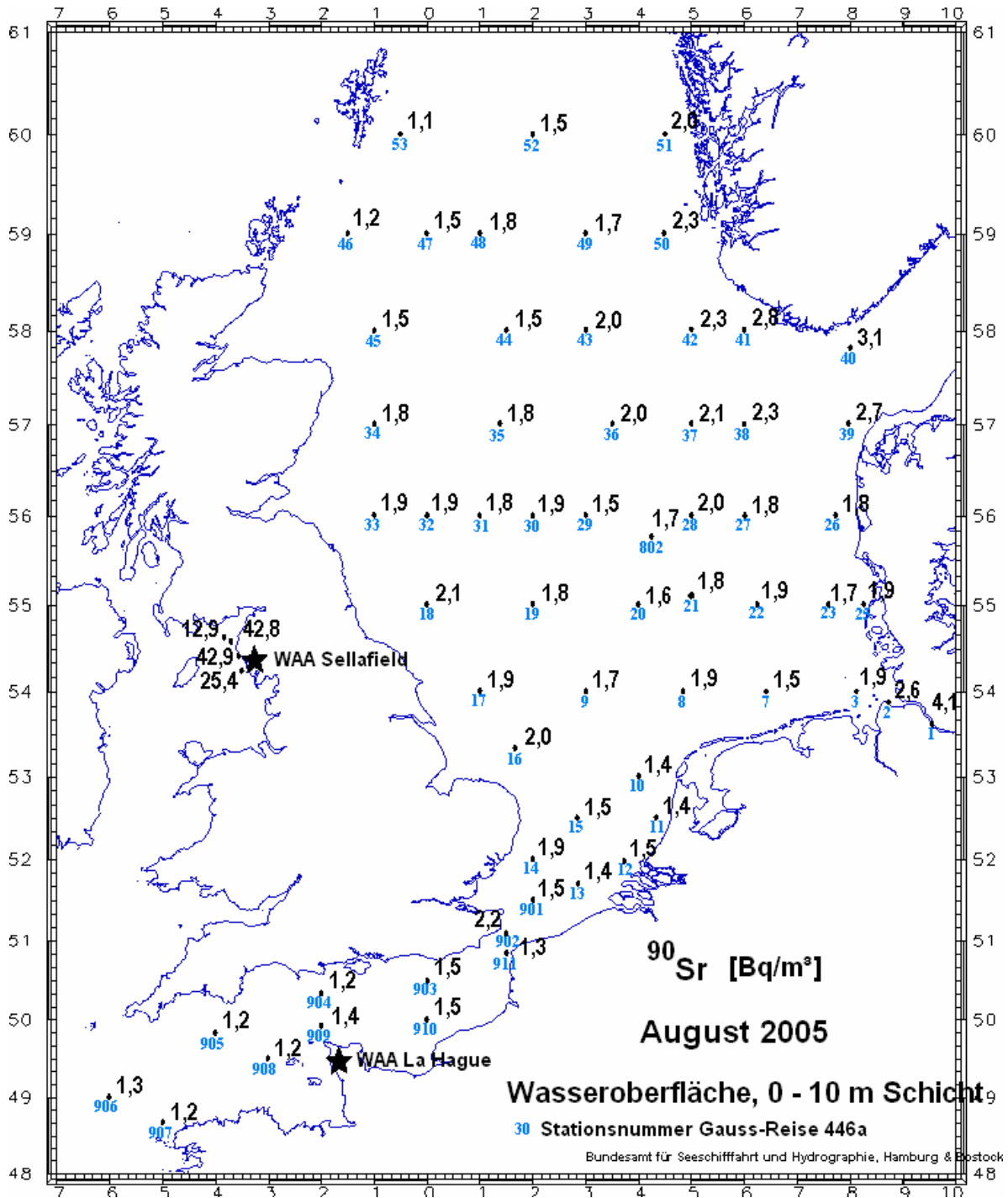


Abbildung 42: Aktivitätskonzentrationen des Strontium-90 in Bq/m³ im Oberflächenwasser des Englischen Kanals und der Nordsee, die während der Augustreise 2005 beprobt wurden. Ergänzt sind die Ergebnisse aus der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour im Sommer 2006) [Nies et al., 2008].

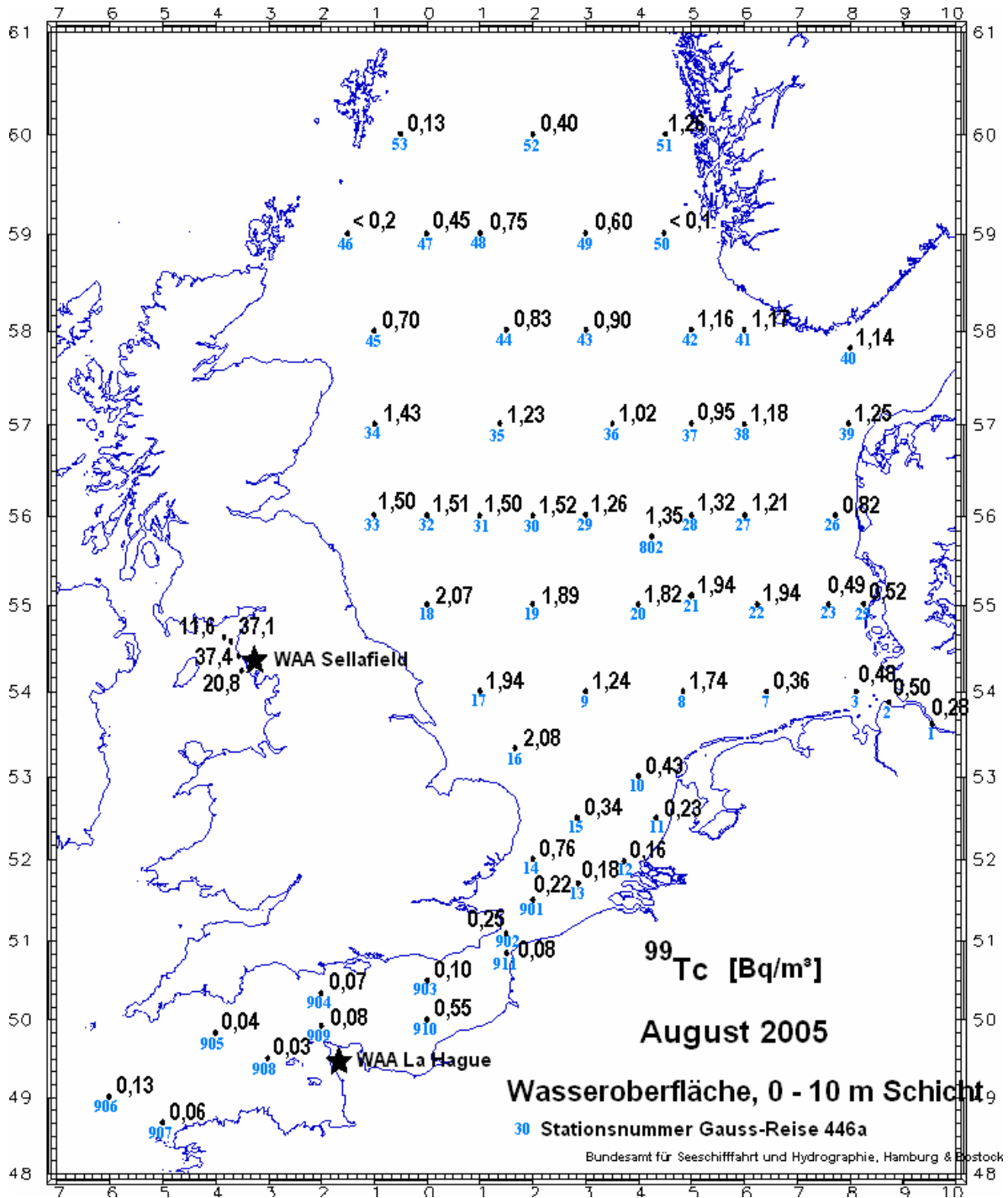


Abbildung 43: Aktivitätskonzentrationen des Technetium-99 in Bq/m³ im Oberflächenwasser des Englischen Kanals und der Nordsee, die während der Augustreise 2005 beprobt wurden. Ergänzt sind die Ergebnisse aus der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour im Sommer 2006) [Nies et al., 2008].

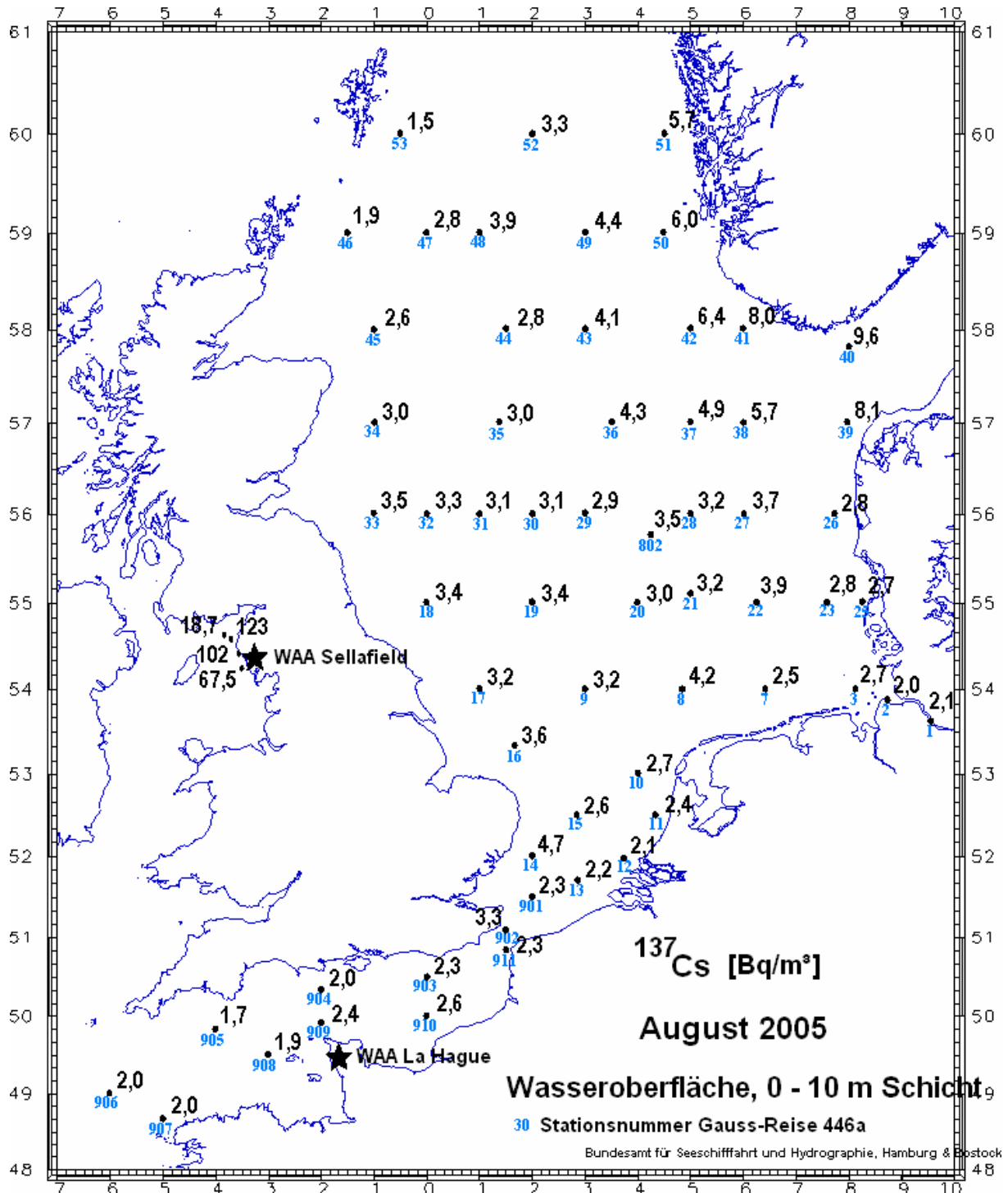


Abbildung 44: Aktivitätskonzentrationen des Cäsium-137 in Bq/m³ im Oberflächenwasser des Englischen Kanals und der Nordsee, die während der Augustreise 2005 beprobt wurden. Ergänzt sind die Ergebnisse aus der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour im Sommer 2006) [Nies et al., 2008].

9.2 Transurane in der Nordsee: Plutonium-238, Plutonium-239+240 und Americium-241

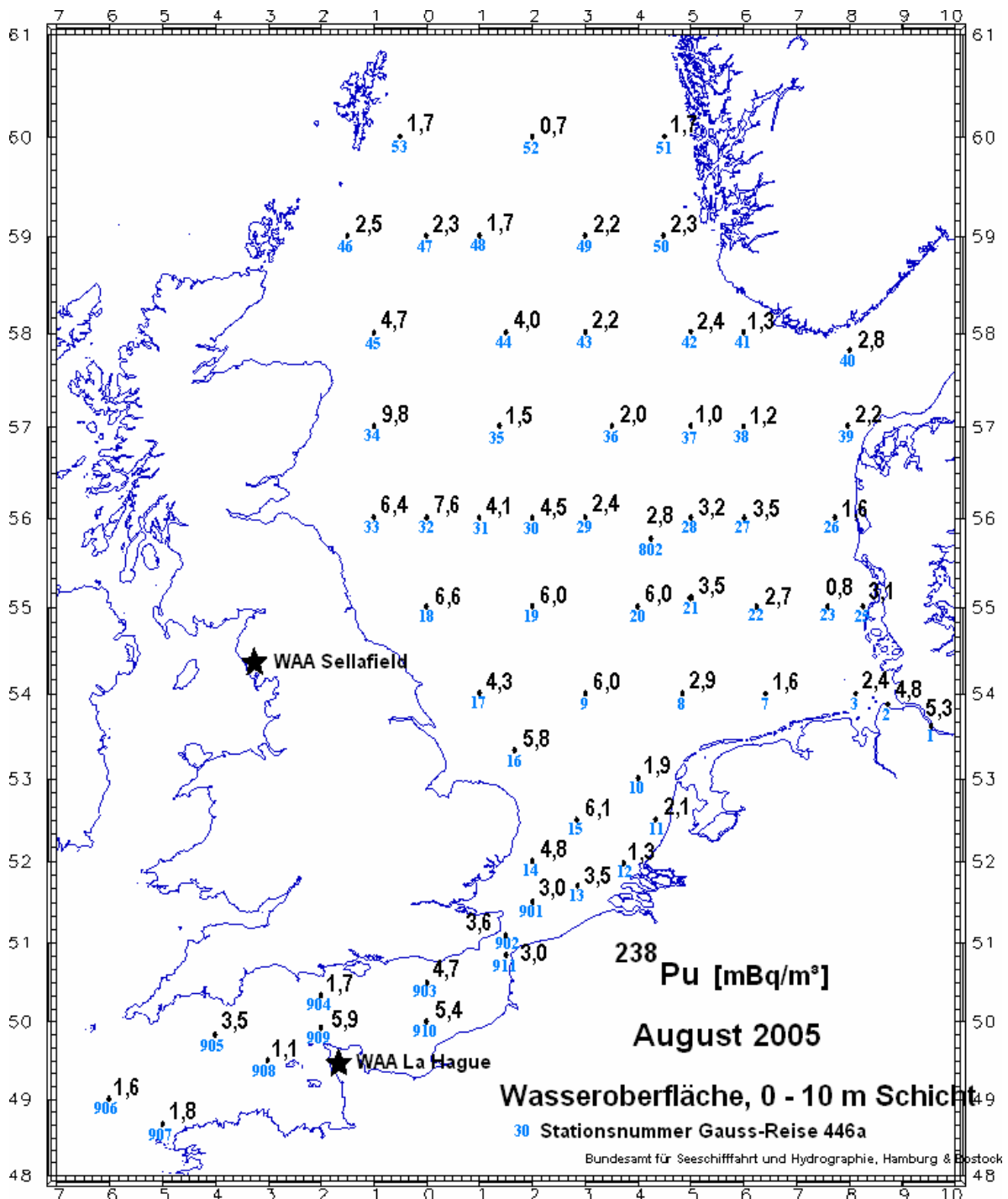


Abbildung 45: Aktivitätskonzentrationen des Plutonium-238 im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals (Augustreise 2005) in mBq/m³ [Nies et al., 2008].

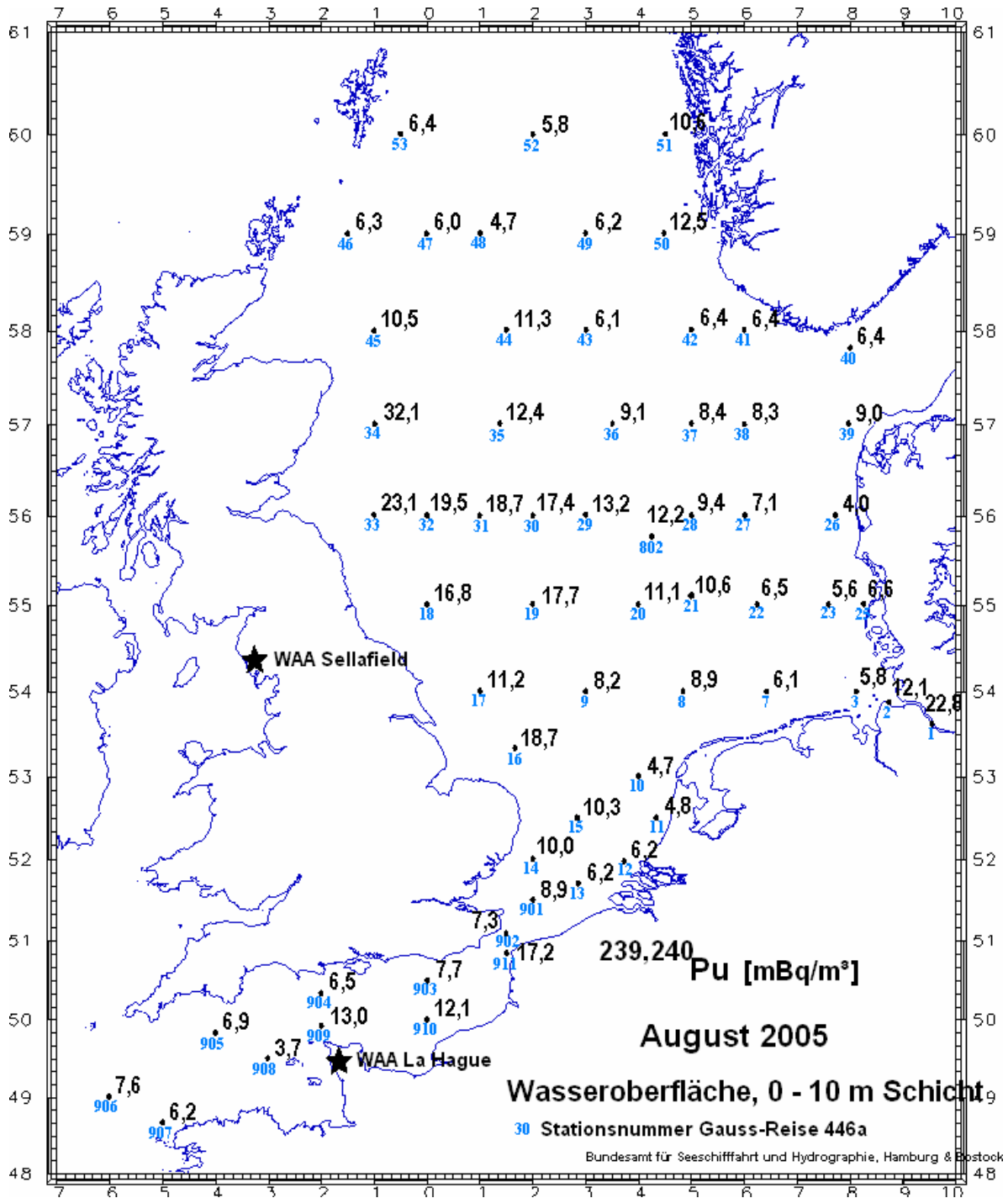


Abbildung 46: Summierte Aktivitätskonzentrationen von Plutonium-239 und Plutonium-240 im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals (Augustreise 2005) in mBq/m³ [Nies et al., 2008].

Wie in Abschnitt 6.4.4 bereits beschrieben lassen sich ²³⁹Pu und ²⁴⁰Pu alphaspektrometrisch nicht trennen, daher ist in Abbildung 46 die Summe der Aktivitäten beider Radionuklide aufgeführt.

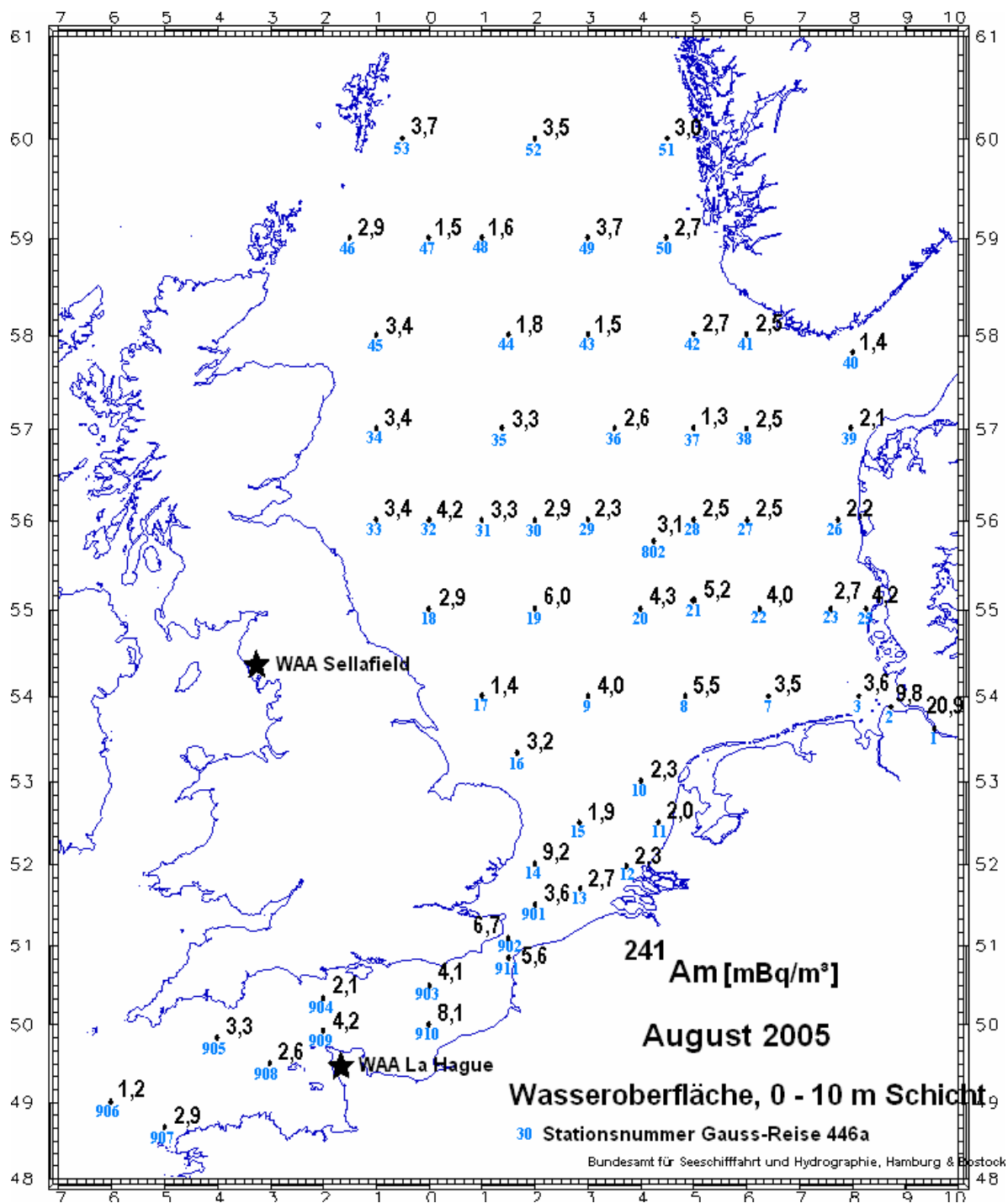


Abbildung 47: Aktivitätskonzentrationen des Americium-241 im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals (Augustreise 2005) in mBq/m³ [Nies et al., 2008].

9.3 Aktivitätsverhältnisse in der Nordsee

In diesem Abschnitt werden die Aktivitätsverhältnisse der untersuchten Radionuklide bezogen auf das Iod dargestellt. Für die in Kapitel 10 geführte Diskussion und bei Beurteilung,

welcher Ort durch welche ^{129}I -Quelle kontaminiert wird, sind diese Verhältnisse hilfreich. Weitere Aktivitätsverhältnisse befinden sich im Anhang II. Auch hier stehen die kleinen Ziffern für die Stationsnummern, die großen im Fettdruck für die Aktivitätsverhältnisse.

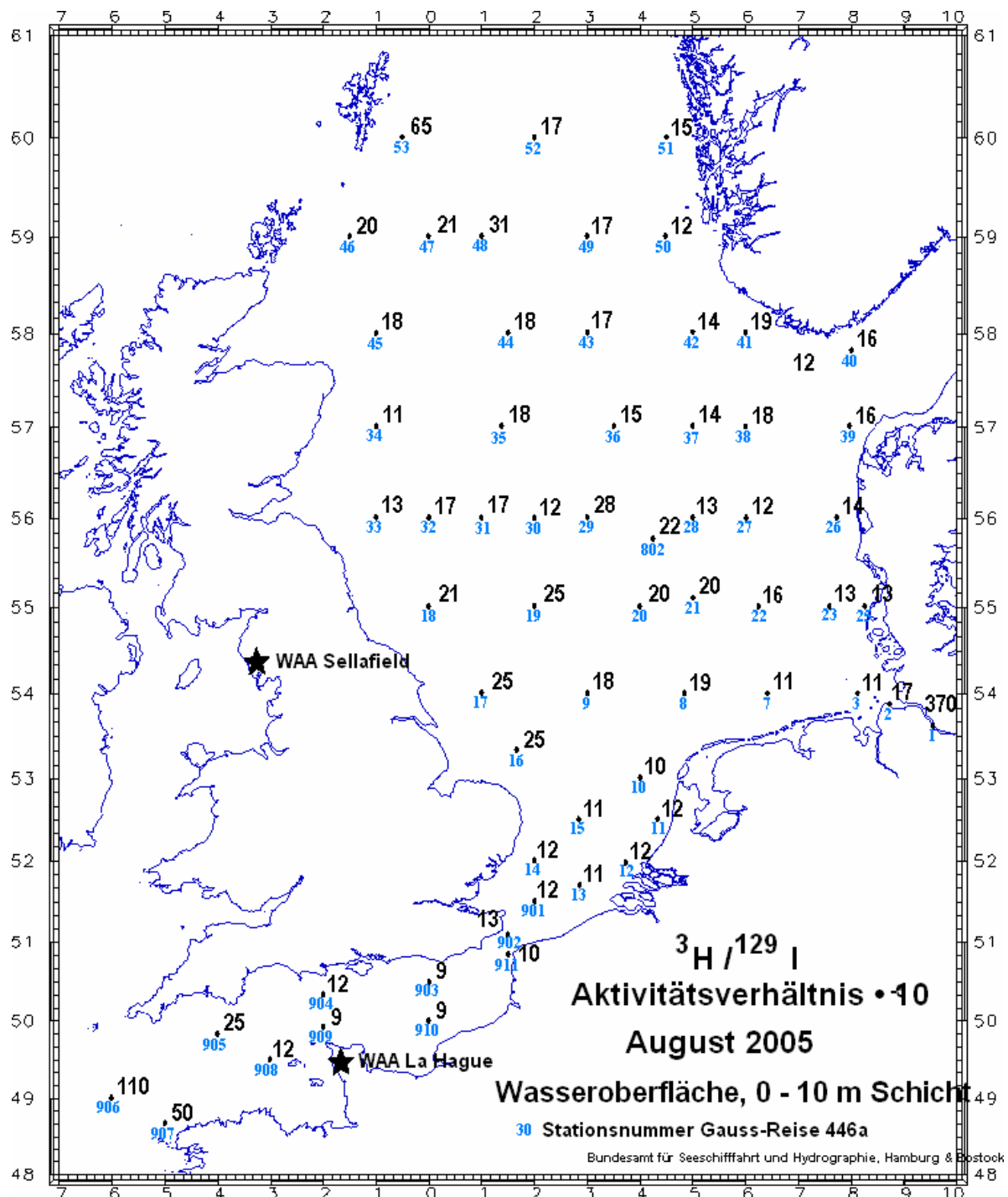


Abbildung 48: $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse in 10^3 im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008].

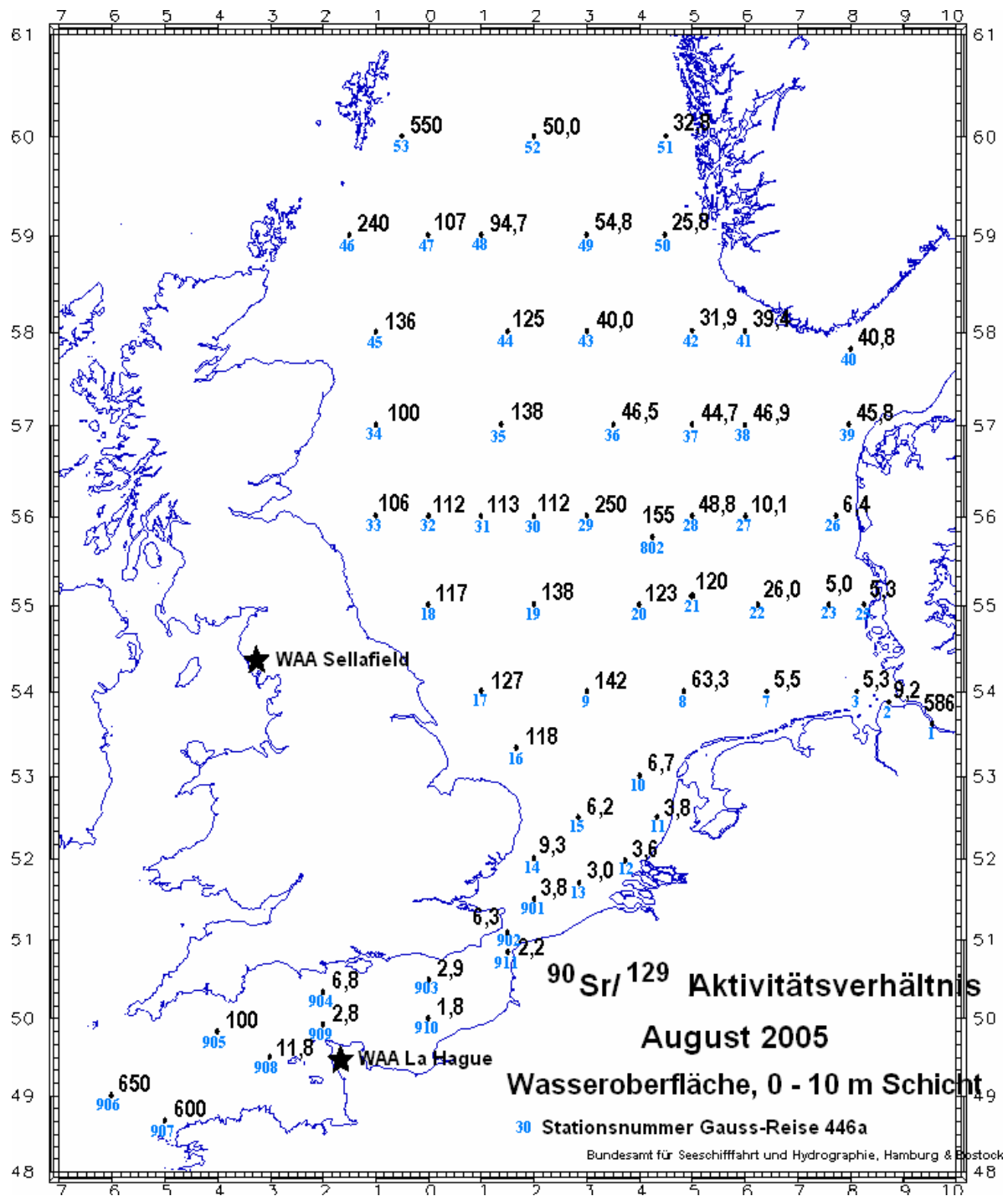


Abbildung 49: $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008].

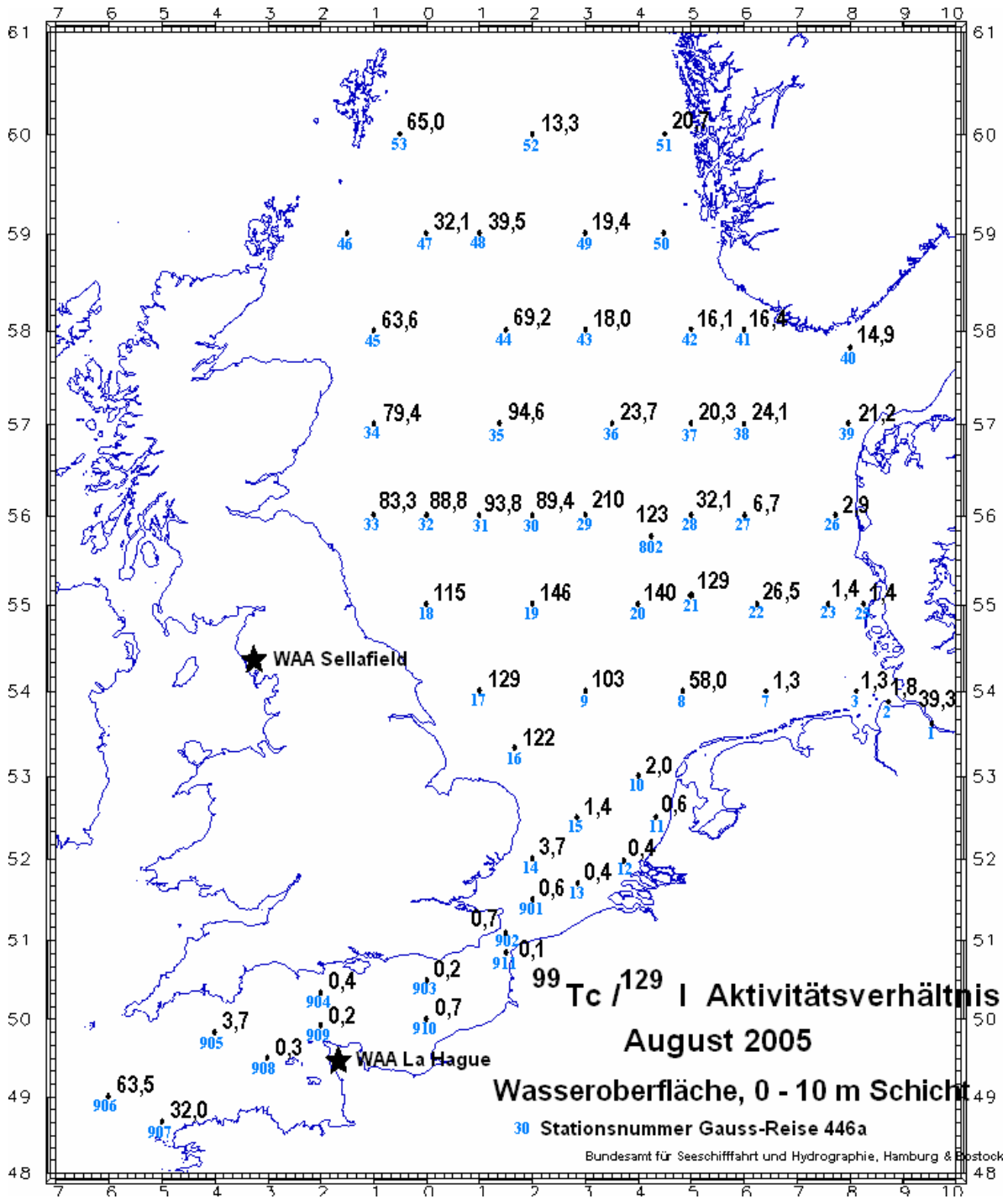


Abbildung 50: $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008].

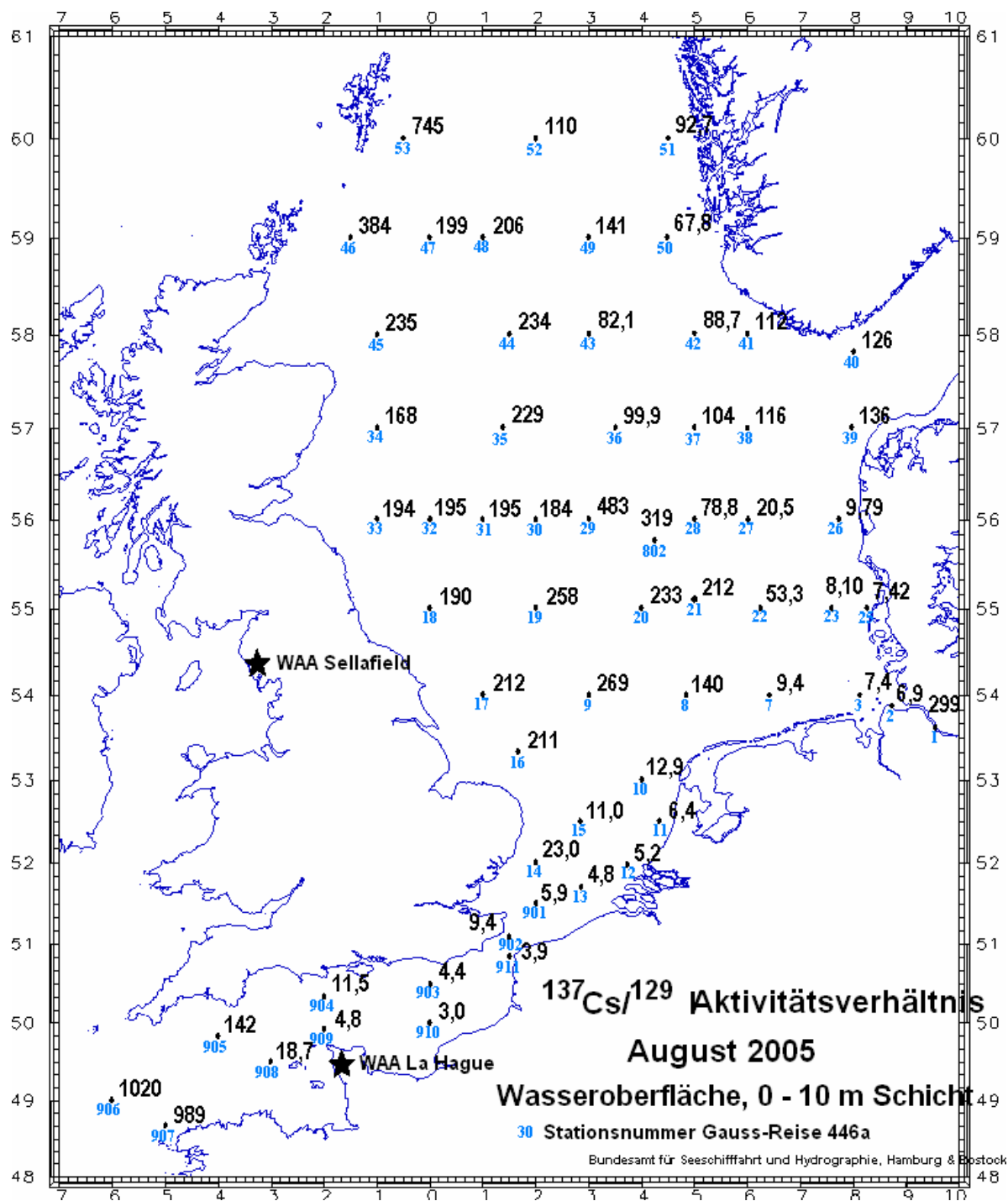


Abbildung 51: $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008].

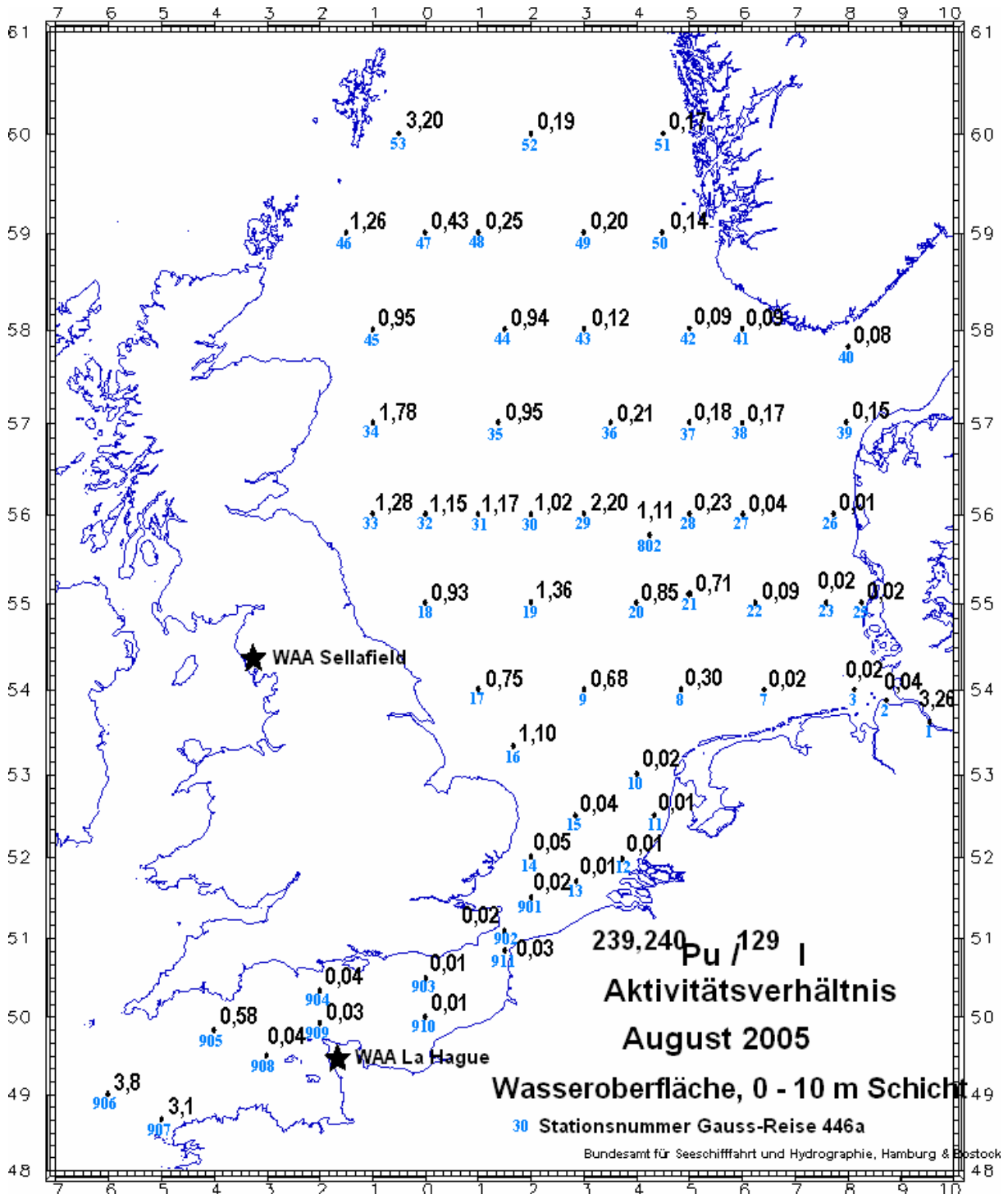


Abbildung 52: $^{239,240}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008].

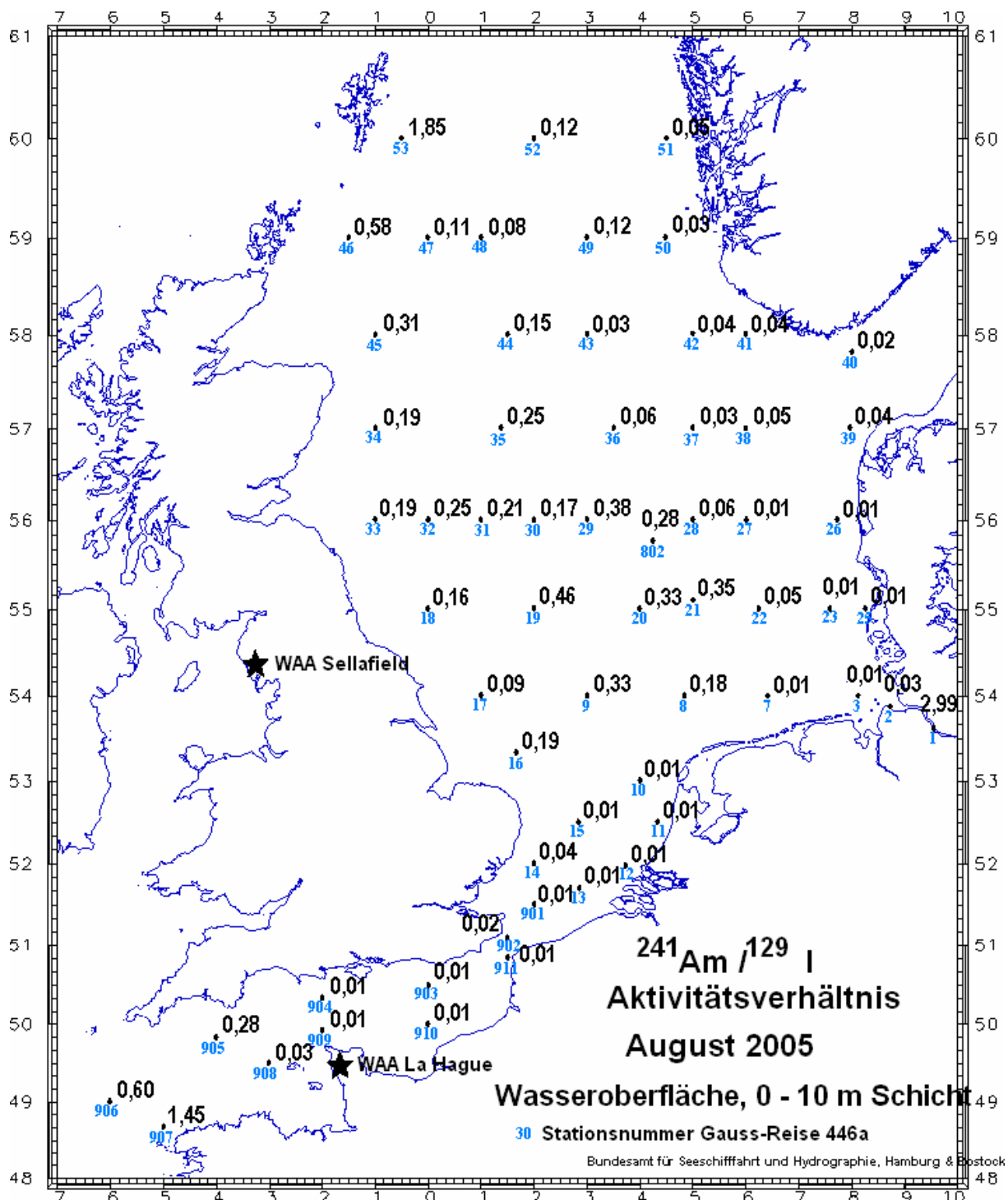


Abbildung 53: $^{241}\text{Am}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008]

10 Beurteilung der Ergebnisse und Diskussion

In diesem Abschnitt werden die in Kapitel 8 und 9 in Kartenwerken und Tabellen dargestellten Ergebnisse ausführlich diskutiert. Die im vorigen Abschnitt gezeigten Ergebnisse des Strahlenschutzvorhabens 4481 (siehe auch Abschnitt 6.4) werden in dieser Diskussion genutzt, da sie zum Verständnis der Eigenschaften des Iods beitragen. Anders als im vorangegangenen Kapitel kann hier nicht jede einzelne Beprobung für sich betrachtet werden. Teilweise können die Seewasserproben in ihrer Gesamtheit diskutiert werden, einige Proben stellen Besonderheiten dar und werden einzeln besprochen. Soweit es möglich und sinnvoll ist, erfolgt die Diskussion in der zeitlichen Reihenfolge der Probennahme. Die Ergebnisse der Ostseeproben werden in einem eigenen Abschnitt besprochen, weil Ostseewasser aufgrund des geringen Salzgehaltes kein klassisches Meerwasser ist. Die Diskussion der Sedimentuntersuchungen nimmt ebenfalls einen eigenen Abschnitt ein.

10.1 Deutsche Bucht, Nordsee und Irische See

Die Ergebnisse aller untersuchten Wasserproben sind in den Tabellen im Anhang I mit den dazugehörigen Koordinaten sowie den verfügbaren Temperaturen und Salinitäten zusammengestellt. Die Literatur ist bezüglich ^{129}I in der Umwelt nicht einheitlich. Je nach Geschmack der Autoren werden unterschiedliche Einheiten verwendet, was eine Vergleichbarkeit der Daten erheblich erschwert. Daher werden im Anhang I ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zusammengestellt. Die Diskussion der Ergebnisse wird überwiegend in Hinblick auf $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen sowie ^{129}I -Konzentrationen geführt.

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die ^{129}I -Aktivitätskonzentration der ersten Beprobungsfahrt über die Deutsche Bucht sind in Abbildung 28 und Abbildung 29 zusammengefasst. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Deutschen Bucht erstrecken sich von $1,9 \cdot 10^{-7}$ bis $1,8 \cdot 10^{-6}$ und streuen damit um etwa Faktor 10. Die küstennahen Stationen Briff (Borkumriff), Norde (vor Norderney), Weser, Elbe 1, KS 11, Amru 1 (vor Amrum) und Sylt 1 (vor Sylt) zeigen die größten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Beginnend bei der Station Swwba (südwestlich der Weißen Bank) mit dem kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis über die Beprobungspunkte Nefb und Brgru (Borkumriffgrund) nehmen die Isotopenverhältnisse in süd-südöstlicher Richtung zum Borkumriff um den Faktor 6 zu. Von der Station Swwba in östlicher Richtung steigen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bis zur Station Sylt 1 um den Faktor 7 und von der Weißen Bank (Wbank) zur Weser um den Faktor 4. Die stärkste Kontamination ist im küstennahen Bereich zu sehen, dort liegen alle gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse über $1,1 \cdot 10^{-6}$. Grund dafür dürfte die an der Ostküste Englands südlich gerichtete Strömung sein, die den Transport des kontaminierten Wassers aus La Hague auf einen schmalen Bereich in Küstennähe begrenzt. Diese südlich gerichtete Strömung wird tangential zu der aus dem Kanal kommenden Strömung abgelenkt (s. Abbildung 15). Die starke Kontamination durch Iod-129 in Küstennähe wird auch bei weiteren Beprobungen von September und November 2005 festgestellt.

Die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in Abbildung 29 zeigen mit Ausnahme der Station Medem die gleiche Systematik wie die der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Innerhalb der Deutschen Bucht besitzt die Station Swwba mit 51 mBq/m^3 die kleinste ^{129}I -Aktivitätskonzentration. Die

^{129}I -Aktivitätskonzentrationen steigen von der Station Swwba nach Briff (Faktor 6,5), von Swwba nach Sylt (Faktor 6) und von der Weißen Bank nach Weser um den Faktor 4,5 an. Nach radioanalytischer Intuition liegt dies auf der Hand, da die ^{127}I -Konzentrationen in der Deutschen Bucht nur wenig variieren. Der Mittelwert der ^{127}I -Konzentrationen in der Deutschen Bucht liegt bei $37,2 \pm 2,9$ ng/g. Dabei sind die ^{127}I -Konzentrationen der Tiefenprofile mit einbezogen, die Werte der Stationen Stade und Medem jedoch nicht. Die Station Stade nimmt aufgrund ihrer Süßwasserprägung eine Sonderstellung ein. Sie zeigt nicht nur das geringste $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis ($4,95 \cdot 10^{-8}$) und die geringste ^{129}I -Aktivitätskonzentration (3 mBq/m³), sondern auch die kleinste ^{127}I -Konzentration (9,5 ng/g). Bei der Station Medem wurden 27,7 ng/g Iod-127 gemessen, dort ist noch eine starke Beeinflussung durch die in die Deutsche Bucht mündende Elbe zu sehen. Das hohe $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,5 \cdot 10^{-6}$ legt zugleich offen, daß Medem durch den Abstrom von La Hague voll erfaßt wird. Die relativ kleine ^{129}I -Aktivitätskonzentration von 291 mBq/m³ ist auf die Verdünnung durch Süßwasser aus der Elbe zurückzuführen. Dieser Verdünnungsvorgang beeinflusst jedoch nicht das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis.

Entlang der küstennahen Stationen Briff, Norde, Weser, Elbe 1, KS 11, Medem, Amru 1 und Sylt 1 liegen die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen zwischen 291 und 483 mBq/m³. Die eben genannten Stationen sind durch die kleinsten Salinitäten gekennzeichnet. Erklärt werden kann dies durch den kontinentalen Abfluß von Süßwasser, der das Meerwasser verdünnt und so die Salinitäten herabsetzt. Bei den Stationen Briff, Norde, Weser, Elbe 1, KS 11, Medem, Amru 1 und Sylt 1 liegen die Salinitäten zwischen 22,2 und 32,2. Der Salzgehalt bei Stade in der Elbe beträgt wegen des Süßwassercharakters nur 0,4. In größerer Entfernung zur Küste nehmen die Salinitäten zu, bei Ngw 8 sind 33,7 gemessen worden, bei den Stationen Nefb, Urst 3, Wbank und Swwba betragen die Salinitäten 34 und mehr. In Abbildung 54 und Abbildung 55 ist veranschaulicht, wie mit sinkenden Salinitäten die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und ^{129}I -Konzentrationen zunehmen. Oder anders ausgedrückt: Mit kürzer werdendem Abstand zur Küste nehmen im Meerwasser die Salinitäten ab und die Kontamination durch ^{129}I zu. Die zu den Tiefenprofilen aus der Deutschen Bucht gehörigen Befunde sind in den Abbildungen aufgenommen. Medem besitzt von den eingezeichneten Stationen mit 22,23 die kleinste Salinität, die Datenpunkte der Station Stade sind aus Gründen der Übersichtlichkeit in Abbildung 54 und Abbildung 55 nicht mit eingezeichnet.

Die Ergebnisse der zweiten Beprobung der Deutschen Bucht von September 2005 (Gaußfahrt 446 b, Abbildung 31 und Abbildung 32) zeigt dasselbe Verhaltensmuster der Salinitäten, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wie die erste Fahrt. Teilweise wurden bei dieser Fahrt andere Stationen angelaufen. Alle Proben wurden an der Oberfläche entnommen, Tiefenprofile sind nicht vorhanden. Die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden bei den Stationen Ente 1, Swwba und Nefb gemessen. Das höchste $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis ist mit $1,91 \cdot 10^{-6}$ bei Station Weser zu finden, aber auch die Stationen Briff, Norde und Elbe sind mit $1,47 \cdot 10^{-6}$ bis $1,63 \cdot 10^{-6}$ stark kontaminiert. Unerwartet ist das mit $1,52 \cdot 10^{-6}$ recht große $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis bei Sylt 1, was etwa dem anderthalbfachen von Amru 1 entspricht. Eine mögliche Erklärung sind die im zeitlichen Ablauf nicht konstant verlaufenden Emissionen. Die am weitesten von der Küste entfernte Station Ente 1 besitzt das kleinste $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis. Wie auch bei der ersten Beprobungsfahrt wird eine kontinuierliche Steigerung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Richtung Küste beobachtet. In gleicher Richtung nehmen die Salinitäten ab. Bei Station Ente 1 beginnend, über die Stationen Swwba, Nefb, Brgru bis hin zu Briff, nimmt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis um den Faktor 40 zu, von Ente 1 in südöstlicher Richtung über die Stationen Wbank, Ngw 8, Ufsdb bis Elbe 1

und Weser um den Faktor 36 bzw. 48. Auf der Strecke von Ente 1 bis Sylt 1 steigt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis auf das 38-fache. Die in Richtung der Küste zunehmende Kontamination ist ebenso bei den ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen zu verfolgen. Von Ente 1 ausgehend zu den Stationen Briff, Weser, Elbe und Sylt 1 nehmen die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen um jeweils mehr als den Faktor 24 zu. Bei Ente 1 sind 14 mBq/m^3 zu verzeichnen, bereits ein wenig süd-südwestlicher bei den Stationen Swwba und Nefb werden 24 bzw. 53 mBq/m^3 gemessen. Von Station Briff startend in östlicher Richtung über Norde, Weser, Elbe 1 bis hin zu Amru 1 liegen die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen zwischen 340 und 365 mBq/m^3 . Die größte ^{129}I -Aktivitätskonzentration wird bei Sylt 1 mit 388 mBq/m^3 festgestellt.

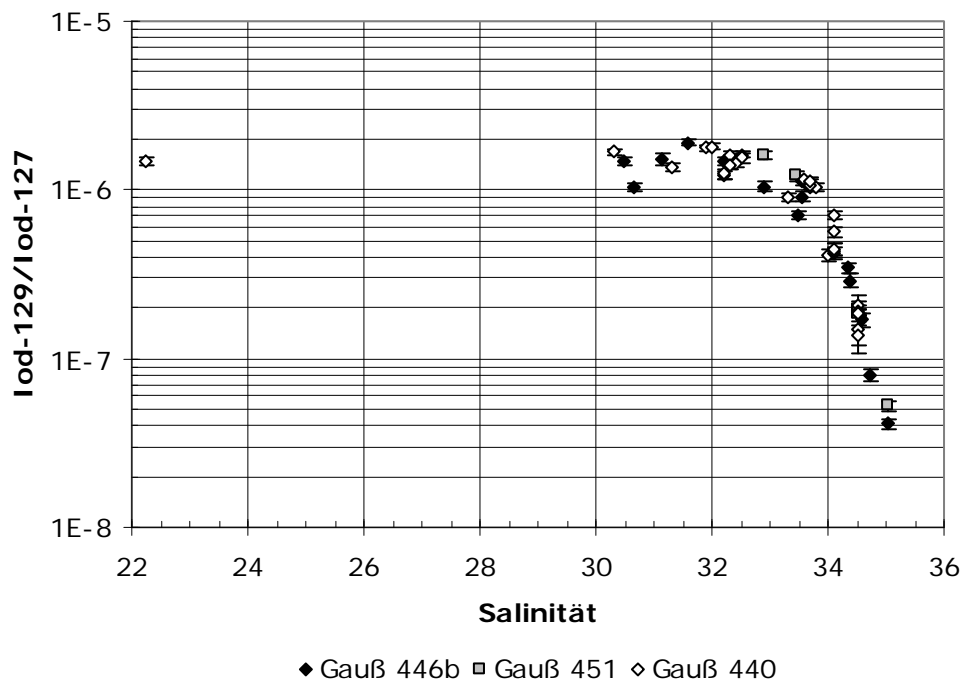


Abbildung 54: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die Salinitäten in der Deutschen Bucht. Die Probenahmen erfolgten im Mai und Juni 2005 (Gaußfahrt 440, mit Tiefenwasserproben), September 2005 (Gauß 446 b) und November 2005 (Gauß 451).

Die oben gemachten Aussagen über die dicht an der Küste vorbeifließende Strömung aus La Hague, die die Kontamination in sich trägt, werden durch die Ergebnisse der zweiten Beprobungsfahrt von September 2005 bestärkt. Ebenso hat die Aussage über den Eintrag von Süßwasser über die Flüsse, das die Salinitäten herabsetzt, weiterhin Gültigkeit. Die Station Ente 1 ist am weitesten von der Küste entfernt, unterliegt der geringsten Verdünnung durch Süßwasser und besitzt daher mit $35,02$ die größte Salinität. Urst 5, Nefb und Swwba weisen schon etwas geringere Salinitäten auf, diese liegen zwischen $34,35$ und $34,71$. In Richtung Küste nehmen die Salzgehalte weiter ab, die kleinsten Salinitäten werden mit $31,6$ und weniger bei den Stationen Weser, Sylt 1, Amru 1 und Elbe 1 gemessen. Gleichzeitig nehmen die Kontaminationen zu. Zwischen den ^{127}I -Konzentrationen und den Salinitäten besteht keine Korrelation. Die küstennahen Stationen Weser, Briff, Norde und Elbe 1 weisen die kleinsten ^{127}I -Konzentrationen auf. Hier wurden auch niedrige Salinitäten ermittelt. Der Mittelwert der ^{127}I -Konzentrationen von der Gaußfahrt 446 b beträgt $43,05 \text{ ng/g}$ mit einer Standardab-

weichung von 7,84 ng/g. Der Eintrag von Süßwasser von dem Festland aus Ems, Weser und Elbe setzt die Salinitäten und die ^{127}I -Konzentrationen im Mündungsbereich herab. Dagegen wird das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis durch Süßwassereintrag nur unwesentlich verändert. In Abbildung 54 ist die große Streuung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse über drei Zehnerpotenzen gut zu erkennen, obwohl das Beprobungsgebiet nur die Deutsche Bucht umfaßt. Die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen und die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zeigen in Abhängigkeit von den Salinitäten ein nahezu identisches Verhalten.

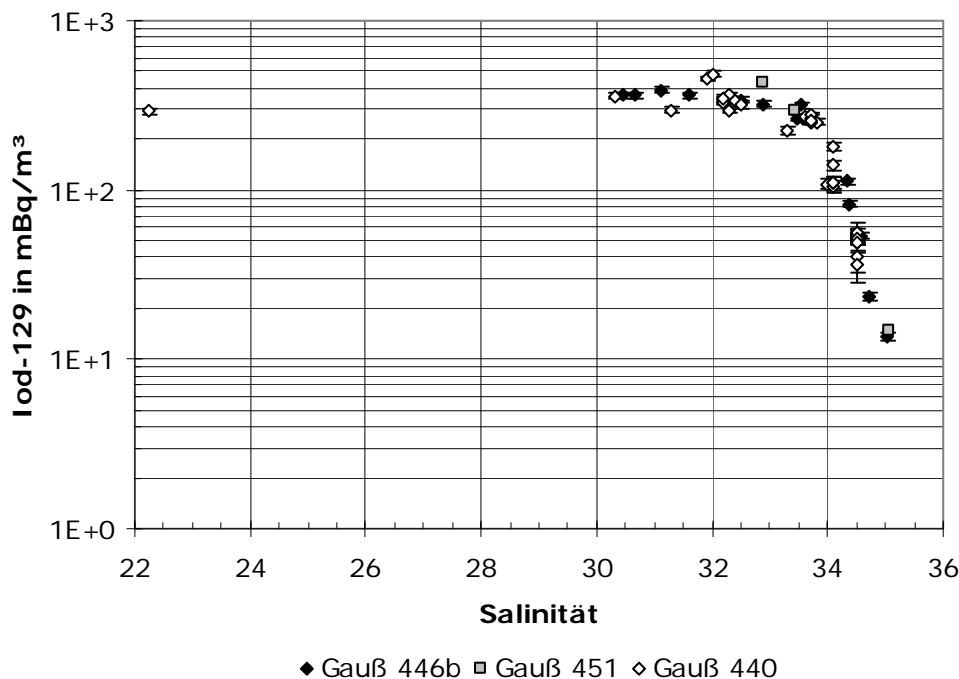


Abbildung 55: Auftragung der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m^3 gegen die Salinitäten in der Deutschen Bucht. Die Probennahmen erfolgten im Mai und Juni 2005 (Gaußfahrt 440, mit Tiefenwasserproben), September 2005 (Gauß 446 b) und November 2005 (Gauß 451).

Auch die Ergebnisse der Gaußreise 451 vom November 2005 fügen sich gut in die Ergebnisse der vorangegangenen Beprobungen. Dies gilt für die ^{127}I -Konzentrationen, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die Salinitäten gleichermaßen. Tabelle 20 faßt die Daten dieser Reise zusammen. Etwa anderthalb Monate nach der vorangegangenen Beprobung treten geringfügige Unterschiede der ^{129}I -Kontaminationen auf, die auf ungleichmäßige Emissionsereignisse zurückzuführen sein könnten. Die Stationen Ente 1, Briff und Ente 3 unterscheiden sich im zeitlichen Verlauf nicht signifikant. Bei der Station Urst 5 ist ein etwas kleineres $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis gemessen worden. Gleiches gilt für die Station Elbe 1. Der Zusammenhang zwischen Salinität und Kontamination des Wassers wird bei der Diskussion der Ergebnisse von der Nordseereise 2005 weiter beleuchtet.

Seewasseranalysen von der Meer- und Wattseite Spiekeroogs (s. Tabelle 33) fügen sich gut in die ^{129}I -Befunde der nahegelegenen Stationen Norde, Briff und Weser ein. Die ^{127}I -Konzentration auf der Seeseite ist im Vergleich zu den Proben der Deutschen Bucht leicht erhöht. Ein Grund dafür könnte die größere biologische Aktivität im Meerwasser aufgrund der höheren Temperatur und die kürzere Distanz zum Wattenmeer sein. Die in vorangegangenen am ZSR

angefertigten Arbeiten getätigte Vermutung einer größeren biologischen Aktivität im Wattenmeer [Ernst, 2003; Michel *et al.*, 2004] wird durch die Ergebnisse der ^{127}I -Analysen von 56,44 ng/g auf der Wattseite Spiekeroogs gegenüber 51,55 ng/g auf der Seeseite bestätigt.

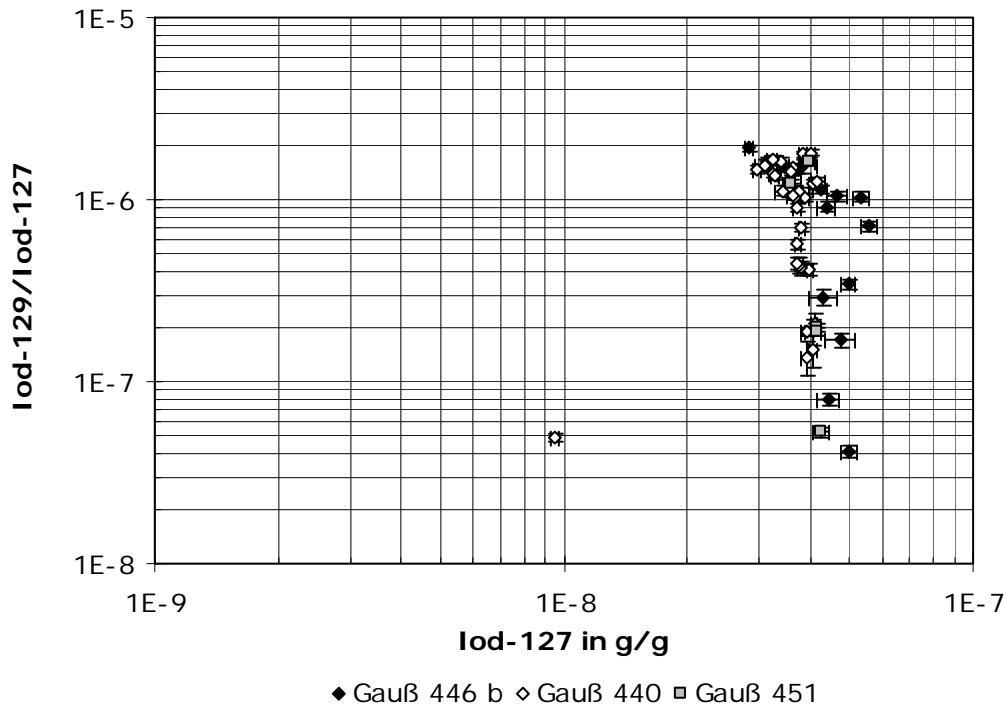


Abbildung 56: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen in der Deutschen Bucht. Die Probenahmen erfolgten im Mai und Juni 2005 (Gaußfahrt 440), September 2005 (Gauß 446 b) und November 2005 (Gauß 451).

Die Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen in Abbildung 56 zeigt, daß die ^{127}I -Konzentrationen nur wenig streuen, während sich die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Deutschen Bucht über drei Zehnerpotenzen erstrecken. Eine Ausnahme bildet der Datenpunkt der Station Stade mit dem kleinsten ^{127}I -Gehalt. Auffallend sind die bei einigen Proben von der Gaußreise 446 b höheren ^{127}I -Konzentrationen im Vergleich zu denen von der ersten Fahrt (Gauß 440) oder vom November des gleichen Jahres (Gauß 451). Möglicherweise wird dies durch eine größere biologische Aktivität aufgrund der höheren Temperatur verursacht. Während der ersten Fahrt im Mai und Juni 2005 betrug die Durchschnittstemperatur der Wasserproben $12,9\text{ °C}$ und der Mittelwert der ^{127}I -Konzentrationen $37,2 \pm 2,9\text{ ng/g}$ (ohne Stade und Medem). Bei der Anschlußfahrt über die Deutsche Bucht im August und September 2005 betrug die durchschnittliche Temperatur $17,8\text{ °C}$ bei einer mittleren ^{127}I -Konzentration von $43,1 \pm 7,8\text{ ng/g}$. Eine Korrelation zwischen den Temperaturen und den ^{127}I -Konzentrationen ist jedoch nicht feststellbar. Während der Novemberreise 2005 sind keine Temperaturen aufgezeichnet worden. Es dürfte jedoch eine Temperaturabnahme stattgefunden haben, wodurch die biologische Aktivität abgenommen haben könnte. Die mittleren ^{127}I -Konzentrationen von $39,99 \pm 2,84\text{ ng/g}$ der Novemberreise legen diese Abnahme der biologischen Aktivität nahe. Belastbare Daten über die Algenblüte sind für diese Zeiträume nicht vorhanden. Die Daten über die Algenblüte könnten als Maß für die biologische Aktivität im Meerwasser dienen, wodurch größere ^{127}I -Konzentrationen erklärt werden könnten. Zu erkennen ist in Abbildung 56 bei den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen

zwischen $1 \cdot 10^{-6}$ und $2 \cdot 10^{-6}$ ein Ausläufer in Richtung geringerer ^{127}I -Konzentrationen. Dieser Ausläufer kann den durch einen Süßwassereintrag unterlegenen küstennahen Stationen zugeordnet werden, die gleichzeitig von den Ableitungen aus La Hague geprägt sind.

Die Variation der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Deutschen wird ausschließlich durch die Beimengungen von anthropogenem Iod-129 verursacht (s. Abbildung 57). Dieser Umstand wird bei der Diskussion der Nordseeergebnisse genauer besprochen. Der nicht auf der Geraden liegende Meßwert beim $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $4,8 \cdot 10^{-8}$ und einer ^{127}I -Konzentration von $9,51 \text{ ng/g}$ bzw. einer ^{129}I -Konzentration von $4,8 \cdot 10^{-16} \text{ g/g}$ gehört zur Station Stade.

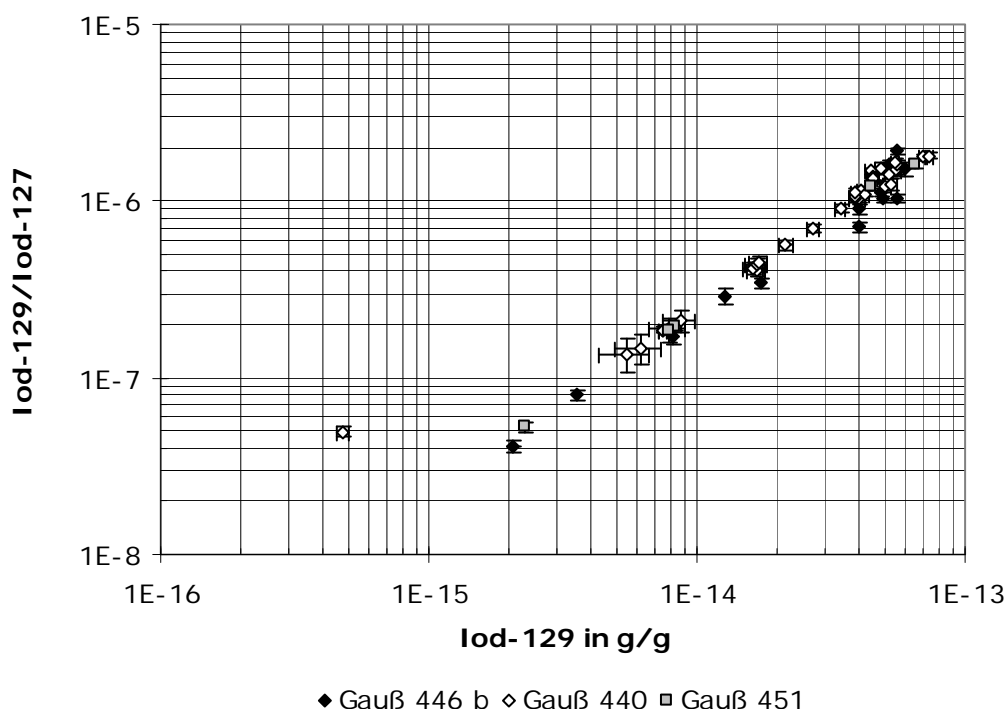


Abbildung 57: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen (in g/g) in der Deutschen Bucht. Die Probenahmen erfolgten im Mai und Juni 2005 (Gaußfahrt 440), September 2005 (Gauß 446 b) und November 2005 (Gauß 451).

Die von der Nordseereise im August 2005 erhaltenen Ergebnisse der Oberflächenwasseranalysen sind in Abbildung 32 als $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und in Abbildung 33 als ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen dargestellt. Zusätzlich sind in den Abbildungen die Ergebnisse der Beprobungen der Irischen See und der schottischen Küste vom Sommer 2006 eingefügt. Die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen zeigen eine große Streuung und liegen zwischen 2 und 890 mBq/m^3 . Die kleinsten ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen sind am Einlaß des Englischen Kanals und östlich der Shetlandinseln zu finden. Die größte Kontamination befindet sich stromabwärts gelegen östlich von La Hague (Station 910, 843 mBq/m^3) und im küstennahen Wasser vor Sellafield (890 mBq/m^3).

Aufgrund der Tidenbewegungen im Kanal erstreckt sich der Einfluß von La Hague auch nach Westen, bei Station 908 (westlich Guernsey) wird eine Aktivitätskonzentration von

100 mBq/m³ beobachtet. Die weiter westlich gelegenen Stationen 907 und 908 weisen mit 2 mBq/m³ sehr kleine ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen auf. Betrachtet man nur die ¹²⁷I- und ¹²⁹I-Datensätze, so ist keine Unterscheidung möglich, ob die Kontamination im Kanal bei den Stationen 906 (nordwestlich Quessant) und 907 (VTG Quessant) von den Emissionen aus La Hague oder Sellafield herrühren. Wie auch bei Station 908 (westlich Guernsey, s. oben) und Station 905 (südsüdwestlich Start Point) ist eine Unterscheidung unter Einbeziehung der ⁹⁹Tc-Daten möglich (s. Abschnitt 10.5).

Der wesentliche Transport von ¹²⁹I erfolgt von La Hague durch den Englischen Kanal in die Nordsee. Dieser ¹²⁹I-Transport kann entlang der Küste von Belgien, den Niederlanden, Deutschland und Dänemark bis zur Station 26 (westlich Ringköbing) deutlich erkannt werden. Entlang dieser Hauptströmungsstrecke nimmt die ¹²⁹I-Aktivitätskonzentration nur um den Faktor drei ab. Östlich des Mündungsbereiches des Englischen Kanals in die Nordsee ist der Transport des ¹²⁹I aus La Hague auf einen relativ schmalen Bereich in Küstennähe begrenzt. Von Station 9 in östlicher Richtung bis zu Station 3 nehmen die ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen auf dem 54. Breitengrad um den Faktor 30 zu, dasselbe Verhalten wird ebenfalls auf dem 55. (Stationen 19-25) und 56. Breitengrad (Stationen 29-26) beginnend in der zentralen Nordsee in östlicher Richtung beobachtet. Diese zunehmenden ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen zeigen, daß sich die Fahne aus La Hague auf einen schmalen Bereich westlich von Nordfriesland und Dänemark beschränkt. Entlang der deutschen Nordseeküste sind an der Elbmündung und der nordfriesischen Küste die höchsten Aktivitätskonzentrationen zu sehen. Die im Bereich der südlichen Nordsee getätigten analytischen Befunde sind konsistent mit den Strömungsverhältnissen, die in Abbildung 15 vorgestellt wurden und untermauern die obige Aussage über die Begrenzung des aus dem Englischen Kanal kommenden Stromes auf einen schmalen Bereich. Die deutlich größeren ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen der Stationen 27 und 28 verglichen mit den Stationen 21 und 22 deuten auf eine Ablenkung der Strömung bei Station 26 in westliche Richtung hin. Innerhalb der Nordsee finden dann Vermischungsprozesse statt.

Das aus Sellafield stammende ¹²⁹I weist kein so klares und eindeutiges Transportmuster auf. Von Sellafield ausgehend in Richtung der Hauptströmungsrichtung nach Norden zeigt sich eine starke Abnahme der Aktivitätskonzentrationen, die durch Verdünnungseffekte verursacht wird. Die Beeinflussung in südlicher Richtung ist deutlich erkennbar, südlich von Sellafield wurden 450 mBq/m³ gemessen. Die an der schottischen Küste von Oban, Maror und Ullapool entnommenen Proben zeigen einen weiteren Rückgang der Aktivitätskonzentrationen in nördlicher Richtung. Im Vergleich zum küstennahen Bereich bei Sellafield wird im Norden eine um mehr als den Faktor 15 verringerte Aktivitätskonzentration beobachtet (57 mBq/m³ bei Ullapool gegenüber 890 mBq/m³ vor Sellafield). Die Abnahme der ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen in nördlicher Richtung läßt sich mit den in Abbildung 15 dargestellten Wasserbewegungen in der Irischen See erklären. Der Rückgang des ¹²⁹I/¹²⁷I-Isotopenverhältnisses direkt vor Sellafield bis zur nordwestlichen Küste Schottlands beträgt mehr als den Faktor 20.

Entlang der Ostküste Großbritanniens, beginnend im nordöstlichen Schottland (Station 46) bis hin zur Station 16 (Downsings, Ostküste Englands), liegen die ¹²⁹I-Aktivitätskonzentrationen unter 20 mBq/m³. In diesem Bereich dominiert eine südlich gerichtete Strömung. Hier wären eigentlich größere Kontaminationen zu erwarten gewesen, da das Wasser zum Teil aus der Irischen See stammt. Eine mögliche Erklärung für die relativ kleinen Aktivitätskonzentrationen ist, daß nicht nah genug an der Küstenlinie beprobt wurde. Bei einem kleineren Abstand zur Küste wären wahrscheinlich größere Kontaminationen feststellbar, da

an der Westküste Schottlands ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen von mehr als 57 mBq/m^3 gemessen wurden. Gleichzeitig spielen Verdünnungseffekte mit ^{129}I -armem Nordatlantikwasser eine Rolle. Deutlich sichtbar werden die aus La Hague stammenden Emissionen beim Übergang von Station 16 zu den Stationen 14 und 15. In diesem Bereich ist ein starker Anstieg der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen (um mehr als den Faktor 12) und der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse (Faktor 10) zu verzeichnen. Innerhalb der Nordsee wird mit 6 mBq/m^3 bei der Doggerbank (Station 29) eine auffallend niedrige ^{129}I -Aktivitätskonzentration festgestellt.

Wie nach der Diskussion der Ergebnisse aus der Deutschen Bucht zu erwarten war, zeigen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse übereinstimmende Befunde mit den ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen. Das größte $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis mit $3,2 \cdot 10^{-6}$ aller untersuchten Seewasserproben ist bei Station 910 gemessen worden, zwei weitere Stationen aus der Irischen See weisen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $3,0 \cdot 10^{-6}$ und $2,6 \cdot 10^{-6}$ auf. Damit zeigt sich gegenüber den von Yiou et al. in der Irischen See gefundenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von $5,1 \cdot 10^{-7}$ bis $8,9 \cdot 10^{-7}$ eine signifikante Steigerung [Yiou et al., 1994]. Die zunehmende Kontamination mit ^{129}I wurde auch von Schnabel et al. festgestellt. [Schnabel et al., 2007], die Ergebnisse dieser Arbeit reihen sich widerspruchlos in die von Schnabel et al. und Atarashi-Andoh et al. gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse ein. Direkt an der Küste der Irischen See (bei Garlieston) betrug das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Jahre 2005 $3,3 \cdot 10^{-6}$ [Schnabel et al., 2007] und Atarashi-Andoh et al. fanden nicht weit entfernt $2,8 \cdot 10^{-6}$ (Probennahme 2004) [Atarashi-Andoh et al., 2007]. Verglichen mit dieser Arbeit wurden kleinere ^{127}I -Konzentrationen in beiden Veröffentlichungen gefunden. Erklärbar sind diese Abweichungen mit Süßwassereintrag vom Festland. Die Proben dieser Arbeit wurden im größeren Abstand zur Küste entnommen. Sehr gute Übereinstimmungen werden auch an der Westküste Schottlands beobachtet. Etwas südlich von den Beprobungen dieser Arbeit fanden Schnabel et al. bei Sanna Bay ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $3 \cdot 10^{-7}$, weiter nördlich von den Proben dieser Arbeit bei Gruinard Bay wurde $1 \cdot 10^{-7}$ gemessen [Schnabel et al., 2007]. An der Westküste der Orkneyinseln fanden Schnabel et al. Isotopenverhältnisse von 10^{-7} [Schnabel et al., 2007], Station 46 liegt mit $2 \cdot 10^{-7}$ nur geringfügig darüber. Damit liegen die Meßwerte dieser Arbeit dicht bei denen der beiden anderen Arbeiten und zeigen gleichzeitig dieselben Effekte durch Verdünnungsprozesse.

Übereinstimmend mit den ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen werden die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im westlichen Bereich des Englischen Kanals und östlich der Shetlandinseln beobachtet. Die Isotopenverhältnisse der Beprobungsgebiete liegen vier bis sechs Größenordnungen über dem prä nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa $1,5 \cdot 10^{-12}$ (s. Abschnitt 1.2.1). Die beschriebene Ausbreitung des Iod-129 aus La Hague entlang der Festlandküste und die spätere westliche Ablenkung der Strömung in Höhe der Station 26 werden durch die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bestätigt. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nehmen von Station 901 bis 26 um weniger als den Faktor drei ab. Während die Station Medem bezüglich der ^{129}I -Aktivitätskonzentration von 282 mBq/m^3 eine geringe Kontamination vor-täuscht, zeigt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,5 \cdot 10^{-6}$, daß dieser Bereich vollständig von den flüssigen Emissionen aus La Hague geprägt wird. Die Ergebnisse der Nordseereise von der Station Medem bestätigen die getroffenen Aussagen von der ersten Reise über die Deutsche Bucht.

Die ^{127}I -Konzentrationen der Nordseeproben von der Augustreise betragen im Mittel $40,8 \pm 6,6 \text{ ng/g}$. Die größten Abweichungen von diesem Mittelwert werden bei den Stationen Stade (1), Weser (38) und Medem (2) verzeichnet, Grund dafür ist der schon bei der Dis-

kussion der Deutschen Bucht erwähnte Eintrag von Süßwasser aus den Flüssen. Bei Stade liegt die ermittelte ^{127}I -Konzentration bei 11,0 ng/g und ist damit nahezu identisch mit dem Befund der ersten Reise (9,5 ng/g). Bei den Stationen Medem und Weser betragen die ^{127}I -Konzentrationen 29,2 und 28,5 ng/g. Bei der Station Medem ist die ^{127}I -Konzentration im Vergleich zur ersten Fahrt (Gauß 440) nahezu unverändert, bei der Station Weser hingegen wurden bei der ersten Fahrt 40,29 ng/g gemessen.

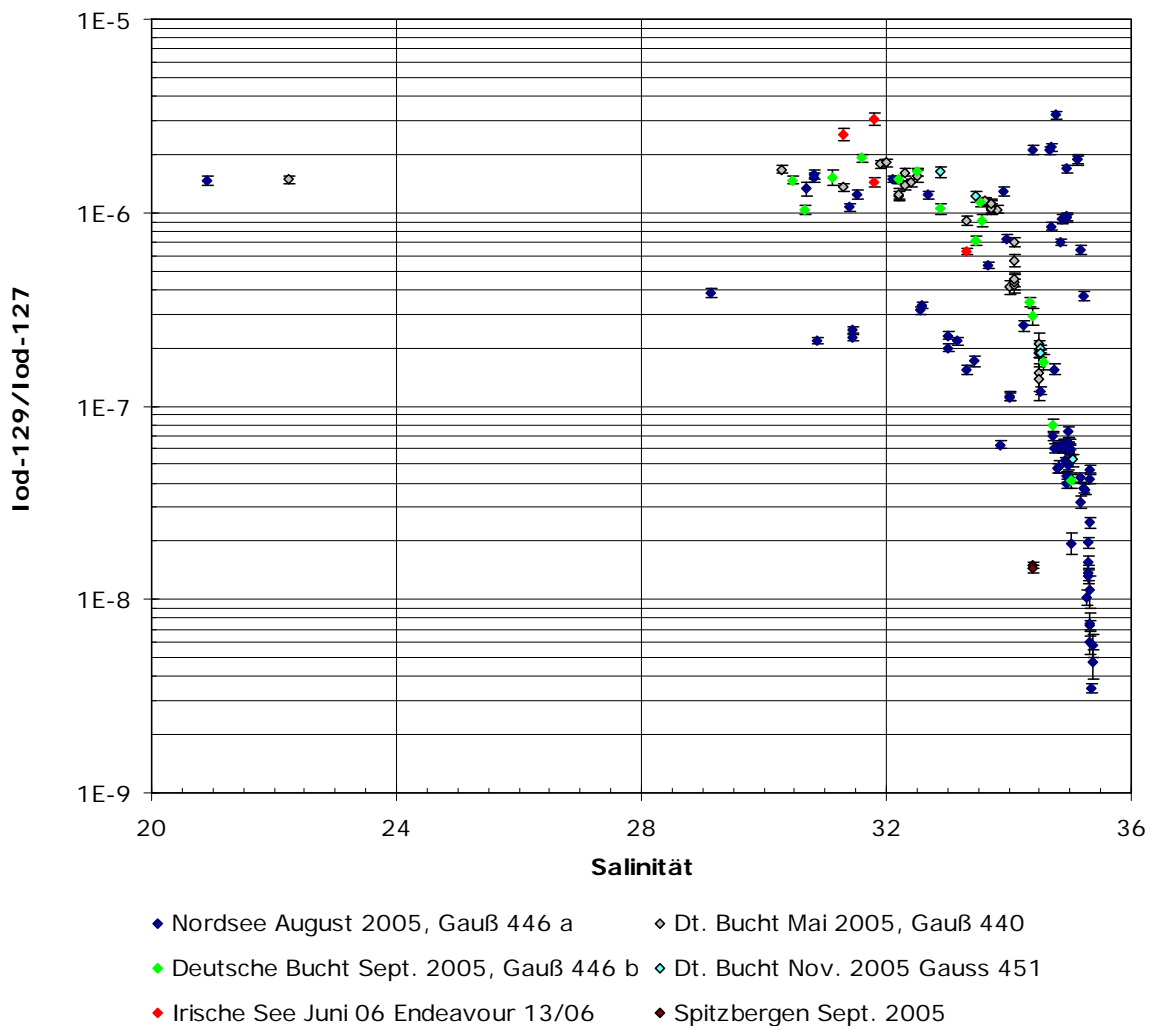


Abbildung 58: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die Salinitäten in der Nordsee, der Irischen See, dem Englischen Kanal, der Deutschen Bucht und von Wasserproben nahe Spitzbergen.

Der Süßwassereintrag vom Festland macht sich auch in den Salinitäten der Nordseeproben bemerkbar. Die Salinitäten der Seewasserproben liegen zwischen 29,12 und 35,37. Ausnahmen bilden die Salinitäten der Stationen Stade in der Elbe und Medem im weiterführenden Bereich der Elbmündung. Eine Korrelation der ^{127}I -Konzentrationen mit den Salinitäten ist wie auch bei den Wasserproben aus der Deutschen Bucht nicht feststellbar. Auffallend niedrige Salinitäten werden im Verlauf der Küste bei den Stationen 3 (Tonne Elbe), 8 (Amru 1), 25 (Lister Tief), 14 (Sylt 1), 37 (Norde) und 36 (Briff) angetroffen. Vor der niederländischen Küste sind bei den Stationen 11 und 12 mit 31,51 und 30,69 durch Süßwasserein-

trag ebenfalls herabgesetzte Salinitäten zu sehen. Diese eben benannten Stationen bilden in der Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die Salinitäten (Abbildung 58) einen Ausläufer zu geringeren Salinitäten bei gleichzeitig hoher Kontamination. Jede dieser Stationen besitzt ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von mehr als $1 \cdot 10^{-6}$. In diesem Ausläufer befinden sich auch die Datenpunkte der Proben aus der Deutschen Bucht.

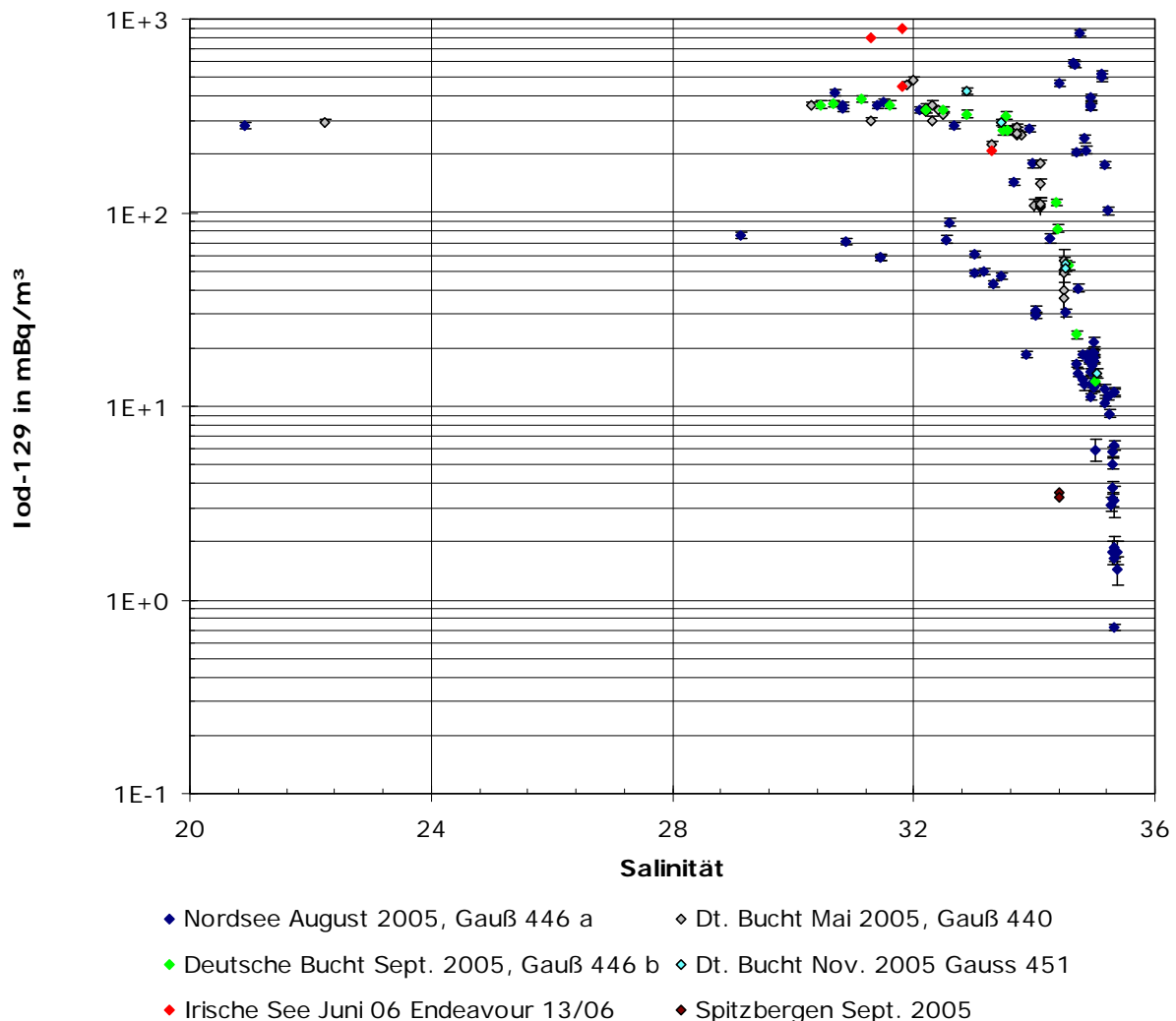


Abbildung 59: Auftragung der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m^3 gegen die Salinitäten in der Nordsee, der Irischen See, dem Englischen Kanal, der Deutschen Bucht und von Wasserproben nahe Spitzbergen.

Ein weiterer Ausläufer, der sich in Richtung kleinerer Salinitäten erstreckt, setzt sich aus den Meßdaten der Stationen zusammen, die von ausfließendem Ostseewasser geprägt sind. Dort liegen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen $1 \cdot 10^{-7}$ und $3,8 \cdot 10^{-7}$, das entspricht etwa einem Zehntel bis einem Drittel der eben aufgezählten küstennahen Stationen. Diese Befunde decken sich mit den Ergebnissen aus der Ostsee, dort wurden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $7,4 \cdot 10^{-8}$ bis $2,3 \cdot 10^{-7}$ gemessen. Der Salzgehalt der Station 40 (Skagerrak) ist mit 29,12 besonders niedrig. Auch die weiteren Stationen im Mündungsbereich der Ostsee (38, 39, 41, 42 und im weiteren Verlauf 50 und 51) besitzen mit 30,87 bis 33,3 deutlich kleinere Salini-

täten als die übrigen Stationen der Nordsee. Über die Stationen 40, 41, 50 und 51 läßt sich der Abfluß des Ostseewassers um die norwegische Küste in Richtung des Europäischen Nordmeeres verfolgen.

Im Anhang verdeutlichen dreidimensionale Karten mit Darstellungen der Salinitäten das Eindringen des Ostseewassers. Abbildung 85 im Anhang II zeigt Salinitäten im Oberflächenwasser der Nordsee, Abbildung 86 die Salinitäten im Tiefenwasser und Abbildung 87 verdeutlicht anhand von Salinitätsquerschnitten, wie weit sich das Ostseewasser entlang des 57. und 58. nördlichen Breitengrades in die Nordsee begibt.

In Abbildung 59 zeigt sich ebenfalls ein Ast in Richtung geringerer Salinitäten bei hohen ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen von etwa 200 bis 890 mBq/m^3 . Das entspricht ^{129}I -Konzentrationen von $4 \cdot 10^{-14}$ bis $6,4 \cdot 10^{-14}$ g/g (s. Abbildung 71 im Anhang I). Der Ausläufer zu geringeren Salinitäten bei hohen ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen setzt sich aus Proben entlang der belgischen, niederländischen und deutschen Küstenlinie (Deutsche Bucht) zusammen, die oben bereits aufgezählt wurden. Der Eintrag von Süßwasser aus Flüssen, welches kleinste Mengen Iod-127 beinhaltet, beeinflusst die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nicht signifikant. Es erfolgt aber eine Verdünnung der ^{127}I -Gehalte und der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen sowie eine Herabsetzung der Salinitäten. Die Datenpunkte der Station Medem erscheint daher in Abbildung 59 verglichen mit den eben genannten Proben bei etwas geringeren ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen (282 und 292 mBq/m^3) aber bei gleich großen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen ($1,5 \cdot 10^{-6}$, Abbildung 58). Der Ausläufer der kleineren ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen bei geringeren Salinitäten in Abbildung 59 beinhaltet die Stationen, die durch Ostseewasser geprägt sind. Aus der Ostsee wird salzärmeres Wasser (Salinität $< 33,5$) an der Oberfläche in die Nordsee eingetragen, die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen liegen zwischen 43 und 100 mBq/m^3 . Im Mündungsbereich der Ostsee werden auch geringere ^{127}I -Konzentrationen festgestellt. Im Skagerrak bei Station 40 werden nur 30 ng/g Iod-127 gemessen, bei Hanstholm (Station 39) 39,2 ng/g .

Die Stationen innerhalb der zentralen Nordsee und der westlichen Nordsee besitzen Salinitäten von etwa 35. Die ^{129}I -Aktivitätskonzentration dieser Stationen liegen etwa zwischen 10 und 30 mBq/m^3 , die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen etwa $2 \cdot 10^{-8}$ und $12 \cdot 10^{-8}$. Die Datenpunkte liegen relativ dicht beieinander. In der zentralen Nordsee bei 56°N und 6°E fanden Yiou et al. ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $4,8 \cdot 10^{-8}$ [Yiou et al., 1994]. Diese Position entspricht der Station 27 von der Augustreise 2005 dieser Arbeit. Ein um den Faktor 15 höheres $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $7,3 \cdot 10^{-7}$ im Jahre 2005 verglichen mit dem von 1991 [Yiou et al., 1994] offenbart die zunehmende Kontamination der Nordsee mit anthropogenem Iod-129.

Ein scharfes oberes Limit der Salinitäten wird bei 35,37 beobachtet. Die größten Salinitäten (34,4 bis 35,37) stammen von Wasserproben, die nicht durch Süßwassereintrag verdünnt wurden und somit die Eigenschaften von Atlantikwasser aufweisen. Datenpunkte mit großen Salinitäten liegen im Englischen Kanal, im südwestlichen Bereich der Nordsee nahe der Kanalmündung und in Grenzgebieten zwischen dem nordwestlichen Teil der Nordsee und dem Atlantik. Die genannten Bereiche mit hohen Salinitäten zeigen extreme Unterschiede in den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen und den ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen. In den Abbildungen 58 und 59 ist zu erkennen, daß sich sowohl die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als auch die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen über vier Zehnerpotenzen erstrecken. Das aus dem Atlantik durch den Kanal fließende Wasser trägt eine große Salinität und wird durch die Emissionen aus La

Hague kontaminiert. So entsteht bei gleichbleibend hohen Salinitäten ein sprunghafter Anstieg der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $1 \cdot 10^{-8}$ auf $3,2 \cdot 10^{-6}$. Ebenso erfolgt eine drastische Zunahme der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen von 2 mBq/m^3 auf mehr als 840 mBq/m^3 . Die Tiefenwässer der Stationen 46, 53 und 907 bilden die Punkte der geringsten Kontamination ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse kleiner als 10^{-8}) bei sehr hohen Salinitäten (35,30 bis 35,37). Die dazwischenliegenden Stationen (904, 905 und 908) besitzen annähernd gleich große Salinitäten, sind aber mäßig kontaminiert. Ihre $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen zwischen $4 \cdot 10^{-8}$ und $64 \cdot 10^{-8}$ (12 bis 176 mBq/m^3). Vermutlich sind Strömungsschwankungen durch Ebbe und Flut dafür verantwortlich, daß der Bereich der Stationen 905 und 908 durch ^{129}I aus La Hague kontaminiert wird. Im Tiefenwasser der Stationen 51 (unter 100 m, 35,29), 50 (unter 100 m, 35,23) und 40 (Skagerrak, unter 200 m, 35,25) sind ebenfalls hohe Salinitäten gemessen worden, auch hier sind nur mittelmäßige bis schwache Kontaminationen festgestellt worden ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $2 \cdot 10^{-8}$ bis $5 \cdot 10^{-8}$, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen zwischen 9 und 22 mBq/m^3). Die eben genannten Stationen weisen im Tiefenwasser die Eigenschaften des Atlantikwassers auf, sind aber höher kontaminiert.

In der Irischen See ist, wie auch in der Deutschen Bucht, eine geringere Salinität durch die kontinentalen Süßwassereinträge zu sehen. Daher besitzen die Proben aus der Irischen See kleinere Salinitäten als die im Abstrom von La Hague, während die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nahezu identisch sind. Die angesprochenen Stationen aus dem Kanal und der Irischen See sind auch durch die größten ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen gekennzeichnet. Wie intuitiv zu erwarten war, sind bei der Auftragung der Salinitäten gegen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abbildung 58 dieselben drei Punktwolken zu erkennen wie in Abbildung 59, gleiches gilt für Abbildung 71 (Anhang I). In Abbildung 58 und Abbildung 59 ist die Station Stade nicht eingezeichnet, um eine bessere Übersichtlichkeit zu gewährleisten. Während der Nordseereise von August 2005 wurde dort eine Salinität von 1,51 gemessen, das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis lag bei knapp $1 \cdot 10^{-7}$ und die ^{129}I -Aktivitätskonzentration betrug 7 mBq/m^3 . Die Salinitäten der Wasserproben aus dem Nordatlantik, von der schottischen Küste, Spiekeroog und von einigen exotischen Proben sind nicht vorhanden.

Die Wasserproben von Spitzbergen sind ebenfalls durch den kontinentalen Abfluß in ihrer Salinität herabgesetzt. Dies spiegelt sich auch in den ^{127}I -Konzentrationen wider, nur 35 ng/g stabiles Iod wurden nachgewiesen. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von etwa $1,5 \cdot 10^{-8}$ liegen in derselben Größenordnung wie die der Proben aus dem westlichen Kanal.

Die bei der ersten Beprobung der Deutschen Bucht erhaltenen Daten (s. Abbildung 28 und Abbildung 29) stehen weitestgehend mit den Ergebnissen der Nordseereise im August 2005 (s. Abbildung 32 und Abbildung 33) im Einklang. Die Zeitreihen der Stationen Borkumriff (Briff) und Elbe 1 zeigen im zeitlichen Verlauf eine große Konstanz mit nur kleinen Schwankungen (s. Tabelle 30 und Tabelle 31). Elbe 1 scheint ein gut geeigneter Ausgangspunkt für weitere Kontrollmessungen zu sein, um die Beeinflussung durch die Emissionen aus La Hague zu erfassen. Die zu den Zeitreihen gehörenden ergänzenden Daten befinden sich im Anhang I. Ein Vergleich der Ergebnisse von Elbe 1 mit denen von früheren Proben aus der Nordsee zeigt die gleichbleibende, hohe Kontamination der Nordsee im letzten Jahrzehnt. Zwischen Juli 1999 und April 2002 hatte die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen bei der Station Elbe 1 einen geometrischen Mittelwert von 430 mBq/m^3 und eine geometrische Standardabweichung von 1,7. Drei Jahre später, im Mai, September und November 2005, werden bei Elbe 1 (330 ± 30) mBq/m^3 , (360 ± 10) mBq/m^3 und (290 ± 110) mBq/m^3 angetroffen.

Bezüglich der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden Werte von $1,45 \cdot 10^{-6}$ (geometrische Standardabweichung 1,4), $(1,49 \pm 0,10) \cdot 10^{-6}$, $(1,5 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$ und $(1,2 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$ bestimmt. Die Daten der Station Elbe 1 für Mai 2005 setzen sich aus dem Mittelwert von vier Proben zusammen, die zwischen 0 und 20 m Tiefe genommen wurden.

10.2 Iod-129 und Iod-127 im Europäischen Nordmeer

Die in Abbildung 37 präsentierten Ergebnisse zeigen, wie sich die ^{129}I -Kontamination von der Nordsee kommend im Europäischen Nordmeer verfolgen läßt. Vom äußersten Nordosten der Nordsee bis in Höhe der Lofoten nehmen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse auf ein Sechstel ab, die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen gehen auf etwas mehr als ein Siebtel zurück. Der norwegische Küstenstrom teilt sich in Höhe der Lofoten, ein Teil des Wassers und damit auch ein Teil des Iod-129 wird in die Barentssee transportiert. Vermischungen mit wenig kontaminiertem Wasser aus dem Nordatlantik reduzieren zusätzlich die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Alle $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im oberflächennahen Wasser des Europäischen Nordmeeres liegen zwischen $1 \cdot 10^{-8}$ und $3,5 \cdot 10^{-8}$, im Tiefenwasser betragen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse $1,6 \cdot 10^{-8}$ und $5,3 \cdot 10^{-9}$. Ähnlich niedrige Isotopenverhältnisse wurden in der Nordsee im äußersten Westen des Kanals sowie im Tiefenwasser der nordwestlichen und nordöstlichen Nordsee gemessen. Der Vergleich von Tiefenwasserproben mit oberflächennahen Wasserproben zwischen Grönland und Spitzbergen zeigt ein nur langsames Vordringen des Iod-129 in die tiefen Wasserschichten. In 200 m Tiefe liegen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse signifikant unter denen des Oberflächenwassers. Erwartungsgemäß werden bei Spitzbergen in 9 und 13 m Tiefe dieselben $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und ^{127}I -Konzentrationen beobachtet. Die Salinitäten dieser Proben liegen mit 34,4 unter denen des Nordatlantikwassers. Auch hier macht sich der bereits besprochene Eintrag von salzarmen Oberflächenwasser bemerkbar. Die ^{127}I -Konzentrationen betragen in beiden Tiefen 35 ng/g. Die übrigen Wasserproben weisen mit $40,0 \pm 3,8$ ng/g deutlich größere ^{127}I -Konzentrationen auf und zeigen die bei den übrigen Meerwasserproben beobachtete geringe Variation.

Die Transportzeit von Sellafield bis Spitzbergen beträgt etwa sechs Jahre, von La Hague aus sind es vier Jahre (Abschnitt 5.5), so daß die hohen Emissionsraten Ende der 1990er Jahre Spitzbergen im Jahr der Probennahme (2005) erreicht haben müßten. Neben den erwähnten Verdünnungseffekten können auch Sedimentationsprozesse zu einer Entfernung des Iod-129 aus der Wassersäule führen, die bei gleichzeitigem Zufluß von ^{129}I -armen Wasser die geringen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse erklären. Aufgrund der derzeitigen Situation ist in der näheren Zukunft im Europäischen Nordmeer nicht mit einem Rückgang der Kontamination zu rechnen. Die stark kontaminierte Nordsee stellt ein Reservoir dar, das neben dem Europäischen Nordmeer auch die Grönlandsee, das Nordpolarmeer und die Barentssee mit anthropogenem Iod-129 versorgen wird.

10.3 Tiefenprofile

Die untersuchten Tiefenprofile geben weitere Informationen über den Transport und die Verteilung des ^{129}I aus La Hague und Sellafield auf seinem Weg in die Nordsee und den Nordostatlantik. Bei den Stationen 911, 25, 34 und 17 sind sowohl die ^{127}I -Konzentrationen als auch die ^{129}I -Konzentrationen und damit folgerichtig auch die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse innerhalb der Wassersäule verhältnismäßig konstant. Damit deutet alles auf eine gute Durchmischung der dortigen Wassersäulen hin, da auch die Salinitäten keinen anderen Schluß zu-

lassen. Vier weitere Tiefenprofile aus der Deutschen Bucht, die im Mai 2005 entnommen wurden, zeigen ebenfalls eine homogene Zusammensetzung der Wasserkörper in Hinblick auf die beiden Iodisotope und die Salinitäten.

Eine Besonderheit stellt die Station 39 (Hansthalm, nordwestlich von Dänemark) dar. Hier ist die ^{127}I -Konzentration an der Oberfläche etwas geringer als in 15 und 30 m Tiefe. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind in der Tiefe um den Faktor 2,3 höher, dabei werden zwischen 15 und 30 m Tiefe keine signifikanten Unterschiede beobachtet (s. Tabelle 28). Auch die ^{129}I -Konzentrationen im Tiefenwasser liegen deutlich über der des Oberflächenwassers (Faktor 2,4). Diese Beobachtungen beruhen auf dem Einfluß des an der Oberfläche aus der Ostsee in die Nordsee fließenden Wassers. Das Nordseewasser besitzt im Vergleich zum Ostseewasser eine größere Salinität und Dichte. Es dringt die Kontamination tragend in der Tiefe in die Ostsee ein, während das weniger kontaminierte Ostseewasser aufgrund der geringeren Dichte an der Oberfläche in die Nordsee fließt. Tabelle 28 zeigt die zunehmenden Salinitäten von 31,45 an der Oberfläche bis zu 33,65 in 27 m Tiefe. Das Tiefenwasser der Station 39 stammt demnach aus der Nordsee. Alle Meßwerte entsprechen bei Station 39 den Erwartungen.

Weiter nördlich, bei Station 40 (Skagerrak, s. Tabelle 27), zeigt sich in Hinblick auf die Iodisotope ein gegensätzliches Verhalten. Die ^{127}I -Konzentration ist im Oberflächenwasser kleiner als in der Tiefe. Dies läßt vermuten, daß das Oberflächenwasser wie auch bei Station 39 durch die Ostsee geprägt ist. Die Salinität beträgt an der Oberfläche 29,12 und liegen damit deutlich unter denen der übrigen Nordseewasserproben. Die ^{129}I -Konzentration und das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis an der Oberfläche sind um mehr als den Faktor 7 größer als in der Tiefe und zeigen damit ein gegensätzliches Verhalten zu dem, was bei Station 39 (Hansthalm) beobachtet wurde. Wie in Abschnitt 10.5 gezeigt wird, ist die ^{129}I -Kontamination des Oberflächenwassers bei Station 40 den flüssigen Ableitungen aus Sellafield zuzuschreiben. Bei Station 40 beträgt die Salinität in 100 m Tiefe 35,25 und in 498 m 35,17. Diese Werte liegen deutlich über den übrigen Salinitäten der Nordsee. Diese besonders großen Salinitäten sprechen dafür, daß das Tiefenwasser von Station 40 aus dem Atlantik stammt. Ähnlich große Salinitäten werden mit 35,33 im Tiefenwasser der Stationen 906 und 907 im westlichen Kanal festgestellt. Offensichtlich fließt Tiefenwasser aus dem Nordatlantik im nördlichen Bereich des Skagerraks ein, während sich weiter südlich bei Station 39 Nordseewasser in der unteren Wasserschicht befindet. Ein großer Salinitätsunterschied bei Station 40 wird zwischen 5 und 11 m Tiefe beobachtet, dort nimmt die Salinität von 29,65 auf 34,63 zu. In dieser Wasserschicht verläuft vermutlich die Halokline, die das oberflächennahe Ostseewasser von dem salzreicheren Wasser trennt (s. dazu auch Tabelle 58 im Anhang II). Bei Station 39 ist dieser Unterschied weniger ausgeprägt, zwischen 5 und 10 m Tiefe nimmt die Salinität von 32,78 auf 33,32 zu.

Die Tiefenprofile der Stationen 50 (Tabelle 26) und 51 (Tabelle 25) zeigen die gleichen Befunde wie Station 40 und untermauern somit die Annahme einer in der Tiefe Richtung Skagerrak fließenden Strömung aus dem Nordatlantik. Bei Station 50 nimmt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von der Oberfläche um mehr als den Faktor 10 in die Tiefe ab, die Salinitäten liegen dort bei mehr als 35,2, so daß bereits in 100 m Tiefe überwiegend Nordatlantikwasser angetroffen wird, während die Salinität an der Oberfläche nur 32,58 beträgt. Die Ergebnisse der ^{127}I -Konzentrationen reihen sich widerspruchlos in diese Befunde ein. Ein großer Salinitätsprung der Station 50 wird zwischen 5 und 9 m Wassertiefe gemessen, die Salinität steigt

in diesem Bereich von 33,44 auf 34,31. Die getroffene Aussage einer Halokline zwischen 5 und 15 m, die aufgrund der Daten von Station 40 dort vermutet wird, ist somit bestätigt.

Ähnlich sieht es bei Station 51 aus, dort nimmt das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von der Oberfläche in die Tiefe auf ein Sechstel ab, auch die ^{129}I -Aktivitätskonzentration geht zurück (Faktor 5,5). Die Salinität nimmt von 33,00 (0 m) auf 35,25 im Tiefenwasser zu. Dabei ist der größte Salinitätsunterschied zwischen 10 m (33,16) und 25 m (34,75) zu sehen. Dies widerspricht nicht der oben geäußerten Vermutung einer Halokline zwischen 5 und 11 m bzw. zwischen 5 und 9 m Tiefe, allerdings fallen bei den Stationen 50 und 51 die Unterschiede der Salinitäten weniger stark aus. Damit ist ein gleichmäßigerer Übergang zu dem salzreichen Tiefenwasser feststellbar, der mit Vermischungsprozessen beim Transport des Wassers entlang der norwegischen Küste erklärt werden kann. Die Lage der Halokline ist variabel und muß sich nicht zwangsläufig bei den drei Stationen (40, 50 und 51) in derselben Wassertiefe befinden. Die Salinitätsunterschiede dieser Stationen legen die Vermutung nahe, daß sich die Halokline bei den drei Stationen in ähnlicher Tiefe befindet. Die Ergebnisse der Iodanalytik sind zwar weniger genau tiefenaufgelöst, sie stehen aber zumindest nicht im Widerspruch zu der angenommenen Lage der Halokline.

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse an der Oberfläche nehmen über die Stationen 51, 50 und 40 zu. Dies war zu erwarten, da die Einflußnahme der Nordsee steigt. In der untersten Wasserschicht ist zwischen Station 51 und 50 kein signifikanter Unterschied zu beobachten, das Tiefenwasser im Skagerrak besitzt jedoch ein etwa anderthalbfaches $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Vergleich zu den Stationen 51 und 50. Gleiches wird auch in bezug auf die ^{129}I -Konzentration beobachtet. Im Skagerrak ist die Kontamination offensichtlich schon weiter in die Tiefe eingedrungen.

Zwei weitere Tiefenprofile (Stationen 53 und 46) aus dem nordwestlichen Bereich der Nordsee liefern Informationen über den Eintrag des aus Sellafield stammenden ^{129}I . Station 53 (östlich der Shetlandinseln, s. Tabelle 23) zeigt innerhalb der Wassersäule eine sehr gleichmäßige Verteilung in Hinblick auf Iod-127. Die Salinitäten verändern sich nicht nennenswert (35,31 an der Oberfläche gegenüber 35,37 in der Tiefe). Diese großen Salinitäten sprechen für atlantisch geprägtes Wasser. Da an der Oberfläche und in 60 m Tiefe das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis größer als in 120 m Tiefe ist, wird angenommen, daß das aus Sellafield stammende Iod-129 in der oberen Wasserschicht in die Nordsee eingetragen wird. Die Beeinflussung des Oberflächenwassers von Station 53 durch Iod-129 ist jedoch gering. Das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis beträgt nur $6 \cdot 10^{-9}$ und nimmt in Richtung größerer Tiefen etwas ab, gleiches gilt für die ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen.

Station 46 (s. Tabelle 24) besitzt nahezu unveränderte Salinitäten von 35,3 bei allen Tiefen. Auch hier kann von atlantisch geprägtem Wasser gesprochen werden. Die ^{127}I -Konzentrationen nehmen von 48,5 auf 41,4 ng/g leicht ab. Größere Variabilitäten zeigen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die ^{129}I -Konzentrationen. Das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis nimmt von 97 m zu 45 m und von 45 m zu 0 m jeweils um etwa die Hälfte zu. Die ^{129}I -Konzentrationen zeigen erwartungsgemäß das gleiche Verhalten. Im Vergleich zu dem bei Station 53 untersuchten Tiefenprofil ist erkennbar, daß erstens die Unterschiede der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und der ^{129}I -Konzentrationen deutlich größer sind und zweitens die Kontamination insbesondere der oberen Wasserschichten größer ist. Hier liegt ein wesentlich stärkerer Eintrag des Iod-129 aus Sellafield vor. In der obersten und mittleren Wasserschicht ist das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis bei Station 46 zweieinhalb bzw. doppelt so groß wie bei der

nahegelegenen Station 53. In der untersten Wasserschicht ist der Unterschied nicht mehr so drastisch, er beträgt Faktor 1,5. Der abnehmende Unterschied des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses in größeren Tiefen von Station 53 zu 46 kann mit der geringeren Kontamination des Tiefenwassers durch Iod-129 aus Sellafield erklärt werden. Das Iod-129 dringt nur langsam in tiefe Wasserschichten vor, offensichtlich findet nur eine langsame Vermischung vertikal zur Wassersäule statt. Im Gegensatz zu den Befunden der Stationen 40, 50 und 51 existiert bei den Stationen 46 und 53 keine deutlich ausgeprägte Grenzschicht in Hinblick auf die Verteilung der Iodisotope. Die Unterschiede der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und der ^{129}I -Konzentrationen fallen wesentlich geringer aus.

Die an der nördlichen Küste Schottlands um die Britischen Inseln fließende Strömung transportiert die Kontamination von Station 46 in südliche Richtung. Bei Station 34 ist eine gleichmäßige Verteilung der beiden betrachteten Iodisotope in unterschiedlichen Tiefen festzustellen (s. Tabelle 29), gleichzeitig steigen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse deutlich an. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nehmen von Station 46 ($1,57 \cdot 10^{-8}$) kommend zu Station 34 ($6,24 \cdot 10^{-8}$) an der Oberfläche den Faktor 4 zu, in der mittleren Wasserschicht um den Faktor 6 und in der Tiefe um mehr als den Faktor 10. Vermischungsprozesse von Nordseewasser mit der südlich gerichteten Strömung führen zu einer Homogenisierung innerhalb des Wasserkörpers. Dabei wird das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis wegen der vorliegenden Kontamination, die auch aus La Hague stammt, erhöht. Die angesprochenen Homogenitäten innerhalb der Wassersäule von Station 34 in bezug auf die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und ^{127}I -Konzentration zeigen sich auch bei den Salinitäten, die bei allen Tiefen 35,0 betragen. Damit sind die Salinitäten signifikant geringer als bei den Stationen 46 und 53. Dort wurden Salinitäten von etwa 35,3 gemessen. Somit besitzt das Wasser bei Station 34 einen geringeren atlantischen Charakter und bestätigt einen zunehmenden Nordseewassercharakter. Die Herabsetzung des Salzgehaltes setzt sich in geringerem Maße beim Vergleich von Station 34 mit 17 fort. Bei Station 17 wird innerhalb der Wassersäule eine gleichbleibende Salinität von 34,8 gemessen. Station 17 ist durch eine gleichmäßige Verteilung der Iodisotope innerhalb der Wassersäule gekennzeichnet. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Station 17 und 34 sind sowohl an der Oberfläche als auch in der Tiefe nahezu identisch.

Die Stationen 907 und 906 zeigen unerwartete Befunde (s. Tabelle 21 und Tabelle 22). Bei Station 907 (VTG Quessant) sind die ^{129}I -Konzentrationen an der Oberfläche und in 100 m Tiefe anderthalbmal so groß wie in 50 m Tiefe. Die ^{127}I -Konzentrationen sind an der Oberfläche und in 50 m Tiefe mit etwa 30 ng/g relativ gering, während in 100 m Tiefe 50 ng/g gemessen werden. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind an der Wasseroberfläche höher ($7,4 \cdot 10^{-9}$) als in der Tiefe ($4,8 \cdot 10^{-9}$). In der mittleren Wasserschicht der Station 907 ist die geringste ^{129}I -Kontamination gemessen worden, gleiches gilt für Station 906 (westlich von Quessant). Bei Station 906 sind jedoch die ^{127}I -Konzentrationen nahezu konstant. Die tiefe Wasserschicht ist deutlich stärker mit Iod-129 kontaminiert als die Oberfläche. Bei Station 907 hingegen ist in der Tiefe eine geringere Kontamination zu sehen. Wie in Abschnitt 10.5 gezeigt wird, ist die Oberflächenkontamination durch ^{129}I der Stationen 906 und 907 den flüssigen Emissionen aus Sellafield zuzuordnen. Station 906 liegt etwas weiter nördlich und wird leichter von der aus Sellafield kommenden südlich gerichteten Strömung erfaßt. Damit sind das größere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis und die größere ^{129}I -Konzentration bei Station 906 im Vergleich zu 907 im Oberflächenwasser erklärbar. Möglicherweise stellt die mittlere Wasserschicht eine Mischkontamination aus La Hague und Sellafield dar, die durch langsamen Austausch innerhalb der Wassersäule gekennzeichnet ist. Die bei beiden Stationen in der unteren Wasserschicht zunehmende Kontamination könnte den flüssigen Emissionen aus

La Hague zuzuschreiben sein. Zwar führt die Hauptströmungsrichtung gen Osten, aber durch Tidenbewegungen findet ein Transport auch in westlicher Richtung statt. Diese Transportrichtung wird bei den Stationen 905 und 908 im Oberflächenwasser nachgewiesen. Im Tiefenwasser ist bei den Stationen 906 und 907 wegen der größeren Entfernung zur Emissionsstelle nur ein kleiner Beitrag zu sehen. Diese diffizilen Befunde könnten auch mit Verwirbelungen am westlichen Ende des Englischen Kanals in Verbindung stehen.

Zusammenfassung

Die Salinitäten geben zusammen mit den Befunden der Iodanalysen Hinweise auf die Strömungsverhältnisse im Oberflächen- und Tiefenwasser des Kanals und der Nordsee. Das Tiefenwasser der Stationen 40, 50 und 51 konnte dem Nordostatlantik zugeordnet werden, das Oberflächenwasser stammt aus dem Ostseeraum. Im südlichen Bereich des Skagerraks (Station 39) dringt Nordseewasser in der Tiefe in die Ostsee ein, das Oberflächenwasser kommt ebenfalls aus der Ostsee. Iod-129 aus Sellafield wird oberflächennah in die Nordsee transportiert, an der Westküste Schottlands und Englands erfolgt in südlicher Richtung eine weitgehende Homogenisierung innerhalb der Wassersäule in bezug auf die Verteilung der Iodisotope. In diesem Bereich sind die Unterschiede der Salinitäten, ^{127}I -Konzentrationen, ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse verglichen mit denen der Stationen 40, 50 und 51 deutlich geringer. Die zunehmende ^{129}I -Kontamination im Tiefenwasser der westlichen Nordsee kann mit der in der Nordsee vorliegenden ^{129}I -Kontamination erklärt werden, die zum Teil aus La Hague stammt. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen lassen sich mit den in Abbildung 15 gezeigten Strömungsverhältnissen erklären. Die Ergebnisse der Tiefenprofile präzisieren die Vorstellungen über die Bewegungen der unteren Wasserkörper.

10.4 Ergebnisse des Strahlenschutzvorhabens 4481

In diesem Abschnitt wird die Kontaminationen im Nordseewasser durch die im Strahlenschutzvorhaben 4481 [Nies *et al.*, 2008] untersuchten Radionuklide diskutiert. Einige hier besprochene Aspekte werden in Abschnitt 10.5 aufgegriffen. Weitere Erläuterungen können dem Abschlußbericht des Strahlenschutzvorhabens [Nies *et al.*, 2008] entnommen werden.

10.4.1 H-3, Sr-90 und Cs-137 in der Nordsee

Tritium wird sowohl aus den Wiederaufarbeitungsanlagen als auch aus Kernkraftwerken und anderen Einrichtungen freigesetzt. Die größten Tritium-Aktivitätskonzentrationen werden im Englischen Kanal und im weiterführenden Küstenbereich vor Belgien und Holland angetroffen. Im Verlauf des Englischen Kanals kommen auch die in England und Frankreich stehenden Kernkraftwerke als Quelle des Tritiums in Betracht. Mit Flamanville (2 Reaktorblöcke) in direkter Nähe zu La Hague, Paluel (4), Penly (2) und Gravelines (6) befinden sich auf französischer Seite insgesamt 14 im Betrieb stehende Reaktorblöcke direkt am Kanal. Auf englischer Seite befinden sich mit Winfrith, Dungeness, Bradwell und Sizewell vier Kernreaktoren, die für die Tritiumkontamination einen Beitrag leisten. Darüber hinaus stehen im Landesinneren, z. B. an der Maas und am Rhein weitere Kernreaktoren, die ihre Ableitungen in die Flüsse leiten und damit auch zur Tritiumkontamination beitragen. Den größten Anteil der Tritiumemissionen trägt allerdings La Hague (11000 TBq im Jahr 2000) in den Kanal ein. Dem gegenüber stehen wenige 100 TBq/a aus den Kernkraftwerken [Nies *et*

al., 2008]. Wie auch beim Iod-129 kann die Ausbreitung des Tritiums aus dem Englischen Kanal kommend entlang der französischen, belgischen, holländischen und deutschen Küste bis nach Dänemark verfolgt werden. Vor der niederländischen Küste liegt die Tritiumaktivitätskonzentration bei den Stationen 901 sowie 11-13 bei 4,6 Bq/l und mehr. Etwas nördlich (Stationen 14, 15, 10) sind die Aktivitätskonzentrationen bereits deutlich geringer, aber sie liegen immer noch um den Faktor 5 bis 10 über den ^3H -Aktivitätskonzentrationen der übrigen Nordsee. Neben der WAA La Hague führt der Eintrag aus dem Rhein zu erhöhten Tritiumbelastungen. Im Vergleich zu dem eben genannten küstennahen Bereich und dem Englischen Kanal ist die übrige Nordsee deutlich geringer mit Tritium kontaminiert. Aus der Elbe wird offensichtlich nur wenig Tritium eingetragen. Bei Station 1 (Stade) werden 2,6 Bq/l und bei Medem 4,7 Bq/l gemessen. Diese Werte liegen aber deutlich über denen aus der zentralen Nordsee. Hohe Kontaminationen sind auch vor Sylt zu sehen (Stationen 23 und 25). In nördlicher Richtung (zu Station 26) nimmt die Tritiumkontamination geringfügig ab, dort erfolgt eine zügige Verdünnung durch Vermischungsprozesse. Gut zu erkennen ist die in Höhe der Station 26 nach Westen abknickende Strömung, die auch bei der Diskussion der Iodergebnisse festgestellt wurde.

Die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen liegen innerhalb des Englischen Kanals nur geringfügig über dem globalen Fallout, der mit etwa $1\text{-}2\text{ Bq/m}^3$ im Meerwasser angenommen werden kann. Aus La Hague werden nur kleine Mengen ^{90}Sr freigesetzt, so daß sich im Verlauf des Kanals keine erhöhten ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen nachweisen lassen. Die größten Kontaminationen in der Nordsee werden bei den Stationen 39 – 41 und im Bereich der Elbmündung beobachtet. Die erhöhte ^{90}Sr -Kontamination im Bereich des Skagerraks stammt aus dem Ostseeraum. Der ^{90}Sr -Eintrag aus der Ostsee setzt sich aus dem globalen Fallout und ^{90}Sr aus Tschernobyl zusammen, wobei der globale Fallout einen deutlich größeren Anteil einnimmt (s. Abschnitt 5.1.1). Die Ostsee ist vom Flußwassereintrag des umgebenden Festlands geprägt, über den ^{90}Sr aus beiden Quellen eingetragen wird. Um den Einfluß Tschernobyls genauer abzuschätzen, müssen mehrere Faktoren berücksichtigt werden. ^{90}Sr zählt im Gegensatz zu ^{137}Cs zu den schwerflüchtigen Nukliden und dessen Freisetzung aus dem Tschernobyl-Unfall beträgt nur 10 % der ^{137}Cs -Aktivität (s. Tabelle 4). Dadurch läßt sich die kleinere Zunahme der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen in der Ostsee nach Tschernobyl erklären. Die längerfristige Überwachung der Ostsee zeigt für ihren westlichen Teil einen nahezu vernachlässigbaren Beitrag von ^{90}Sr durch den Reaktorunfall [BMU, 2008], im östlichen Teil und in der Bottensee kann der Beitrag des ^{90}Sr aus Tschernobyl nicht mehr vernachlässigt werden.

Das durch den Ausfluß des Ostseewassers geprägte Gebiet in der Nordsee ist durch eine geringere Salinität gekennzeichnet. Die Darstellungen der Salinitäten im Oberflächenwasser und der Salinitätsquerschnitte (s. Abbildung 85 und Abbildung 87 im Anhang II) zeigen entlang des 57. und 58. Breitengrades aus östlicher Richtung kommend bis etwa 2 bis 3 Grad östlicher Länge gegenüber dem übrigen Nordseewasser signifikant verminderte Salinitäten. In diesem Bereich findet sich auch folgerichtig die höhere ^{90}Sr -Kontamination (Stationen 37-42 und 50-51). Gut zu erkennen ist ebenfalls die um die norwegische Küste herumfließende und im norwegischen Küstenstrom mündende Strömung. Die Stationen 42, 50 und 51 weisen im Vergleich zu den westlich gelegenen Stationen größere ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen auf, die auf den Transport in die angesprochene Richtung hindeuten. Eine wie beim Technetium-99 beobachtete höhere Kontamination der zentralen Nordsee wird in bezug auf ^{90}Sr nicht festgestellt. Dieser Befund kann mit der Emissionshistorie erklärt werden. Während für ^{99}Tc Mitte der 1990er Jahre die meisten Ableitungen stattfanden und erst ab 2002 eine deutliche

Reduzierung vorgenommen wurde, liegen die die üppigen ^{90}Sr -Emissionen länger zurück (1970er bis Mitte der 1980er Jahre). Vermutlich wurde die Ostsee, wenn auch im geringen Maße, durch die ^{90}Sr -Ableitungen aus Sellafield kontaminiert. Die langfristig hohen ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen in der Ostsee sind mit dem langsam verlaufenden Wasseraustausch zu erklären.

Das ^{90}Sr in der Elbmündung stammt vermutlich aus dem globalen Fallout und wird mit dem Oberflächenwasser in die Elbmündung transportiert. Dieser Effekt ist bei den anderen Flüssen wahrscheinlich deshalb nicht zu sehen, weil nicht nah genug an den Mündungen beprobt wurde und eine schnelle Verdünnung eintritt. Die schnelle Verdünnung zeigt sich anhand der Abnahme der ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen von der Station Stade ($4,1 \text{ Bq/m}^3$) zur Station Medem ($2,6 \text{ Bq/m}^3$). Bereits bei Station 3 werden nur noch $1,9 \text{ Bq/m}^3$ gemessen. Im übrigen Beprobungsgebiet liegen die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen nur wenig über dem globalen Fallout. Diese Ergebnisse decken sich mit den in der Vergangenheit angefertigten Analysen des BSH, die in Zustandsberichten der Nordsee veröffentlicht wurden [BMU, 2008; BSH, 2005; 2006]. Bezüglich ^{90}Sr tragen die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield derzeit auch aufgrund der Reduktion der Emissionen in den letzten Jahren nur noch wenig zur Erhöhung der Kontamination in der Nordsee bei. In der Irischen See wurden im Jahre 2006 ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen von $13\text{--}43 \text{ Bq/m}^3$ angetroffen, die eindeutig den Emissionen der WAA in Sellafield zugeordnet werden können. Die flüssigen ^{90}Sr -Emissionen liegen seit Mitte der 1990er Jahre zwischen 14 und knapp 37 TBq/Jahr und erklären die starke Kontamination der Irischen See im Vergleich zum übrigen Beprobungsgebiet. Innerhalb der Irischen See zeigt sich eine zügige Verdünnung. Im Jahre 2006 erfolgte eine deutliche Reduzierung der Ableitung aus Sellafield auf 5 TBq/Jahr . Diese Emissionsrate liegt deutlich unter denen aus den 1970er und frühen 1980er Jahren, damals wurden zwischen 200 und fast 600 TBq/Jahr in die Irische See geleitet.

Während Tritium als ideal konservativer und Strontium-90 als konservativer Tracer im Meerwasser aufgefaßt werden können, ist das Verhalten des Cäsium-137 etwas differenzierter zu betrachten (s. Abschnitt 5.1.3). Die Bindung an Partikel und die anschließende Sedimentation ist neben dem gelösten Cäsium-137 beim Transport im Wasser zu beachten. Die Sedimentation in der Irischen See führte dazu, daß heute das dortige Sediment die Hauptquelle von ^{137}Cs in der Nordsee ist. Diese Kontamination erfolgte hauptsächlich in den 1970er Jahren (s. Abschnitt 3.4.2). Das aus der Ostsee kommende, über den Skagerrak um die norwegische Küste strömende Wasser kann anhand der erhöhten ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen verfolgt werden. Diese ^{137}Cs -Kontamination setzt sich im Bereich der westlichen Ostsee zu etwa gleichen Teilen aus globalem Fallout und ^{137}Cs aus Tschernobyl zusammen. Deutlich erhöht sind die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen der Stationen 36-43, dieser Bereich deckt sich mit dem in Abbildung 85 (Anhang II) dargestellten Bereich kleinerer Salinitäten, die durch das eindringende Ostseewasser verursacht werden. Die Befunde bestätigen die oben getroffenen Aussagen über die Ausbreitung des aus der Ostsee stammenden Wassers. Da die Ostsee deutlich stärker mit ^{137}Cs als mit ^{90}Sr kontaminiert ist, kann der Ausfluß des ^{137}Cs aus der Ostsee über den Skagerrak (Stationen 36-43) um die norwegische Küste (Stationen 49-51) besser verfolgt werden. Die Verdünnungseffekte des mit ^{137}Cs stärker kontaminierten Ostseewassers wirken sich geringer aus. Die Salinitäten sowie die ^{90}Sr - und ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen stehen im Einklang mit dem Verständnis der Ausbreitung des an der Oberfläche in die Nordsee einströmenden Ostseewassers.

Niedrige ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen sind im westlichen Bereich des Englischen Kanals zu beobachten. Die geringen Ableitungen dieses Nuklids aus der WAA La Hague lassen sich im östlichen Bereich des Kanals nachweisen, dort wurden bis zu $4,7 \text{ Bq/m}^3$ gemessen. Erwartungsgemäß werden die höchsten Konzentrationen zwischen 19 und 123 Bq/m^3 an den vier Stationen in der Irischen See aus dem Jahre 2006 gemessen. In der Elbe und auch der Elbmündung lassen sich keine erhöhten ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen nachweisen, dort wurden aber erhöhte ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen festgestellt. Eine Erklärung ist die begünstigte Sorption des Cäsiums an Tonmineralien, wodurch der Eintrag des ^{137}Cs aus dem globalen Fallout in die Nordsee über den Süßwasserpfad weniger effizient verläuft. Die Fraktionierung der Falloutnuklide ^{90}Sr und ^{137}Cs wurde vom BSH in der Vergangenheit bereits beobachtet [BSH, 2005; 2006].

10.4.2 Tc-99 in der Nordsee

Wesentliche Quelle des ^{99}Tc in der Nordsee sind die Einleitungen aus der Anlage Sellafield in die Irische See ab dem Jahre 1994. Die höchsten Einleitungen fanden 1995 mit 190 TBq statt, danach erfolgte eine Abnahme (s. Abschnitt 3.4.3). Bis 1997 lagen die Einleitungen über 100 TBq/a und erst ab 2005 erreichten sie Werte unter 10 TBq/a . Aufgrund der Transportdauer stiegen zeitversetzt zu den Emissionen ab 1997 die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen in der Nordsee deutlich an. Die Transportzeit von Sellafield bis in die Deutsche Bucht beträgt nur drei Jahre (s. Abschnitt 5.5), anschließend erfolgt der Abtransport ins Europäische Nordmeer, wobei jedoch ein Teil aufgrund eines Wasserwirbels relativ lange in der zentralen Nordsee verweilt. Die Beprobung der gesamten Nordsee im Jahre 2005 zeigt deshalb nur die inzwischen noch verbliebenen Reste der hohen Einleitungen vergangener Jahre.

Die ^{99}Tc -Kartierung der Nordsee zeigt, in welchen Gebieten eher der Einfluß der Anlage La Hague oder Sellafield dominiert. Im westlichen Bereich des Kanals liegen die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen nahe des erwarteten Hintergrundwertes aufgrund des globalen Fallouts von $0,05 \text{ Bq/m}^3$. Die leicht erhöhten ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen bei Station 906 und 907 deuten auf eine durch Sellafield verursachte Kontamination hin. Die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen erfahren aufgrund von Verdünnungseffekten in östlicher Richtung eine Abnahme von $0,13 \text{ Bq/m}^3$ und $0,06 \text{ Bq/m}^3$ (Stationen 906 und 907) auf $0,03$ und $0,04 \text{ Bq/m}^3$ (Stationen 908 und 905). Neben den Verdünnungseffekten tragen auch Verwirbelungen am Einlaß des Kanals zur Abnahme der ^{99}Tc -Konzentrationen bei.

Entlang des kontinentalen Küstenstreifens, der von den Ableitungen aus La Hague geprägt ist, sind aufgrund der geringen ^{99}Tc -Ableitungen dieser WAA die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen relativ niedrig. Im Bereich des Küstenstreifens findet offensichtlich keine Vermischung mit dem aus Sellafield stammenden Wasser statt. Innerhalb des Englischen Kanals und entlang der Küste liegen die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen bei $0,76 \text{ Bq/m}^3$ und weniger. Bei Station 26 ist ein geringer Anstieg zu verzeichnen. Dies deutet auf eine erst dort einsetzende Vermischung mit der Nordsee hin. Auffallend ist der große Unterschied der ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen beim Übergang von den Stationen 15, 14 und 10 in nördlicher Richtung zu den Stationen 16 und 9. ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen von $1,74 \text{ Bq/m}^3$ bei Station 8 und $0,36 \text{ mBq/m}^3$ bei Station 7 sprechen ebenfalls für eine enge Begrenzung des aus dem Kanal kommenden Wassers auf einen schmalen Bereich bei gleichzeitig fast vernachlässigbaren Vermischungsprozessen. Im weiteren Strömungsverlauf (Stationen 1-3 und 23-26) zeigt sich die auch bei den Iodanalysen gefundene Prägung dieser Stationen durch die flüssigen Ableitungen aus La Hague und die daraus resultierenden kleinen ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen.

Von den Stationen 23 und 26 kommend steigt die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentration in westlicher Richtung an. Die Vermischung der beiden unterschiedlich kontaminierten Wasserkörper findet westlich der jütländischen Küste und im Skagerrak statt. Die Vermischung im Skagerrak wird auch anhand der ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen von etwas über 1 Bq/m^3 deutlich (Stationen 38-42). Der ^{99}Tc -Befund von Station 50 fügt sich mit $1,2\text{ Bq/m}^3$ nicht in die Systematik der umliegenden Stationen ein, vermutlich unterlag die Aufarbeitung einer Störung.

Die höchsten ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen wurden erwartungsgemäß in den vier Proben aus der Irischen See aus dem Jahre 2006 gemessen. In der direkten Nähe der Anlage Sellafield wurden 37 Bq/m^3 ermittelt. Etwas südlich von Sellafield beträgt die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentration 20 Bq/m^3 , im nördlichen Abstrom findet man wegen der zügigen Verdünnung nur noch 12 Bq/m^3 . Im Vergleich zu den einige Jahre zuvor in der Irischen See gemessenen Werten von bis zu 1000 Bq/m^3 ist eine Abnahme der ^{99}Tc -Kontamination zu verzeichnen. Es hat ein Abtransport des stark kontaminierten Wassers stattgefunden, gleichzeitig wurde wesentlich weniger ^{99}Tc eingeleitet, so daß durch diese Sachverhalte der Rückgang der ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen gegenüber vergangenen Jahren erklärt werden kann.

Die zentrale Nordsee ist im Vergleich zu ihren Randgebieten stärker mit ^{99}Tc kontaminiert. Diese Kontamination ist den üppigen Emissionen seit Mitte der 1990er Jahre zuzuschreiben. Innerhalb der zentralen Nordsee verweilen die Wasserkörper recht lange. Ein dortiger Wirbel übt vereinfachend gesagt einen kreisförmigen Transport aus, so daß die dorthin gelangte Kontamination nur sehr ineffektiv aus diesem Bereich hinausbefördert wird. Da sich Technetium im Wasser konservativ verhält, findet auch kein schneller Übergang in das Sediment statt, sondern es verbleibt im Wasser. Die zentrale Nordsee kann als Speicher für frühere Technetiumemissionen angesehen werden.

10.4.3 Transurane in der Nordsee: Pu-238, Pu-239/240 und Am-241

Plutonium lagert sich leicht an Partikel an und sedimentiert relativ schnell. Auch der Transport im Wasser erfolgt überwiegend an Partikel gebunden. Durch rauhe See und Fischereiaktivitäten können sedimentierte Partikel wieder aufgewirbelt werden. Plutonium verhält sich im Meerwasser nicht konservativ. Trotz dieser Einschränkungen lassen sich im Abstrom von La Hague erhöhte ^{238}Pu -Aktivitätskonzentrationen beobachten. Auch innerhalb der zentralen Nordsee finden sich erhöhte ^{238}Pu -Aktivitätskonzentrationen. Dort kann man annehmen, daß die Kontamination aus vorangegangenen Jahren großer Emissionen konserviert wurde. Im Gegensatz zu Technetium-99 ist es im Sediment archiviert und nicht im Wasserkörper. Zusätzlich muß man davon ausgehen, daß nach Resuspension kontaminierter feinkörniger Sedimentpartikel aus der Irischen See immer wieder Plutonium in die Nordsee eingetragen wird. Bei Untersuchungen des ^{137}Cs ist dieser Mechanismus nachgewiesen worden. Damit ist auch die erhöhte Kontamination entlang der Ostküste Schottlands und Englands erklärbar (Stationen 32-34, 45 und 18). Dort herrscht eine aus der Irischen See kommende südwärts gerichtete Strömung.

Auffällig sind die relativ großen ^{238}Pu -Kontaminationen in der Elbe und deren Mündungsbereich, die auch in den vergangenen Jahren im Rahmen von Zeitreihen des BSH beobachtet wurden. Die Quelle dieser Kontamination ist bis heute nicht bekannt, der ^{238}Pu -Gehalt nimmt in Richtung der Station 2 (Medem) und 3 durch Verdünnungseffekte stark ab.

Auch die Isotope $^{239,240}\text{Pu}$ zeigen in der Elbe eine deutlich höhere Kontamination (23 mBq/m^3), die im Mündungsbereich durch Verdünnungseffekte reduziert wird. Die Spuren der Emissionen aus La Hague sind im Kanal sichtbar. Im westlichen Bereich des Kanals (Stationen 906 und 907) ist eine gegenüber den Stationen 905 und 908 leicht erhöhte Kontamination zu sehen. Dieser Befund untermauert die bei der Diskussion des Technetiums getätigte Aussage über eine Prägung dieser beiden Stationen (906 und 907) durch Wasser aus der Irischen See. Vermutlich stammt die $^{239,240}\text{Pu}$ -Kontamination bei den Stationen 906 und 907 aus Sellafield, 905 und 908 sind durch eine Mischkontamination beider Anlagen geprägt. Die erhöhten $^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationen in der zentralen Nordsee bestätigen die Speicherung von Radionukliden aufgrund eines dortigen Wasserwirbels. Aus der Ostsee werden ^{238}Pu und $^{239,240}\text{Pu}$ aus dem globalen Fallout eingetragen und spielen eine unbedeutende Rolle für die Kontamination der Nordsee.

Americium-241 ist im Abstrom von La Hague in deutlich größeren Aktivitätskonzentrationen nachweisbar. Auffallend sind die starken Kontaminationen im Bereich der Elbe und der Elbmündung. Dort betragen die ^{241}Am -Aktivitätskonzentrationen 21 mBq/m^3 bei Stade und immerhin noch knapp 10 mBq/m^3 bei Medem (Stationen 1 und 2). In der Deutschen Bucht findet eine zügige Verdünnung statt. Die Quelle des Americiums an diesen Stellen (Stationen 1 und 2) ist nicht bekannt. Beprobungen aufwärts der Elbe könnten zur Identifizierung der Quelle beitragen, die evtl. auch die oben angesprochene Plutoniumkontamination verursacht. Aus der Ostsee findet kein nennenswerter Eintrag von ^{241}Am in die Nordsee statt.

^{241}Am wird und wurde ebenfalls in deutlich größeren Mengen aus Sellafield als aus La Hague emittiert. Bei den Stationen 906 und 907 liegt es nahe am globalen Falloutlevel, bei den Stationen 905 und 908 liegen bereits signifikante Mengen aus La Hague vor und weiter östlich überwiegen die ^{241}Am -Emissionen aus dieser Anlage. Die ^{241}Am -Aktivitätskonzentrationen steigen von $1,2$ bzw. $2,9 \text{ mBq/m}^3$ am Einlaß des Kanals auf $8,1 \text{ mBq/m}^3$ bei Station 901. Zu beachten ist, daß ^{241}Am ($T_{1/2} = 432,2 \text{ a}$) über einen Beta-Zerfall von ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14,35 \text{ a}$) gebildet wird und dadurch dessen Konzentration über die Jahre noch weiter anwächst. Das Maximum der ^{241}Am -Aktivitätskonzentration aus dem globalen Fallout wird erst etwa im Jahre 2037 erreicht werden [Nies *et al.*, 2008].

10.5 Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in der Nordsee

Unter Einbeziehung der Emissionsdaten ist es prinzipiell möglich, die dominierende Quelle anthropogener Radionuklide an einem Probeentnahmepunkt zu identifizieren. Hilfreich sind dabei die Verhältnisse der Aktivitätskonzentrationen zweier Radionuklide zueinander. Zusätzlich müssen die jeweiligen absoluten Aktivitätskonzentrationen beachtet werden. Globaler Fallout, der Reaktorunfall von Tschernobyl und die beiden Wiederaufarbeitungsanlagen kommen bei den hier besprochenen Radionukliden als Kontaminationsquellen infrage. Des weiteren sind Besonderheiten zu erwarten, die durch den Eintrag von Radionukliden über Flüsse verursacht werden. Die Identifizierung der maßgeblichen ^{129}I -Quelle an verschiedenen Punkten ist Bestandteil dieses Abschnitts, die Quellen der übrigen Radionuklide werden kurz erwähnt und wurden zum Teil im vorangegangenen Abschnitt erläutert.

Große Gebiete der Nordsee sind nach Vermischungsprozessen durch eine Mischkontamination geprägt. In bezug auf die Wiederaufarbeitungsanlagen ist zur Unterscheidung der Iod-129-Quelle an einem Beprobungspunkt Technetium-99 hilfreich, da es sich im

Wasser, ähnlich wie Iod, weitgehend konservativ verhält. Die Emissionsmuster der beiden Anlagen in Hinblick auf Technetium waren in der jüngeren Vergangenheit hinreichend stark verschieden, daher kann das $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnis zur Bestimmung der ^{129}I -Quelle verwendet werden. Aus Tschernobyl freigesetztes ^{99}Tc braucht in dieser Betrachtung nicht berücksichtigt zu werden (s. Abschnitt 3.3). Auch $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse sind zur Aufdeckung der ^{129}I -Quelle dienlich. Cäsium-137 und die Transurane sind nur in eingeschränktem Maße nutzbar, da sich diese Nuklide nicht konservativ im Meerwasser verhalten. Eine zusätzliche Einschränkung für die Verwendung der Transurane sind deren geringe Konzentrationen im Nordseewasser.

Im Anhang IV sind die Emissionsdaten der untersuchten Radionuklide aufgeführt, ferner sind die Aktivitätsverhältnisse der Freisetzungen bezogen auf ^{129}I dargestellt. Seit 1990 übertrifft Sellafield bei den ^{99}Tc -Emissionen La Hague und seit Mitte der 1990er Jahre liegt Sellafield etwa 2-3 Größenordnungen über den ^{99}Tc -Ableitungen aus La Hague. Seit 1995 sind die $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der Ableitungen aus Sellafield 3-4 Größenordnungen höher als die von La Hague. Im gleichen Zeitraum lagen die $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der Ableitungen aus Sellafield immerhin ein bis zwei Größenordnungen über denen der Ableitungen aus La Hague, die absoluten Emissionen bezogen auf die ^{90}Sr -Aktivität werden ebenfalls seit Mitte der 1990er Jahre von Sellafield dominiert. Im Englischen Kanal und der Umgebung von La Hague treten diese Radionuklide aufgrund der kleineren Emissionsraten der dortigen Wiederaufarbeitungsanlage nur in geringem Maße auf (1-2 Bq/m³ Sr und 0,04-0,55 Bq/m³ ^{99}Tc). Große $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse deuten also unter Beachtung der ^{99}Tc -Aktivitätskonzentration auf eine durch Sellafield verursachte ^{129}I -Kontamination hin.

Die am Einlaß des Kanals gefundenen $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse von 63,5 und 32,0 bei den Stationen 906 bzw. 907 sprechen dafür, daß dort Sellafield die Quelle der ^{129}I -Kontamination ist (s. Abbildung 50). Die Strömungsverhältnisse in der Irischen See sind relativ komplex, neben der Hauptströmungsrichtung von Sellafield ausgehend in nördlicher Richtung finden Verwirbelungen innerhalb der Irischen See statt. Ein signifikanter Teil der Wassermassen und damit auch der Radionuklide fließen in den südlich gelegenen Sankt-Georgs-Kanal. Von dort findet ein weiterer Transport bis zum westlichen Teil des Englischen Kanals statt, wo sich die aus Sellafield stammenden Emissionen nachweisen lassen. Allerdings spielt dieser Transportweg gegenüber dem in nördlicher Richtung eine untergeordnete Rolle. Am Westende des Kanals zeigen sich leicht erhöhte ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen, deren Quelle die flüssigen Ableitungen aus Sellafield sind. Etwas weiter östlich, bei den Stationen 905 und 908, nehmen die $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse auf 3,7 bzw. 0,3 ab. Einerseits gehen die ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen zurück, andererseits verringert sich das Verhältnis auch aufgrund des verstärkten Einflusses aus La Hague; es sind bereits deutliche ^{129}I -Einträge dieser WAA zu erkennen. Im weiteren Verlauf des Englischen Kanals (Stationen 901-905, 908-911, 10-15, 1-3, 23 und 25) bis Station 26 fallen daher auch die $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse sehr klein aus. Die $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse werden durch üppige ^{129}I -Ableitungen aus La Hague bei gleichzeitig niedrigen ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen herabgesetzt. Die Küstenregion der eben genannten Stationen bis Dänemark (Station 26) ist vorrangig durch die Emissionen aus La Hague geprägt. Bereits etwas nördlich des Bereichs bei den Stationen 8, 9 und 16 sind deutlich höhere ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen (1,74, 1,24 und 2,08 Bq/m³) zu finden. Dies spiegelt sich auch bei Betrachtung der $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse wider. Diese liegen bei 58, 103 und 122 (Stationen 8, 9 und 16). Somit ist anzunehmen, daß bei diesen Stationen bereits eine ^{129}I -Kontamination aus Sellafield vorliegt. Dies trifft auch auf den gesamten Bereich

westlich der Stationen 23 und 27 zu. Die dortige ^{129}I -Kontamination stellt eine Mischung des Iod-129 aus La Hague und aus Sellafield dar, andere Quellen wie der globale Fallout spielen für die Kontamination durch Iod-129 nur eine untergeordnete Rolle. Der den Faktor 2,3 tragende Anstieg des $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisses von Station 26 zur Station 27 deutet auf eine westlich gerichtete Ablenkung der aus La Hague stammenden Strömung hin. Im weiteren westlichen Verlauf zeigt sich eine Mischkontamination beider Quellen (La Hague und Sellafield).

Die $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse nehmen von Station 26 zu den Stationen 39 und 40 stark zu. Das bei Station 40 gemessene $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnis liegt deutlich über dem des von La Hague beeinflussten Bereichs und läßt vermuten, daß hier (Station 40) die ^{129}I -Kontamination zum größeren Anteil aus Sellafield stammt. Neben dem größeren $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnis sprechen auch die größeren ^{99}Tc -Aktivitätskonzentrationen dieser Stationen (39: $1,25 \text{ Bq/m}^3$ und 40: $1,14 \text{ Bq/m}^3$), gegenüber Station 26 mit nur $0,82 \text{ mBq/m}^3$, dafür, daß Sellafield die Quelle des Iod-129 bei Station 40 ist. Das $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnis beträgt bei Station 26 nur 2,9 und an der Oberfläche von Station 40 beträgt es 14,9. Das Radionuklidmuster der Station 26 ist noch durch die flüssigen Emissionen aus La Hague geprägt. Das größte $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnis von 210 wurde bei Station 29 in der zentralen Nordsee berechnet. Neben der gespeicherten ^{99}Tc -Kontamination verursacht die dortige kleine ^{129}I -Aktivitätskonzentration das große $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnis.

Strontium-90 und Cäsium-137 können im Bereich des Skagerraks nicht zur Unterscheidung der ^{129}I -Quelle genutzt werden, da hier ^{90}Sr und ^{137}Cs aus der Ostsee stammen. Die Kontamination der Ostsee ist bezüglich ^{90}Sr durch den globalen Fallout und hinsichtlich ^{137}Cs durch den globalen Fallout und Tschernobyl verursacht worden (s. Abschnitt 10.4.1 und 10.7). Beide Quellen verursachen in dem Bereich eine vernachlässigbare ^{129}I -Kontamination. Der Skagerrak besitzt also für die unterschiedlichen Radionuklide verschiedene Quellen. Die Transurane zeigen im Ausflußbereich der Ostsee keine Auffälligkeiten.

Die $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse liegen im westlichen Kanal bei 650 und 600 (Stationen 906 und 907) und nehmen zu den Stationen 905 und 908 auf 100 und 11,8 ab. Die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen sind im westlichen Teil des Englischen Kanals relativ konstant ($1,2\text{--}1,5 \text{ Bq/m}^3$), der Rückgang der $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in dem eben beschriebenen Bereich wird ausschließlich durch den ^{129}I -Eintrag aus La Hague verursacht. Damit ist die WAA La Hague als Quelle der ^{129}I -Kontamination bei den Stationen 905 und 908 identifiziert, während Sellafield die ^{129}I -Kontaminationen im Oberflächenwasser der Stationen 906 und 907 dominiert (s. o.). Die beim ^{99}Tc angesprochenen Verdünnungseffekte sind bei ^{90}Sr nicht zu sehen, da die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen der Stationen 906 und 907 bereits fast globalen Fallout erreicht haben und im Vergleich zu den stromabwärts gelegenen Stationen nicht erhöht sind.

Die ^{137}Cs -Daten festigen die Aussagen über die Herkunft des Iod-129 bei den Stationen 906 und 907, die bei der Diskussion der $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse getroffen wurden. Die Irische See zeigt bezüglich ^{137}Cs eine wesentlich stärkere Kontamination als der Englische Kanal. Seit 1990 liegen die $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der Ableitungen aus Sellafield ein bis zwei Größenordnungen über denen aus La Hague, auch die ^{137}Cs -Emissionen werden von Sellafield überwogen. Bildet man im Englischen Kanal die Aktivitätskonzentrationsverhältnisse von ^{137}Cs zu ^{129}I , so wird aufgrund der ^{129}I -Emissionen aus La

Hague das $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Verhältnis von den Stationen 906 und 907 zu den Stationen 905 und 908 stark verringert. Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen liegen im westlichen Kanal bei $2,0 \text{ Bq/m}^3$ (Stationen 906 und 907), etwas weiter in östlicher Richtung liegen sie bei $1,7$ bzw. $1,9 \text{ Bq/m}^3$ (Stationen 905 und 908). Diese Werte liegen nahe am globalen Fallout, der für ^{137}Cs mit etwas mehr als 1 Bq/m^3 angenommen werden kann (s. Abschnitt 3.2). Auch hier kommen die beim ^{99}Tc angesprochenen Verdünnungseffekte zum Tragen.

Tritium (^3H) kann als ein sich ideal konservativ verhaltendes Nuklid im Meerwasser angesehen werden. Allerdings sind im zeitlichen Verlauf der ^3H -Emissionen die Unterschiede von Sellafield zu La Hague nicht groß genug, um Tritium zur Unterscheidung der ^{129}I -Quelle zu nutzen. In den Jahren 2004-2006 trat eine deutliche Reduktion der Emissionen aus Sellafield ein. Die $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der Emissionen unterscheiden sich nur wenig. Die Verringerung des $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisses im Verlauf des Kanals wird durch die starken ^{129}I -Emissionen aus La Hague verursacht. Tritium wird in relativ großen Mengen aus kerntechnischen Anlagen freigesetzt und auch über die Flüsse in die Nordsee eingetragen. Daher ist es ungeeignet, um es zur Unterscheidung der Herkunft von Iod-129 zu nutzen, obwohl La Hague die Hauptquelle des Tritiums ist.

10.6 Iod-127 und Iod-129 im Ostseewasser

Die hier geführte Diskussion bezieht sich auf die im Abschnitt 8.5 präsentierten Ergebnisse. Die im Juni 2006 gefundenen Ergebnisse der Stationen Arko 2 und Kibu 1 stimmen bezüglich der ^{127}I -Konzentrationen und der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den Befunden dieser Stationen aus dem Jahre 2007 gut überein. Von der Beprobungsfahrt im Juni 2007 stehen neben den Salinitäten auch ^{137}Cs - und für einige Stationen auch ^{90}Sr -Daten zur Verfügung, die vom BSH ermittelt und bereitgestellt wurden.

Ostseeproben unterscheiden sich von klassischen Meerwasserproben aus der Nordsee, der Irischen See oder dem Nordatlantik. Die ^{127}I -Konzentrationen und die Salinitäten sind aufgrund des schleppenden Austauschs mit Nordseewasser deutlich geringer. Die Ostsee ist vom Wassereintrag des umgebenden Festlandes geprägt. Der Salzwassercharakter nimmt mit größer werdendem Abstand zur Nordsee ab, also in östlicher Richtung sowie in Richtung des Finnischen Meerbusens. Demzufolge nehmen auch die Salinitäten in der Ostsee von West nach Ost ab. Es findet ein Übergang von Salzwasser über Brackwasser bis hin zu Süßwasser statt. Als Brackwasser bezeichnet man Meerwasser mit einer Salinität von weniger als 10. Das Beprobungsgebiet liegt im Salz- und Brackwasserbereich. Hohe Salinitäten werden im südwestlichen Bereich der Ostsee angetroffen. In der Ostsee sind in küstennahen Gegenden der Kieler Bucht (Stationen Kfotn 6, Eckfbu, Stolgr und LT Kiel) Salinitäten zwischen 14,1 und 14,9 zu beobachten. In der Lübecker Bucht liegen die Salinitäten nahe der Küste zwischen 10,2 und 11,2, bei uferfernen Stationen sind die Salzgehalte etwas geringer und nehmen im weiteren, östlichen Verlauf auf weniger als 10 ab. Die ^{127}I -Konzentration aller untersuchten Ostseewasserproben beträgt im Mittel $15,76 \pm 3,46 \text{ ng/g}$, die relative Standardabweichung beträgt 22,05 %. Damit streuen die ^{127}I -Gehalte der Ostseeproben wesentlich stärker als die der klassischen Seewasserproben. Wie intuitiv zu erwarten war, nehmen die ^{127}I -Konzentrationen mit zunehmender Entfernung zum Kattegat ab, das zusammen mit dem Skagerrak den Übergangsbereich zwischen Nord und Ostsee darstellt. Große ^{127}I -Konzentrationen sind bei den Stationen Kfotn 6, Eckfbu und Stolgr gemessen worden, diese lagen zwischen $25,2 \text{ ng/g}$ (Kfotn 6) und $21,6 \text{ ng/g}$ (Eckfbu und Stolgr).

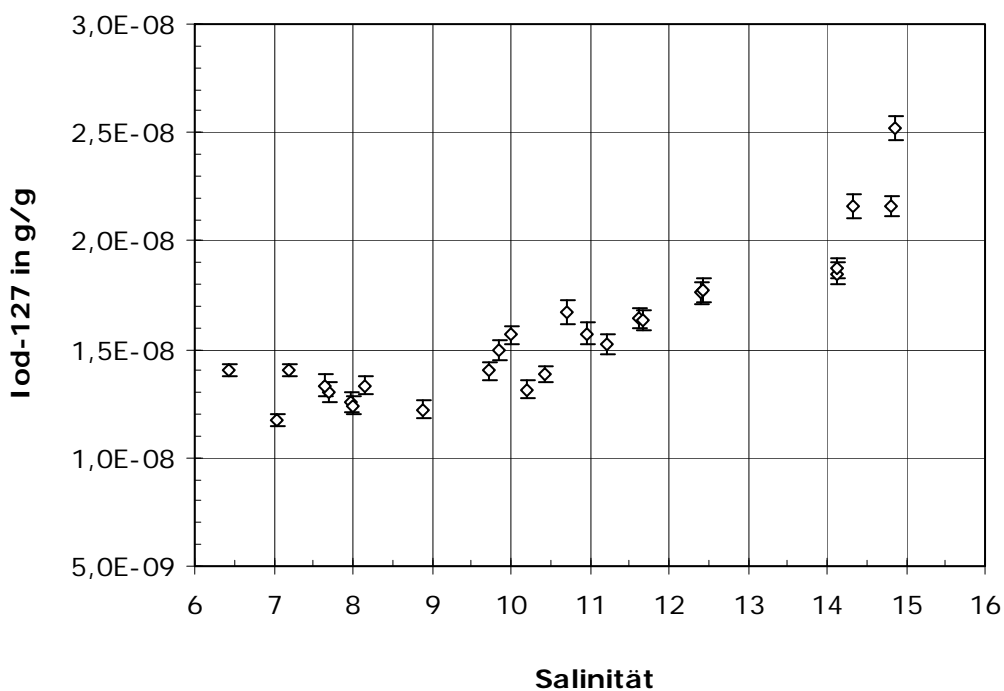


Abbildung 60: Auftragung der Iod-127-Gehalte in g/g gegen die Salinitäten im Oberflächenwasser der Ostsee. Die Probennahme erfolgte im Juni 2007 durch das FS Deneb.

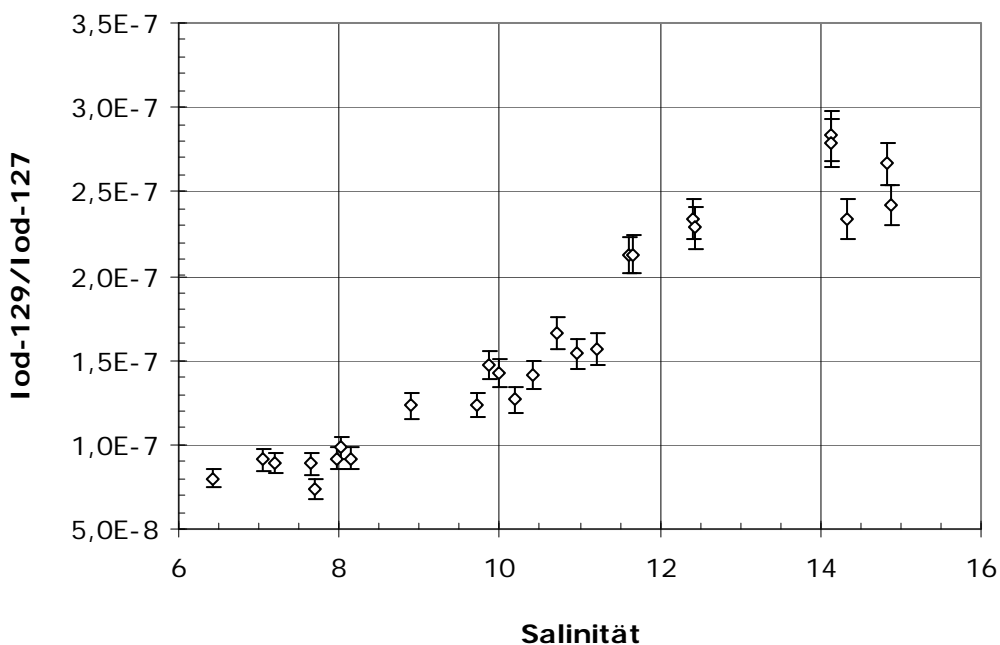


Abbildung 61: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die Salinitäten im Oberflächenwasser der Ostsee. Die Probennahme erfolgte im Juni 2007 durch das FS Deneb.

Die kleinsten ^{127}I -Konzentrationen werden bei den Stationen Arko 2, Rude, Arko 4 und an der Oder festgestellt. Im Gegensatz zu einigen küstennahen Stationen in der Deutschen Bucht scheinen Flußmündungen keine Herabsetzung der ^{127}I -Konzentrationen zu verursachen, ebenso ist beispielsweise im Bereich der Lübecker Bucht und bei der Station Warnem im Vergleich zu den umgebenden Stationen keine geringere Salinität zu beobachten. Das Ausbleiben einer Salinitätsreduzierung bei Süßwassereintrag kann mit den dort vorliegenden deutlich kleineren Salinitäten und ^{127}I -Konzentrationen erklärt werden. Süßwassereintrag macht sich daher weniger bemerkbar. Abbildung 60 zeigt, daß die Gehalte des stabilen Iods mit zunehmender Salinität steigen, allerdings ist mit einem Korrelationskoeffizienten von $R^2 = 0,79$ nur eine mäßige Korrelation zu verzeichnen. In dem Diagramm sind nur die Proben aus dem Jahr 2007 enthalten, da von den Stationen Arko 2 und Kibu 1 aus dem Jahr 2006 die Salinitäten nicht ermittelt wurden. Eine Korrelation der ^{127}I -Konzentrationen mit den Salinitäten wurde bei den Nordseeproben nicht festgestellt.

Bei einem Korrelationskoeffizienten von 0,93 kann von einer guten Korrelation der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den Salinitäten gesprochen werden. Auch die ^{129}I -Konzentrationen korrelieren mit den Salzgehalten ($R^2 = 0,93$, Abbildung 73 im Anhang I). Letzteres konnte aufgrund der Darstellungen in Abbildung 61 und Abbildung 62 erwartet werden. In Abbildung 35 und Abbildung 36 zeigen sich im westlichen Beprobungsgebiet größere Salinitäten und auch größere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Ein von Aldahan et al. bestimmter Korrelationskoeffizient betrug bei der Auftragung der Salinitäten im Ostseewasser gegen die ^{129}I -Gehalte in guter Übereinstimmung zu dieser Arbeit 0,9 [Aldahan et al., 2007c]. Die Stationen Warnem, Darss 2 und Arko 1 verfügen über ^{129}I -Konzentrationen von $55 \cdot 10^8$ bis $71 \cdot 10^8$ Atomen pro Liter. Aldahan et al. fanden für diesen Bereich gut übereinstimmende ^{129}I -Konzentrationen von $23 \cdot 10^8$ bis $73 \cdot 10^8$ Atomen pro Liter [Aldahan et al., 2007c]. Weitere Arbeiten von Hou et al. [Hou et al., 2001] und Alfimov et al. [Alfimov et al., 2004a], die sich mit Iod-129 in der Ostsee beschäftigen, sind nur eingeschränkt vergleichbar, da deren Probennahmegebiete außerhalb des in dieser Arbeit untersuchten Bereichs liegen.

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zeigen in Abhängigkeit von den ^{129}I -Konzentrationen im Ostseewasser die schon bei der Diskussion der Nordseewasserproben vorgestellte Systematik. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse folgen den ^{129}I -Konzentrationen, s. Abbildung 62. In Abbildung 62 und Abbildung 63 sind lineare Achseneinteilungen gewählt, da sich die Isotopenverhältnisse sowie die ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen im Bereich einer Größenordnung bewegen. Die bei der Diskussion der Nordseeproben getätigte Aussage, daß die Variation der Isotopenverhältnisse ausschließlich durch die Beimengungen von anthropogenem Iod-129 verursacht wird, hat weiterhin Bestand und wird durch die in Abbildung 62 dargestellten Befunde untermauert. In Abbildung 63 ist die große Streuung der Iod-127-Gehalte zu erkennen. Diese reichen von knapp 10 ng/g bis etwa 25 n/g. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen zwischen $7,37 \cdot 10^{-8}$ und $2,83 \cdot 10^{-7}$. Die Isotopenverhältnisse streuen nur um den Faktor 4 und damit deutlich weniger als die Proben aus der Nordsee, die sich über drei Zehnerpotenzen und unter Einbeziehung der Nordatlantikproben über vier Zehnerpotenzen erstrecken. In Abbildung 63 ist zu sehen, daß sich mit steigendem Iod-127-Gehalt auch das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis erhöht. Dieses Verhalten wurde bei den übrigen Seewasserproben nicht beobachtet. Eine Erklärung dafür ist das iodreiche und höher kontaminierte Wasser aus Nordsee. In dem stärker durch die Nordsee geprägten Bereich sind die ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen größer als in den Proben, die in größerem Abstand zur Nordsee genommen wurden. Die Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die Salinitäten in Abbildung 61 fügt sich in die Systematik ein.

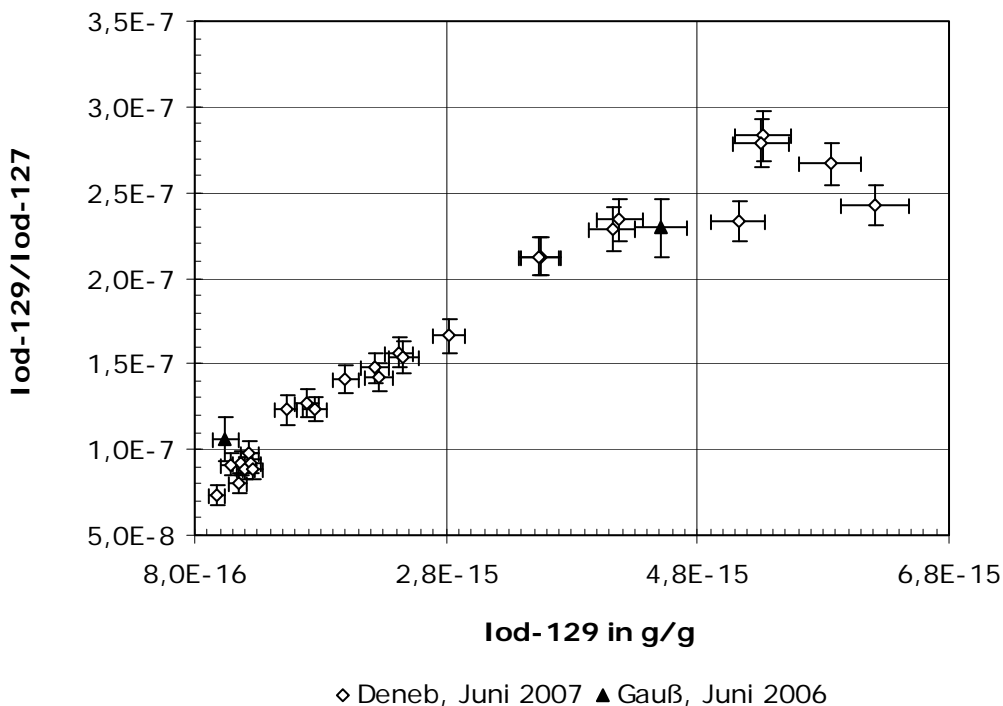


Abbildung 62: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen in g/g im Oberflächenwasser der Ostsee von Juni 2006 (ausgefüllte Dreiecke) und Juni 2007 (Quadrate).

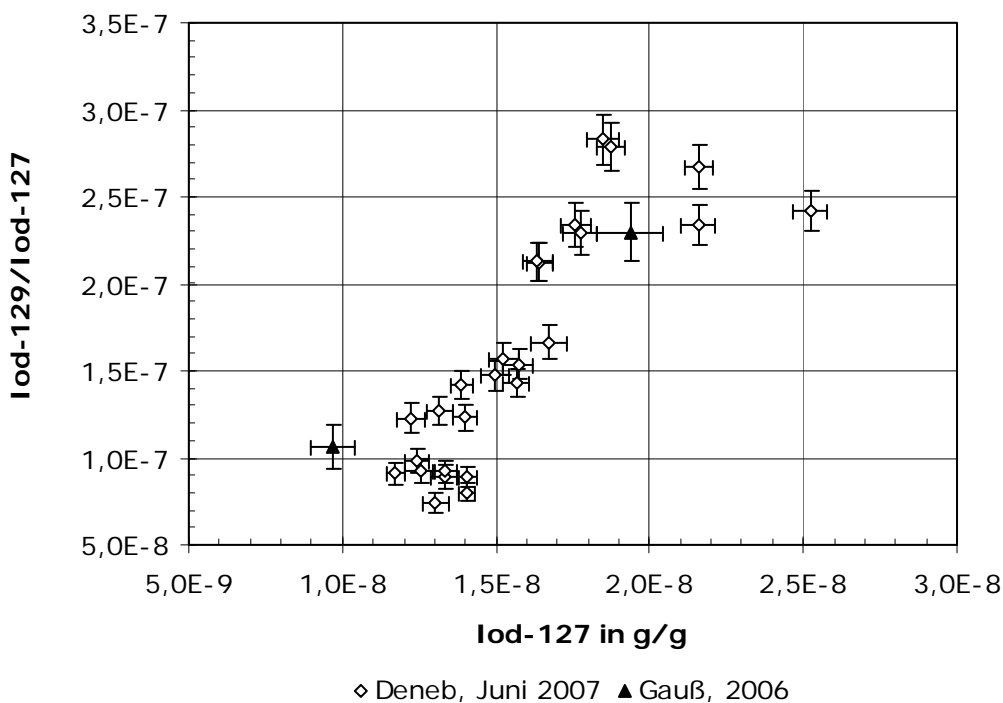


Abbildung 63: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen in g/g im Oberflächenwasser der Ostsee von Juni 2006 (ausgefüllte Dreiecke) und Juni 2007 (Quadrate).

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Ostsee liegen vier bis fünf Größenordnungen über dem natürlichen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa $1,5 \cdot 10^{-12}$, das für die marine Hydrosphäre angenommen werden kann (s. Abschnitt 1.2.1). Dieser Anstieg ist nicht nur auf den direkten Wasseraustausch mit der Nordsee zurückzuführen, auch über die Atmosphäre und den Niederschlag wird Iod in die Nordsee eingetragen. Trotz des nur schleppend verlaufenden Wasseraustauschs von Nord- und Ostsee sowie der Tatsache, daß keine größeren Mengen Iod-129 direkt in die Ostsee eingeleitet werden, ist eine gravierende Verschiebung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse festzustellen. Die luftgetragenen Emissionen der WAA üben eine vernachlässigbare Wirkung aus. Hauptquelle des Iod-129 in der Ostsee sind die WAA in La Hague und Sellafield, der globale Fallout spielt eine deutlich geringere Rolle und der Tschernobyl-Unfall kann vernachlässigt werden.

10.7 Cäsium-137 und Strontium-90 in der Ostsee

Dem ZSR liegen für alle Stationen der Ostseereise von 2007 die ^{137}Cs -Ergebnisse vor, die vom BSH ermittelt und bereitgestellt wurden (s. Tabelle 48 und Abbildung 72 im Anhang I). Neben dem Oberflächenwasser wurden auch Proben einige Meter über dem Meeresboden entnommen und auf ^{137}Cs untersucht (Tabelle 49, Anhang I). Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen liegen mit Ausnahme der Stationen in der Nähe des Skagerraks um den Faktor 10 über den Aktivitätskonzentrationen, die in der Nordsee im August 2005 angetroffen wurden. Die starke Kontamination ist dem Reaktorunfall von Tschernobyl und dem globalen Fallout zuzuschreiben, die Emissionen der WAA in La Hague und Sellafield spielen nur eine untergeordnete Rolle. Besonders stark ist der Bereich des Arkonabeckens und die Station Darss 2 kontaminiert. Die Kieler Bucht und die küstennahen Stationen Kfotn 6 und Eckfbu zeigen kleinere ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen. Innerhalb der Wassersäule ist eine gleichmäßige Verteilung des ^{137}Cs zu beobachten. Das ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationsverhältnis von Oberflächenwasser zu Tiefenwasser beträgt gemittelt 1,1. Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen reichen in der Ostsee von 27,2 bis 42,0 Bq/m³ und zeigen damit eine wesentlich größere Variation als die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration. ^{90}Sr weist wie auch ^{137}Cs die größte Kontamination bei den Stationen Arko 1 und Arko 2 auf, so daß an diesen beiden Stationen ein stärkerer Beitrag aus Tschernobyl vermutet werden kann. Im Bereich der Schleimündung, bei den Stationen Stollergrund (Stolgr) und Leuchtturm Kiel (LT Kiel) werden geringfügig kleinere ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen gemessen. Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen lagen im Vergleich zu den Stationen Arko 1 und Arko 2 in dem eben genannten Bereich um ein Viertel niedriger. Die relativ gleichmäßige Kontamination der Ostsee in bezug auf ^{90}Sr bestätigt, daß ^{90}Sr überwiegend aus dem globalen Fallout stammt (s. Abschnitt 10.4.1). Über die in die Ostsee mündenden Flüsse wird ^{90}Sr aus dem Fallout und je nach Region auch im höheren Maße ^{90}Sr aus Tschernobyl eingetragen. Die Transportprozesse des ^{90}Sr vom Festland ins Meer sind bisher nicht Gegenstand wissenschaftlicher Arbeiten gewesen. Während einer Exkursion in die Ukraine im Jahre 2007 wurde festgestellt, daß ^{90}Sr auf Asphalt in Pripjat besonders gut haftet. Offensichtlich wurde durch Regenwasser nur wenig ^{90}Sr vom Asphalt gelöst. Gleichzeitig ist aber auch bekannt, daß Strontium in großen Mengen im Meerwasser gelöst ist (s. Abschnitt 5.1.1). Hier fehlen Kenntnisse über die Radioökologie, Transportprozesse und das Verhalten des Strontiums in der Umwelt. ^{90}Sr aus Tschernobyl ist nur im Bereich der östlichen Ostsee in signifikanten Mengen zu erwarten. Im Gegensatz zu ^{90}Sr bindet sich ^{137}Cs stärker an Tonminerale, daher sollte der Eintrag des ^{137}Cs über die Flüsse nach dem Reaktorunfall weniger effizient verlaufen.

Die gemessenen ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen laufen dem Verhalten der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und dem der ^{129}I -Konzentrationen entgegen. Der nicht effizient verlaufende Austausch der Nordsee mit der Ostsee zeigt sich beim ^{137}Cs in Form von nur leicht abnehmenden Aktivitätskonzentrationen in Richtung der westlichen Ostsee. Das stark durch die Wiederaufarbeitungsanlagen geprägte, mit Iod-129 kontaminierte Nordseewasser geht in einen von Tschernobyl und dem globalen Fallout geprägten Bereich über, der weniger mit ^{129}I kontaminiert ist.

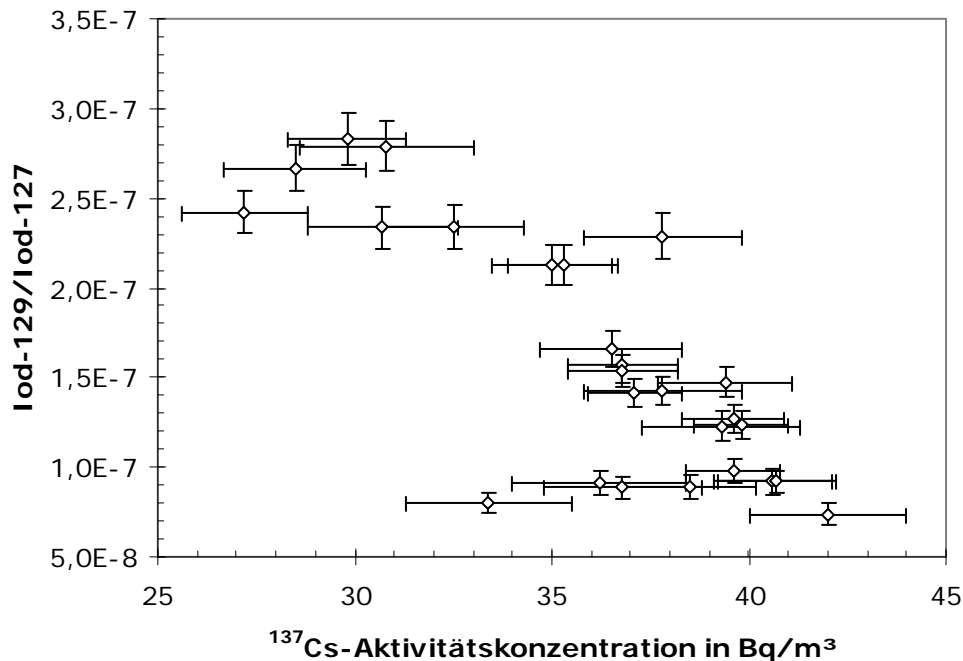


Abbildung 64: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen in Bq/m^3 im Oberflächenwasser der Ostsee (Juni 2007).

Es besteht zwischen dem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen und den ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen zwar keine Korrelation ($R^2 = 0,63$, s. Abbildung 64), dennoch zeigt sich deutlich, daß die ^{129}I -Kontamination durch eine ^{137}Cs -Kontamination abgelöst wird. Die Auftragung der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen gegen die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen (Abbildung 74, im Anhang I) zeigt dieselbe Systematik. Dieses Verhalten wird beim ^{90}Sr nicht beobachtet. Die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentrationen sind in der Ostsee nahezu konstant, da das ^{90}Sr aus dem globalen Fallout stammt.

10.8 Iod-127 und Iod-129 fernab der Emittenten

Tabelle 35 zeigt die Ergebnisse von Wasserproben fernab der westeuropäischen WAA. Zwei klassische Seewasserproben, eine Oberflächen- und eine Flußwasserprobe wurden analysiert. Es sind die einzigen in dieser Arbeit untersuchten Wässer, deren $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Größenordnung von 10^{-10} liegen. Die Proben liegen nur geringfügig über dem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis, das aufgrund des globalen Fallouts erwartet wird (s. Abschnitt 1.3). Allerdings sind die sehr großen Unsicherheiten zu beachten. Aufgrund der Iodgehalte

von nur etwa 3 ng/g im Oberflächenwasser von Hawaii und den damit verbundenen kleinen ^{129}I -Konzentrationen sind Unsicherheiten in den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von 77 bis 90 % zu verzeichnen. Die Blindwertkorrektur dieser Proben macht sich stark bemerkbar, wodurch die großen Unsicherheiten verursacht werden. Um genug Material für die AMS-Messung zu erhalten, muß Woodwardiod als Träger zugesetzt werden. Die kleinen ^{129}I -Konzentrationen in der Probe verursachen nur einen geringen Unterschied zu den begleitend aufgenommen Blindwerten, so daß nach deren Abzug die großen Unsicherheiten entstehen. Die schlechte Reproduzierbarkeit dieser Ergebnisse ist mit dem variierenden Blindwerden zu erklären. Die relativen Unsicherheiten der übrigen Proben in Tabelle 35 liegen zwischen 10 und 27 %. Das Meerwasser von Maui (Hawaii) besitzt kleinere relative Unsicherheiten als das Oberflächenwasser von Maui, was mit den größeren ^{127}I -Konzentrationen und ^{129}I -Konzentrationen erklärt werden kann. Obwohl ein kleineres $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis gemessen wurde, ist eine geringere relative Unsicherheit zu verzeichnen. Die relativen Unsicherheiten der Isotopenverhältnisse im Flußwassers aus dem Nil betragen in bei beiden Aufarbeitungen 24%. Bei dieser Probe ist eine gute Reproduzierbarkeit gegeben, beide Aufarbeitungen liefern im Rahmen der Unsicherheiten übereinstimmende Befunde.

10.9 Abschließende und zusammenfassende Diskussion der Iodisotope in Wasserproben

Die Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen in Wasserproben (Abbildung 65) zeigt fünf ausführlicher zu diskutierende Punktwolken. Diese Punktwolken werden gebildet durch klassische Meerwasserproben aus Westeuropa (ohne Ostseeproben), Ostseewasser, Meerwasser fernab der Emittenten, Oberflächenwasser fernab der Emittenten und Flußwasser fernab der Emittenten.

Die ^{127}I -Konzentrationen in klassischen Meerwasserproben variieren nur wenig. Unter klassischem Meerwasser sind alle Meerwasserproben mit Ausnahme der Ostseeproben und Proben von den Stationen Stade und Medem zu verstehen. Die in dieser Arbeit analysierten Meerwasserproben zeigen ^{127}I -Konzentrationen von etwa 32 bis 65 ng/g. Süßwassereintrag vom Festland und salzarmes Wasser aus der Ostsee reduzieren die ^{127}I -Konzentrationen. Die ^{127}I -Konzentration aller untersuchten klassischen Meerwasserproben beträgt im Mittel $41,1 \pm 5,8$ ng/g, die relative Standardabweichung liegt bei nur 14,1 %. Die angesprochene Punktwolke westeuropäischer Seewasserproben erstreckt sich bezüglich der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von etwa $3,5 \cdot 10^{-9}$ bis $3,2 \cdot 10^{-6}$ über vier Zehnerpotenzen. Selbst in den wenig kontaminierten Gebieten in westeuropäischen Meeren (Nordatlantik und westlicher Englischer Kanal) liegen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse drei Größenordnungen und mehr über dem pränuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis.

Die Ostseeproben sind in Abbildung 65 als Dreiecke dargestellt und bilden eine Punktwolke mit deutlich geringeren ^{127}I -Konzentrationen (von 10-25 ng/g) bei gleichzeitig relativ großen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen. Diese erstrecken sich von $7,4 \cdot 10^{-8}$ bis etwa $2,8 \cdot 10^{-7}$. Innerhalb dieser Punktwolke befindet sich der Datenpunkt der Station Stade von der Augustreise 2005 (blaue Raute). Der Datenpunkt von Stade (erste Reise) erscheint als graue Raute leicht versetzt zu dieser Punktwolke. Im Mai 2005 wurde ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $4,9 \cdot 10^{-8}$ gemessen.

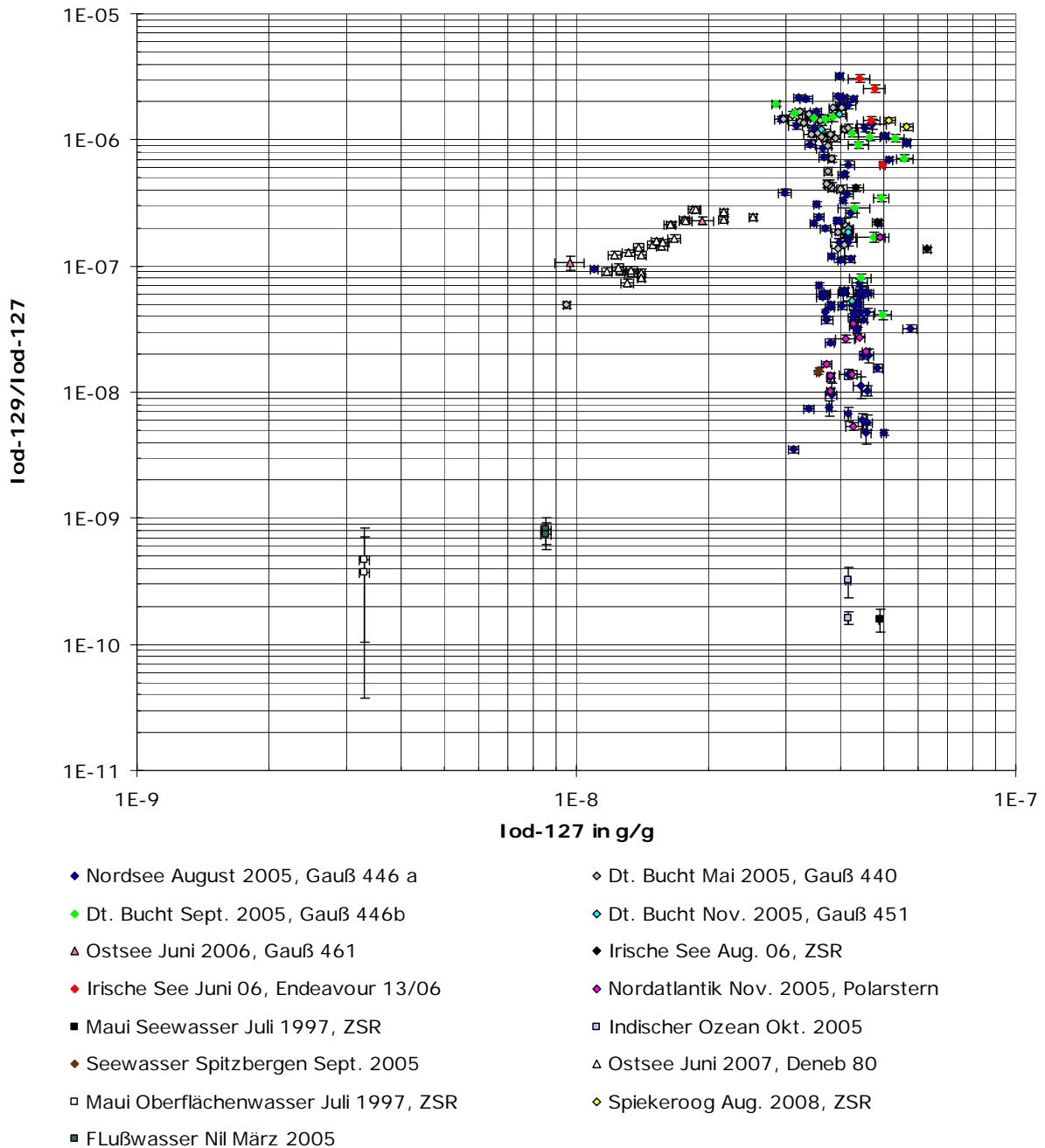
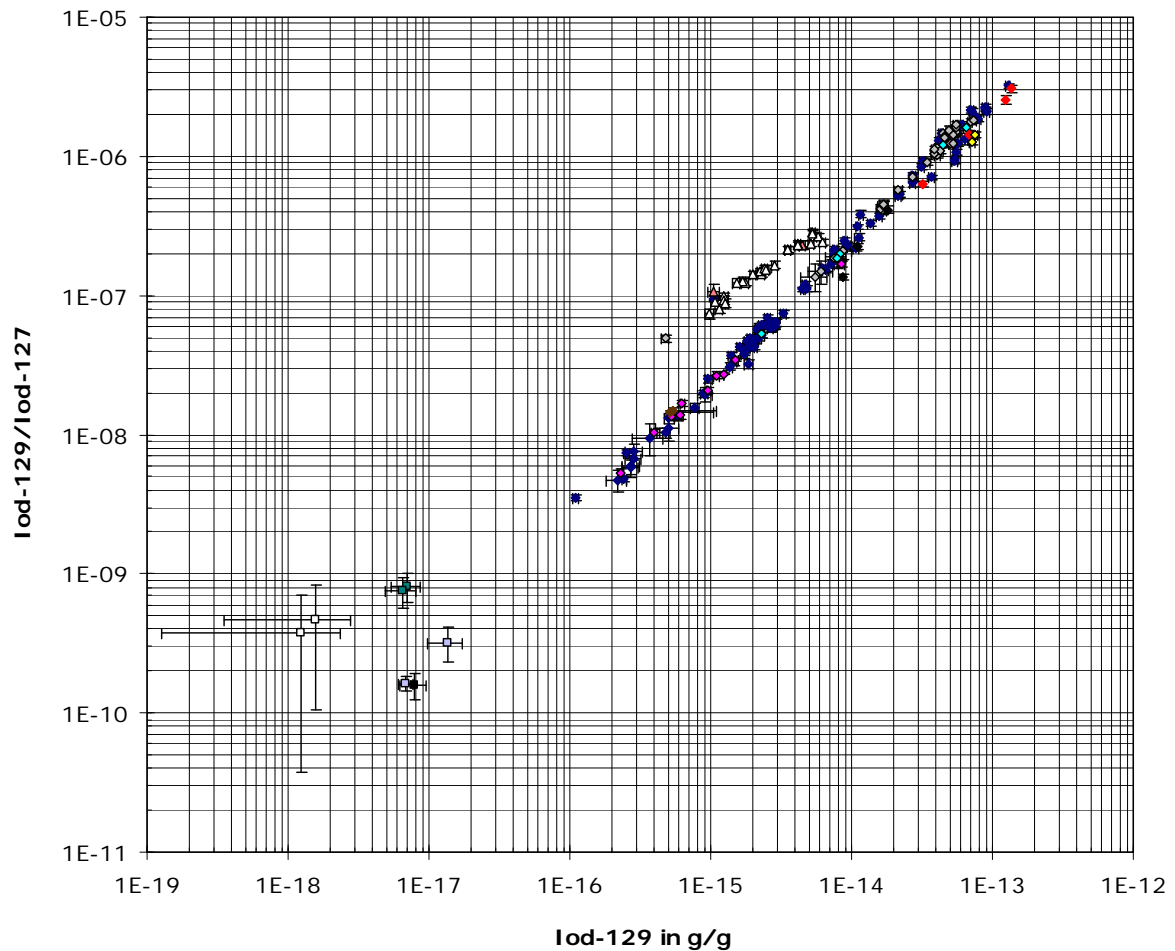


Abbildung 65: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen in Wasserproben. Rauten stehen für Meerwasser in Westeuropa, Dreiecke für Ostseewasser und Quadrate symbolisieren Wasserproben fernab der Emittenten. Das Oberflächenwasser aus dem Nil, von Maui (Hawaii) und das Wasser aus dem Indischen Ozean wurden zweimal aufgearbeitet.

Die dritte Punktwolke setzt sich aus zwei Wasserproben fernab der Emittenten zusammen, die aus dem Indischen Ozean und bei Maui genommen wurden. Bei der Wasserprobe aus dem Indischen Ozean erfolgte eine Doppelbestimmung. Die ^{127}I -Konzentrationen liegen erwartungsgemäß bei 42-49 ng/g und weisen damit den für Meerwasser üblichen Gehalt des stabilen Iods auf. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse dieser exotischen Proben liegen zwischen

$1,6 \cdot 10^{-10}$ und $3,2 \cdot 10^{-10}$. Diese Wasserproben unterliegen nicht dem direkten Einfluß west-europäischer WAA und ihre Isotopenverhältnisse liegen in der Größenordnung des globalen Fallouts.



- ◆ Nordsee August 2005, Gauß 446 a
- ◆ Dt. Bucht Mai 2005, Gauß 440
- ◆ Dt. Bucht Sept. 2005, Gauß 446b
- ◆ Dt. Bucht Nov. 2005, Gauß 451
- ▲ Ostsee Juni 2006, Gauß 461
- ◆ Irische See Aug. 06, ZSR
- ◆ Irische See Juni 06, Endeavour 13/06
- ◆ Nordatlantik Nov. 2005, Polarstern
- Maui Seewasser Juli 1997, ZSR
- Indischer Ozean Okt. 2005
- ◆ Seewasser Spitzbergen Sept. 2005
- ▲ Ostsee Juni 2007, Deneb 80
- Maui Oberflächenwasser Juli 1997, ZSR
- ◆ Spiekeroog Aug. 2008, ZSR
- Flußwasser Nil März 2005

Abbildung 66: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen (in g/g) in Wasserproben. Rauten stehen für Meerwasser in Westeuropa, Dreiecke für Ostseewasser und Quadrate symbolisieren Wasserproben fernab der Emittenten. Das Oberflächenwasser von Maui (Hawaii), die Nilprobe und das Wasser aus dem Indischen Ozean wurden zweimal aufgearbeitet.

Ebenfalls in nur sehr geringem Maße kontaminiert ist das zweifach analysierte Oberflächenwasser von Maui. Die ^{127}I -Konzentration beträgt für Oberflächenwasser durchaus übliche 3,3 ng/g bei einem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von etwa $4 \cdot 10^{-10}$. Auffallend sind die um den Faktor zwei größeren $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse des Oberflächenwassers von Maui verglichen mit dem Seewasser von Maui. Einschränkend müssen die großen Unsicherheiten der Oberflächenwasserproben berücksichtigt werden. Eine mögliche Erklärung sind stärkere atmosphärische Prägungen des Oberflächenwassers. Aerosolproben würden Aufschluß über atmosphärische Einträge liefern. In Abbildung 65 befinden sich zwischen dem Oberflächen- und den Meerwasserproben von Maui (Hawaii) die Punkte der Flußwasseranalysen aus dem Nil. Die ^{127}I -Konzentration ist im Nilwasser mit der bei Stade in der Elbe von der ersten Reise nahezu identisch. 8,5 ng/g stabiles Iod wurden im Nilwasser gemessen, die ^{127}I -Konzentrationen im Elbwasser lagen bei 9,5 ng/g (erste Reise) bzw. bei 11,0 ng/g (Nordseereise). Das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis ist mit $8,1 \cdot 10^{-10}$ merklich größer als bei den anderen Proben, die in großer Entfernung zu den WAA genommen wurden.

Die Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen (Abbildung 66) zeigt, daß die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse ausschließlich durch die Beimengungen von anthropogenem ^{129}I bestimmt werden. Die größten gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen sechs Zehnerpotenzen über dem natürlichen Gleichgewichts-isotopenverhältnis. Iod erweist sich im Meerwasser als ein extrem konservativer Tracer, allerdings gibt es gegenwärtig keine Informationen darüber, wie viel Iod aus dem Meerwasser in die Luft und in die Sedimente übergeht.

Die klassischen Meerwasserproben liegen auf einer Geraden, die bei $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von etwas mehr als 10^{-10} beginnt. Die am geringsten kontaminierten Proben sind die angesprochen Exoten mit ^{129}I -Konzentrationen von $7-8 \cdot 10^{-18}$ g/g (Indischer Ozean und Meerwasser von Maui). Das Ende der Geraden bilden stark kontaminierte Proben aus der direkten Umgebung der WAA von La Hague und Sellafield. Die ^{129}I -Konzentrationen betragen bis zu $1,36 \cdot 10^{-13}$ g/g. Einige Datenpunkte liegen nicht auf dieser Geraden. Dabei handelt es sich um die schon oben besprochenen Sonderfälle: Oberflächen- und Flußwasser fernab der Emittenten, Ostseewasser und süßwassergeprägte Proben (Stade und Medem). Die in Abbildung 66 als Dreiecke dargestellten Ostseeproben liegen ebenfalls auf einer Geraden, die in die andere, aus klassischen Meerwasserproben bestehende Gerade überzugehen scheint. Vermutlich würden hier Proben aus dem Kattegat und dem Skagerrak zu einem Lückenschluß führen.

10.10 Iod-127 und Iod-129 in Sedimenten

Neben einem aktuellen Tiefenprofil aus der Deutschen Bucht standen prä nukleare Sedimente aus Nord- und Ostsee zur Verfügung, die in Archiven des BSH lagerten. Die Ergebnisse der prä nuklearen Proben sind in Tabelle 36 zusammengestellt. Die Graphiken zum aktuellen Sediment befinden sich in Abschnitt 8.9.2 und die dazugehörigen Meßwerte in Tabelle 52 im Anhang I. Alle diskutierten Werte beziehen sich auf die Trockenmasse.

10.10.1 Prä nukleare Sedimente

Die prä nuklearen Sedimente wurden nicht tiefenaufgelöst untersucht, da anzunehmen ist, daß sich das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis nicht mit der Tiefe ändert. Die Bestimmung des prä-

nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses hat an dieser Stelle eine größere Priorität als eine tiefenaufgelöste ^{127}I -Analyse, so daß der in Abschnitt 7.2.3 beschriebene Weg der Aufarbeitung gewählt wurde. Die Ergebnisse zeigen, daß lediglich bei einem Ostseesediment (Nr. 3) ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis gemessen wurde, das nahe dem von Fehn et al. bestimmten, prä nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in Sedimenten von 10^{-12} liegt [Fehn et al., 1986]. Dieses Sediment besitzt gleichzeitig die mit knapp $200\ \mu\text{g/g}$ größte ^{127}I -Konzentration, das entspricht einer Anreicherung von etwa Faktor 12 bis 80 gegenüber den übrigen Ostseesedimenten. Diese hohe ^{127}I -Konzentration macht das Sediment weniger empfindlich gegen Kontaminationen, da sich beim Eintrag der gleichen ^{129}I -Menge auf eine iodreiche prä nukleare Probe das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis weniger ändert. Die Ursache für diese große ^{127}I -Konzentration ist nicht bekannt. Die Sedimente 1, 4 und 5 wurden in räumlicher Nähe zu Sediment Nr. 3 genommen und zeigen deutliche kleinere ^{127}I -Konzentrationen.

Sediment Nr. 4 aus der Ostsee liegt bereits um den Faktor drei über dem prä nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis. Auffällig ist die große Streuung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Ostseesedimente um mehr als den Faktor 100. Aufgrund der langen Lagerungszeit von über 70 Jahren ist eine zwischenzeitliche Kontamination durch anthropogenes Iod-129 wahrscheinlich. Experimentell bestimmte $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von prä nuklearen Proben können deshalb nur die Obergrenze der tatsächlichen Verhältnisse liefern, die in der Umwelt vor Beginn anthropogener ^{129}I -Freisetzungen vorlagen. Die Unsicherheiten der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen zwischen 4 und 20 %, wobei das Ostseesediment Nr. 3 die größte relative Unsicherheit aufweist, was auf das extrem kleine $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zurückzuführen ist.

Alle prä nuklearen Nordseesedimente liegen um den Faktor 18-40 über dem in der Literatur angegebenen prä nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von 10^{-12} [Fehn et al., 1986]. Bei diesen Proben ist allerdings eine deutlich geringere Streuung als bei den Ostseesedimenten zu sehen, dies betrifft sowohl die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als auch die ^{127}I -Konzentrationen. Die ^{127}I -Konzentrationen der prä nuklearen Nordseesedimente liegen zwischen 13 und $15\ \mu\text{g/g}$. Die ^{127}I -Konzentrationen im aktuellen Sediment liegen über alle Tiefen gemittelt bei $36,6\ \text{ng/g}$ mit einer relativen Standardabweichung von 42,2 % (s. Abschnitt 8.9.2 und 10.10.2) und damit deutlich über denen der prä nuklearen Proben. Diese Beobachtung könnte mit dem Verlust von Iod über den langen Lagerungszeitraum erklärt werden, da Iod eine Vielzahl flüchtiger Verbindungen eingeht.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß eine Kontamination der prä nuklearen Sedimente in den 70 Jahren seit der Probennahme wahrscheinlich ist. Der Einfluß einer späteren ^{129}I -Kontamination wird bei einem gleichzeitigen Verlust von stabilem Iod verstärkt. Die Ergebnisse der ^{127}I -Analysen sind nur eingeschränkt vergleichbar, da sich die Konzentrationen des stabilen Iods in Abhängigkeit von der Tiefe ändern und bei den prä nuklearen Sedimenten die Bestimmung des ^{127}I nicht tiefenaufgelöst vorgenommen wurde.

10.10.2 Aktuelles Profil aus der Deutschen Bucht

Die Analyse des aktuellen Sediments zeigt Befunde, die bisher noch nicht vollständig verstanden werden. Die ^{127}I -Gehalte im Profil streuen innerhalb einer Größenordnung und zeigen dabei keinen einheitlichen Trend in Abhängigkeit von der Tiefe. Die kleinsten ^{127}I -Konzentrationen werden in 7,5 und 13,5 cm Tiefe gemessen. Dort sind etwa $15\ \mu\text{g/g}$ stabiles Iod ent-

halten. Die größten ^{127}I -Konzentrationen werden bei 10,5 cm (79 $\mu\text{g/g}$) und bei 40,5 cm (64 $\mu\text{g/g}$) beobachtet. Der Mittelwert der ^{127}I -Konzentrationen liegt bei 36 $\mu\text{g/g}$ mit einer relativen Standardabweichung von 42 %. Damit beträgt die Anreicherung des stabilen Iods im Sediment gegenüber der Wassersäule etwa den Faktor 1000. Dies war nach bisherigem Kenntnisstand zu erwarten und wurde in vorangegangenen Arbeiten beobachtet (s. Abschnitt 5.4). Auffallend ist die große ^{127}I -Konzentration der Sedimentschicht von 10,5 cm, die bisher nicht abschließend erklärt werden konnte.

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zeigen mit Ausnahme des Wertes bei 10,5 cm die gleiche Systematik wie die ^{129}I -Gehalte. Auffallend ist die starke Kontamination der obersten Sedimentschicht mit einem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $6,7 \cdot 10^{-7}$, einen Zentimeter darunter beträgt es nur noch etwa die Hälfte. Die Oberflächenwasserprobe der Station KS 11 besitzt ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $1,5 \cdot 10^{-6}$. Alle Sedimentproben sind deutlich geringer kontaminiert als die darüber liegende Wassersäule. Die relativ große Kontamination der obersten Schicht könnte darauf zurückzuführen sein, daß mehr ^{129}I -reiches Meerwasser in diese Schicht eindringt und ein effektiverer Flüssigkeitsaustausch stattfindet. Bei der im Rahmen der Aufarbeitung durchgeführten Gefriertrocknung trägt das kontaminierte Wasser zur Erhöhung des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses bei.

Unter der obersten Schicht (bei 1,5 cm) erfolgt eine Absenkung des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses durch eine Verdünnung mit stabilem Iod. Der Austausch mit der darüber liegenden Wassersäule ist weniger intensiv. Durch den langen Eintrag stabilen Iods in den vorangegangenen Jahrhunderten ist stabiles Iod im Sediment stark angereichert. Das anthropogene ^{129}I wurde jedoch erst in den letzten Jahrzehnten freigesetzt. Der große Überschuß des Iod-127 im Vergleich zu der darüberliegenden Wassersäule führt zu einer Verdünnung des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses. Nicht erklärbar ist der Anstieg des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses in tieferen Schichten. Ein lokales Maximum der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse befindet sich in 7,5 cm Tiefe, das Isotopenverhältnis beträgt dort $5,5 \cdot 10^{-7}$. Von 7,5 bis 19,5 cm nehmen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse auf $4,9 \cdot 10^{-8}$ ab, darunter ist kein einheitlicher Trend mehr erkennbar. Von 19,5 bis 46,5 cm Tiefe liegen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in einem Bereich von $3 \cdot 10^{-8}$ bis $6 \cdot 10^{-8}$. Diese Ergebnisse decken sich nicht mit der Emissionsgeschichte des Iod-129 aus La Hague. Nicht erwartet wurde die gleichbleibend starke Kontamination in den tiefer liegenden Sedimentschichten, alle Proben weisen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse auf, die vier und mehr Größenordnungen über dem prä nuklearen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis liegen. Der Einfluß einer Kontamination während der Probenahme kann als gering bezeichnet werden. Selbst wenn stärker kontaminiertes Wasser in die unteren Schichten verschleppt worden sein sollte, so ist dessen Einfluß gering, da eine große Menge des Sediments entnommen wurde und der Gehalt des stabilen Iods im Sediment deutlich größer ist als im Wasser. Das Zerschneiden des Sediments beginnend bei der tiefsten Schicht verhindert eine Verschleppung der Kontamination. Kleine Blindwerte zeigen weiterhin, daß es sich bei den gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen um reale Probenbeiträge handelt.

Scheinbar besitzt das Iod nach der Sedimentation eine große Beweglichkeit innerhalb des Sediments. Wie in Abschnitt 4.4 beschrieben, kann in Meeresorganismen eingebautes Iod nach Sedimentation durch anaerobe Zersetzung wieder mobilisiert werden. Es ist denkbar, daß das Iod-129 nach dessen Freisetzung schnell in tiefere Schichten vordringt. Die chemischen Eigenschaften und die Bewegungsprozesse des Iods in Böden werden in der Literatur widersprüchlich diskutiert (s. Kapitel 4.3), das Migrationsverhalten in Sedimenten wird in keiner verlässlichen Arbeit beschrieben.

Neben der bekannten Biophilie besitzt Iod zahlreiche chemische Reaktionsmöglichkeiten, auch spielen bei der Wanderung des Iods in Böden oder Sedimenten Sorptionsprozesse eine entscheidende Rolle. Die Anlagerung des Iods an Partikel wird durch dessen chemische Spezies bestimmt. Um Sorptionsprozesse und Migration zu beurteilen, wären genaue Kenntnisse über die Sedimentationsrate hilfreich. Für diesen untersuchten Bereich der Deutschen Bucht gibt es keine wissenschaftlichen Arbeiten, die Sedimentationsraten beziffern. Ordnet man dem lokalen Maximum des $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses bei 7,5 cm Tiefe die Jahre der stärksten flüssigen Emissionen (1998 und 1999) aus La Hague zu, so ergibt sich eine Sedimentationsrate von etwa 1,25 bis 1,5 cm pro Jahr. In dieser Berechnung wurde eine Transportzeit von La Hague bis zur Station KS 11 von einem Jahr berücksichtigt.

Eine bessere Auflösung der Emissionsdaten im zeitlichen Verlauf bei gleichzeitig dünneren Sedimentschichten könnte genauere Ergebnisse liefern. Bereits 1966 begann die WAA in La Hague Iod-129 in flüssiger Form abzuleiten, hinzu kommt ein geringer Beitrag aus vorangegangenen Jahren durch oberirdische Kernwaffentests und luftgetragenen Emissionen aus den WAA. Die luftgetragenen Emissionen dürften aber in diesem Zusammenhang vernachlässigbar sein. Die frühen Emissionen der WAA und der globale Fallout erklären nicht die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von mehr als 10^{-8} ab einer Tiefe von 19,5 cm. Durch den globalen Fallout geprägte Wasserproben lassen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Größenordnung von 10^{-10} erwarten (s. Abschnitt 8.8), zusätzlich liegen die ^{127}I -Gehalte in Sedimenten um etwa den Faktor 1000 über denen im Meerwasser, so daß die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse eine Verdünnung erfahren. Bei Betrachtung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Tiefenprofil ist das Reaktorunglück aus Tschernobyl nicht zu sehen, die geringe Freisetzung von Iod-129 wird durch die starken Emissionen aus La Hague überlagert.

Aldahan et al. fanden nach Untersuchung zweier Ostseesedimente eine Sedimentationsrate von etwa 1 cm/Jahr [Aldahan et al., 2007b]. In 10-12 cm Tiefe wurde ein ^{137}Cs -Maximum entdeckt, das dem Reaktorunfall von Tschernobyl zugeordnet wurde. In der Arbeit [Aldahan et al., 2007b] wird eine Abnahme der ^{127}I -Konzentrationen mit zunehmender Tiefe auf etwas mehr als die Hälfte beobachtet (von 76 zu 41 $\mu\text{g/g}$). Die ^{127}I -Ergebnisse decken sich in ihrem Betrag mit denen aus dieser Arbeit, allerdings ist im Nordseesediment bzgl. Iod-127 kein einheitlicher Trend in Abhängigkeit von der Tiefe feststellbar. In beiden Sedimentprofilen der Ostsee wurde ein Maximum der ^{129}I -Konzentration in 3 cm Tiefe gefunden [Aldahan et al., 2007b], darunter nahmen die ^{129}I -Konzentrationen ab. Das kleinste $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis lag in 50 cm Tiefe bei etwa $5 \cdot 10^{-10}$ und damit deutlich unter denen, die in dieser Arbeit gefunden wurden. Da aber die Ostsee nicht effizient Wasser mit der Nordsee austauscht und sie von anderen Kontaminationsquellen geprägt wird, sind Vergleiche nur bedingt aussagekräftig. Hinzu kommt, daß im Ostseewasser andere biologische Bedingungen herrschen als in der Nordsee.

Eine weitere Arbeit, die sich mit Iod-129 im Sediment befaßt, wurde von López-Gutiérrez et al. angefertigt [López-Gutiérrez et al., 2004]. Das untersuchte Sediment stammt aus dem Kattegat nahe Ringhals in der Nähe zur schwedischen Küste und wurde im Jahre 1984 entnommen. Dort wurde in 1-2 cm Tiefe sowohl das größte $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis als auch die größte ^{129}I -Konzentration gemessen. Darunter nimmt die Kontamination ab, für die oberste Sedimentschicht und für 2-3 cm Tiefe wurden keine Ergebnisse angegeben. Die von López-Gutiérrez et al. gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse erstrecken sich von $3,6 \cdot 10^{-10}$ bis $2,8 \cdot 10^{-8}$, wobei die kleinsten Kontaminationen in den tiefen Sedimentschichten gefunden wurden. Die Befunde von Aldahan et al. decken sich mit denen von López-Gutiérrez et al.

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aus dem Kattegat liegen damit deutlich unter denen aus der Deutschen Bucht, dort liegen die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Bereich von 10^{-8} . Die Ergebnisse von López-Gutiérrez et al. sind durch die damals noch wesentlich geringeren Emissionen erklärbar. Ein Vergleich mit dem von Gallagher et al. untersuchten Sediment liefert keine neuen Erkenntnisse, da es aus einem Binnensee stammt [Gallagher et al., 2005].

Eine am ZSR durchgeführte gammaspektrometrische Untersuchung des Sediments auf ^{137}Cs sollte Aufschluß über den Eintrag des Iods in das Sediment liefern, Abbildung 67 stellt in Abhängigkeit von der Tiefe die spezifischen ^{137}Cs -Aktivitäten des Tiefenprofils dar [Solle, 2010], die in Tabelle 53 im Anhang I beziffert sind.

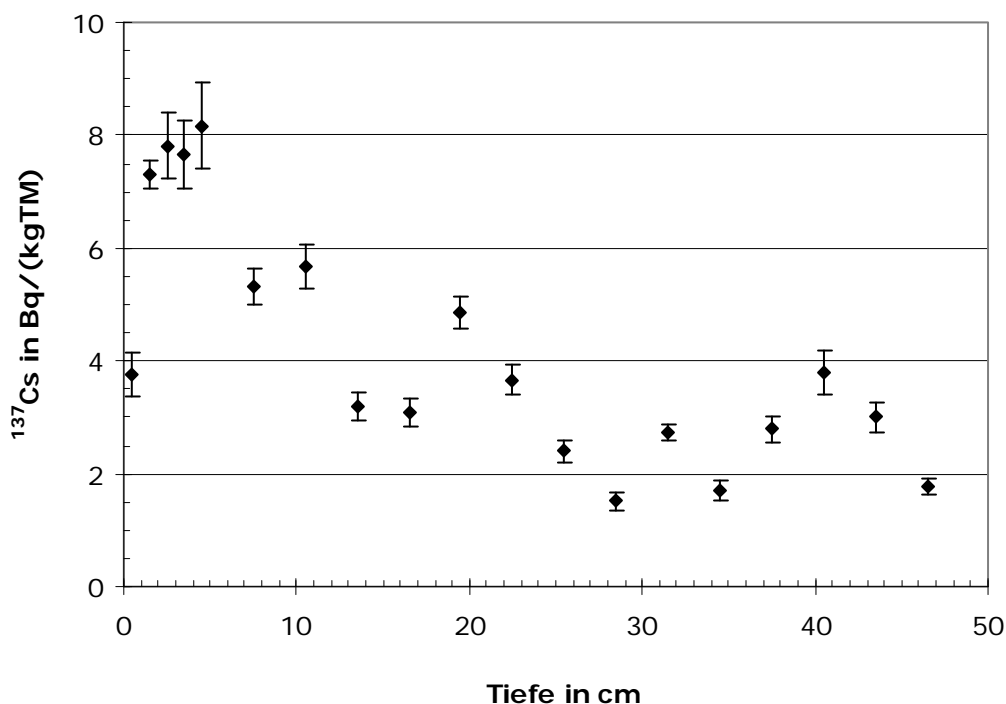


Abbildung 67: Auftragung der spezifischen ^{137}Cs -Aktivität in Bq pro Kilogramm Trockenmasse des Sediments gegen die Tiefe [Solle, 2010].

Es werden keinerlei Korrelationen der spezifischen ^{137}Cs -Aktivitäten mit den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen oder mit den ^{129}I -Gehalten festgestellt. Das Maximum der spezifischen ^{137}Cs -Aktivität wird bei 4,5 cm Tiefe mit etwas mehr als 8 Bq/kg festgestellt. Auffallend ist die sehr geringe ^{137}Cs -Aktivität in der obersten Sedimentschicht. Ab einer Tiefe von 13,5 cm ist kein einheitlicher Trend mehr erkennbar. Legt man die oben mit etwa 1,5-1,75 cm Zentimeter pro Jahr angenommene Sedimentationsrate zugrunde, so ist das lokale Maximum in 19,5 cm Tiefe nicht mit dem Reaktorunfall in Tschernobyl zu erklären. Aldahan et al. ordneten den 1997 aus der Ostsee entnommenen Sedimenten einer Tiefe von 10 cm das Jahr 1986 und damit dem Tschernobylunglück zu. Das in dieser Arbeit untersuchte Sediment wurde im Jahre 2005, also acht Jahre später entnommen, so daß sich bei einer Sedimentationsrate von etwa 1,5 Zentimeter pro Jahr in der Deutschen Bucht die Ergebnisse mit denen von Aldahan et al. nicht decken. Die von Aldahan et al. ermittelte Sedimentationsrate von einem Zentimeter pro Jahr verleitet dazu, das lokale Maximum in 19,5 cm Tiefe dem Reaktorunfall von Tschernobyl zuzuordnen. Einschränkend muß erwähnt werden, daß Ende der 1970er Jahre

immer noch relativ viel ^{137}Cs aus Sellafield freigesetzt wurde. Zwar beträgt die mittlere Transportdauer von Wasser aus der Irischen See in die Deutsche Bucht nur etwa drei Jahre (s. Abschnitt 5.5), Cäsium verhält sich im Meerwasser aber nicht konservativ. Durch die leichte Sorption an Partikel könnte eine Verlängerung der Transportzeit mit einer gleichzeitigen Signalverbreiterung verursacht werden. Es ist daher wahrscheinlich, daß ^{137}Cs aus Tschernobyl von ^{137}Cs aus der Irischen See überlagert wird. Zusätzlich wurde die Deutsche Bucht weniger stark durch den Reaktorunfall kontaminiert als der Ostseeraum.

Die Ursache des Maximums der ^{137}Cs -Kontamination bei 19,5 cm Tiefe kann nicht abschließend geklärt werden, weil der Einfluß weiterer ^{137}Cs -Quellen schwer zu quantifizieren ist. Tschernobyl kommt nach Vergleich mit Sedimentationsraten aus der Ostsee als Ursache infrage. In den Jahren 1984 und 1985 betragen die flüssigen ^{137}Cs -Emissionen aus La Hague knapp 30 TBq/a, in den Jahren von 1986 bis 1988 wurden sie auf unter 10 TBq/a abgesenkt. Bei einer Transportzeit des Wassers von etwa einem Jahr aus La Hague bis in die Deutsche Bucht (s. Abschnitt 5.5) kann damit das Absinken in der spezifischen ^{137}Cs -Aktivität in den oberen Sedimentschichten von 13,5 bis 16,5 cm erklärt werden. Nicht gedeutet werden kann jedoch der Anstieg der spezifischen ^{137}Cs -Aktivität oberhalb von 10,5 cm. Bei einer angenommenen Sedimentationsrate von 1-1,5 cm/Jahr und Emissionsraten von La Hague, die seit 1996 unter 2,5 TBq/Jahr liegen, ist dieser Anstieg nicht zu erklären. Auch das Emissionsmuster von Sellafield liefert keinen Erkenntnisgewinn. Es wird angenommen, daß die Anreicherung der Wassersäule an Radionukliden und deren erneute Freisetzung ein umkehrbarer Vorgang ist. Die seit 2000 nahezu stationären Volumenaktivitäten im Meerwasser der Deutschen Bucht könnten auf ein Gleichgewicht dieser Vorgänge hindeuten [BSH, 2006; Kershaw et al., 1999; McCubbin et al., 2002].

10.11 Vergleich zu bisher am ZSR angefertigten Arbeiten

In diesem Abschnitt wird der Transport des Iods aus dem Meer über die Atmosphäre und letztendlich zum Kontinent beschrieben. Zu diesem Zweck werden die in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse mit denen der früher am ZSR durchgeführten Arbeiten verglichen und das Ungleichgewicht der Iodisotope in den verschiedenen Kompartimenten diskutiert.

Am ZSR wurden umfangreiche Arbeiten angefertigt, die sich mit Iod-127 und Iod-129 in Umweltproben beschäftigen. Die Analytik umfaßte dabei neben der Beschleunigermassenspektrometrie die ICP-MS, die Ionenchromatographie und die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse. Die Vorarbeiten bestanden aus Qualitätssicherung und -kontrolle sowie einem engmaschigen Blindwertmonitoring [Ernst, 2003; Klipsch, 2005; Schmidt, 1998; Schmidt et al., 1998; Szidat et al., 2000a; Szidat et al., 2000b; Szidat et al., 2000c].

In dem Strahlenschutzvorhaben 4285 [Michel et al., 2004] wurden Iodisotope in Seewasser, Luft, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Böden, Pflanzen, Lebensmitteln, Gesamtnahrung sowie in menschlichen und tierischen Schilddrüsen aus dem norddeutschen Raum untersucht. Das Probenentnahmegebiet wurde in vier Bereiche aufgeteilt. Region 1 befindet sich in Küstennähe, Region 2 umfaßt das norddeutsche Tiefland. Das mittlere Norddeutschland und der Harz bilden Region 3, Region 4 befindet sich in der Nähe Gorlebens im Einzugsbereich der Elbe [Klipsch, 2005; Michel et al., 2004]. Mit den früher nur spärlich vorhandenen Daten über Iod-129 im Meerwasser konnten die großen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlagswasser nicht erklärt werden, auch war der Einfluß der luftgetragenen

Emissionen auf die Fallsituation in Norddeutschland unklar [Michel et al., 2005b; Szidat et al., 2000a]. Darüber hinaus zeigten sich große Unterschiede der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Regen-, Grund- und Oberflächenwasser [Szidat et al., 2000a].

Die Untersuchungen von Aerosolen, die im Jahre 2002 von der Insel Föhr (Nordfriesland) gewonnen wurden, zeigen geringere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Luft verglichen mit denen im Meerwasser [Ernst, 2003; Michel et al., 2004]. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von organisch gebundenem Iod in der Luft waren größer als die der anorganischen Iodspezies. Partikulär gebundenes Iod besaß die größten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. An die Partikel lagern sich leicht kleinste Spritzwassertropfen aus dem Meer an [Ernst, 2003]. Zeitreihen von Niederschlags- und Oberflächenwasserproben werden am ZSR seit 1997 für den norddeutschen Raum aufgezeichnet. Niederschlagsproben werden in Freilandniederschlag und durchfallenden Niederschlag, auch Bestandsniederschlag genannt, unterteilt. Aufgrund der trockenen Deposition besitzen Proben des Bestandsniederschlags größere ^{127}I -Konzentrationen als die der Freilandniederschlagsproben (s. u.). Gleichzeitig ist im durchfallenden Niederschlag eine geringere Streuung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zu sehen (s. Abbildung 68). Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag liegen in der Größenordnung derer, die auch in der Nordsee gemessen wurden (10^{-7} bis etwa 10^{-6}), aber sie folgen im Niederschlag nicht den reduzierten luftgetragenen Emissionen der jüngeren Vergangenheit, sondern sind im zeitlichen Verlauf nahezu konstant. Seit 1997 wird nur eine geringe Abnahme festgestellt. Der Rückgang der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse ist auf eine erhöhte Deposition des stabilen Iods zurückzuführen, die Depositionsraten des ^{129}I sind seit 1997 annähernd unverändert [Michel et al., 2006]. Auch die flüssigen Emissionen und damit auch die Kontamination der Nordsee stagnieren in den letzten Jahren auf hohem Niveau [Michel et al., 2006; Michel et al., 2004; 2005b]. Somit kann die Nordsee als die wesentliche Quelle des Iod-129 in der Luft und im Niederschlag identifiziert werden, die luftgetragenen Emissionen spielen offensichtlich keine signifikante Rolle.

Am ZSR untersuchte Bodenprofile der Regionen 2 und 3 zeigten in den oberen Schichten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von 10^{-8} , welche in 2 m Tiefe auf ungefähr 10^{-10} abnahmen. Quantitative Beschreibungen des Migrationsverhaltens in Böden konnten in Ermangelung kinetischer Modelle nicht erstellt werden. Böden stellen Archive des Eintrags anthropogener Radionuklide dar und können zur Ermittlung integraler Depositionsdichten genutzt werden. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von 10^{-10} in 2,5 m Tiefe sprechen für ein schnelles Eindringen anthropogener Iodisotope in untere Schichten. Auch bei dem in dieser Arbeit untersuchten Sediment (s. Abschnitt 8.9.2) wurde ein tiefes Eindringen des Iod-129 aus den vergangenen 60 Jahren beobachtet. Möglicherweise ist durch den jahrhundertlangen Eintrag des stabilen Iods ein Großteil freier Sorptionsplätze belegt, so daß eine Sättigung eingetreten ist und später deponiertes Iod-129 zügig in untere Schichten vordringen kann.

Die Ergebnisse der am ZSR vorgenommenen Untersuchungen werden in Abbildung 68 zusammengefaßt. Die Auftragungen der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen (Abbildung 68) und ^{129}I -Konzentrationen (Abbildung 69) legen das Ungleichgewicht der Iodisotope in der Umwelt offen. Die Seewasserproben zeigen die beschriebene größte Streuung in Hinblick auf die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse.

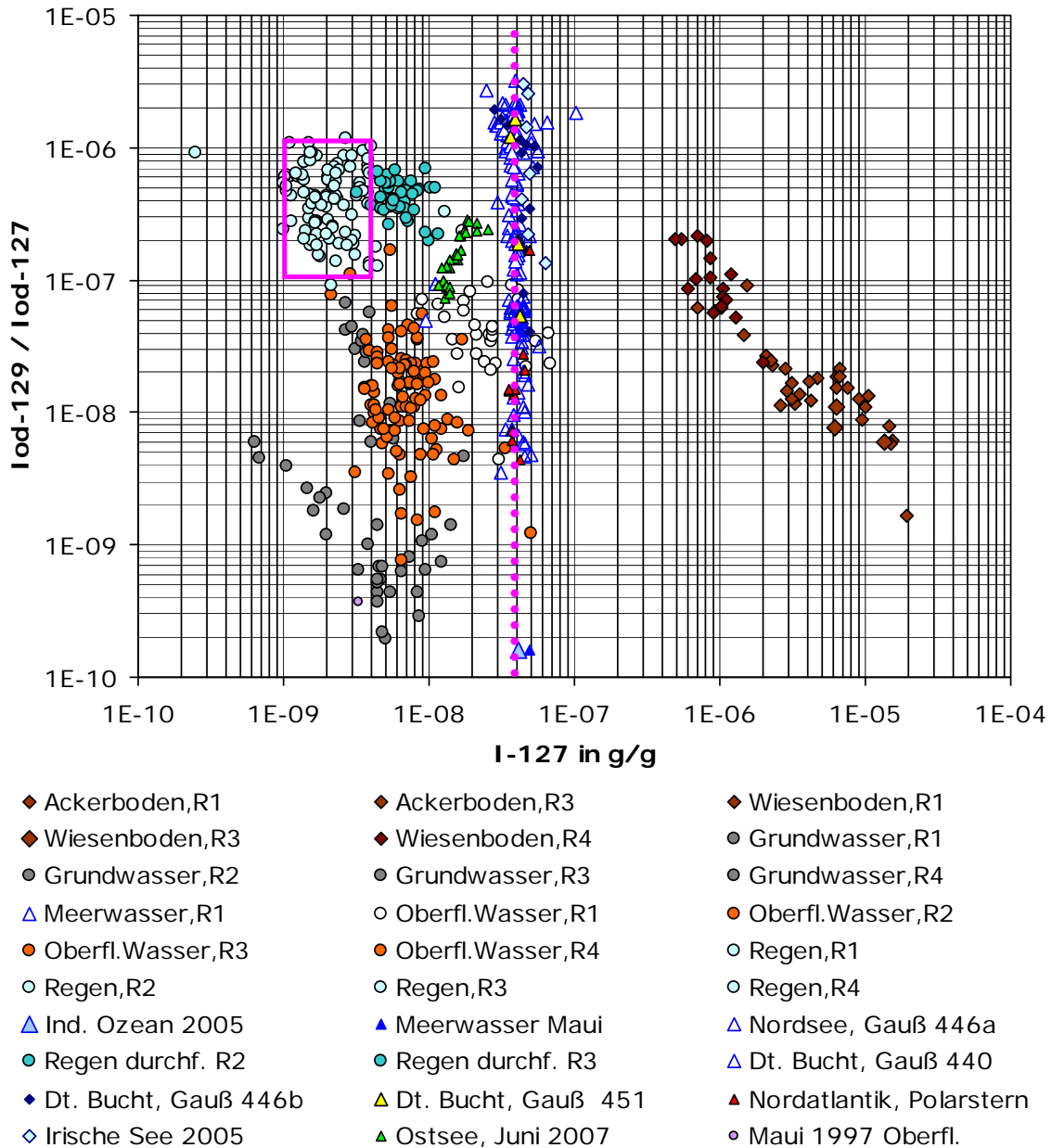


Abbildung 68: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen von verschiedenen Umweltproben, die am ZSR untersucht wurden [Ernst, 2003; Klipsch, 2005; Michel et al., 2004 und diese Arbeit]. Zwecks besserer Übersichtlichkeit sind keine Fehlerindikatoren eingezeichnet.

Die gepunktete rosa Linie in Abbildung 68 zeichnet den Mittelwert aller untersuchten Meerwasserproben ein und liegt bei ziemlich genau 40 ng/g Iod-127. Diese Linie trägt im Zusammenspiel mit dem rosa Rechteck zum Verständnis der Herkunft von Iod-129 im Regenwasser bei. Dieses Rechteck umrahmt Datenpunkte des Freilandniederschlags, dessen ^{127}I -Konzentrationen im geometrischen Mittel bei 2 ng/g liegen und um etwa den Faktor 4 streuen. Im Gegensatz dazu sind die ^{127}I -Konzentrationen im Meerwasser nahezu konstant und betragen etwa das 20-fache der Konzentrationen, die im Regenwasser gemessen werden. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse des Regenwassers bewegen sich nur innerhalb einer Größenordnung (10^{-7} bis 10^{-6}). Alle bisher am ZSR untersuchten Regenwasserproben stammen aus

einem durch die kontaminierte Nordsee geprägten Bereich. Niederschlagswässer fernab der Emittenten lassen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von weniger als 10^{-9} erwarten.

Trägt man die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen in den Umweltproben auf, so ist erkennbar, daß die beim Meerwasser beobachtete Korrelation zwischen den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen und den ^{129}I -Konzentrationen auch beim Freilandniederschlag vorhanden ist (s. Abbildung 69). Die Variabilität der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag erscheint auch hier im Vergleich zu den Seewasserproben um den Faktor 20 bezogen auf die ^{129}I -Konzentrationen verschoben (s. dazu das rosa Parallelogramm und die gepunktete rosa Linie in Abbildung 69). Würden die luftgetragenen Emissionen aus La Hague einen signifikanten Beitrag zu den ^{129}I -Gehalten im Niederschlag leisten, wären größere Variationen der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben zu erkennen. Auf die Darstellung in Abbildung 68 hätte eine Reduzierung der luftgetragenen ^{129}I -Emissionen in bezug auf das ^{127}I keinen Einfluß, wäre aber in Abbildung 69 erkennbar. Die Spaltung von ^{235}U mit thermischen Neutronen läßt ^{129}I mit dem Faktor 6,1 häufiger entstehen als ^{127}I [England und Rider, 1994]. Es ist anzunehmen, daß dieser Überschuß des Iod-129 mit demselben Faktor in den luftgetragenen Emissionen angetroffen wird. Da aber kein Rückgang der ^{129}I -Konzentrationen im Niederschlag trotz reduzierter Emissionen erkennbar ist und gleichzeitig die Niederschlagsproben der Korrelation der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit den ^{129}I -Konzentrationen des Meerwassers in Abbildung 69 folgen, kann die die Nordsee als die einzige Quelle des Iod-129 im Niederschlag identifiziert werden.

Gut zu erkennen sind die größeren ^{127}I -Konzentrationen im durchfallenden Niederschlag in Abbildung 68 verglichen mit den ^{127}I -Konzentrationen im Freilandniederschlag. Im küsternen Oberflächenwasser (rote Kreise) werden ähnliche ^{127}I -Konzentrationen wie im Bestandsniederschlag gemessen. Das Oberflächenwasser ist jedoch deutlich geringer kontaminiert als das Regenwasser. Dies kann mit einer Verdünnung mit stabilem Iod erklärt werden. Erwartungsgemäß wird im küstennahen Oberflächenwasser (Region 1) deutlich mehr stabiles Iod gefunden als in den übrigen Regionen. Sowohl nasse als auch trockene Deposition des aus der Nordsee in die Atmosphäre übergegangenen Iods verursacht die größeren ^{127}I -Konzentrationen.

Die ^{127}I -Konzentrationen von Bodenproben liegen mehr als eine Größenordnung über denen des Meerwassers. Infolgedessen wird die mit dem Regen eingetragene Kontamination verdünnt, die Mehrzahl der untersuchten Bodenproben zeigen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von weniger als 10^{-7} . Die ^{127}I -Konzentration in Böden beträgt bis zu $2 \cdot 10^{-5}$ g/g [Ernst, 2003; Ernst et al., 2003; Michel et al., 2004].

Grundwasserproben zeigen sowohl in bezug auf die ^{127}I -Konzentrationen als auch auf die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse relativ große Variationen (s. Abbildung 68). Die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen bei nur etwas mehr als 10^{-10} und erstrecken sich über drei Zehnerpotenzen, die ^{127}I -Konzentrationen variieren um mehr als zwei Größenordnungen [Michel et al., 2004].

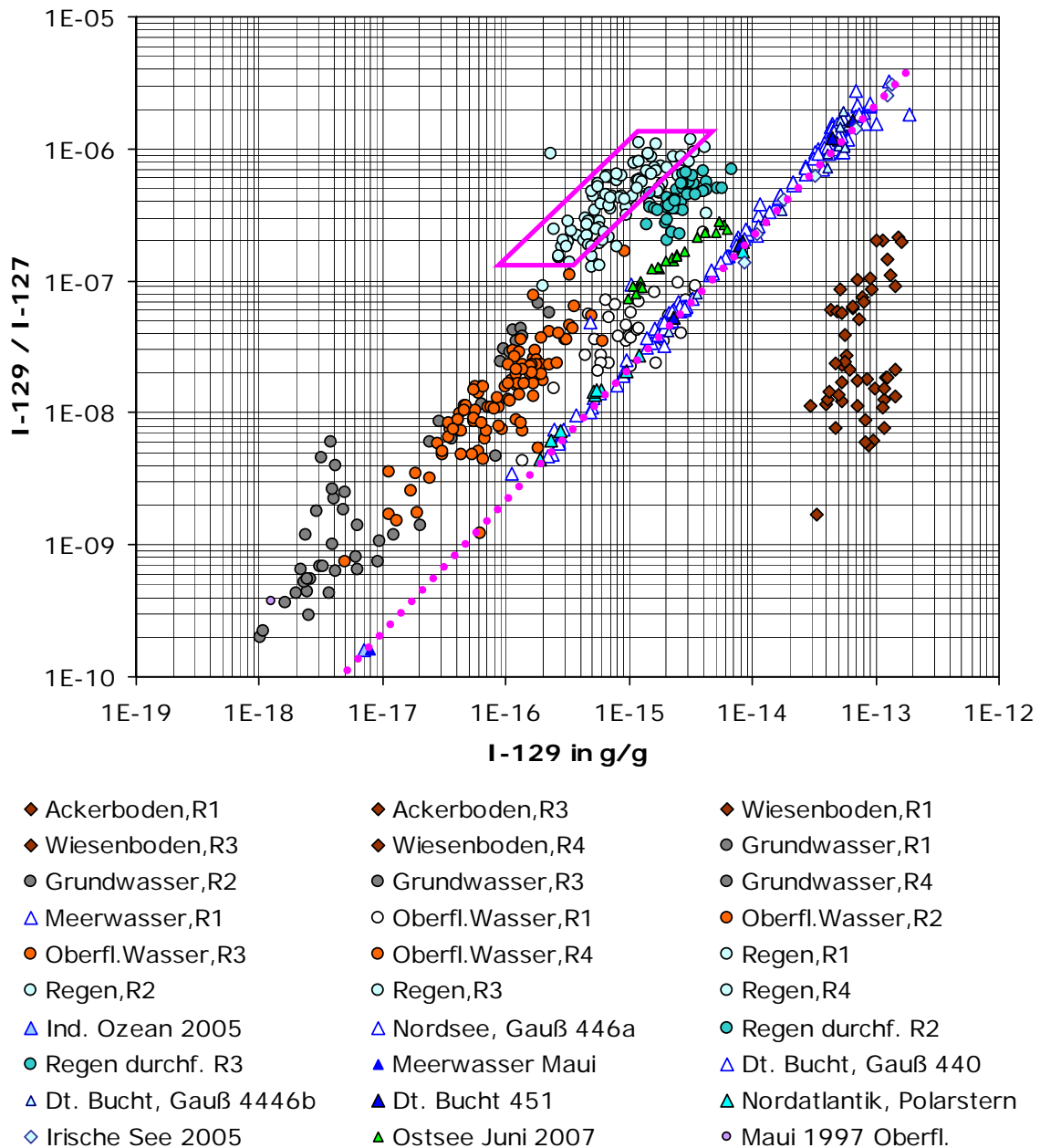


Abbildung 69: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen der am ZSR untersuchten Umweltproben [Ernst, 2003; Klipsch, 2005; Michel et al., 2004 und diese Arbeit]. Auf Fehlerindikatoren ist im Sinne einer besseren Übersichtlichkeit verzichtet worden.

11 Zusammenfassung und Ausblick

Diese Arbeit und das Strahlenschutzvorhaben 4481 [Nies *et al.*, 2008] liefern einen umfassenden Datensatz über die Kontamination der Nord- und Ostsee mit anthropogenen Radionukliden. Der Vergleich mit vorangegangenen Arbeiten zeigt eine gleichbleibend hohe Kontamination der Nordsee in den letzten Jahren in bezug auf ^{129}I . Iod ist ein konservativer Tracer im Meerwasser. Bis auf wenige Ausnahmen sind die ^{127}I -Konzentrationen im Meerwasser nahezu konstant, Abweichungen werden nur in Bereichen des kontinentalen Süßwassereintrages und in dem durch Ostseewasser geprägten Gebiet festgestellt. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aller untersuchten Meerwasserproben erstrecken sich von 10^{-10} bis mehr als 10^{-6} über fünf Zehnerpotenzen. Die Variabilität der Isotopenverhältnisse wird ausschließlich durch anthropogene ^{129}I -Quellen verursacht. Daher werden in direkter Umgebung der WAA von La Hague und Sellafield $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von mehr als $3 \cdot 10^{-6}$ gemessen. Diese $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen mehr als sechs Zehnerpotenzen über dem natürlichen Isotopenverhältnis, das mit $1,5 \cdot 10^{-12}$ für die marine Hydrosphäre angenommen werden kann. Selbst in der Ostsee, in die kein ^{129}I direkt eingeleitet wird, ist eine Verschiebung der Isotopenverhältnisse um mehr als fünf Größenordnungen zu verzeichnen. Aus der Nordsee findet ein Wassertransport in das Europäische Nordmeer statt. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Europäischen Nordmeer liegen mehr als eine Größenordnung über dem globalen Fallout. Die kleinsten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden in Wasserproben, die aus dem Indischen Ozean und von Hawaii stammen, gemessen..

Die ^{129}I -Emissionen können entlang der Küste von La Hague in Frankreich über Belgien, Holland, Deutschland und Dänemark verfolgt werden. Im küstennahen Bereich spielen die Ableitungen aus Sellafield hinsichtlich der ^{129}I -Situation keine Rolle, das genannte Gebiet wird durch die Ableitungen aus La Hague geprägt. Die ^{129}I -Ableitungen aus Sellafield lassen sich sowohl in nördlicher als auch in südlicher Richtung nachweisen. Mit wachsendem Abstand zur Quelle nehmen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aufgrund von Verdünnungseffekten ab. Die Verteilung des Iod-129 kann mit den Strömungsverhältnissen im Oberflächen- und Tiefenwasser der Nordsee und der Irischen See erklärt werden.

Diese Arbeit liefert wichtiges Datenmaterial, um künftige Veränderungen in den nächsten Jahren oder Jahrzehnten beurteilen zu können. Auch für Modellierungsrechnungen von Wasserbewegungen sowie Ausbreitungsszenarien anthropogener Radionuklide in der Nordsee können die Daten verwendet werden. Die weitere Entwicklung der Kontamination durch anthropogene Radionuklide sollte in Zukunft an Schlüsselpositionen in Europa und weltweit überwacht werden. Iod-129 ist derzeit radiologisch noch nicht relevant, die fortdauernden Emissionen lassen aber eine zunehmende Kontamination der Nordsee und der benachbarten Meere erwarten. Aufgrund seiner Langlebigkeit und der großen Mobilität in der Umwelt sollte der Zustand der Nordsee, die die wesentliche Quelle des Iod-129 auf dem Festland ist, langfristig im Auge behalten werden. In einem Folgeprojekt wird im Jahre 2009 eine neue Bestandsaufnahme der Nordsee durchgeführt, das Stationsnetz ähnelt dabei dem von 2005. Um weitere Kenntnisse über die Strömungsverhältnisse im Bereich der britischen Inseln zu erhalten, wird dichter an der Ostküste Englands und an der Nordküste Schottlands beprobt.

Es fehlen bisher detaillierte Bilanzierungen über Quellen und Senken des Iods in der Nordsee. So existieren bisher keine Arbeiten, die sich mit dem Eintrag des ^{127}I wie auch des ^{129}I über die Flüsse in die Nordsee beschäftigen. Auch fehlen Bilanzierungen, die sich mit dem Über-

gang des Iods ins Sediment beschäftigen, wobei die Remobilisierung bei Zersetzungsprozessen berücksichtigt werden muß. Große Unkenntnis existiert über das Migrationsverhalten und über Sorptionsprozesse von Iod in Böden und Sedimenten. Hier könnten umfangreiche Tracerversuche Aufschluß geben. Da der Iodkreislauf entscheidend durch die biologischen Eigenschaften bestimmt wird, ist eine Simulation im Labor schwer realisierbar. Zum einen wird es kaum möglich sein, ein komplexes und biologisch aktives System wie die Nordsee mitsamt ihrem Sediment in einem radioanalytischen Labor darzustellen, zum anderen sind Tracerversuche wegen der Vielzahl der im Wasser vorkommenden Iodspezies sehr umfangreich und mit Sicherheit sehr zeitaufwendig. So müßte neben radioaktivem Iodid und Iodat auch organisch gebundenes Iod als Tracer eingesetzt werden, darüber hinaus spielen Umwandlungsprozesse der Iodspezies eine wichtige Rolle. Weiterreichende Untersuchungen der physikalischen, chemischen und biologischen Eigenschaften des Iods in allen relevanten Umweltkompartimenten (Atmosphäre, Hydrosphäre, Biosphäre und Pedosphäre) bieten umfangreiche Forschungsgebiete, die zum weiteren Verständnis der Radioökologie des Iod-129 beitragen.

Am ZSR wurde bisher überwiegend Regenwasser aus dem norddeutschen Raum analysiert. Eine langfristige Untersuchung von stabilem Iod und Iod-129 im Niederschlag aus dem gesamten Bundesgebiet wird genauere Auskünfte über die Fallsituation geben. Ebenso würden damit einhergehende Untersuchungen in Böden und Grundwasser (idealerweise in Zeitreihen) weitere Kenntnisse über das Wanderungsverhalten und über Verweilzeiten von Iod in den Umweltkompartimenten liefern. Darüber hinaus ließe sich im Anschluß an die Aufnahme von aktuellen Zuständen, beispielsweise in Fluß- und Oberflächenwasser, die in folgenden Jahren durch den Menschen verursachte Veränderung quantifizieren. Am Ende stände eine detaillierte Beschreibung des globalen Iodkreislaufs für Iod-127 und Iod-129 mit allen relevanten Quellen und Senken. In Hinblick auf die ^{127}I -Analytik gilt es, die Quellen der Unsicherheiten und die Abweichungen zu den Meßergebnissen anderer Laboratorien zu ergründen.

Bisher gibt es nur wenige Arbeiten, die sich mit Iod-127 und Iod-129 auf der Südhalbkugel beschäftigen. Zwar werden in Westeuropa die stärksten Veränderungen der ^{129}I -Vorkommen durch den Menschen verursacht, aber es findet eine kontinuierliche Ausbreitung des Iod-129 in die weniger kontaminierte Gebiete statt. Iod-129 stellt einen langfristig nutzbaren Indikator für anthropogene Veränderungen und wird in Zukunft auch fernab der Emittenten an Beachtung gewinnen.

Literaturangaben

- Aarkrog, A., Boelskifte, S., Dahlgaard, H., Duniec, S., Holm, E. und Smith, J. N. (1987), Studies of Transuranics in an Arctic Marine-Environment, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry-Articles*, 115, 1, 39-50.
- Aarkrog, A., Carlsson, L., Chen, Q. J., Dahlgaard, H., Holm, E., Huynhngoc, L., Jensen, L. H., Nielsen, S. P. und Nies, H. (1988), Origin of Tc-99 and Its Use as a Marine Tracer, *Nature*, 335, 6188, 338-340.
- Aarkrog, A., Dahlgaard, H., Hallstadius, L., Hansen, H. und Holm, E. (1983), Radiocesium from Sellafield Effluents in Greenland Waters, *Nature*, 304, 5921, 49-51.
- Adams, J. W. und Cox, R. A. (2002), Halogen chemistry of the marine boundary layer, *Journal De Physique Iv*, 12, PR10, 105-124.
- Aldahan, A., Alfimov, V. und Possnert, G. (2007a), The ^{129}I anthropogenic budget: sources and sinks, *Applied Geochemistry*, 22, 606-618.
- Aldahan, A., Englund, E., Possnert, G., Cato, I. und Hou, X. L. (2007b), Iodine-129 enrichment in sediment of the Baltic Sea, *Applied Geochemistry*, 22, 3, 637-647.
- Aldahan, A., Kekli, A. und Possnert, G. (2006), Distribution and sources of I-129 in rivers of the Baltic region, *Journal of Environmental Radioactivity*, 88, 1, 49-73.
- Aldahan, A., Possnert, G., Alfimov, V., Cato, I. und Kekli, A. (2007c), Anthropogenic I-129 in the Baltic Sea, *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms*, 259, 1, 491-495.
- Alfimov, V. (2005), Accelerator Mass Spectrometry of ^{36}Cl and ^{129}I Analytical Aspects and Applications, Dissertation, Universität Uppsala.
- Alfimov, V., Aldahan, A., Possnert, G., Kekli, A. und Meili, M. (2004a), Concentrations of ^{129}I along a transect from the North Atlantic to the Baltic Sea, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B*, 223-224, 446-450.
- Alfimov, V., Aldahan, A., Possnert, G. und Winsor, G. (2004b), Anthropogenic ^{129}I in seawater along a transect from the Norwegian Coastal Current to the North Pole, *Marine Poll. Bull.*, 49, 1097-1104.
- Amachi, S., Muramatsu, Y., Akiyama, Y., Miyazaki, K., Yoshiki, S., Hanada, S., Kamagata, Y., Ban-nai, T., Shinoyama, H. und Fujii, T. (2005), Isolation of Iodide-Oxidizing Bacteria from Iodide-Rich Natural Gas Brines and Seawaters, *Microbial Ecology*, 49, 4, 547-557.

Andersson, L. und Rydberg, L. (1988), Trends in nutrient and oxygen conditions within the Kattagatt: Effects of local nutrient supply, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 26, 559-579.

Anonymous (1992), Background concentrations of natural compounds in rivers, sea water, atmosphere and mussels, 84 pp, Tidal Waters Division, Gravenage, Netherlands, DGW-92.033.

AREVA (2006), Rapport environnemental, social et sociétal 2005, Établissement de La Hague, <http://www.cogemalahague.fr>.

AREVA, C. Établissement de La Hague, Rapport Environnement 2003, <http://www.cogemalahague.fr>.

Atarashi-Andoh, M., Schnabel, C., Cook, G., MacKenzie, A. B., Dougans, A., Ellam, R. M., Freeman, S., Maden, C., Olive, V., Synal, H.-A. und Xu, S. (2007), $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in surface waters of the English Lake District, *Applied Geochemistry*, 22, 628–636.

BMU (2008), *Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung*, Bericht der Leitstellen des Bundesamtes für Strahlenschutz, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), Bonn.

BNFL (1999), Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment, British Nuclear Fuel.

Boaretto, E., Berkovits, D., Delmas, R., Johnson, R. R., Kaufman, A., Magaritz, M., Paul, M. und Pourchet, M. (1994), Measurements of anthropogenic radionuclides in environmental samples, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 92, 1-4, 350-356.

Bonka, H. (1982), *Strahlenexposition durch radioaktive Emissionen aus kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb*, Verlag TÜV Rheinland.

BSH (2005), Nordseezustand 2003, *Berichte des Bundesamtes für Seeschifffahrt und Hydrographie*, Nr. 38/2005, Hamburg und Rostock.

BSH (2006,)Nordseezustand 2003, *Berichte des Bundesamtes für Seeschifffahrt und Hydrographie*, Nr. 40/2006, Hamburg und Rostock.

Buraglio, N. (2000), Accelerator mass spectrometry of ^{129}I and its applications in natural water systems, Dissertation, University of Uppsala, Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology 570.

Buraglio, N., Aldahan, A. und Possnert, G. (2000), Analytical techniques and applications of ^{129}I in natural water, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172, 518-523.

Carpenter, L. J. (2003), Iodine in the marine boundary layer, *Chemical Reviews*, 103, 12, 4953-4962.

Carter, M. und Moghissi, A. (1977), Three decades of nuclear testing, *Health Physics*, 33, 55-71.

Chamberlain, A. (1991), *Radioactive Aerosols*, Cambridge University Press.

Chamberlain, A. C. und Chadwick, R. C. (1966), Transport of Iodine from Atmosphere to Ground, *Tellus*, 18, 2-3, 226-&.

Chameides, W. L. und Davis, D. D. (1980), Iodine: its possible role in tropospheric photochemistry, *Journal of Geophysical Research*, 85, C12, 7383.

Cogema (2003), www.cogemalahague.com.

Cogema (Feb. 1, 2001), pers. comm. with Schnabel, C.

Czybulka, D. und Kersandt, P. (Eds.) (2000), *Rechtsvorschriften, rechtliche Instrumentarien und zuständige Körperschaften mit Relevanz für marine Schutzgebiete („Marine Protected Areas“/ MPAs) in der Ausschließlichen Wirtschaftszone (AWZ) und auf Hoher See des OSPAR-Konventionsgebietes*, Bundesamt für Naturschutz, Bonn-Bad Godesberg.

Dahlgaard, H. (1994), Sources of ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{99}Tc in the East Greenland Current, *J. Environmental Radioactivity*, 85, 37-55.

Dahlgaard, H. (1995a), Radioactive-Tracers as a Tool in Coastal Oceanography - an Overview of the Mast-52 Project, *Journal of Marine Systems*, 6, 5-6, 381-389.

Dahlgaard, H. (1995b), Transfer of European Coastal Pollution to the Arctic - Radioactive-Tracers, *Mar. Pollut. Bull.*, 31, 1-3, 3-7.

Dahlgaard, H. (1995c), Transfer of European Coastal Pollution to the Arctic: Radioactive Tracers, *Mar. Poll. Bull.*, 31, 3, 3-7.

Dahlgaard, H., Bergan, T. D. S. und Christensen, G. C. (1997), Technetium-99 and caesium-137 time series at the Norwegian coast monitored by the brown alga *Fucus vesiculosus*, *Radioprotection*, 32, C2, 353-358.

Dahlgaard, H., Chen, Q., Herrmann, J., Nies, H., Ibbett, R. D. und Kershaw, P. J. (1995a), On the background level of ^{99}Tc , ^{90}Sr and ^{137}Cs in the North Atlantic, *J. Mar. Systems*, 6, 5-6, 571-578.

Dahlgaard, H., Chen, Q., Herrmann, J., Nies, H., Ibbett, R. D. und Kershaw, P. J. (1995b), On the Background Level of Tc-99, Sr-90 and Cs-137 in the North-Atlantic, *Journal of Marine Systems*, 6, 5-6, 571-578.

- Dahlgaard, H., Herrmann, J. und Salomon, J. C. (1995c), A Tracer Study of the Transport of Coastal Water from the English-Channel through the German-Bight to the Kattegat, *Journal of Marine Systems*, 6, 5-6, 415-425.
- Dahlgaard, H., Herrmann, J., Vanweers, A. W., Masson, M., Ibbett, R. D. und Chen, Q. (1995d), Quality Assurance of the Oceanographic Tracers Tc-99 and Antimony-125 - Inter-comparisons and Recovery Tests, *Journal of Marine Systems*, 6, 5-6, 391-396.
- DIN-ISO (2009), *Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Vertrauensgrenzen bei Messungen von ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen; Normenvorschlag*, Beuth Verlag, Berlin.
- Döbeli, M., Ender, R. M., Liechtenstein, V. und Vetterli, D. (1998), Time-of-flight spectroscopy applied to 2 MeV He RBS, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 142, 3, 417-424.
- Edmonds, H. N., Zhou, Z. O., Raisbeck, G. M., Yiou, F., Kilius, L. und Edmond, J. M. (2001), Distribution and behaviour of anthropogenic ^{129}I in water masses ventilating the North Atlantic Ocean, *Journal of Geophysical Research*, 106, C4, 6881-6894.
- Edwards, R. (1962), Iodine-129: Its occurrence in nature and its utility as a tracer, *Science* 137, 851-853.
- Edwards, R. und Rey, P. (1968), Terrestrial occurrence and distribution of ^{129}I , Atomic Energy Commission, NYO-3624-3.
- Eisenbud, M. und Gesell, T. (1997), *Environmental Radioactivity*, 4 ed., Academic Press, San Diego.
- England, T. R. und Rider, B. F. (1994), Evaluation and Compilation of Fission Product Yields, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-94-3106.
- Ernst, T. (2003), Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse: Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport, Dissertation, Universität Hannover.
- Ernst, T., Szidat, S., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Schnabel, C., Synal, H., Santos Arevalo, F. J., Benne, I., Boess, J., Gehrt, E., Capelle, A., Schneider, J., Schäfer, W. und Böttcher, J. (2003), Migration of iodine-129 and iodine-127 in soils, *Kerntechnik* 68, 4, 155-167.
- Fabryka-Martin, J. T. (1984), Natural Iodine-129 as a Groundwater Tracer, Masterarbeit, Universität Arizona.
- Fehn, U., Holdren, G., Elmore, D., Brunelle, T., Teng, R. und Kubik, P. (1986), Determination of natural and anthropogenic ^{129}I in marine sediments, *Geophysical Research Letters*, 13, 137-139.

Fréchet, C. und Calmet, D. (2003), ^{129}I in the environment of the La Hague nuclear fuel re-processing plant - from sea to land, *Journal of Environmental Radioactivity*, 70, 43-59.

Fréchet, C., Calmet, D., Bertho, X. und Gaudry, A. (2002), $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio measurement in bovine thyroids from the North Cotentin area, *The Science of the Total Environment*, 293, 59-67.

Fréchet, C., Calmet, D., Bouisset, P., Piccot, D., Gaudry, A., Yiou, F. und Raisbeck, G. M. (2001), ^{129}I and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio determination in environmental biological samples by RNAA, AMS and direct gamma-X spectrometry measurements, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249, 133-138.

Fuge, R. und Johnson, C. (1986), The geochemistry of iodine - a review, *Environmental Geochemistry and Health*, 8, 2, 31.

Gallagher, D., McGee, E. J., Mitchell, P. I., Alfimov, V., Aldahan, A. und Possnert, G. (2005), Retrospective Search for Evidence of the 1957 Windscale Fire in NE Ireland Using ^{129}I and Other Long-Lived Nuclides, *Environmental Science & Technology*, 39, 9, 2927-2935.

Garland, J. A. und Curtis, H. (1981), Emission of Iodine From the Sea Surface in the Presence of Ozone, *J. Geophys. Res.*, 86, <http://dx.doi.org/10.1029/JC086iC04p03183>.

Gascard, J. C., Raisbeck, G., Sequeira, S., Yiou, F. und Mork, K. A. (2004), The Norwegian Atlantic Current in the Lofoten basin inferred from hydrological and tracer data (I-129) and its interaction with the Norwegian Coastal Current, *Geophysical Research Letters*, 31, 1.

Geckeis, H., Degering, D., Goertzen, A., Geyer, F. W. und Dressler, P. (1995), Langzeitsicherheit nuklearer Endlager Radiochemische Analytik von Proben aus Brennstoffauslaugungsexperimenten, *Wissenschaftliche Berichte Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 5650*.

Grajcar, M., Döbeli, M., Kubik, P. W., Synal, H.-A., Wacker, L. und Suter, M. (2007), New concepts of ^{10}Be AMS at low energies, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 259, 1, 173-177.

Gray, J., Jones, S. und Smith, A. (1995), Discharges to the environment from the Sellafield Site 1951 - 1992, *Journal of Radiological Protection*, 15, 2, 99-131.

Herrmann, J., Kershaw, P. j., du Bois, P. B. und Guegueniat, P. (1995), The distribution of artificial radionuclides in the English Channel, southern North Sea, Skagerrak and Kattegat, 1990-1993, *Journal of Marine Systems*, 6, 5-6, 427-456.

Holleman, A. F. und Wiberg, N. (1995), *Lehrbuch der Anorganischen Chemie*, 101 ed., Berlin, New York.

- Holm, E., Persson, B. R. R., Hallstadius, L., Aarkrog, A. und Dahlgaard, H. (1983), Radio-Cesium and Trans-Uranium Elements in the Greenland and Barents Seas, *Oceanologica Acta*, 6, 4, 457-462.
- Hou, X., Aldahan, A., Nielsen, S. P., Possnert, G., Nies, H. und Hedfors, J. (2007), Speciation of I-129 and I-127 in seawater and implications for sources and transport pathways in the North Sea, *Environmental Science & Technology*, 41, 17, 5993-5999.
- Hou, X., Chai, C., Qian, Q., Yan, X. und Fan, X. (1997), Determination of chemical species of iodine in some seaweeds (I), *Science of the Total Environment*, 204, 3, 215-221.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H. und Nielsen, S. P. (2000a), Iodine-129 time series in Danish, Norwegian and northwest Greenland coast and the Baltic Sea by seaweed, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 51, 5, 571-584.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H. und Nielsen, S. P. (2001), Chemical speciation analysis of ^{129}I in seawater and a preliminary investigation to use it as a tracer for geochemical cycle study of stable iodine, *Marine Chemistry*, 74, 2-3, 145-155.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H., Nielsen, S. P. und Ding, W. J. (2000b), Iodine-129 in human thyroids and seaweed in China, *Science of the Total Environment*, 246, 2-3, 285-291.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H., Nielsen, S. P. und Kucera, J. (2002), Level and origin of Iodine-129 in the Baltic Sea, *Journal of Environmental Radioactivity*, 61, 3, 331-343.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H., Rietz, B., Jacobsen, U., Nielsen, S. P. und Aarkrog, A. (1999), Determination of ^{129}I in seawater and some environmental materials by neutron activation analysis, *Analyst* 124, 1109-1114.
- Hou, X. L., Yan, X. und Chai, C. (2000c), Chemical species of iodine in some seaweeds - II. Iodine-bound biological macromolecules, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 245, 3, 461-467.
- Hu, Q., Zhao, P., Moran, J. E. und Seaman, J. C. (2005), Sorption and transport of iodine species in sediments from the Savannah River and Hanford Sites, *Journal of Contaminant Hydrology*, 78, 3, 185-205.
- Hunt, G. J., Smith, B. D. und Camplin, W. C. (1998), Recent changes in liquid radioactive waste discharges from Sellafield to the Irish Sea: Monitoring of the environmental consequences and radiological implications, *Radiat. Prot. Dosim.*, 75, 1-4, 149-153.
- ISO (1995), International Organization for Standardization; Guide to the expression of uncertainty in measurement, corrected and reprinted.
- ISO (2005), ISO 11929-7: Determination of detection limit decision threshold for ionizing radiation measurements. Part 7: Fundamentals and general applications.

ISO (2008), Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM) - Supplement 1: Propagation of distributions using a Monte Carlo method, *JCGM*, 101.

ISO (2009), 11929-FDIS: Determination of characteristic limits (decision threshold, detection limit, and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation — Fundamentals and applications.

Jia-Zhong, Z. und Whitfield, M. (1986), Kinetics of inorganic redox reactions in seawater : I. The reduction of iodate by bisulphide, *Marine Chemistry*, 19, 2, 121-137.

Jones, E. P. (2001), Circulation in the Arctic Ocean, *Polar Research*, 20, 2, 139-146.

Jones, E. P., Anderson, L. G. und Swift, J. H. (1998), Distribution of Atlantic and Pacific waters in the upper Arctic Ocean: Implications for circulation, *Geophysical Research Letters*, 25, 6, 765-768.

Jones, E. P., Rudels, B. und Anderson, L. G. (1995), Deep Waters of the Arctic-Ocean - Origins and Circulation, *Deep-Sea Research Part I-Oceanographic Research Papers*, 42, 5, 737-760.

Kaplan, D. I. (2003), Influence of surface charge of an Fe-oxide and an organic matter dominated soil on iodide and pertechnetate sorption, *Radiochimica Acta*, 91, 3, 173-178.

Keogh, S. M., Aldahan, A., Possnert, G., Finegan, P., Vintró, L. L. und Mitchell, P. I. (2007), Trends in the spatial and temporal distribution of ^{129}I and ^{99}Tc in coastal waters surrounding Ireland using *Fucus vesiculosus* as a bio-indicator, *Journal of Environmental Radioactivity*, 95, 23-38.

Keppler, F., Eiden, R., Niedan, V., Pracht, J. und Scholer, H. F. (2000), Halocarbons produced by natural oxidation processes during degradation of organic matter, *Nature*, 403, 6767, 298-301.

Kershaw, P. J., McCubbin, D. und Leonard, K. S. (1999), Continuing contamination of north Atlantic and Arctic waters by Sellafield radionuclides, *Science of the Total Environment*, 238, 119-132.

Klein, J., Middleton, R. und Tang, H. (1982), Modifications of an FN tandem for quantitative ^{10}Be measurement, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 193, 3, 601-616.

Klipsch, K. (2005), Bestimmung von ^{129}I und ^{127}I in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des ^{129}I auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen, Dissertation, Universität Hannover.

Knowles, J. F., Smith, D. L. und Winpenny, K. (1998), A Comparative Study of the Uptake, Clearance and Metabolism of Technetium in Lobster (*Hommarus Gammarus*) and Edible Crab (*Cancer Pagurus*), *Rad. Prot. Dosimetry*, 75, 125.

- Kocher, D. C. (1981), On the long-term-behaviour of Iodine-129 in the terrestrial environment, IAEA-SM-257/56.
- Kohman, T. P. und Edwards, R. R. (1966), ^{129}I as a geochemical and ecological tracer, Department of Chemistry, Carnegie Institute of Technology, NYO-3624-1.
- Kolb, C. E. (2002), Iodine's air of importance, *Nature*, 417, 6889, 597-598.
- Krüger, F. W., Albrecht, L., Spoden, E. und Weiss, W. (1996), Der Ablauf des Reaktorunfalls Tschernobyl 4 und die weiträumige Verfrachtung des freigesetzten Materials: Neuere Erkenntnisse und ihre Bewertung, in *Tagungsbild des BfS/SSK Seminar: Zehn Jahre nach Tschernobyl, eine Bilanz*, edited by SSK, B., pp. 3-22, Gustav Fischer Verlag.
- Leblanc, C., Colin, C., Cosse, A., Delage, L., a Barre, S., Morin, P., Fiévet, B., Voiseux, C., Ambroise, Y., Verhaeghe, E., Amouroux, D., Donard, O., Tessier, E. und Potin, P. (2006), Iodine transfers in the coastal marine environment: the key role of brown algae and of their vanadium-dependent haloperoxidases, *Biochimie* 88, 1773–1785.
- López-Gutiérrez, J. M., García-León, M., García-Tenorio, R., Schnabel, C., Suter, M., Synal, H. A. und Szidat, S. (2000), $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios and ^{129}I concentrations in a recent sea sediment core and in rainwater from Sevilla (Spain) by AMS, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 172, 1-4, 574-578.
- López-Gutiérrez, J. M., García-León, M., Schnabel, C., Suter, M., Synal, H., Szidat, S. und García-Tenorio, R. (2004), Relative influence of ^{129}I sources in a core from the Kattegat area, *Science of the Total Environment*, 323, 195-210.
- Luther, G. W., Ferdelman, T., Culberson, C. H., Kostka, J. und Wu, J. (1991), Iodine chemistry in the water column of the Chesapeake Bay: Evidence for organic iodine forms, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 32, 3, 267-279.
- Luther, G. W. und Tsamakis, E. (1989), Concentration and form of dissolved sulfide in the oxic water column of the ocean, *Marine Chemistry*, 27, 3-4, 165-177.
- Magill, J., Pfennig, G. und Galy, J. (2007), Karlsruher Nuklidkarte, Forschungszentrum Karlsruhe in der Helmholtzgemeinschaft, 7. Auflage.
- Mas, J. L., Tagami, K. und Uchida, S. (2004), Method for the detection of Tc in seaweed samples coupling the use of Re as a chemical tracer and isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry, *Analytica Chimica Acta*, 509, 1, 83-88.
- McCubbin, D., Leonard, K. S., Brown, J., Kershaw, P. J., Bonfield, R. A. und Peak, T. (2002), Further studies of the distribution of technetium-99 and caesium-137 in UK and European coastal waters, *Continental Shelf Research*, 22, 10, 1417-1445.

Michel, R., Daraoui, A., Gorny, M., Jakob, D., Sachse, R. und Tosch, L. (2006), Radioökologie des Iod-129: Die Rolle des Meeres, Wissenschaftliches Kolloquium anlässlich der Einweihung des neuen Laborgebäudes des BSH in Hamburg-Sülldorf, 1. November 2006, Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie.

Michel, R., Handl, J., Ernst, T., Botsch, W., Szidat, S., Schmidt, A., Jakob, D., Beltz, D., Romantschuk, L. D., Synal, H. A., Schnabel, C. und López-Gutiérrez, J. M. (2005a), Iodine-129 in soils from Northern Ukraine and the retrospective dosimetry of the iodine-131 exposure after the Chernobyl accident, *Science of The Total Environment*, 340, 1-3, 35-55.

Michel, R. und Kirchhoff, K. (Eds.) (1999), *Nachweis-, Erkennungs- und Vertrauensgrenzen bei Kernstrahlungsmessungen*, Köln.

Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D., Vahlbruch, J., Synal, H.-A. und Schnabel, C. (2004), Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129, Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben StSch 4285, Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMU - 2004 - 650, ISSN 1612-6386.

Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D., Vahlbruch, J., Synal, H.-A. und Schnabel, C. (2005b), Long-lived Radionuclides in the Environment: On the Radioecology of Iodine-129, *Radioprotection* 269 pp.

Miyake, Y. und Tsunogai, S. (1963), Evaporation of iodine from the ocean, *Journal of Geophysical Research*, 68, 3989-3993.

Moore, R. M. und Zafiriou, O. C. (1994), Photochemical Production of Methyl-Iodide in Seawater, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 99, D8, 16415-16420.

Moran, J. E., Fehn, U. und Teng, R. T. D. (1998), Variations in $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component, *Chemical Geology*, 152, 193-203.

Moran, J. E., Oktay, S., Santschi, P. H. und Schink, D. R. (1999), Atmospheric Dispersal of ^{129}I from nuclear reprocessing facilities, *Environmental Science and Technology*, 33, 15, 2536-2542.

Muramatsu, Y. und Ohmomo, Y. (1988), Tracer Experiments for the Determination of Chemical Forms of Radioiodine in Water Samples, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 124, 123-134.

Muramatsu, Y., Ohmomo, Y. und Sumiya, M. (1988), Determination of iodine-129 and iodine-127 in environmental samples collected in Japan, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 123, 1, 181-189.

Muramatsu, Y. und Wedepohl, K. (1998), The distribution of iodine in the earth's crust, *Chemical Geology*, 147, 201.

- Muramatsu, Y., Yoshida, S., Fehn, U., Amachi, S. und Ohmomo, Y. (2004), Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment, *Journal of Environmental Radioactivity*, 74, 221-232.
- Nies, H., Goroncy, I., Herrmann, J., Michel, R., Daraoui, A., Jakob, D., Sachse, R., Tosch, L., Nielsen, S. P., Dawdall, M., Rudjord, A. L. und Gäfvert, T. (2008), Vorhaben StSch 4481, Kartierung von ^{99}Tc , ^{129}I und ^{127}I im Oberflächenwasser der Nordsee, edited by *al.*, I. B. e., Hamburg, BfS-SCHR-40/2006.
- Nies, H. und Kanisch, G. (2002), European Maritime Areas and Marine Fish, paper presented at Stakeholders' Conference on „Approaches to the Management of Environmental Radioactivity“, European Commission, Luxembourg, 2-3 December 2002.
- Nies, H., Obrikat, D. und Herrmann, J. (2000), Recent radionuclide concentrations in the North Sea as a result of discharges from nuclear installations, *Kerntechnik*, 65, 4, 195-200.
- Nord-Cotentin, G. R. (1999), Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires, Volume 1: Historique des rejets.
- O'Dowd, C. D. und Hoffmann, T. (2005), Coastal new particle formation: A review of the current state-of-the-art, *Environmental Chemistry*, 2, 4, 245-255.
- Oktay, S. D., Santschi, P. H., Moran, J. E. und Sharma, P. (2000), The 129iodine bomb pulse recorded in Mississippi River Delta sediments: results from isotopes of I, Pu, Cs, Pb, and C, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 64, 6, 989-996.
- Osterc, A. und Stibilj, V. (2008), 127I and 129I/127I isotopic ratio in marine alga *Fucus viridoides* from the North Adriatic Sea, *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 4, 757-765.
- Palmer, C. J., Anders, T. L., Carpenter, L. J., Kupper, F. C. und McFiggans, G. B. (2005), Iodine and halocarbon response of *Laminaria digitata* to oxidative stress and links to atmospheric new particle production, *Environmental Chemistry*, 2, 4, 282-290.
- Parker, T. (2001, May 11), pers. comm. with Schnabel, C.
- Paul, M., Fink, D., Hollos, G., Kaufman, A., Kutschera, W. und Mararitz, M. (1987), Measurement of iod-129 concentration in the environment after the Chernobyl reactor accident, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 29, 341-345.
- Pechtl, S., Schmitz, G. und von Glasow, R. (2007), Modelling iodide-iodate speciation in atmospheric aerosol: Contributions of inorganic and organic iodine chemistry, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 1381-1393.
- Rahn, K. A. e. a. (1976), Tropospheric halogen gases: inorganic and organic components, *Science*, 192, 549-550.

Raisbeck, G. M. (2002), Use of ^{129}I as an oceanographic tracer in the Nordic Seas, paper presented at 5th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic, St. Petersburg (Russia).

Raisbeck, G. M. und Yiou, F. (1999), ^{129}I in the oceans: origins and applications, *The Science of the Total Environment*, 237/238, 31-41.

Raisbeck, G. M., Yiou, F., Zhou, Z. Q. und Kilius, L. R. (1995), ^{129}I from nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer, *Journal of Marine Systems*, 6, 5/6, 561-570.

Raisbeck, G. M., Yiou, F., Zhou, Z. Q., Kilius, L. R. und Kershaw, P. J. (1997), Marine discharges of ^{129}I by the nuclear reprocessing facilities of La Hague and Sellafield, *Radioprotection*, 32, C2, 91-95.

Reifenhäuser, C. und Heumann, K. G. (1990), Development of a definitive method for iodine speciation in aquatic systems, *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry*, 336, 7, 559-563.

Roberts, M. und Caffee, M. W. (2000), ^{129}I interlaboratory comparison: Phase II results, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 172, 388-394.

Roberts, M. L., Caffee, M. W. und Proctor, I. D. (1997), ^{129}I interlaboratory comparison, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 123, 367-370.

Saiz-Lopez, A., Plane, J. M. C., McFiggans, G., Williams, P. I., Ball, S. M., Bitter, M., Jones, R. L., Hongwei, C. und Hoffmann, T. (2006), Modelling molecular iodine emissions in a coastal marine environment: the link to new particle formation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 883-895.

Santschi, P. H. und Schwehr, K. A. (2004), $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ as a new environmental tracer or geochronometer for biogeochemical or hydrodynamic processes in the hydrosphere and geosphere: the central role of organo-iodine, *Science of the Total Environment*, 321, 257-271.

Schall, C., Heumann, K. G. und Kirst, G. O. (1997), Biogenic volatile organoiodine and organobromine hydrocarbons in the Atlantic Ocean from 42 degrees N to 72 degrees S, *Fresenius Journal of Analytical Chemistry*, 359, 3, 298-305.

Schink, D. R., Santschi, P. H., Corapcioglu, O. und Fehn, U. (1995a), Prospects for "iodine-129 dating" of marine organic matter using AMS, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 99, 524-527.

Schink, D. R., Santschi, P. H., Corapcioglu, O., Sharma, P. und Fehn, U. (1995b), ^{129}I in Gulf of Mexico waters, *Earth and Planetary Science Letters*, 135, 1-4, 131-138.

Schmidt, A. (1998), Iod-129 und stabiles Iod in Umweltproben - Qualitätskontrolle von Analysemethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie, Dissertation, Universität Hannover.

Schmidt, A., Schnabel, C., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H.-A., Lopez, J. M. und Suter, M. (1998), On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography, *Science of the Total Environment*, 223, 2/3, 131-156.

Schnabel, C., Olive, V., Atarashi-Andoh, M., Dougans, A., Ellam, R. M., Freeman, S., Maden, C., Stocker, M., Synal, H., Wacker, L. und Xu, S. (2007), $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in Scottish coastal surface sea water: Geographical and temporal responses to changing emissions, *Applied Geochemistry, Halogens and Their Isotopes in Marine and Terrestrial Systems*, 22, 619-627.

Schwehr, K. A. und Santschi, P. H. (2003), Sensitive determination of iodine species, including organo-iodine, for freshwater and seawater samples using high performance liquid chromatography and spectrophotometric detection, *Analytica Chimica Acta*, 482, 59-71.

Shaw, T. I. (1959), The Mechanism of Iodide Accumulation by the Brown Sea Weed *Laminaria-Digitata* - the Uptake of I-131, *Proceedings of the Royal Society of London Series B-Biological Sciences*, 150, 940, 356-371.

Shaw, T. I. (1960), The Mechanism of Iodide Accumulation by the Brown Sea Weed *Laminaria-Digitata* .2. Respiration and Iodide Uptake, *Proceedings of the Royal Society of London Series B-Biological Sciences*, 152, 946, 109-117.

Solle, A. (2010), Gamma-Spektrometrie an Bodenproben von als Ackerland genutzten Auenflächen der Vereinigten Mulde, Diplomarbeit, Universität Hannover.

Stagg, R. M. (1998), The development of an international programme for monitoring the biological effects of contaminants in the OSPAR convention area, *Marine Environmental Research*, 46, 1-5, 307-313.

Stocker, M., Bertschinger, R., Dobeli, M., Grajcar, M., Jacob, S., Scheer, J., Suter, M. und Synal, H. A. (2004), Status of the PSI/ETH compact AMS facility, *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms*, 223, 104-108.

Stocker, M., Dobeli, M., Grajcar, M., Suter, M., Synal, H. A. und Wacker, L. (2005), A universal and competitive compact AMS facility, *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms*, 240, 1-2, 483-489.

Synal, H. A., Jacob, S. und Suter, M. (2000), The PSI/ETH small radiocarbon dating system, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 172, 1-4, 1-7.

Szidat, S. (2000), Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien, Dissertation, Universität Hannover.

Szidat, S., Schmidt, A., Handl, J., Jakob, D., Botsch, W., Michel, R., Synal, H., Schnabel, C., Suter, M., Lopez-Gutierrez, J. M. und Städe, W. (2000a), Iodine-129: Sample preparation, quality control and analyses of pre-nuclear materials and of natural waters from Lower Saxony, Germany, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 172*, 699-710.

Szidat, S., Schmidt, A., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H., Schnabel, C., Suter, M. und Lopez-Gutierrez, J. M. (2000b), RNAA and AMS of iodine-129 in environmental materials - comparison of analytical methods and quality assurance, *Kerntechnik 65*, 160-167.

Szidat, S., Schmidt, A., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H. und Suter, M. (2000c), Analysis of iodine-129 in environmental materials: Quality assurance and applications, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 244*, 45-50.

Thompson, A. M. und Zafiriou, O. C. (1983), Air-Sea Fluxes of Transient Atmospheric Species, *Journal of Geophysical Research-Oceans and Atmospheres, 88*, NC11, 6696-6708.

Truesdale, V. W. (1974), The chemical reduction of molecular iodine in seawater, *Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts, 21*, 9, 761-766.

Truesdale, V. W., Bale, A. J. und Woodward, E. M. S. (2000), The meridional distribution of dissolved iodine in near-surface waters of the Atlantic Ocean, *Progress In Oceanography, 45*, 3-4, 387-400.

Truesdale, V. W. und Jones, K. (2000), Steady-state mixing of iodine in shelf seas off the British Isles, *Continental Shelf Research, 20*, 14, 1889-1905.

Truesdale, V. W., Nausch, G. und Baker, A. (2001), The distribution of iodine in the Baltic Sea during summer, *Mar. Chem., 74*, 87-98.

Tsunogai, S. (1971), Iodine in Deep Water of Ocean, *Deep-Sea Research, 18*, 9, 913-919.

Ullman, W. J. und Aller, R. C. (1983), Rates of iodine remineralization in terrigenous near-shore sediments, *Geochim. Cosmochim. Acta, 47*, 8, 1423-1432.

UNSCEAR (1982), United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Report to the General Assembly of the United Nations.

Vogt, R. (1999), Iodine Compounds in the Atmosphere, in *Reactive Halogen Compounds in the Atmosphere*, edited, pp. 113-128.

Wedepohl, K. H. (1974), *Handbook of geochemistry*, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg.

- Wedepohl, K. H. (1995), The Composition of the Continental-Crust, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 59, 7, 1217-1232.
- Weise, K., Hubel, K., Rose, E., Schlager, M., Schrammel, D., Taschner, M. und Michel, R. (2006), Bayesian decision threshold, detection limit and confidence limits in ionising-radiation measurement, *Radiat. Prot. Dosim.*, 121, 1, 52-63.
- Weise, K. und Wöger, W. (1992), Eine Bayessche Theorie der Meßunsicherheit, in *PTB-Bericht N-11*, edited, Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig.
- Whitehead, D. C. (1984), The distribution and transformation of iodine in the environment, *Environment International*, 10, 321.
- Wong, G. T. F. (1991), The Marine Geochemistry of Iodine, *Reviews in Aquatic Sciences*, 4, 45-73.
- Wong, G. T. F. und Cheng, X.-H. (1998), Dissolved organic iodine in marine waters: Determination, occurrence and analytical implications, *Marine Chemistry*, 59, 271-281.
- Wong, G. T. F. und Cheng, X.-H. (2001), The formation of iodide in inshore waters from the photochemical decomposition of dissolved organic iodine, *Marine Chemistry*, 74, 1, 53-64.
- Yiou, F., Raisbeck, G. M., Christensen, G. C. und Holm, E. (2002), $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ and $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$ in the Norwegian coastal current from 1980 to 1998, *Journal of Environmental Radioactivity*, 60, 61-71.
- Yiou, F., Raisbeck, G. M., Zhou, Z. Q. und Kilius, L. R. (1994), ^{129}I from nuclear fuel reprocessing, potential as an oceanographic tracer, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 92, 436-439.

Anhang I: Probenparameter und Meßergebnisse

In diesem Teil des Anhangs werden die Ergebnisse der in dieser Arbeit untersuchten Wasserproben, Sedimente und Standardreferenzmaterialien zusammengefaßt. Die Daten sind überwiegend in zeitlicher Reihenfolge der Probennahmefahrten sortiert. Einige ergänzende Abbildungen visualisieren die analytischen Befunde. Zusätzlich befinden sich in diesem Teil des Anhangs die vom BSH bereitgestellten Ergebnisse über Cäsium-137 und Strontium-90 in der Ostsee.

Tabelle 37: Ergebnisse der ersten Beprobungsfahrt über die Deutsche Bucht vom 25.05. bis 05.06.2005, Gaußfahrt 440.

Name	Datum	Koordinaten		Tiefe	Sal.	T	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
Station		Breite	Länge	in m		in °C	in fg/g	in fg/g	in mBq/m ³	in mBq/m ³	in ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹
KS 11	25.05.2005	54,040	8,075	5		13,7	55,17	2,11	360,57	13,79	36,37	1,07	1493,55	72,03
MEDEM	25.05.2005	53,530	8,430	5	22,23	13,1	44,50	1,85	290,83	12,09	29,66	0,71	1477,00	70,76
Stade	25.05.2005	54,370	9,327	5	0,40	16,2	0,48	0,03	3,12	0,18	9,51	0,17	49,45	2,96
Elbe 1	26.05.2005	54,000	8,065	0	32,30		45,60	2,25	297,97	14,68	32,36	0,67	1387,13	74,00
Elbe 1	26.05.2005	54,000	8,065	5	32,30	11,6	55,35	2,16	361,74	14,14	33,75	0,53	1614,46	67,86
Elbe 1	26.05.2005	54,000	8,065	10	32,40		52,14	2,16	340,74	14,11	35,91	0,91	1429,45	69,32
Elbe 1	26.05.2005	54,000	8,065	20	32,50		48,75	2,31	318,58	15,08	30,97	1,63	1549,51	109,55
UFSDB	26.05.2005	54,107	7,260	5	33,60	11,7	40,99	1,78	267,85	11,66	35,32	0,64	1142,35	53,84
AMRU1	01.06.2005	54,300	8,100	5	30,30	13,5	54,87	2,15	358,59	14,06	32,27	0,94	1673,92	81,48
SYLT1	01.06.2005	55,000	8,000	5	31,30	12,8	45,33	1,83	296,21	11,93	32,85	0,80	1358,25	63,83
URST3	02.06.2005	55,000	6,470	5	34,10	11,4	27,29	1,47	178,31	9,63	38,03	0,63	706,29	39,88
NEFB	03.06.2005	54,200	5,400	5	34,00	12,1	16,63	1,25	108,67	8,17	39,89	0,68	410,39	31,64
NGW8	03.06.2005	54,200	6,470	0	33,70		38,69	1,74	252,82	11,37	36,13	0,96	1054,12	54,97
NGW8 ^{a)}	03.06.2005	54,200	6,470	5	33,70	12,0	40,44	1,80	264,30	11,76	38,91	0,94	1023,41	51,72
NGW8	03.06.2005	54,200	6,470	5	33,70	12,0	42,32	1,82	276,54	11,87	37,73	0,84	1104,09	53,34
NGW8	03.06.2005	54,200	6,470	10	33,70		38,88	1,61	254,08	10,50	34,30	1,39	1115,80	64,51
NGW8	03.06.2005	54,200	6,470	36	33,80		38,58	1,68	252,13	10,97	36,68	0,58	1035,56	47,89

a) Wasserprobe nach der Entnahme nicht mit NaOH versetzt.

Tabelle 37: Ergebnisse der ersten Beprobungsfahrt über die Deutsche Bucht vom 25.05. bis 05.06.2005, Gaußfahrt 440 (Fortsetzung).

Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 in ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
SWWBA	03.06.2005	54,400	5,300	0	34,50		6,13	1,20	40,05	7,87	40,72	0,83	148,19	29,25
SWWBA	03.06.2005	54,400	5,300	5	34,50	11,9	7,80	1,22	50,95	7,99	40,67	1,74	188,74	30,68
SWWBA	03.06.2005	54,400	5,300	10	34,50		7,50	0,26	49,01	1,68	39,44	1,31	187,18	8,93
SWWBA	03.06.2005	54,400	5,300	42	34,50		8,68	1,20	56,74	7,86	40,98	0,70	208,58	29,12
WBANK	03.06.2005	54,400	6,150	0	34,10		16,73	1,52	109,32	9,92	37,67	0,69	437,21	40,48
WBANK	03.06.2005	54,400	6,150	5	34,10	12,4	16,22	1,27	106,00	8,33	37,99	0,69	420,32	33,88
WBANK	03.06.2005	54,400	6,150	10	34,10		17,00	1,32	111,09	8,62	37,20	0,52	449,82	35,45
WBANK	03.06.2005	54,400	6,150	40	34,10		21,46	1,39	140,23	9,06	37,30	0,71	566,31	38,10
BRGRU	04.06.2005	53,565	6,120	5	33,30		34,35	1,59	224,47	10,41	37,29	0,82	906,77	46,51
BRIFF ^{a)}	04.06.2005	53,405	6,250	5	32,20	13,5	50,60	2,02	330,68	13,20	40,73	0,90	1222,97	55,63
BRIFF	04.06.2005	53,405	6,250	5	32,20	13,5	52,60	3,00	343,72	19,63	41,66	1,60	1243,01	85,55
NORDE	04.06.2005	53,480	7,100	5	31,90	13,9	69,48	2,52	454,07	16,46	38,37	0,84	1782,55	75,24
WESER	05.06.2005	53,510	8,000	5	32,00	14,3	73,92	2,67	483,06	17,45	40,29	0,80	1806,17	74,19

a) Wasserprobe nach der Entnahme nicht mit NaOH versetzt.

Tabelle 38: Ergebnisse der Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
1	STADE	10.08.2005	53,371	9,328	0	1,51	19,60	1,05	0,05	6,87	0,31	10,99	0,22	94,16	4,69
2	MEDEM-Reede	10.08.2005	53,525	8,437	0	20,92	17,50	43,13	1,78	281,86	11,65	29,15	0,99	1456,90	77,76
10	TSS of Texel	11.08.2005	52,599	4,000	0	34,86	16,70	32,20	1,33	210,46	8,70	34,13	0,92	928,88	45,84
14	Outer Gabbard	11.08.2005	51,599	2,000	0	34,69	18,00	31,33	1,30	204,71	8,47	36,30	1,01	849,59	42,37
901	östl.Falls Gap	12.08.2005	51,300	2,000	0	34,94	17,80	60,20	2,49	393,43	16,25	35,17	1,06	1685,32	86,20
902	Str. von Dover	12.08.2005	51,050	1,300	0	34,94	18,20	54,59	2,25	356,71	14,73	56,45	1,27	952,02	44,74
902	Str. von Dover	12.08.2005	51,050	1,300	0	34,94	18,20	53,69	2,22	350,88	14,49	56,45	1,27	936,45	44,01
903	O-Meridian	12.08.2005	50,300	0,000	0	35,11	17,50	79,11	3,27	516,99	21,34	41,47	1,78	1878,04	111,97
904	NE Casquettes	12.08.2005	50,200	-2,000	0	35,18	17,80	26,99	1,12	176,36	7,30	41,54	1,50	639,58	35,14
905	SSW-lich Start Point	13.08.2005	49,500	-4,000	0	35,32	19,00	1,82	0,09	11,91	0,58	42,83	0,70	41,89	2,16
906 ^{a)}	NW-lich Ouessant	13.08.2005	49,000	-6,000	0	35,30	19,60	0,51	0,04	3,31	0,27	37,90	0,73	13,16	1,12
906 ^{a)}	NW-lich Ouessant	13.08.2005	49,000	-6,000	0	35,30	19,60	0,58	0,04	3,80	0,29	41,49	1,96	13,79	1,23
906	NW-lich Ouessant	13.08.2005	49,000	-6,000	50	35,33	10,78	0,29	0,04	1,87	0,25	37,61	0,45	7,50	0,99
906 ^{a)}	NW-lich Ouessant	13.08.2005	49,000	-6,000	100	35,33	10,78	1,81	0,08	11,83	0,56	37,80	0,82	47,15	2,44
906 ^{a)}	NW-lich Ouessant	13.08.2005	49,000	-6,000	100	35,33	10,78	0,96	0,05	6,26	0,36	37,80	0,82	24,95	1,53
908	W-lich Guernsey	14.08.2005	49,300	-3,000	0	35,23	18,00	15,63	0,65	102,17	4,24	41,24	1,37	373,26	19,85
909	Cap de la Hague	14.08.2005	49,550	-1,599	0	35,12	17,90	76,18	3,14	497,82	20,55	39,81	0,93	1883,89	89,34

a) identische Probe, mehrfach aufgearbeitet.

Tabelle 38: Ergebnisse der Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005 (Fortsetzung I).

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
910	N-lich Le Havre	14.08.2005	50,000	0,000	0	34,76	17,60	129,07	5,33	843,44	34,80	39,72	0,80	3199,37	146,76
911	Cap Griz Nez	15.08.2005	50,500	1,300	0	34,66	18,90	90,78	3,75	593,25	24,49	42,54	1,01	2101,12	100,11
911	Cap Griz Nez	15.08.2005	50,500	1,300	20	34,69	18,21	89,38	3,69	584,07	24,11	40,44	0,89	2176,02	101,62
911	Cap Griz Nez	15.08.2005	50,500	1,300	33			89,23	3,68	583,13	24,07	39,31	1,05	2234,85	109,95
13	Bligh Bank	15.08.2005	51,422	2,514	0	34,40	18,50	71,41	2,95	466,63	19,27	33,33	1,05	2109,17	109,68
13	Bligh Bank	15.08.2005	51,422	2,514	36	34,42	17,59	70,55	2,91	461,04	19,03	32,08	0,96	2164,93	110,29
12	Maas Approach	15.08.2005	51,585	3,440	0	30,69	18,60	63,71	2,63	416,35	17,19	47,12	3,63	1331,00	116,37
11	Ijmuiden Appr.	15.08.2005	52,300	4,200	0	31,51	18,20	56,82	2,35	371,34	15,33	45,33	1,73	1234,13	69,37
15	Noord Hinder	16.08.2005	52,300	2,500	0	34,84	17,00	36,81	1,52	240,57	9,94	51,54	0,74	703,14	30,74
16	Dowsings	16.08.2005	53,200	1,400	0	34,71	16,20	2,53	0,11	16,55	0,74	35,66	0,39	69,93	3,21
46		17.08.2005	59,000	-1,300	0	35,29	14,20	0,77	0,05	5,04	0,32	48,53	1,07	15,66	1,05
46		17.08.2005	59,000	-1,300	45	35,28	11,41	0,48	0,04	3,12	0,27	45,80	1,02	10,25	0,92
46		17.08.2005	59,000	-1,300	97			0,28	0,04	1,85	0,24	41,42	0,78	6,72	0,90
53	E-lich Shetlands	17.08.2005	60,000	-0,300	0	35,31	13,60	0,27	0,04	1,78	0,24	44,71	0,85	5,99	0,83
53	E-lich Shetlands	17.08.2005	60,000	-0,300	60	35,37	9,33	0,27	0,04	1,77	0,25	46,02	1,02	5,79	0,81
53	E-lich Shetlands	17.08.2005	60,000	-0,300	120	35,37	8,10	0,22	0,04	1,43	0,24	45,61	1,09	4,71	0,80

Tabelle 38: Ergebnisse der Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005 (Fortsetzung II).

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
52	Bergenbanken	18.08.2005	60,000	2,000	0	34,02	13,70	4,50	0,19	29,43	1,25	40,02	0,67	110,78	5,07
51	E-lich Bergenbank	18.08.2005	60,000	4,300	0	33,00	13,80	9,32	0,39	60,90	2,54	39,77	0,84	230,69	10,77
51	E-lich Bergenbank	18.08.2005	60,000	4,300	100	35,23	7,82	1,72	0,08	11,24	0,53	44,89	1,12	37,74	2,02
51	E-lich Bergenbank	18.08.2005	60,000	4,300	250			1,47	0,07	9,63	0,47	43,09	1,39	33,66	1,98
50	w-lich Boknafjord	18.08.2005	59,000	4,290	0	32,58	14,80	13,65	0,57	89,23	3,71	40,52	0,52	331,72	14,42
50	w-lich Boknafjord	18.08.2005	59,000	4,290	100	35,29	8,23	0,90	0,05	5,86	0,34	45,00	0,84	19,62	1,21
50	w-lich Boknafjord	18.08.2005	59,000	4,290	230			1,36	0,07	8,87	0,45	43,38	0,83	30,81	1,66
49	Utsiragrunnen	19.08.2005	59,000	3,000	0	34,01	14,70	4,81	0,20	31,45	1,34	41,97	1,03	112,89	5,53
48		19.08.2005	59,000	1,000	0	33,87	14,80	2,83	0,10	18,52	0,65	44,43	1,28	62,78	2,86
47	E-lich Orkneys	19.08.2005	59,000	0,000	0	34,80	14,30	2,10	0,10	13,72	0,63	43,05	1,29	48,00	2,63
45	Bosies Bank	20.08.2005	57,595	-0,599	0	35,16	14,00	1,60	0,08	10,45	0,50	36,87	0,29	42,71	2,09
44	Andrew OilFiled	20.08.2005	57,599	1,301	0	35,17	14,20	1,87	0,12	12,19	0,78	57,38	2,12	32,00	2,37
43	Midtbanken	20.08.2005	58,000	3,000	0	33,16	15,30	7,60	0,32	49,68	2,08	34,60	0,59	216,32	9,78
42	Eigersundbanken	21.08.2005	58,000	4,598	0	32,55	15,20	11,13	0,46	72,72	3,03	35,15	0,51	311,66	13,75
41	SW-lich Listafjord	21.08.2005	58,000	6,000	0	30,87	17,10	10,81	0,45	70,63	2,94	48,88	0,61	217,70	9,46

Tabelle 38: Ergebnisse der Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005 (Fortsetzung III).

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
40	Skagerrak	21.08.2005	57,485	8,000	0	29,12	18,40	11,66	0,49	76,20	3,17	29,84	1,05	384,61	20,93
40	Skagerrak	21.08.2005	57,485	8,000	200	35,25	7,07	1,41	0,07	9,19	0,46	37,21	1,03	37,20	2,12
40 ^{a)}	Skagerrak	21.08.2005	57,485	8,000	512			2,21	0,10	14,43	0,67	43,80	0,55	49,62	2,40
40 ^{a)}	Skagerrak	21.08.2005	57,485	8,000	512			2,12	0,10	13,83	0,63	36,26	1,09	57,47	3,14
39 ^{a)}	Hanstholm	21.08.2005	57,000	7,580	0	31,45	16,80	8,91	0,29	58,24	1,93	35,60	0,96	246,46	10,53
39 ^{a)}	Hanstholm	21.08.2005	57,000	7,580	0	31,45	16,80	9,03	0,38	59,03	2,47	39,24	0,73	226,65	10,38
39	Hanstholm	21.08.2005	57,000	7,580	15	33,66	15,13	22,05	0,91	144,09	5,97	40,61	0,59	534,55	23,44
39	Hanstholm	21.08.2005	57,000	7,580	30			21,44	0,89	140,14	5,81	40,38	0,92	522,88	24,69
38		22.08.2005	57,000	6,000	0	33,00	16,70	7,47	0,25	48,84	1,64	36,88	0,97	199,51	8,51
37		22.08.2005	57,000	5,000	0	33,44	16,50	7,19	0,31	47,00	2,02	41,58	1,77	170,27	10,30
36		22.08.2005	56,599	3,304	0	33,31	16,10	6,54	0,28	42,72	1,85	41,67	1,78	154,44	9,40
35	Banff Plattform	22.08.2005	57,001	1,226	0	34,95	15,30	2,02	0,11	13,19	0,69	45,99	1,90	43,22	2,88
34 ^{a)}		23.08.2005	57,000	-1,000	0	34,97	13,80	2,78	0,13	18,18	0,88	44,44	1,82	61,62	3,89
34 ^{a)}		23.08.2005	57,000	-1,000	0	34,97	13,80	2,90	0,14	18,94	0,91	44,44	1,82	64,19	4,06
34 ^{a)}		23.08.2005	57,000	-1,000	0	34,97	13,80	2,78	0,14	18,14	0,89	44,44	1,82	61,50	3,91

a) identische Probe, mehrfach aufgearbeitet.

Tabelle 38: Ergebnisse der Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005 (Fortsetzung IV).

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
34 ^{a)}		23.08.2005	57,000	-1,000	39	34,98	12,10	2,64	0,13	17,26	0,85	44,31	1,78	58,69	3,73
34 ^{a)}		23.08.2005	57,000	-1,000	39	34,98	12,10	2,70	0,13	17,67	0,86	44,31	1,78	60,08	3,80
34 ^{a)}		23.08.2005	57,000	-1,000	39	34,98	12,10	2,87	0,14	18,74	0,90	44,31	1,78	63,71	3,99
34		23.08.2005	57,000	-1,000	70	34,98	12,09	3,29	0,15	21,50	1,01	44,05	1,80	73,52	4,56
33	Berwick Bank	24.08.2005	56,000	-1,000	0	34,87	15,00	2,82	0,10	18,45	0,65	45,99	1,36	60,44	2,79
32	Swallow Hole	24.08.2005	56,000	0,000	0	34,90	15,20	2,66	0,10	17,37	0,63	40,76	0,83	64,19	2,68
31	nördl.EastBank	24.08.2005	55,597	0,599	0	34,97	15,00	2,49	0,09	16,28	0,59	40,34	0,89	60,80	2,57
30	N-lich Dogger- bank	24.08.2005	56,000	2,000	0	34,90	15,40	2,62	0,09	17,14	0,61	40,67	0,89	63,51	2,67
29	N-lich Dogger- bank	24.08.2005	56,000	3,000	0	35,01	15,20	0,91	0,11	5,97	0,74	46,13	1,41	19,49	2,49
28a	Roar Gas Field/Ente2	25.08.2005	55,458	4,150	0	34,94	15,50	1,71	0,08	11,20	0,50	42,71	1,27	39,50	2,12
28	Coffee Soil	25.08.2005	56,000	5,000	0	34,73	16,00	6,25	0,27	40,81	1,78	39,65	1,79	155,07	9,72
27		25.08.2005	56,000	6,000	0	33,97	16,70	27,34	1,14	178,63	7,43	36,69	1,02	733,47	36,69
26	W-lich Ringkö- bing	25.08.2005	56,000	7,430	0	32,67	17,00	43,32	1,80	283,12	11,74	34,60	0,89	1232,74	60,14
25	Lister Tief	26.08.2005	55,000	8,150	0	30,81	17,60	55,13	2,28	360,28	14,93	34,33	0,98	1581,23	79,41
25	Lister Tief	26.08.2005	55,000	8,150	4	30,82	16,91	53,09	2,20	346,97	14,37	34,39	0,96	1519,80	75,77
25	Lister Tief	26.08.2005	55,000	8,150	14			53,82	2,23	351,69	14,58	35,78	0,99	1480,61	73,71

a) identische Probe, mehrfach aufgearbeitet.

Tabelle 38: Ergebnisse der Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005 (Fortsetzung V).

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
23	Sylt 2	26.08.2005	55,000	7,350	0	32,10	17,00	52,09	1,65	340,40	10,81	34,35	0,99	1493,04	63,96
22	Weisse Bank	26.08.2005	55,000	6,150	0	34,25	16,20	11,19	0,62	73,16	4,02	42,23	1,28	260,98	16,37
21	Nordschillgrund	26.08.2005	55,060	5,000	0	34,93	16,00	2,30	0,09	15,05	0,61	43,66	1,26	51,94	2,57
20	Elbow Spit	26.08.2005	55,000	4,000	0	34,99	15,80	1,94	0,08	12,65	0,54	44,51	1,39	42,80	2,25
19	Dogger Bank	27.08.2005	55,000	2,000	0	34,83	15,10	1,99	0,14	12,99	0,90	40,30	0,85	48,57	3,53
18	Barmada Bank	27.08.2005	55,000	0,000	0	34,80	15,80	2,84	0,11	18,59	0,70	45,51	1,32	61,54	2,93
17	Neptune Gas Field	27.08.2005	54,000	1,000	0	34,73	15,10	2,27	0,10	14,84	0,67	36,73	1,02	60,88	3,23
17	Neptune Gas Field	27.08.2005	54,000	1,000	40			2,19	0,10	14,28	0,65	36,36	1,11	59,18	3,24
9	Botney Cut	28.08.2005	54,000	3,000	0	34,98	15,60	1,90	0,09	12,43	0,58	37,89	0,65	49,45	2,45
8	VTG Friesland	28.08.2005	54,000	4,500	0	34,52	16,90	4,64	0,20	30,34	1,29	38,07	0,61	120,05	5,45
7	Borkumriffgrund	28.08.2005	54,000	6,250	0	33,91	17,70	41,47	1,71	271,02	11,20	31,53	1,09	1295,08	69,83
3	Tn.Elbe	29.08.2005	54,000	8,065	0	31,39	17,80	54,89	2,27	358,73	14,82	50,46	0,98	1070,95	48,87

Tabelle 39: Ergebnisse der Anschlußfahrt über die Deutsche Bucht vom 29.08.-05.09.2005, Gauß 446b.

Station	Name	Datum	Koordinaten		Tiefe	Sal.	T	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
Nr.	Station		Breite	Länge	in m		in °C	in fg/g	in fg/g	in Bq/m ³	in mBq/m ³	ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹
3	Elbe1	29.08.2005	54,000	8,060	0	30,47	17,90	55,29	2,28	361,31	14,92	36,92	1,17	1474,15	76,79
5	UFSDDB	30.08.2005	54,107	7,260	0	32,88	17,50	49,45	2,04	323,17	13,35	46,52	2,57	1046,62	72,24
8	AMRU1	30.08.2005	54,300	8,100	0	30,66	18,10	55,83	2,30	364,84	15,06	53,15	2,45	1034,14	64,01
14	SYLT1	31.08.2005	55,000	8,000	0	31,13	17,70	59,36	2,45	387,89	16,01	38,45	2,90	1519,94	130,52
16	URST3	01.09.2005	55,000	6,470	0	33,47	17,40	40,54	1,67	264,90	10,95	55,80	2,38	715,17	42,41
18	URST5	01.09.2005	55,230	6,151	0	34,35	16,70	17,29	0,72	113,01	4,70	49,53	2,02	343,73	20,00
27	WBANK	01.09.2005	54,400	6,150	0	34,38	16,70	12,70	0,53	82,97	3,48	43,08	3,58	290,13	26,98
23	ENTE1	02.09.2005	55,240	4,450	0	35,02		2,07	0,13	13,54	0,82	49,82	2,29	40,94	3,11
25	SWWBA	02.09.2005	54,400	5,300	0	34,71	16,90	3,59	0,17	23,48	1,14	44,35	2,62	79,75	6,09
26	NEFB	02.09.2005	54,200	5,400	0	34,57	17,60	8,17	0,35	53,36	2,28	47,39	3,88	169,62	15,66
30	NGW8	03.09.2005	54,200	6,470	0	33,56	17,90	40,47	1,67	264,46	10,93	43,82	2,24	909,22	59,76
35	BRGRU	03.09.2005	53,565	6,120	0	33,54	18,30	48,54	2,00	317,20	13,10	42,34	1,58	1128,56	62,71
36	BRIFF	04.09.2005	53,405	6,250	0	32,50	18,20	52,03	2,15	340,03	14,04	31,51	0,50	1625,52	71,81
37	NORDE	04.09.2005	53,480	7,100	0	32,20	18,30	52,13	2,15	340,66	14,07	34,65	0,69	1480,87	67,92
38	WESER	04.09.2005	53,509	8,000	0	31,60	18,30	55,33	2,28	361,56	14,93	28,45	0,60	1914,30	88,65

Tabelle 40: Ergebnisse der Nordatlantikbeprobungen durch das FS Polarstern vom 16.08.2005 bis 16.09.2005.

Station	Datum	Koordinaten		Tiefe	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
Nr.		Breite	Länge	in m	in fg/g	in fg/g	in mBq/m ³	in mBq/m ³	ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹
Nordatlantik 1	26.08.2005	78,4974	05,0144	2	0,53	0,02	3,44	0,15	37,97	0,63	13,64	0,59
Nordatlantik 2	26.08.2005	78,4974	05,0144	200	0,23	0,01	1,51	0,08	42,80	1,91	5,32	0,36
Nordatlantik 3	28.08.2005	78,2250	08,0284	11	0,60	0,03	3,92	0,20	42,50	1,86	13,91	0,93
Nordatlantik 4	06.09.2005	78,4998	-04,2004	10	1,11	0,05	7,23	0,30	40,89	1,95	26,65	1,69
Nordatlantik 5	06.09.2005	78,4998	-04,2004	200	0,63	0,03	4,10	0,17	37,14	0,91	16,63	0,81
Nordatlantik 6	10.09.2005	76,4913	-08,4914	11	0,40	0,02	2,59	0,11	37,94	0,75	10,30	0,49
Nordatlantik 7	11.09.2005	74,4839	01,5884	11	1,51	0,06	9,87	0,41	42,70	0,70	34,81	1,56
Nordatlantik 8	13.09.2005	69,3972	11,3708	11	1,23	0,001	8,02	0,003	44,20	1,02	27,33	0,13
Nordatlantik 9	14.09.2005	64,5772	06,1582	11	0,96	0,04	6,30	0,27	45,69	0,93	20,79	0,94
Nordatlantik 10	16.09.2005	59,5052	04,1340	11	8,43	0,36	55,12	2,34	49,21	1,08	168,75	7,70

Negative Vorzeichen des Längengrades stehen für westliche Länge.

Tabelle 41: Ergebnisse der Beprobungsfahrt über die Deutsche Bucht vom 18.11.05 bis 28.11.05 (Gauß 451).

Station	Name	Datum	Koordinaten		Tiefe	Sal.	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
Nr.	Station		Breite	Länge	in m		in fg/g	in fg/g	in mBq/m ³	in mBq/m ³	ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹
5	Elbe 1	19.11.2005	54,0000	8,0680	0	33,45	44,61	1,84	291,52	12,04	36,07	1,73	1217,66	77,03
18 ^{a)}	URST 5	22.11.2005	55,2300	6,1510	0	34,51	8,33	0,36	54,43	2,33	41,60	1,02	197,09	9,72
18 ^{a)}	URST 5	22.11.2005	55,2300	6,1510	0	34,51	7,90	0,34	51,65	2,22	41,60	1,02	187,01	9,24
20	Ente 3	23.11.2005	55,5500	3,2100	0	35,05	2,27	0,13	14,85	0,86	42,44	1,86	52,71	3,82
36	BRIFF	25.11.2005	53,4050	6,2500	0	32,89	65,05	2,68	425,08	17,55	39,57	1,53	1618,47	91,58

a) identische Probe, zweimal aufgearbeitet.

Tabelle 42: Ergebnisse der Beprobungsfahrt über die Irische See durch die Endeavour, Fahrt-Nr. 13/06 vom 23.06.06 bis 25.06.06.

Station	Datum	Koordinaten		Tiefe	Sal.	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
Nr.		Breite	Länge	in m		in fg/g	in fg/g	in mBq/m ³	in mBq/m ³	ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹
32	23.06.2006	54,1500	-03,3000	0	31,8	68,70	2,84	448,96	18,53	46,97	1,94	1440,00	83,95
33	24.06.2006	54,2500	-03,3400	0	31,3	123,41	5,09	806,46	33,27	47,70	2,57	2547,13	172,60
41	24.06.2006	54,3507	-03,4306	0	31,8	136,06	5,61	889,13	36,68	43,98	2,39	3045,88	207,99
43	25.06.2006	54,3800	-03,5000	0	33,3	31,89	1,32	208,41	8,62	49,85	0,68	629,87	27,43

Tabelle 43: Ergebnisse der Beprobungen von der schottischen Küste durch das ZSR vom 30.07.06 bis 06.08.06.

Lage der Probeentnahme	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
		Breite	Länge									
N von Oban	30.07.2006	56,2535	-05,2910	0	44,61	1,84	291,52	12,04	36,07	1,73	1217,66	77,03
SW von Maror, S von Mallaig	01.08.2006	56,5805	-05,5070	0	8,33	0,36	54,43	2,33	41,60	1,02	197,09	9,72
Ullapool, Ardveck House	06.08.2006	57,5430	-05,1067	0	7,90	0,34	51,65	2,22	41,60	1,02	187,01	9,24

Tabelle 44: Ergebnisse zweier Proben aus der Ostsee, Gaußfahrt Nr. 461 von Juni 2006.

Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
		Breite	Länge									
Arko 2	15.06.2006	54,5500	13,3000	0	1,05	0,10	6,83	0,66	9,69	0,74	106,25	13,07
Kibu 1	16.06.2006	54,3400	10,3400	0	4,51	0,21	29,49	1,36	19,37	1,09	229,33	16,65

Tabelle 45: Einzelprobe aus der Deutschen Bucht, Gaußfahrt 465 von Oktober 2006.

Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
		Breite	Länge									
Elbel	14.10.2006	54,0000	08,0680	0	56,33	2,33	368,14	15,20	35,15	1,08	1577,75	81,20

Tabelle 46: Ergebnisse exotischer Meer- und Oberflächenwasserproben sowie zweier Proben von Spitzbergen.

Art der Probe und Herkunft	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	T in °C	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
		Breite	Länge											
Oberflächenwasser Maui ^{a)}	25.07.1997	20,884	-159,519	0			0,002	0,001	0,010	0,008	3,297	0,091	0,471	0,366
Oberflächenwasser Maui ^{a)}	25.07.1997	20,8840	-159,5190	0			0,001	0,001	0,008	0,007	3,297	0,091	0,373	0,335
Meerwasser Maui	28.07.1997	20,3844	-156,2682	0			0,008	0,002	0,052	0,011	48,962	0,136	0,158	0,033
Meerwasser Ind. Ozean	26.10.2005	-6,35158	103,2357	0	34,4	3,2	0,014	0,004	0,089	0,025	41,553	0,578	0,322	0,089
Meerwasser Ind. Ozean	26.10.2005	-6,35158	103,2357	0	34,4	3,1	0,007	0,001	0,045	0,005	41,553	0,120	0,163	0,018
Meerwasser Spitz- bergen	05.09.2005	78,5688	11,5166	9			0,544	0,023	3,557	0,148	35,723	0,255	14,999	0,623
Meerwasser Spitz- bergen	05.09.2005	78,5688	11,5166	13			0,518	0,022	3,386	0,141	35,449	0,252	14,389	0,598
Flußwasser Nil Assuan ^{a)}	03.03.2004			0			0,007	0,002	0,046	0,011	8,532	0,241	0,814	0,192
Flußwasser Nil Assuan ^{a)}	03.03.2004			0			0,006	0,002	0,042	0,010	8,532	0,241	0,748	0,180

a) doppelte Aufarbeitungen identischer Proben.

Negative Breitengrade stehen für südliche Breite, negative Längengrade für westliche Länge.

Tabelle 47: Ergebnisse der Ostseebeobachtung durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007.

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	I-129 in fg/g	U (abs) in fg/g	Aktivitätskonz. in mBq/m ³	U (abs) in mBq/m ³	I-127 ng/g	U (abs) in ng/g	I-129/I-127 in 10 ⁻⁹	U (abs) in 10 ⁻⁹
1	WARNEM	12.06.2007	54,1803	12,0502	0	8,89	1,53	0,09	9,70	0,55	12,22	0,43	122,96	8,19
2	DARSS2	12.06.2007	54,3500	12,1952	0	8,14	1,25	0,08	7,91	0,49	13,33	0,40	91,97	6,37
3	ARKO1	12.06.2007	54,4498	12,4798	0	7,98	1,17	0,08	7,44	0,48	12,53	0,47	92,01	6,89
4	RUDEN	13.06.2007	54,1129	13,4588	0	6,42	1,15	0,07	7,28	0,48	14,06	0,26	80,23	5,46
5	ODER	13.06.2007	54,0042	14,1191	0	7,20	1,26	0,08	8,03	0,50	14,04	0,31	88,63	5,84
6	USEDOM	13.06.2007	54,0799	14,1001	0	7,05	1,08	0,07	6,89	0,47	11,73	0,28	90,98	6,53
7	ARKO4	13.06.2007	54,1500	14,0498	0	7,65	1,20	0,08	7,65	0,49	13,33	0,49	88,93	6,52
8	ARKO3	14.06.2007	54,3998	13,4498	0	8,01	1,24	0,08	7,86	0,49	12,43	0,41	98,04	6,93
9	ARKO2	14.06.2007	54,5508	13,2997	0	7,70	0,98	0,07	6,20	0,45	13,02	0,43	73,72	5,85
10	KOTN12	15.06.2007	54,2190	11,4498	0	9,86	2,24	0,11	14,22	0,70	14,94	0,46	147,50	8,56
11	FBELT2	15.06.2007	54,3055	11,2500	0	10,00	2,27	0,11	14,41	0,71	15,66	0,43	142,58	8,02
12	FBELT1	15.06.2007	54,3601	11,1305	0	10,71	2,82	0,13	17,91	0,84	16,70	0,58	166,18	9,70
13	KIBU2	15.06.2007	54,3498	10,5150	0	11,66	3,53	0,16	22,44	1,01	16,35	0,48	212,70	11,43
14	KIBU1	16.06.2007	54,3399	10,3392	0	12,44	4,12	0,18	26,19	1,16	17,73	0,58	228,90	12,57

Tabelle 47: Ergebnisse der Ostseebeobachtung durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007 (Fortsetzung).

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
			in fg/g	in fg/g			in mBq/m ³	in mBq/m ³	ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹		
15	KALKGR	16.06.2007	54,5000	09,5398	0	12,40	4,18	0,18	26,55	1,17	17,59	0,49	233,88	12,17
16	SCHLEI	16.06.2007	54,4000	10,0800	0	14,13	5,31	0,23	33,71	1,45	18,73	0,46	278,84	13,81
17	ECKFBU	16.06.2007	54,2785	09,5250	0	14,82	5,86	0,25	37,20	1,59	21,61	0,43	266,76	12,60
18	STOLGR	17.06.2007	54,3300	10,1200	0	14,32	5,12	0,22	32,54	1,41	21,58	0,56	233,62	11,75
19	LTKIEL	17.06.2007	54,3000	10,1736	0	14,13	5,32	0,23	33,79	1,46	18,50	0,51	283,08	14,52
20	KFOTN6	17.06.2007	54,2508	10,1205	0	14,87	6,21	0,27	39,45	1,68	25,22	0,55	242,33	11,60
21	HOWABU	17.06.2007	54,2510	10,4500	0	11,62	3,55	0,16	22,54	1,01	16,43	0,43	212,62	11,08
22	MEBU2	18.06.2007	54,1496	11,1498	0	9,71	1,76	0,09	11,16	0,60	14,00	0,40	123,47	7,46
23	NEUBU	18.06.2007	54,0297	10,5100	0	10,97	2,46	0,12	15,63	0,75	15,74	0,49	153,91	8,84
24	LUEBU	18.06.2007	54,0300	11,0400	0	10,42	2,00	0,10	12,68	0,65	13,88	0,38	141,59	8,20
25	MEBU1	18.06.2007	54,0700	11,2000	0	11,21	2,42	0,12	15,40	0,74	15,24	0,48	156,58	9,05
26	TROLGR	19.06.2007	54,1198	11,4050	0	10,20	1,69	0,09	10,76	0,58	13,15	0,41	126,83	7,93

Tabelle 48: ^3H , ^{90}Sr und ^{137}Cs in der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007.
Die Daten wurden freundlicherweise vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg bereitgestellt.

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	Cs-137	U (abs)	Sr-90	U (abs)	H-3	U (abs)
			Breite	Länge			in Bq/m ³	in Bq/m ³	in Bq/m ³	in Bq/m ³	in Bq/m ³	in Bq/m ³
1	WARNEM	12.06.2007	54,1803	12,0502	0	8,89	39,3	2,0			1,34	2,16
2	DARSS2	12.06.2007	54,3500	12,1952	0	8,14	40,7	1,5				
3	ARKO1	12.06.2007	54,4498	12,4798	0	7,98	40,6	1,5	9,9	2,2	1,33	2,14
4	RUDEN	13.06.2007	54,1129	13,4588	0	6,42	33,4	2,1				
5	ODER	13.06.2007	54,0042	14,1191	0	7,20	36,8	2,0				
6	USEDOM	13.06.2007	54,0799	14,1001	0	7,05	36,2	2,2	8,6	2,2	1,19	2,25
7	ARKO4	13.06.2007	54,1500	14,0498	0	7,65	38,5	1,7				
8	ARKO3	14.06.2007	54,3998	13,4498	0	8,01	39,6	1,2				
9	ARKO2	14.06.2007	54,5508	13,2997	0	7,70	42,0	2,0	9,8	1,8	1,21	2,25
10	KOTN12	15.06.2007	54,2190	11,4498	0	9,86	39,4	1,7	9,1	1,4	1,30	2,11
11	FBELT2	15.06.2007	54,3055	11,2500	0	10,00	37,8	2,0				
12	FBELT1	15.06.2007	54,3601	11,1305	0	10,71	36,5	1,8	9,0	0,9	1,32	2,08
13	KIBU2	15.06.2007	54,3498	10,5150	0	11,66	35,0	1,5				
14	KIBU1	16.06.2007	54,3399	10,3392	0	12,44	37,8	2,0				

Tabelle 48. ^3H , ^{90}Sr und ^{137}Cs in der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007.
Die Daten wurden freundlicherweise vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg bereitgestellt (Fortsetzung)

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	Cs-137 in Bq/m ³	U (abs) in Bq/m ³	Sr-90 in Bq/m ³	U (abs) in Bq/m ³	H-3 in Bq/m ³	U (abs) in Bq/m ³
15	KALKGR	16.06.2007	54,5000	09,5398	0	12,40	32,5	1,8	8,3	2,1	1,33	2,06
16	SCHLEI	16.06.2007	54,4000	10,0800	0	14,13	30,8	2,2	7,8	1,8	1,34	2,19
17	ECKFBU	16.06.2007	54,2785	09,5250	0	14,82	28,5	1,8				
18	STOLGR	17.06.2007	54,3300	10,1200	0	14,32	30,7	1,9				
19	LTKIEL	17.06.2007	54,3000	10,1736	0	14,13	29,8	1,5	8,2	2,4	1,30	2,17
20	KFOTN6	17.06.2007	54,2508	10,1205	0	14,87	27,2	1,6				
21	HOWABU	17.06.2007	54,2510	10,4500	0	11,62	35,3	1,4				
22	MEBU2	18.06.2007	54,1496	11,1498	0	9,71	39,8	1,2				
23	NEUBU	18.06.2007	54,0297	10,5100	0	10,97	36,8	1,4	8,9	1,5	1,23	2,24
24	LUEBU	18.06.2007	54,0300	11,0400	0	10,42	37,1	1,2				
25	MEBU1	18.06.2007	54,0700	11,2000	0	11,21	36,8	1,4				
26	TROLGR	19.06.2007	54,1198	11,4050	0	10,20	39,6	1,3				

Tabelle 49: Cäsium-137 im Tiefenwasser der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007. Die Daten wurden freundlicherweise vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg bereitgestellt.

Station Nr.	Name Station	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	Sal.	Cs-137 in Bq/m ³	U (abs) in Bq/m ³
			Breite	Länge				
1a	WARNEM	12.06.2007	54,1803	12,0502	13	13,91	33,8	2,1
2a	DARSS2	12.06.2007	54,3500	12,1952	16	15,00	36,6	1,6
3a	ARKO1	12.06.2007	54,4498	12,4798	14	7,98	40,6	2,0
4a	RUDEN	13.06.2007	54,1129	13,4588	6	7,06	30,9	1,9
5a	ODER	13.06.2007	54,0042	14,1191	6	7,29	32,3	1,7
6a	USEDOM	13.06.2007	54,0799	14,1001	8	7,38	37,4	2,1
7a	ARKO4	13.06.2007	54,1500	14,0498	9	7,84	36,7	1,4
8a	ARKO3	14.06.2007	54,3998	13,4498	26	8,08	41,7	2,1
9a	ARKO2	14.06.2007	54,5508	13,2997	43	10,37	41,7	2,0
10a	KOTN12	15.06.2007	54,2190	11,4498	20	18,67	30,8	1,8
11a	FBELT2	15.06.2007	54,3055	11,2500	24	18,90	26,7	2,2
12a	FBELT1	15.06.2007	54,3601	11,1305	24	20,64	25,5	2,2
13a	KIBU2	15.06.2007	54,3498	10,5150	15	15,64	31,5	2,3
14a	KIBU1	16.06.2007	54,3399	10,3392	13	12,71	35,0	2,1

Der Zusatz *a* an der Stationsnummer kennzeichnet Tiefenwasser.

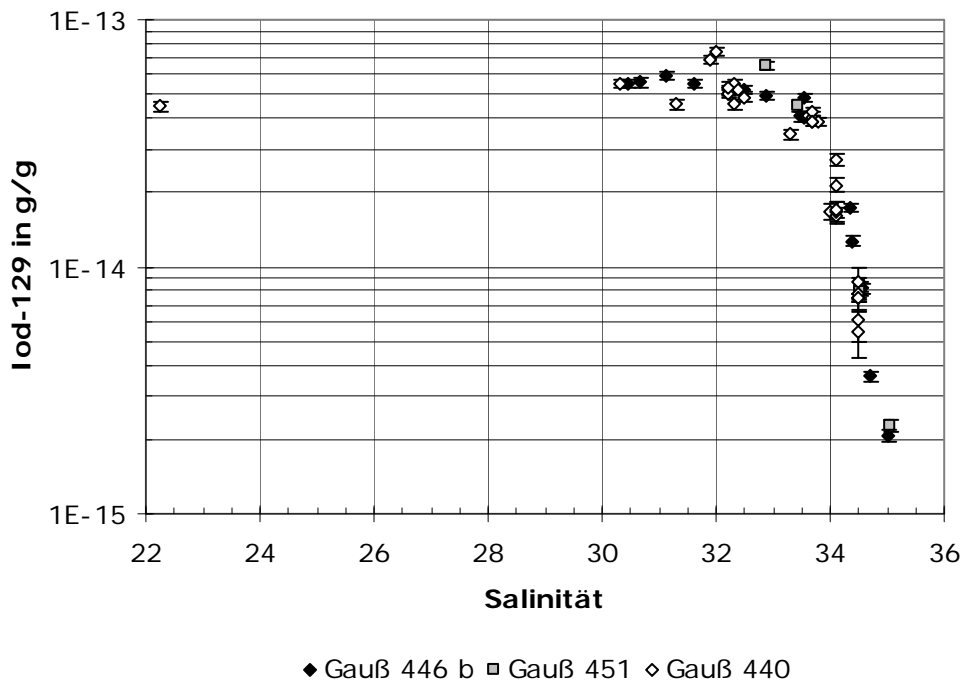
Tabelle 49: Cäsium-137 im Tiefenwasser der Ostsee, Probennahme durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007. Die Daten wurden freundlicherweise vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg bereitgestellt (Fortsetzung).

Station	Name	Datum	Koordinaten		Tiefe	Sal.	Cs-137	U (abs)
Nr.	Station		Breite	Länge	in m		in Bq/m ³	in Bq/m ³
15a	KALKGR	16.06.2007	54,5000	09,5398	22	16,66	27,7	1,8
16a	SCHLEI	16.06.2007	54,4000	10,0800	17	17,19	26,5	2,2
17a	ECKFBU	16.06.2007	54,2785	09,5250	17	18,83	25,5	2,3
18a	STOLGR	17.06.2007	54,3300	10,1200	14	15,17	30,3	1,8
19a	LTKIEL	17.06.2007	54,3000	10,1736	12	15,69	30,5	1,6
20a	KFOTN6	17.06.2007	54,2508	10,1205	11	15,78	29,3	1,6
21a	HOWABU	17.06.2007	54,2510	10,4500	13	16,24	31,1	1,4
22a	MEBU2	18.06.2007	54,1496	11,1498	16	15,47	31,6	1,5
23a	NEUBU	18.06.2007	54,0297	10,5100	16	14,92	31,9	1,5
24a	LUEBU	18.06.2007	54,0300	11,0400	20	14,98	32,9	1,4
25a	MEBU1	18.06.2007	54,0700	11,2000	13	12,44	34,9	1,4
26a	TROLGR	19.06.2007	54,1198	11,4050	19	16,92	30,0	2,0

Der Zusatz *a* an der Stationsnummer kennzeichnet Tiefenwasser.

Tabelle 50: Ergebnisse von zwei Einzelproben, die durch das ZSR und Frau Rita Land am 09.08.2008 auf Spiekeroog entnommen wurden.

Probe	Datum	Koordinaten		Tiefe in m	I-129	U (abs)	Aktivitätskonz.	U (abs)	I-127	U (abs)	I-129/I-127	U (abs)
		Breite	Länge		in fg/g	in fg/g	in mBq/m ³	in mBq/m ³	ng/g	in ng/g	in 10 ⁻⁹	in 10 ⁻⁹
Seeseite Spiekeroog	09.08.2008	53,4686	07,4163	0	74,84	3,19	489,11	20,82	51,55	1,63	1429,36	73,14
Wattseite Spiekeroog	09.08.2008	53,4579	07,4168	0	72,36	3,34	472,84	21,82	56,44	2,00	1262,04	64,34

Ergänzung zu den Beprobungen der Deutschen Bucht

Ergänzung zur großen Nordseereise

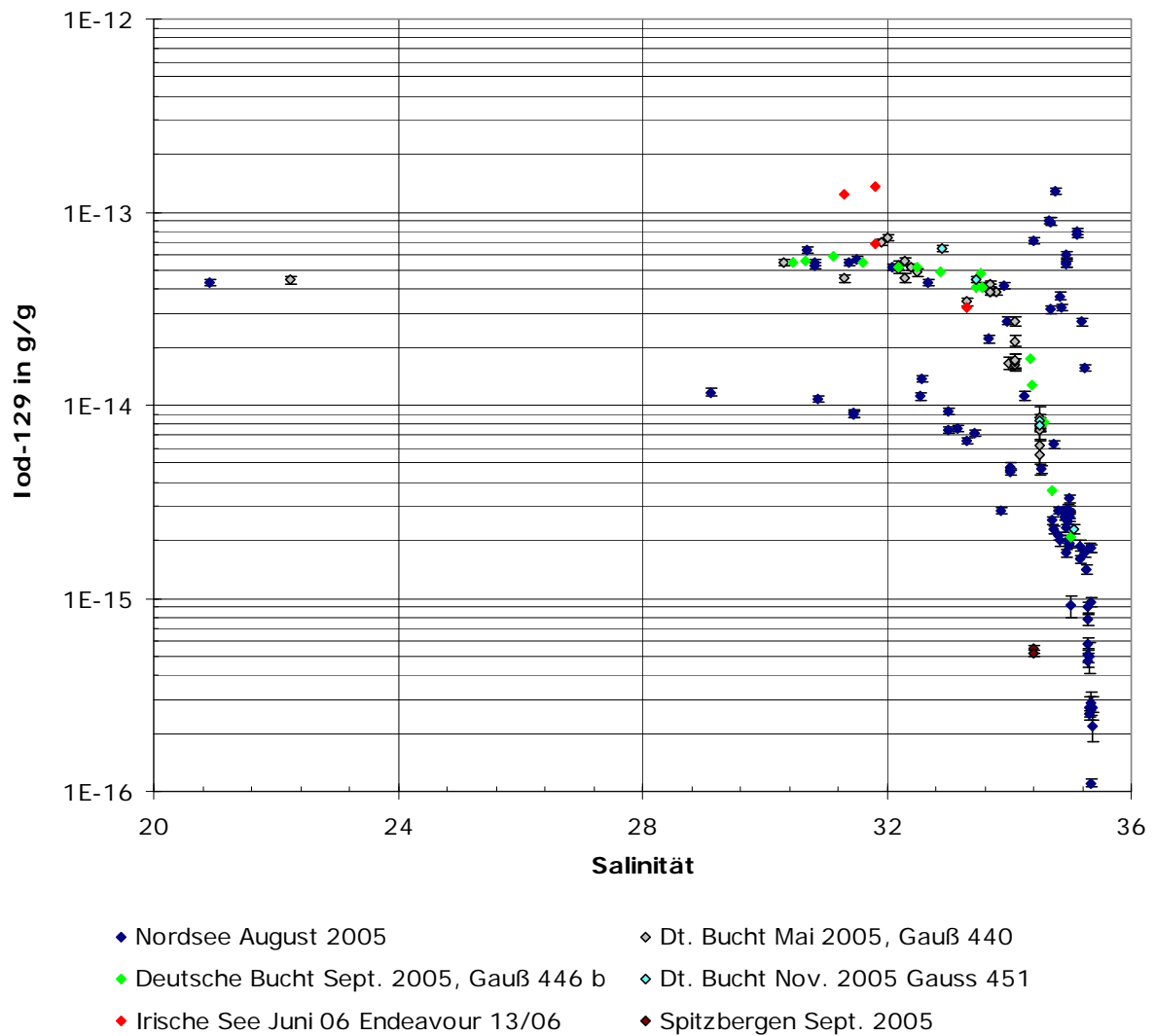


Abbildung 71: Auftragung der ^{129}I -Konzentrationen in g/g gegen die Salinitäten in der Nordsee, der Irischen See, dem Englischen Kanal, der Deutschen Bucht und von Wasserproben nahe Spitzbergen.

Ergänzende Meßergebnisse und Abbildungen zur Ostseebeprobung im Juni 2007

Die vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg bereitgestellten Aktivitätskonzentrationen des Cäsium-137 werden in Abbildung 72 visualisiert. Grundlage der Darstellung ist Tabelle 48.

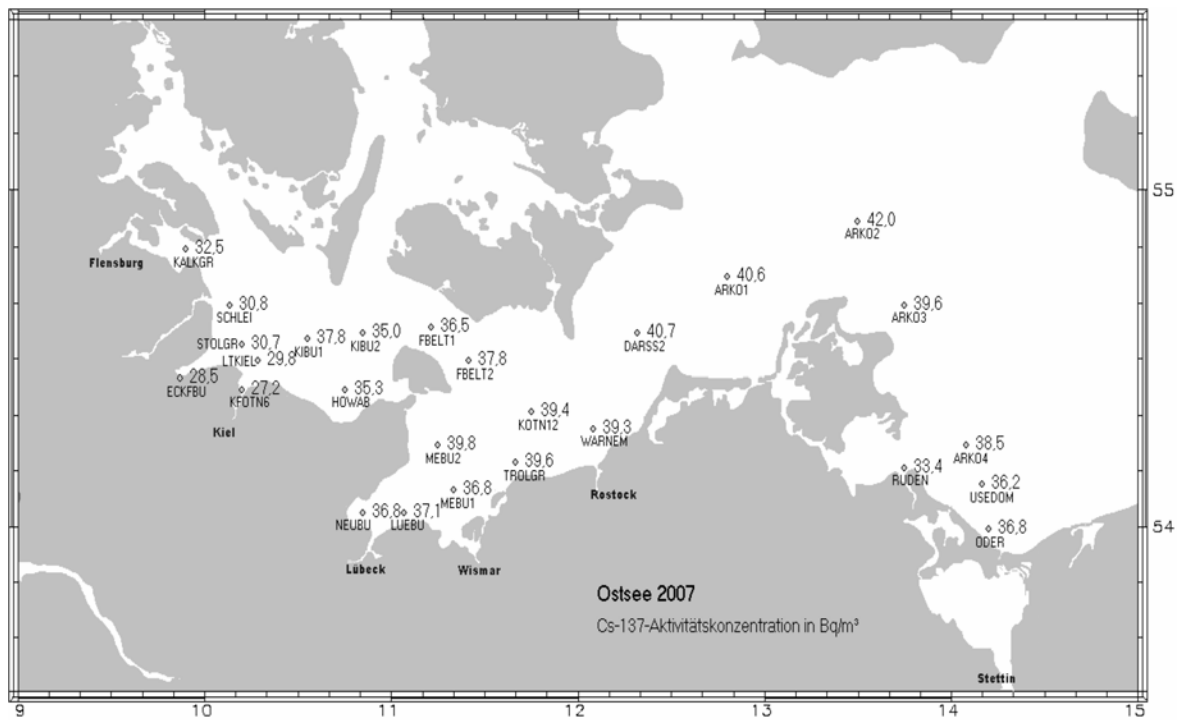


Abbildung 72: ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen im Oberflächenwasser der Ostsee. Die Probenahme erfolgte durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007.

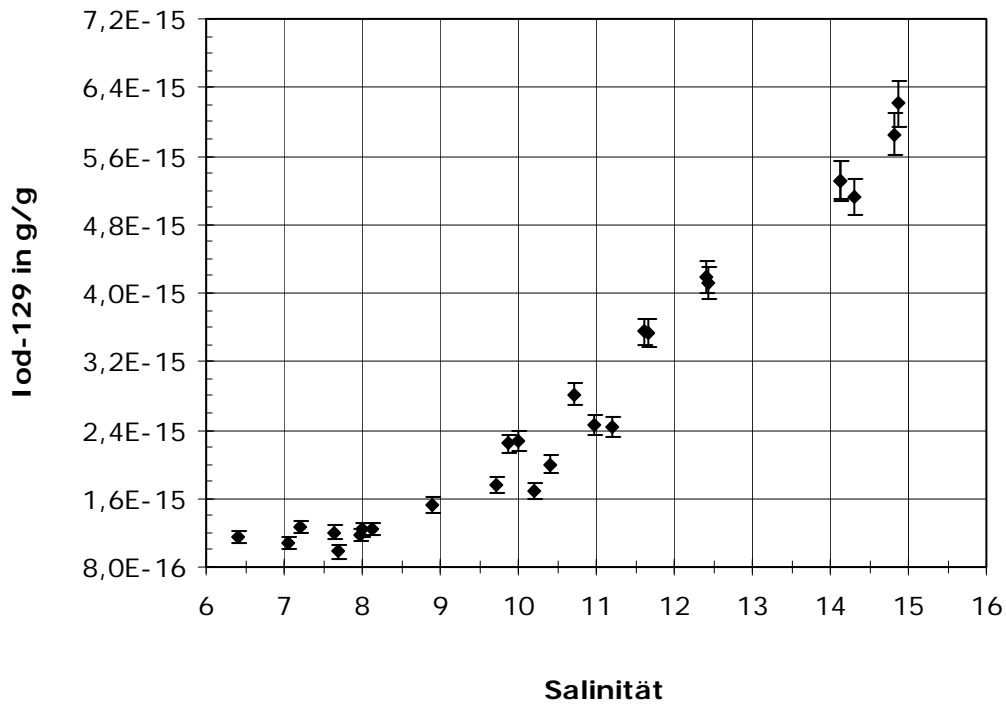


Abbildung 73: Auftragung der ^{129}I -Konzentrationen in g/g gegen die Salinitäten im Oberflächenwasser der Ostsee. Die Probenahme erfolgte durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007.

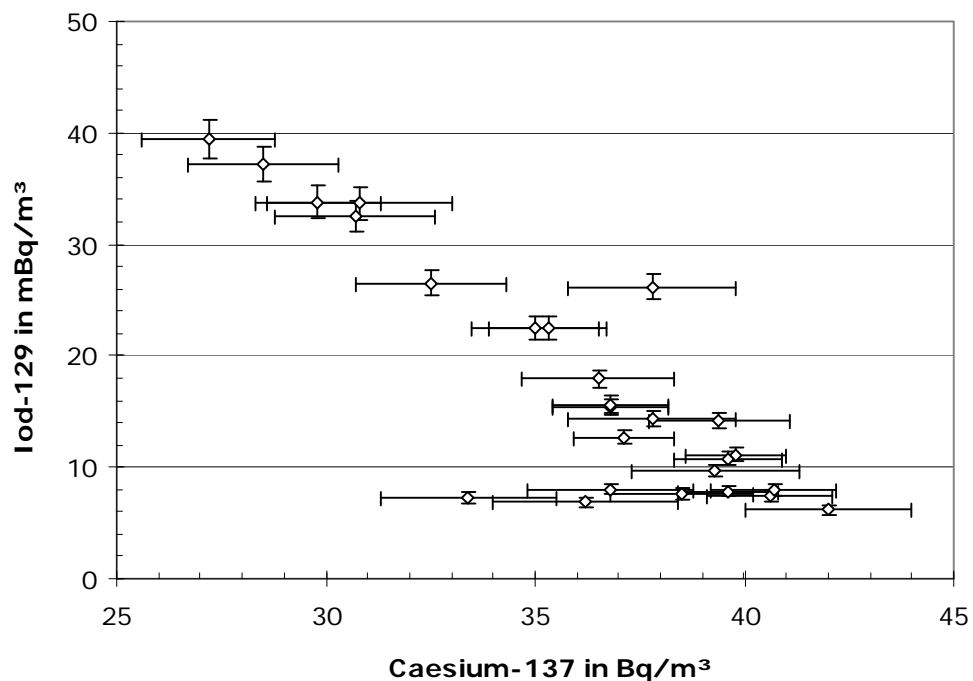


Abbildung 74: Auftragung der ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen in mBq/m³ gegen die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentrationen in Bq/m³ im Oberflächenwasser der Ostsee. Die Probenahme erfolgte durch das FS Deneb, Fahrt-Nr. 80 vom 12.06.2007 bis zum 19.06.2007.

Sedimentuntersuchungen und Standardreferenzmaterialien

Tabelle 51: Ergebnisse des Referenzmaterials „IAEA soil 375“. Der Referenzwert beträgt $1,7 \pm 0,4$ mBq/kg.

Nr. Standard	Iod-129/Iod-127	spezifische Aktivität
	in 10^{-8}	in mBq/kg
1	15,09 \pm 0,86	1,49 \pm 0,07
2	15,58 \pm 0,84	1,57 \pm 0,08
3	14,19 \pm 0,78	2,06 \pm 0,10
4	14,42 \pm 0,82	2,27 \pm 0,11

Tabelle 52: Ergebnisse des bei Station KS 11 am 25.05.2005 entnommenen Sedimentprofils.

Tiefe in cm	I-129/I-127 in 10^{-8}	U (abs) in 10^{-8}	I-127 in $\mu\text{g/g}$	U (abs) in $\mu\text{g/g}$	I-129 in pg/g	U (abs) in pg/g	Ausbeute in %
0-1	67,17	3,08	27,76	0,55	18,94	0,78	98,21
1-2	34,17	1,58	36,12	0,73	12,53	0,52	97,39
2-3	36,82	1,70	34,99	0,72	13,08	0,54	93,29
3-4	39,07	1,84	41,64	0,94	16,52	0,68	86,76
4-5	45,07	2,05	46,18	0,88	21,14	0,87	86,20
5-6	52,19	2,57	26,70	0,71	14,16	0,59	57,98
6-9	55,20	2,58	15,58	0,34	8,73	0,36	96,46
9-12	41,21	1,85	78,56	1,40	32,88	1,36	94,91
12-15	31,97	1,57	15,61	0,40	5,07	0,21	98,59
15-18	13,09	0,71	26,93	0,93	3,58	0,15	77,03
18-21	4,88	0,23	34,16	0,64	1,69	0,07	97,76
21-24	4,77	0,25	38,89	0,90	1,89	0,09	47,67
24-27	2,92	0,19	26,10	0,94	0,77	0,04	67,24
27-30	3,33	0,24	21,43	0,87	0,72	0,04	51,69
30-33	3,91	0,22	38,83	1,24	1,54	0,07	64,76
33-36	4,30	0,24	26,09	0,72	1,14	0,06	61,92
36-39	5,96	0,28	46,80	1,00	2,83	0,12	98,90
39-42	3,83	0,20	63,57	1,71	2,47	0,11	63,39
42-45	5,78	0,28	51,07	1,18	3,00	0,13	73,74
45-48	5,50	0,27	35,22	0,78	1,97	0,08	98,09

Tabelle 53: Ergebnisse der gammaspektrometrischen Sedimentuntersuchungen des bei Station KS 11 am 25.05.2005 entnommenen Sedimentprofils [Solle, 2010].

Tiefe	Cs-137	U (abs)	U(rel.)
in cm	in Bq/kg	in Bq/kg	in %
0-1	3,8	0,39	10,4
1-2	7,3	0,23	3,2
2-3	7,8	0,58	7,4
3-4	7,6	0,60	7,9
4-5	8,2	0,77	9,4
6-9	5,3	0,31	5,8
9-12	5,7	0,40	7,0
12-15	3,2	0,26	8,2
15-18	3,1	0,24	7,8
18-21	4,8	0,28	5,9
21-24	3,7	0,27	7,4
24-27	2,4	0,20	8,3
27-30	1,5	0,16	10,6
30-33	2,7	0,15	5,5
33-36	1,7	0,17	10,2
36-39	2,8	0,24	8,4
39-42	3,8	0,39	10,2
42-45	3,0	0,26	8,5
45-48	1,8	0,15	8,3

Vergleich der Ergebnisse dieser Arbeit mit denen von Hou et al. (2007)

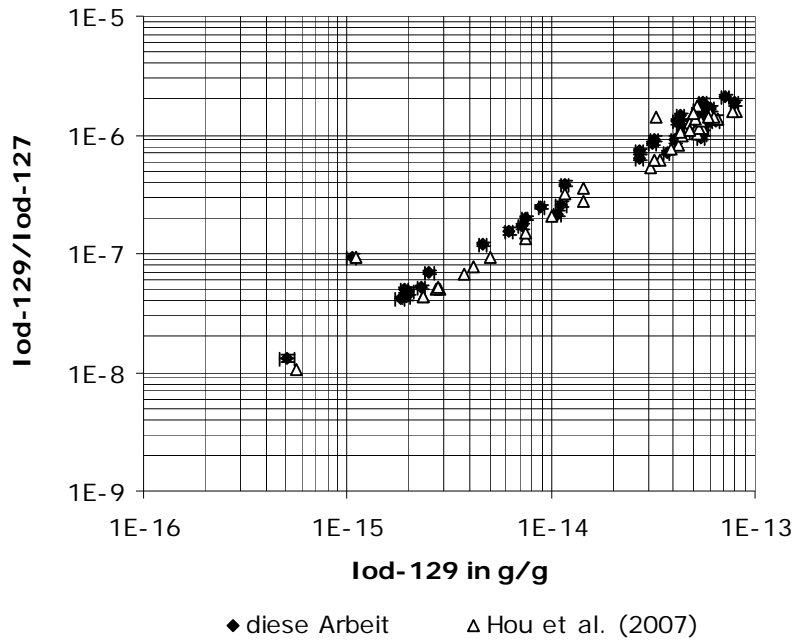


Abbildung 75: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{129}I -Konzentrationen in g/g nach Hou et al. [Hou et al., 2007] (Dreiecke) und nach Ergebnissen dieser Arbeit (ausgefüllte Rauten).

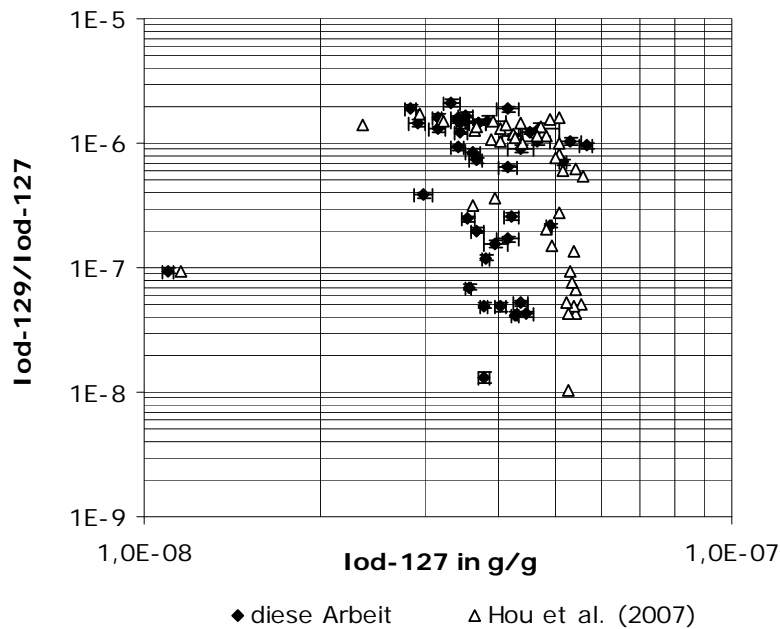


Abbildung 76: Auftragung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die ^{127}I -Konzentrationen in g/g nach Hou et al. [Hou et al., 2007] (Dreiecke) und nach Ergebnissen dieser Arbeit (ausgefüllte Rauten).

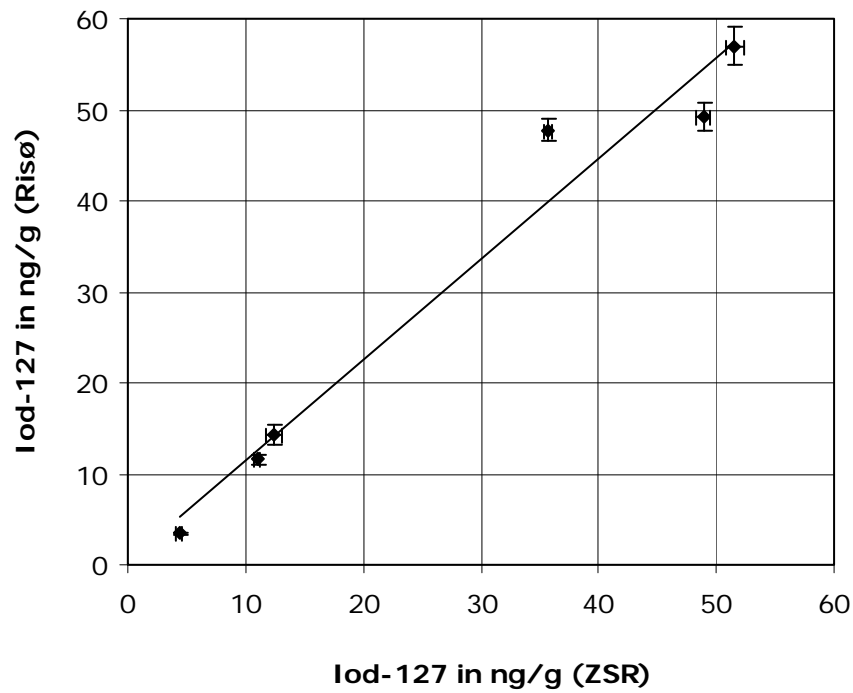
Ergebnisse des Proben austauschs mit dem RISØ

Abbildung 77: Vergleich von ^{127}I -Analysen identischer Wasserproben nach Ergebnissen des ZSR mit denen des RISØ. Ausgetauscht wurden Regen-, Brack-, Oberflächen- und Meerwasserproben.

Anhang II: Ergänzende Daten, Meßwerte und Abbildungen zum Strahlenschutzvorhaben 4481

Zuerst werden die Ergebnisse weiterer, anthropogener Radionuklide inklusive der Meßunsicherheiten zusammenfassend in Ergebnistabellen dargestellt. Diese Daten wurden auch im Strahlenschutzvorhaben 4481 diskutiert [Nies *et al.*, 2008]. Alle Wasserproben wurden an der Oberfläche entnommen. Die Koordinaten, Salinitäten und Temperaturen der jeweiligen Stationen sind in Anhang I zu entnehmen. Zuerst werden die Aktivitätskonzentrationen des ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , $^{239,240}\text{Pu}$ und des ^{238}Pu von der Nordseereise (Gauß 446 a, August 2005) und der Anschlußfahrt über die Deutsche Bucht (Gauß 446 b) präsentiert. Es schließen sich die Ergebnisse von ^{241}Am und ^3H an. Darüber hinaus wird ein Datensatz präsentiert, der Wassertiefen, Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte in verschiedenen Tiefen der beprobten Stationen umfaßt.

Weiteres, vom BSH zur Verfügung gestelltes Kartenmaterial liefert zusätzliche Aktivitätskonzentrationsverhältnisse und verdeutlicht die Eigenheiten des Meerwassers in Abhängigkeit der Salinitäten. Neben den Salinitäten in Oberflächen- und Tiefenwasser wurden vom BSH anschauliche Abbildungen angefertigt, die Querschnitte der Salinitäten entlang der Breitengrade zeigen.

Tabelle 54: Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , $^{239,240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 analysiert wurden [Nies et al., 2008]. Gaußfahrt Nr. 446 a vom 10.08.2005 bis zum 29.08.2005.

Station Nr.	Name Station	Datum	Cs-137 in Bq/m ³	U (rel) in %	Sr-90 in Bq/m ³	U (rel) in %	Tc-99 Bq/m ³	U (rel) in %	Pu-239,240 mBq/m ³	U (rel) in %	Pu-238 mBq/m ³	U (rel) in %
1	STADE	10.08.2005	2,1	12,9	4,1	2,5	0,28	0,03	22,8	5	5,3	9
2	MEDEM-Reede	10.08.2005	2,0	12,3	2,6	4,8	0,50	0,05	12,1	11	4,8	17
10	TSS of Texel	11.08.2005	2,7	6,8	1,4	5,5	0,43	0,04	4,7	9	1,9	14
14	Outer Gabbard	11.08.2005	4,7	5,5	1,9	5,0	0,76	0,08	10,0	8	4,8	11
901	östl.Falls Gap	12.08.2005	2,3	5,2	1,5	9,5	0,22	0,02	8,9	9	3,0	14
902	Str. von Dover	12.08.2005	3,3	7,7	2,2	3,9	0,25	0,03	7,3	9	3,6	13
903	O-Meridian	12.08.2005	2,3	11,3	1,5	13,0	0,10	0,01	7,7	9	4,7	11
904	NE Casquettes	12.08.2005	2,0	6,3	1,2	9,6	0,07	0,01	6,5	9	1,7	18
905	SSW-lich Start Point	13.08.2005	1,7	7,4	1,2	7,9	0,04	0,01	6,9	10	3,5	14
906	NW-lich Ouessant	13.08.2005	2,0	6,9	1,3	10,9	0,13	0,02	7,6	9	1,6	19
907	VTG-Ouessant	13.08.2005	2,0	4,3	1,2	5,2	0,06	0,01	6,2	10	1,8	18
908	W-lich Guernsey	14.08.2005	1,9	9,4	1,2	6,6	0,03	0,01	3,7	12	1,1	21
909	Cap de la Hague	14.08.2005	2,4	6,5	1,4	10,4	0,08	0,01	13,0	7	5,9	11
910	N-lich Le Havre	14.08.2005	2,6	7,2	1,5	5,3	0,55	0,05	12,1	7	5,4	11
911	Cap Griz Nez	15.08.2005	2,3	4,4	1,3	5,3	0,08	0,01	17,2	10	3,0	23
13	Bligh Bank	15.08.2005	2,2	6,5	1,4	5,0	0,18	0,02	6,2	9	3,5	12
12	Maas Approach	15.08.2005	2,1	10,0	1,5	7,5	0,16	0,02	6,2	9	1,3	20
11	Ijmuiden Appr.	15.08.2005	2,4	7,2	1,4	4,1	0,23	0,03	4,8	11	2,1	15
15	Noord Hinder	16.08.2005	2,6	6,6	1,5	3,1	0,34	0,04	10,3	11	6,1	14
16	Dowsings	16.08.2005	3,6	4,3	2,0	8,0	2,08	0,21	18,7	9	5,8	15

Tabelle 54: Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , $^{239,240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 analysiert wurden [Nies *et al.*, 2008]. Gaußfahrt Nr. 446 a vom 10.08.2005 bis zum 29.08.2005 (Fortsetzung I).

Station Nr.	Name Station	Datum	Cs-137 in Bq/m ³	U (rel) in %	Sr-90 in Bq/m ³	U (rel) in %	Tc-99 Bq/m ³	U (rel) in %	Pu-239,240 mBq/m ³	U (rel) in %	Pu-238 mBq/m ³	U (rel) in %
46		17.08.2005	1,9	11,5	1,2	11,0	< 0,2		6,3	8	2,5	12
53	E-lich Shetlands	17.08.2005	1,5	11,7	1,1	9,1	0,13	0,06	6,4	8	1,7	15
52	Bergenbanken	18.08.2005	3,3	7,2	1,5	5,3	0,40	0,06	5,8	9	0,7	24
51	E-lich Bergenbank	18.08.2005	5,7	5,2	2,0	2,4	1,26	0,16	10,6	7	1,7	17
50	w-lich Boknafjord	18.08.2005	6,0	5,2	2,3	4,0	< 0,1		12,5	7	2,3	14
49	Utsiragrunnen	19.08.2005	4,4	6,0	1,7	8,2	0,60	0,10	6,2	9	2,2	15
48		19.08.2005	3,9	4,2	1,8	7,0	0,75	0,11	4,7	8	1,7	13
47	E-lich Orkneys	19.08.2005	2,8	8,0	1,5	4,8	0,45	0,08	6,0	8	2,3	12
45	Bosies Bank	20.08.2005	2,6	6,0	1,5	6,8	0,70	0,11	10,5	7	4,7	11
44	Andrew OilFiled	20.08.2005	2,8	7,4	1,5	8,2	0,83	0,12	11,3	6	4,0	9
43	Midtbanken	20.08.2005	4,1	8,0	2,0	5,3	0,90	0,13	6,1	7	2,2	12
42	Eigersundbanken	21.08.2005	6,4	4,6	2,3	6,2	1,16	0,15	6,4	7	2,4	11
41	SW-lich Listafjord	21.08.2005	8,0	6,5	2,8	6,6	1,17	0,12	6,4	10	1,3	21
40	Skagerrak	21.08.2005	9,6	3,7	3,1	3,7	1,14	0,12	6,4	8	2,8	12
39	Hanstholm	21.08.2005	8,1	4,4	2,7	2,1	1,25	0,13	9,0	7	2,2	14
38		22.08.2005	5,7	7,3	2,3	5,7	1,18	0,12	8,3	9	1,2	24
37		22.08.2005	4,9	4,9	2,1	6,4	0,95	0,10	8,4	10	1,0	27
36		22.08.2005	4,3	4,8	2,0	5,2	1,02	0,18	9,1	8	2,0	16
35	Banff Plattform	22.08.2005	3,0	7,2	1,8	6,5	1,23	0,20	12,4	7	1,5	20
34		23.08.2005	3,0	4,9	1,8	7,6	1,43	0,21	32,1	5	9,8	8

Tabelle 54: Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , $^{239,240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 analysiert wurden [Nies *et al.*, 2008]. Gaußfahrt Nr. 446 a vom 10.08.2005 bis zum 29.08.2005 (Fortsetzung II).

Station Nr.	Name Station	Datum	Cs-137 in Bq/m ³	U (rel) in %	Sr-90 in Bq/m ³	U (rel) in %	Tc-99 Bq/m ³	U (rel) in %	Pu-239,240 mBq/m ³	U (rel) in %	Pu-238 mBq/m ³	U (rel) in %
33	Berwick Bank	24.08.2005	3,5	7,1	1,9	6,4	1,50	0,19	23,1	6	6,4	10
32	Swallow Hole	24.08.2005	3,3	5,6	1,9	6,5	1,51	0,18	19,5	5	7,6	8
31	nördl. East Bank	24.08.2005	3,1	8,0	1,8	4,5	1,50	0,20	18,7	5	4,1	10
30	N-lich Doggerbank	24.08.2005	3,1	6,5	1,9	4,5	1,52	0,18	17,4	5	4,5	9
29	N-lich Doggerbank	24.08.2005	2,9	6,2	1,5	4,4	1,26	0,16	13,2	6	2,4	12
28a	Roar Gas Field/Ente2	25.08.2005	3,5	7,2	1,7	7,4	1,35	0,14	12,2	6	2,8	11
28	Coffee Soil	25.08.2005	3,2	8,1	2,0	6,9	1,32	0,13	9,4	8	3,2	13
27		25.08.2005	3,7	9,1	1,8	4,4	1,21	0,12	7,1	7	3,5	10
26	W-lich Ringköbing	25.08.2005	2,8	6,3	1,8	3,1	0,82	0,08	4,0	9	1,6	14
25	Lister Tief	26.08.2005	2,7	9,5	1,9	5,2	0,52	0,05	6,6	9	3,1	12
23	Sylt 2	26.08.2005	2,8	5,7	1,7	3,8	0,49	0,05	5,6	8	0,8	20
22	Weisse Bank	26.08.2005	3,9	6,0	1,9	6,7	1,94	0,19	6,5	8	2,7	13
21	Nordschillgrund	26.08.2005	3,2	6,5	1,8	4,2	1,94	0,20	10,6	6	3,5	11
20	Elbow Spit	26.08.2005	3,0	10,3	1,6	6,0	1,82	0,18	11,1	7	6,0	9
19	Dogger Bank	27.08.2005	3,4	5,7	1,8	4,7	1,89	0,19	17,7	6	6,0	9
18	Barmada Bank	27.08.2005	3,4	5,0	2,1	5,0	2,07	0,25	16,8	6	6,6	9
17	Neptune Gas Field	27.08.2005	3,2	4,8	1,9	5,1	1,94	0,22	11,2	8	4,3	12
9	Botney Cut	28.08.2005	3,2	7,2	1,7	9,8	1,24	0,13	8,2	11	6,0	13
8	VTG Friesland	28.08.2005	4,2	6,1	1,9	4,6	1,74	0,18	8,9	17	2,9	30
7	Borkumriffgrund	28.08.2005	2,5	4,4	1,5	8,9	0,36	0,04	6,1	12	1,6	23
3	Tn. Elbe	29.08.2005	2,7	7,2	1,9	4,0	0,48	0,05	5,8	17	2,4	25

Tabelle 55: Aktivitätskonzentrationen von ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , $^{239,240}\text{Pu}$ und ^{238}Pu im Oberflächenwasser der Deutschen Bucht, die im Rahmen Strahlenschutzvorhabens 4481 analysiert wurden [Nies et al., 2008]. Gauffahrt Nr. 446 b vom 29.08.2005 bis zum 05.09.2005.

Name	Datum	Cs-137	U (rel)	Sr-90	U (rel)	Tc-99	U (rel)	Pu-239,240	U (rel)	Pu-238	U (rel)
Station		in Bq/m ³	in %	in Bq/m ³	in %	Bq/m ³	in %	mBq/m ³	in %	mBq/m ³	in %
Elbe1	29.08.2005	2,6	6,4	1,8	3,5	0,48	0,05	3,8	9	1,2	15
UFSDB	30.08.2005	2,5	5,4	1,7	3,2	0,66	0,07	6,7	8	4,2	10
AMRU1	30.08.2005	3,2	10,0	1,9	7,0	0,49	0,05	4,0	9	2,2	12
SYLT1	31.08.2005	2,6	5,7	1,9	4,9	0,46	0,05	3,0	10	1,0	17
URST3	01.09.2005	3,0	5,6	1,7	6,0	0,76	0,08	4,4	10	1,5	16
URST5	01.09.2005	4,0	4,1	1,9	5,0	1,75	0,18	4,1	10	1,7	15
WBANK	01.09.2005	4,0	6,8	2,0	4,1	1,84	0,18	6,9	8	1,5	17
ENTE1	02.09.2005	2,9	7,6	1,6	5,8	1,50	0,15	12,6	6	2,9	12
SWWBA	02.09.2005	4,4	6,8	1,9	6,5	2,61	0,26	5,5	10	2,1	15
NEFB	02.09.2005	4,8	5,5	1,9	4,8	2,08	0,21	4,1	16	1,6	25
NGW8	03.09.2005	3,2	7,4	1,7	5,5	0,49	0,05	4,2	9	1,6	15
BRGRU	03.09.2005	2,0	8,3	1,6	3,7	0,24	0,03	4,3	8	2,2	11
BRIFF	04.09.2005	2,1	7,2	1,6	5,5	0,20	0,02	6,1	15	2,6	23
NORDE	04.09.2005	3,0	10,7	1,8	2,8	0,38	0,04	6,2	18	2,3	29
WESER	04.09.2005	2,4	6,7	1,9	7,3	0,54	0,06	10,6	13	4,8	20

Tabelle 56: Aktivitätskonzentrationen von ^3H und ^{241}Am im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 analysiert wurden [Nies et al., 2008]. Gaußfahrt Nr. 446 a vom 10.08.2005 bis zum 29.08.2005.

Station Nr.	Name Station	Datum	Am-241 in mBq/m ³	U (rel) in %	H-3 in Bq/l	U (rel) in %
1	STADE	10.08.2005	20,9	7	2,6	1,4
2	MEDEM-Reede	10.08.2005	9,8	9	4,7	1,0
10	TSS of Texel	11.08.2005	2,3	13	2,1	1,6
14	Outer Gabbard	11.08.2005	9,2	8	2,6	1,4
901	östl.Falls Gap	12.08.2005	3,6	13	4,7	1,0
902	Str. von Dover	12.08.2005	6,7	8	4,4	1,0
903	O-Meridian	12.08.2005	4,1	10	4,9	0,9
904	NE Casquettes	12.08.2005	2,1	14	2,0	1,7
905	SSW-lich Start Point	13.08.2005	3,3	23	0,3	7,1
906	NW-lich Ouessant	13.08.2005	1,2	17	0,2	8,8
907	VTG-Ouessant	13.08.2005	2,9	11	0,1	20,2
908	W-lich Guernsey	14.08.2005	2,6	13	1,2	1,7
909	Cap de la Hague	14.08.2005	4,2	9	4,7	0,7
910	N-lich Le Havre	14.08.2005	8,1	7	7,5	0,5
911	Cap Griz Nez	15.08.2005	5,6	18	5,8	0,9
13	Bligh Bank	15.08.2005	2,7	16	5,0	0,9
12	Maas Approach	15.08.2005	2,3	12	4,9	0,9
11	Ijmuiden Appr.	15.08.2005	2,0	15	4,6	1,0
15	Noord Hinder	16.08.2005	1,9	16	2,7	1,3
16	Dowsings	16.08.2005	3,2	17	0,4	5,0
46		17.08.2005	2,9	11	0,1	19,7
53	E-lich Shetlands	17.08.2005	3,7	22	0,1	14,9
52	Bergenbanken	18.08.2005	3,5	9	0,5	4,4
51	E-lich Bergenbank	18.08.2005	3,0	10	0,9	2,5
50	w-lich Boknafjord	18.08.2005	2,7	11	1,1	2,5
49	Utsiragrunnen	19.08.2005	3,7	10	0,5	4,2
48		19.08.2005	1,6	12	0,6	3,8
47	E-lich Orkneys	19.08.2005	1,5	19	0,3	7,4
45	Bosies Bank	20.08.2005	3,4	10	0,2	9,8
44	Andrew OilFiled	20.08.2005	1,8	12	0,2	9,6
43	Midtbanken	20.08.2005	1,5	13	0,8	2,9
42	Eigersundbanken	21.08.2005	2,7	11	1,0	2,4
41	SW-lich Listafjord	21.08.2005	2,5	15	1,3	2,1
40	Skagerrak	21.08.2005	1,4	19	1,2	2,2
39	Hanstholm	21.08.2005	2,1	14	0,9	2,8
38		22.08.2005	2,5	12	0,9	2,9
37		22.08.2005	1,3	21	0,7	3,4
36		22.08.2005	2,6	14	0,7	3,6
35	Banff Plattform	22.08.2005	3,3	19	0,2	8,0
34		23.08.2005	3,4	13	0,2	10,0
33	Berwick Bank	24.08.2005	3,4	12	0,2	8,7
32	Swallow Hole	24.08.2005	4,2	10	0,3	7,6
31	nördl.EastBank	24.08.2005	3,3	13	0,3	8,2
30	N- lich Doggerbank	24.08.2005	2,9	10	0,2	10,1

Tabelle 56: Aktivitätskonzentrationen von ^3H und ^{241}Am im Oberflächenwasser der Nordsee und des Englischen Kanals, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 analysiert wurden [Nies et al., 2008]. Gaußfahrt Nr. 446 a vom 10.08.2005 bis zum 29.08.2005 (Fortsetzung).

Station Nr.	Name Station	Datum	Am-241 in mBq/m ³	U (rel) in %	H-3 in Bq/l	U (rel) in %
29	N-lich Doggerbank	24.08.2005	2,3	11	0,2	11,4
28a	Roar Gas Field/Ente2	25.08.2005	3,1	10	0,2	8,3
28	Coffee Soil	25.08.2005	2,5	13	0,6	4,3
27		25.08.2005	2,5	10	2,2	1,5
26	W-lich Ringköbing	25.08.2005	2,2	17	3,9	1,1
25	Lister Tief	26.08.2005	4,2	9	4,5	1,0
23	Sylt 2	26.08.2005	2,7	10	4,3	1,1
22	Weisse Bank	26.08.2005	4,0	22	1,2	2,2
21	Nordschillgrund	26.08.2005	5,2	19	0,3	7,0
20	Elbow Spit	26.08.2005	4,3	20	0,3	7,8
19	Dogger Bank	27.08.2005	6,0	17	0,3	6,2
18	Barmada Bank	27.08.2005	2,9	12	0,4	6,0
17	Neptune Gas Field	27.08.2005	1,4	18	0,4	6,1
9	Botney Cut	28.08.2005	4,0	13	0,2	9,9
8	VTG Friesland	28.08.2005	5,5	18	0,6	4,0
7	Borkumriffgrund	28.08.2005	3,5	21	2,9	1,3
3	Tn.Elbe	29.08.2005	3,6	25	4,0	1,1

Tabelle 57: Aktivitätskonzentrationen von ^3H und ^{241}Am im Oberflächenwasser der Deutschen Bucht, die im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 bestimmt wurden [Nies et al., 2008]. Gaußfahrt 446 b vom 29.08.2005 bis zum 04.09.2005.

Name Station	Datum	Am-241 in mBq/m ³	U (rel) in %	H-3 in Bq/l	U (rel) in %
Elbe1	29.08.2005	2,8	10	4,1	1,0
UFSDB	30.08.2005	2,3	11	3,6	1,2
AMRU1	30.08.2005	2,5	10	4,5	1,0
SYLT1	31.08.2005	2,8	9	4,7	1,0
URST3	01.09.2005	4,3	11	2,9	1,2
URST5	01.09.2005	2,2	10	1,4	2,1
WBANK	01.09.2005	4,6	27	1,1	2,5
ENTE1	02.09.2005	1,9	16	0,2	8,0
SWWBA	02.09.2005	1,0	21	0,4	5,1
NEFB	02.09.2005	1,2	25	0,8	3,4
NGW8	03.09.2005	1,7	12	3,3	1,3
BRGRU	03.09.2005	3,9	9	3,4	1,2
BRIFF	04.09.2005	2,7	22	3,7	1,1
NORDE	04.09.2005	2,8	15	3,7	1,1
WESER	04.09.2005	8,4	13	4,1	1,1

Weitere Aktivitätskonzentrationsverhältnisse: Ergänzung zu Abschnitt 9.3

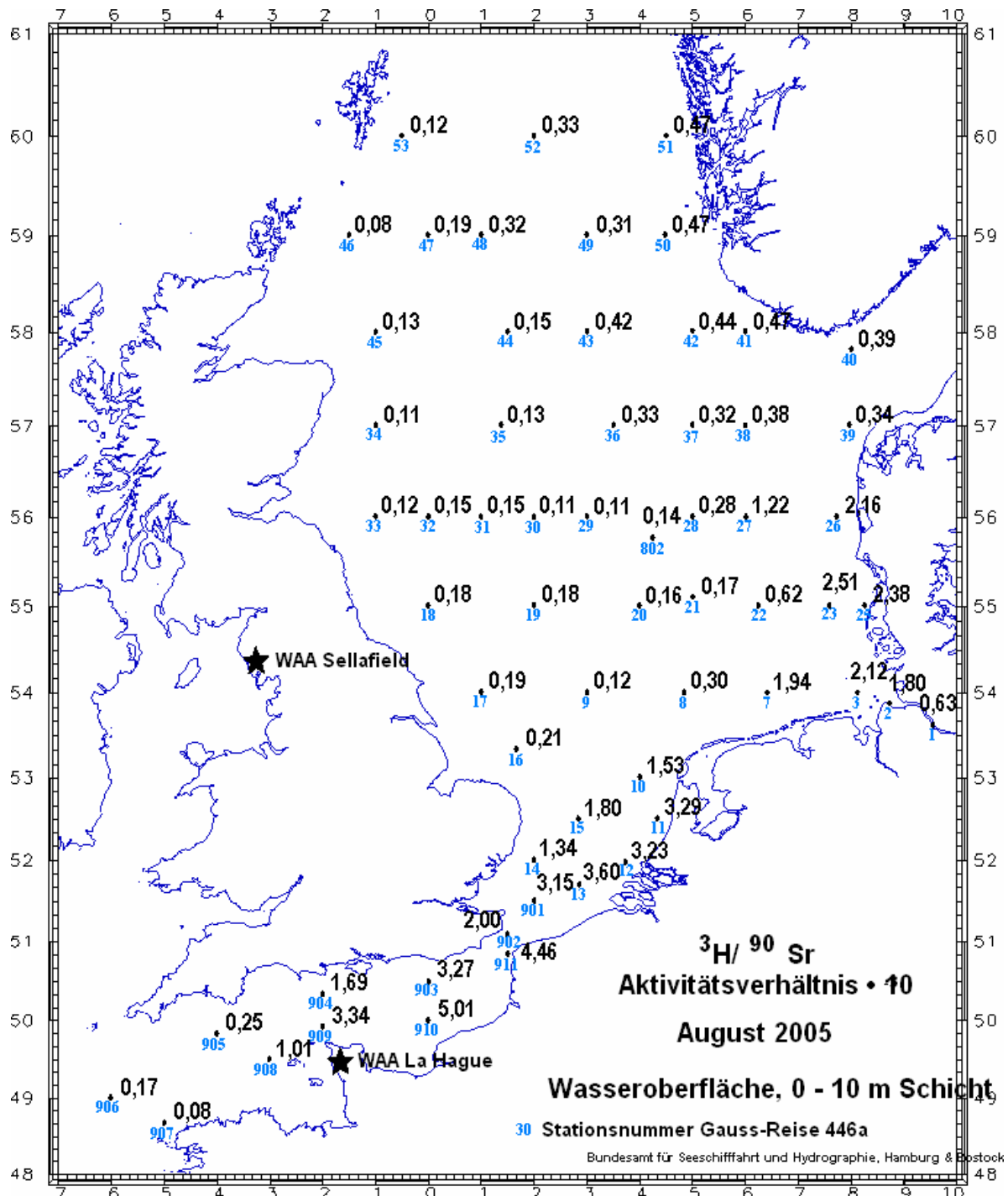


Abbildung 78: $^3\text{H}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in 10^{-3} im Oberflächenwasser der Nordsee, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

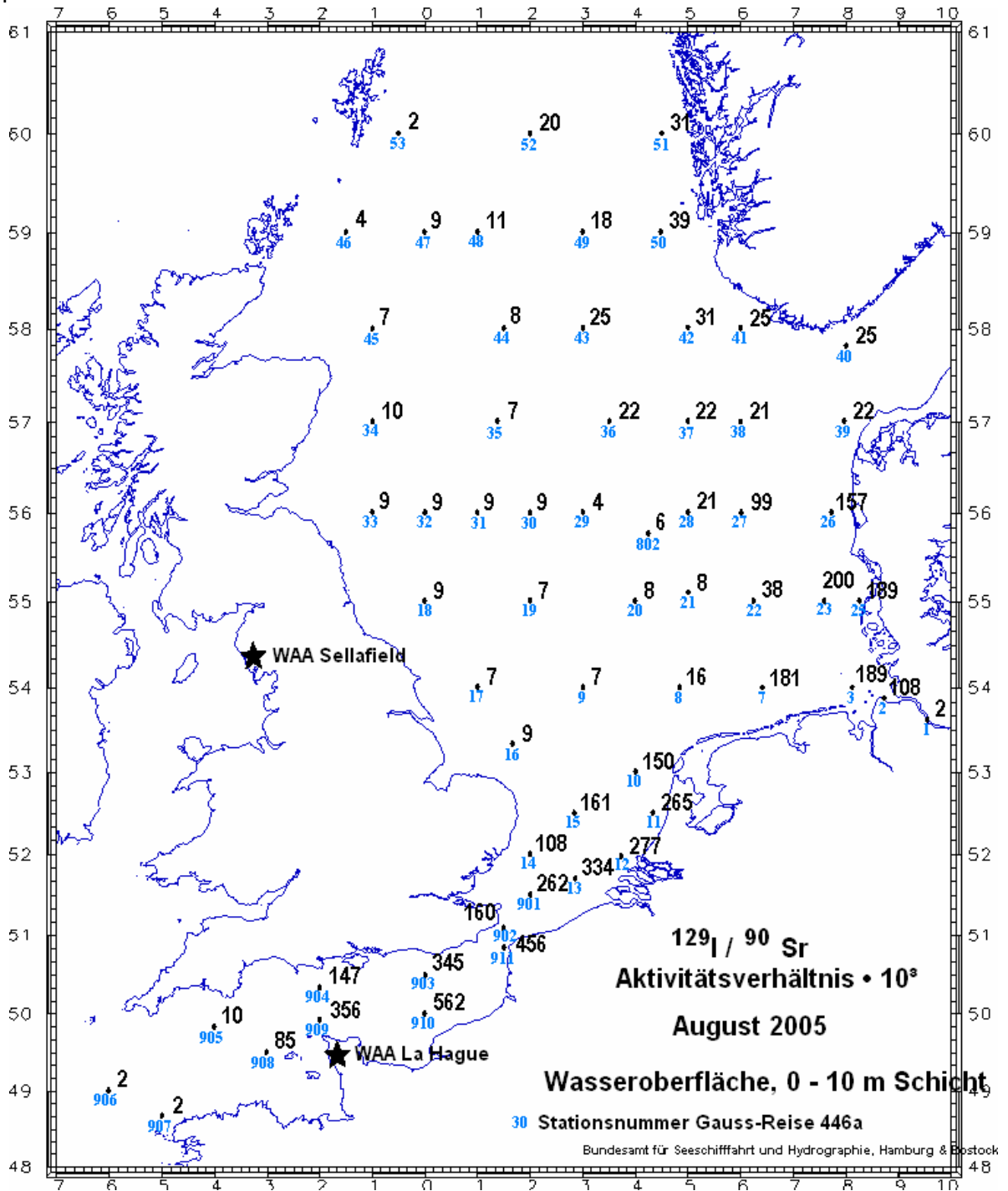


Abbildung 79: $^{129}\text{I}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse multipliziert mit dem Faktor 1000 im Oberflächenwasser der Nordsee, Augustreise 2005 [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

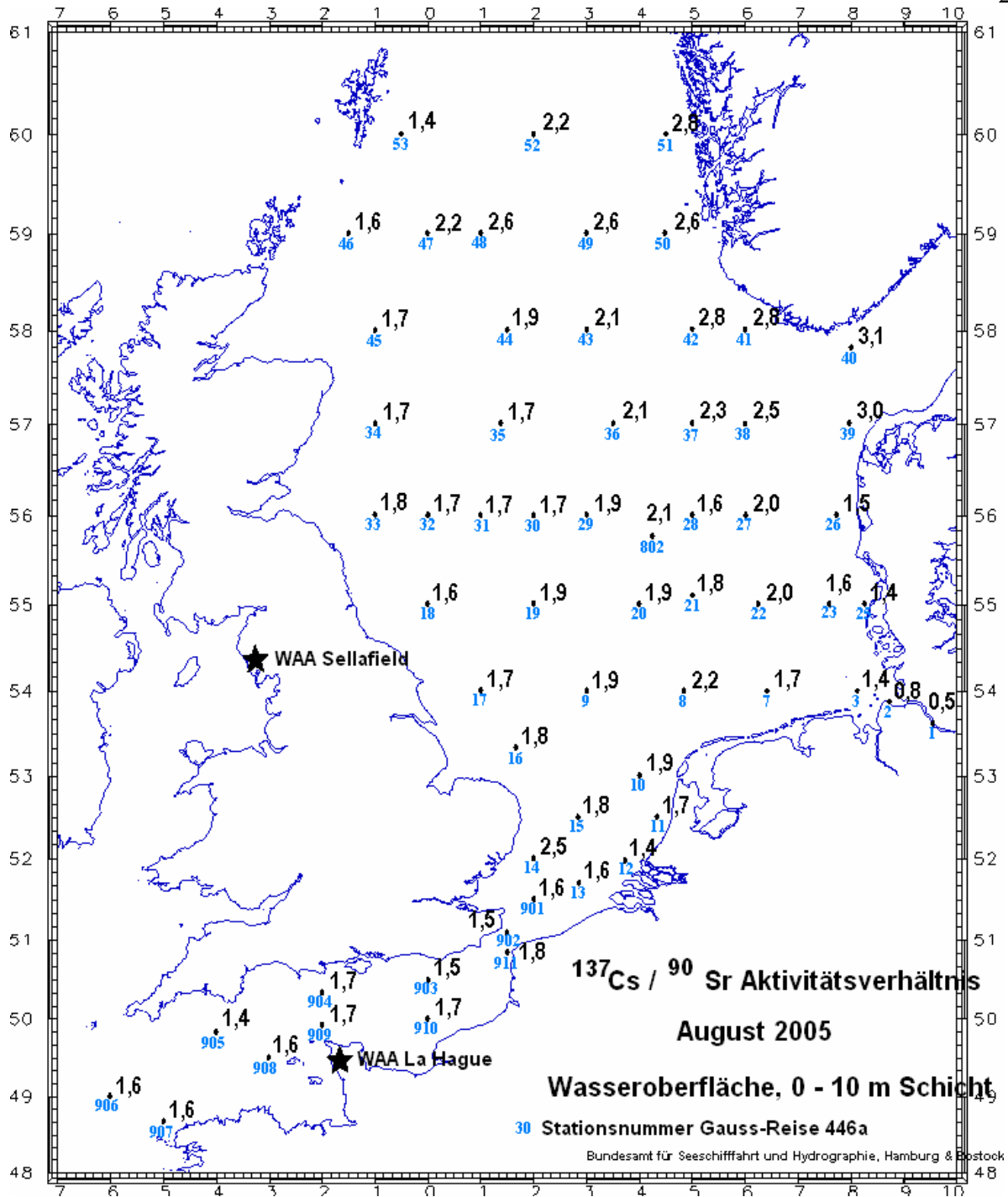


Abbildung 80: $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee von der Augustreise 2005, Gauß 446 b [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

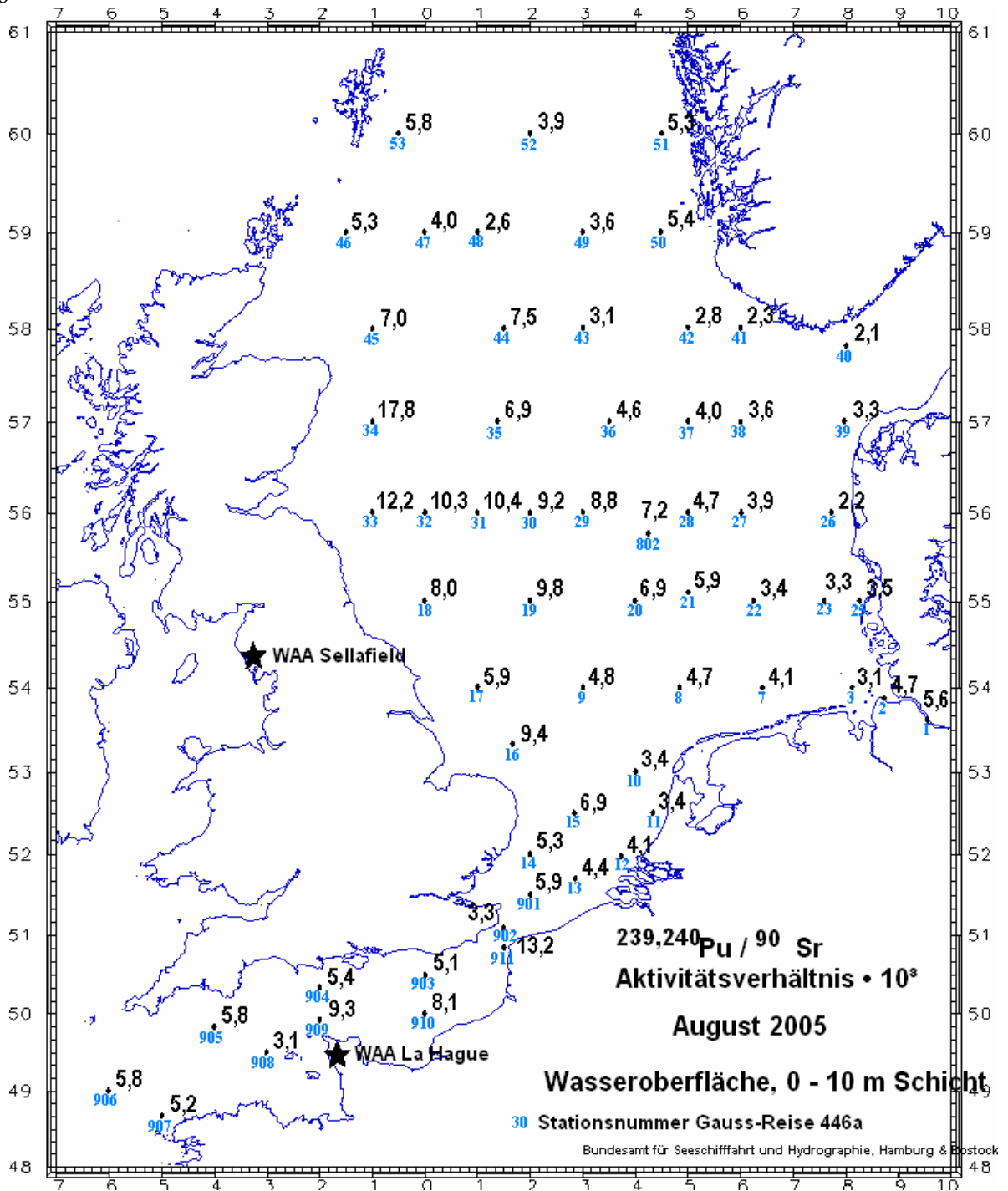


Abbildung 81: $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in 10^{-3} im Oberflächenwasser der Nordsee von der Augustreise 2005, Gauß 446 b [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

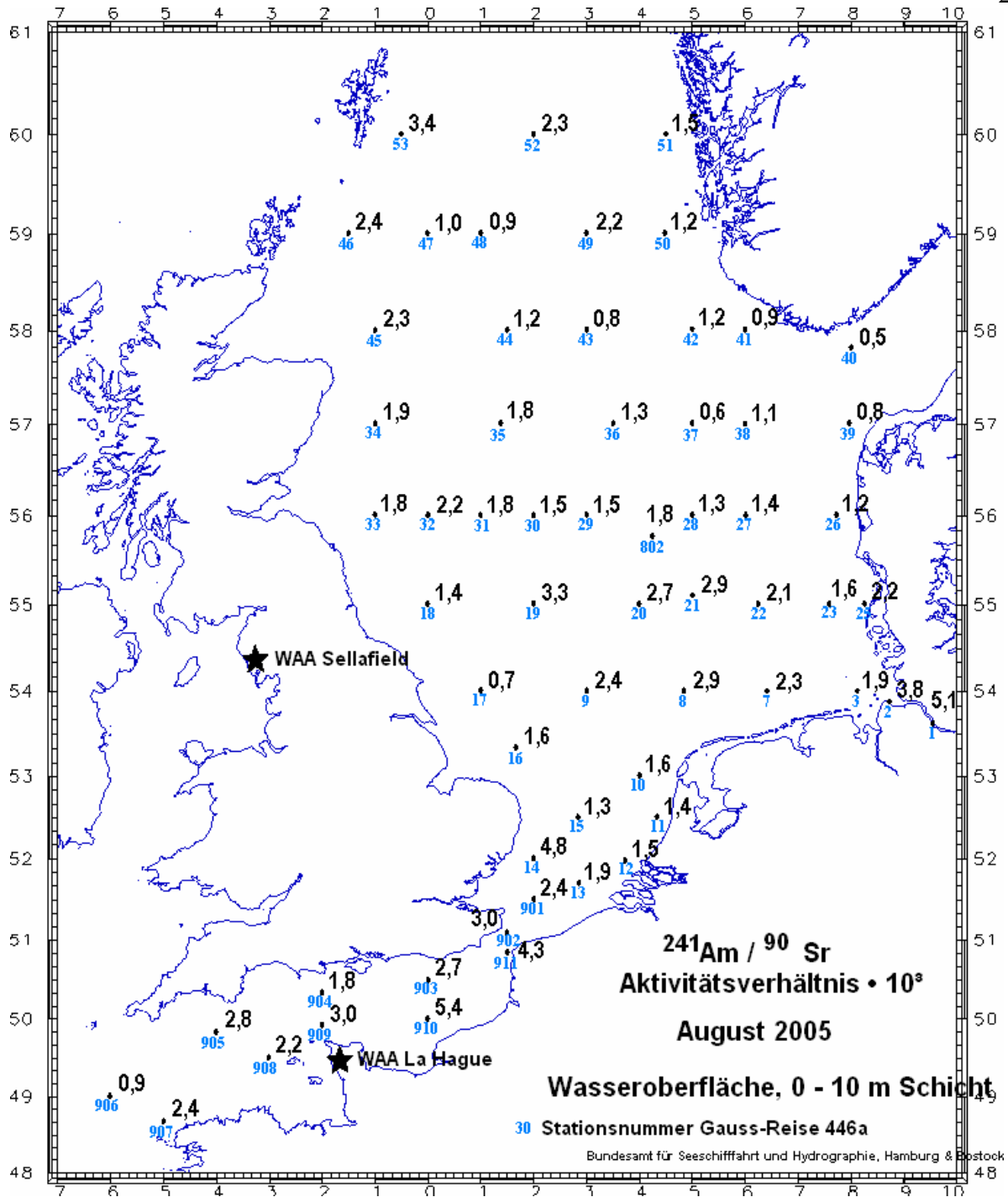


Abbildung 82: $^{241}\text{Am}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in 10^{-3} im Oberflächenwasser der Nordsee von der Augustreise 2005, Gauß 446 b [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

Aktivitätsverhältnisse der Transurane

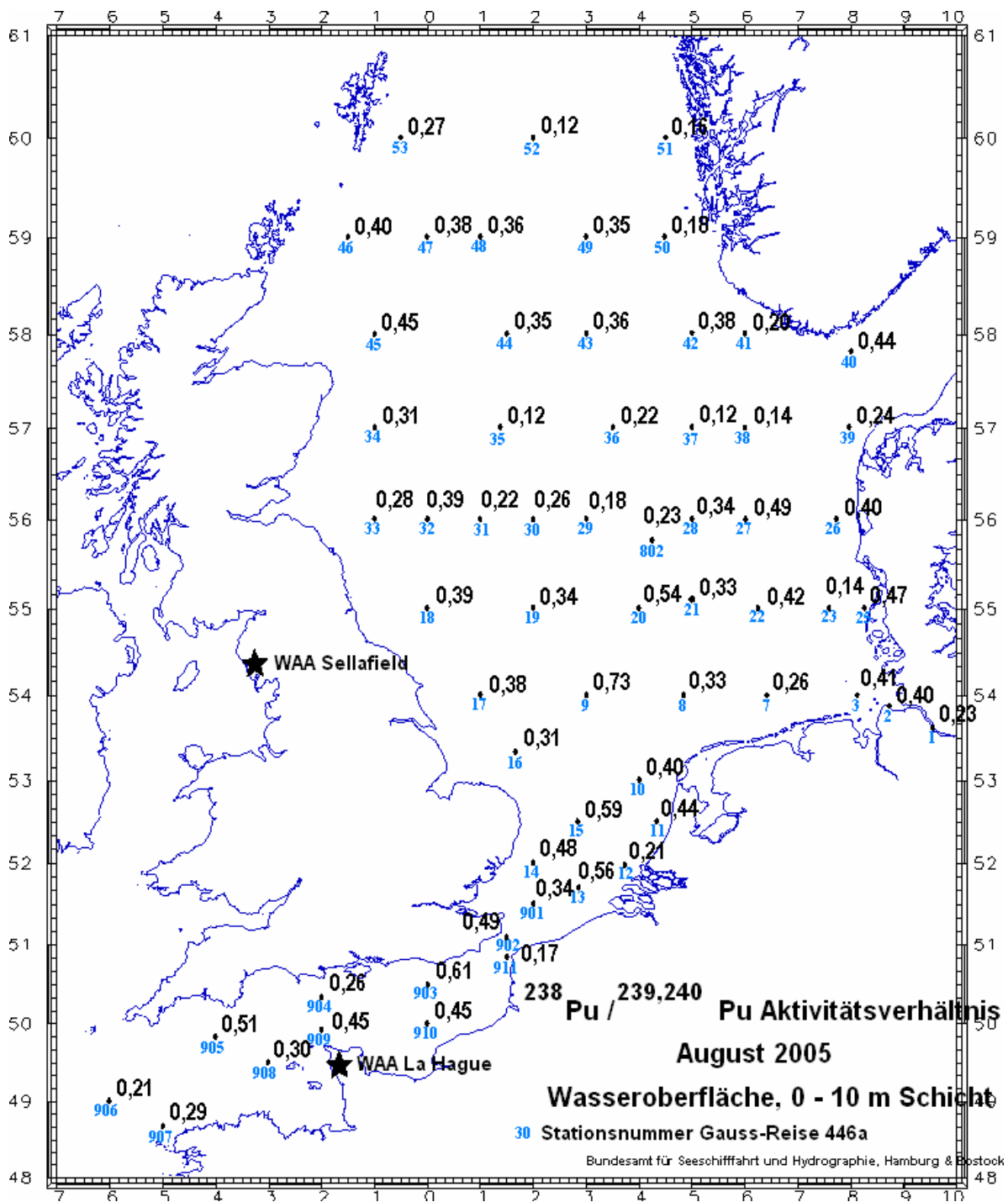


Abbildung 83: $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee, Auguststreife 2005, Gauß 446 b [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

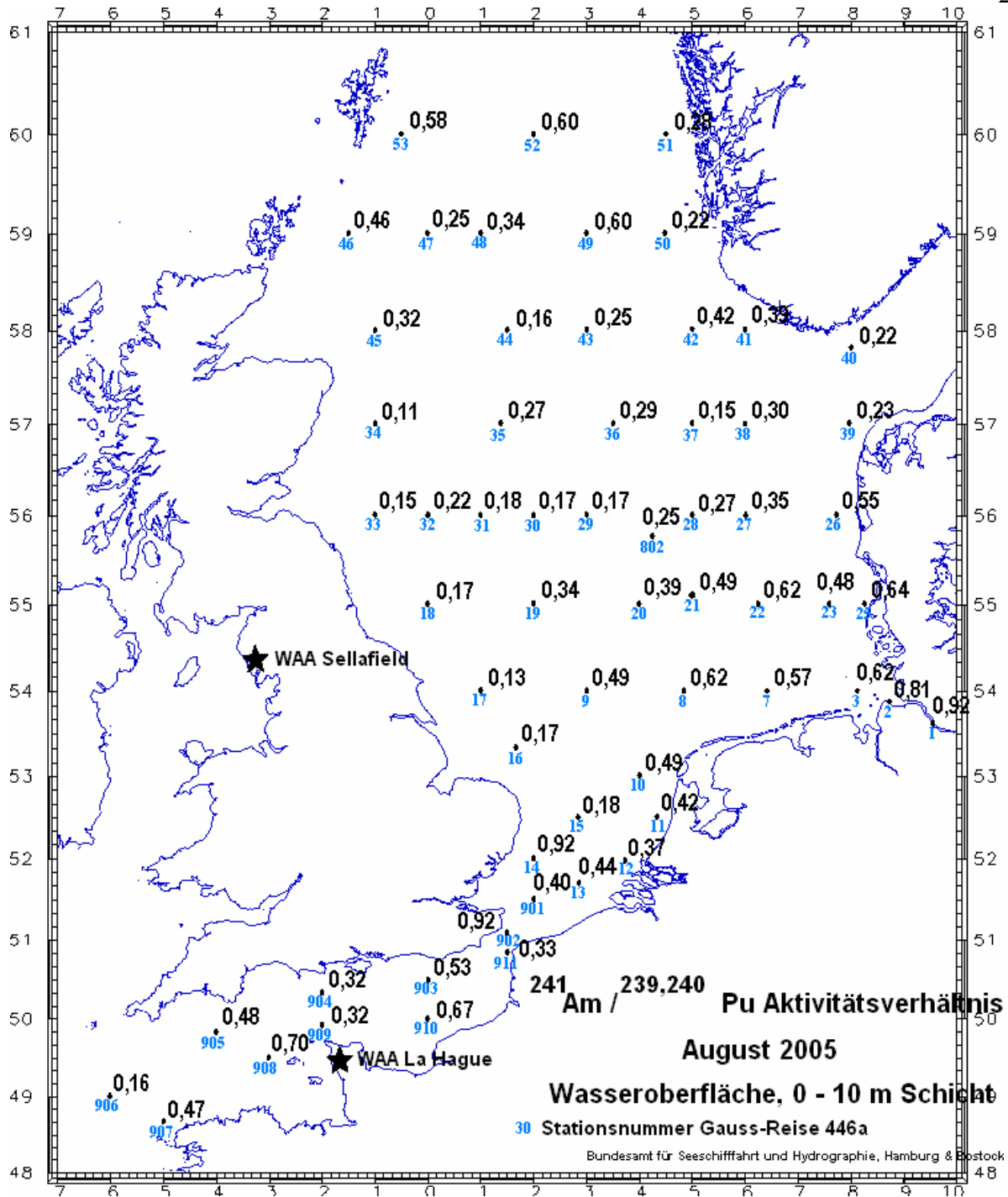


Abbildung 84: $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse im Oberflächenwasser der Nordsee, Augustreise 2005, Gauß 446 b [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

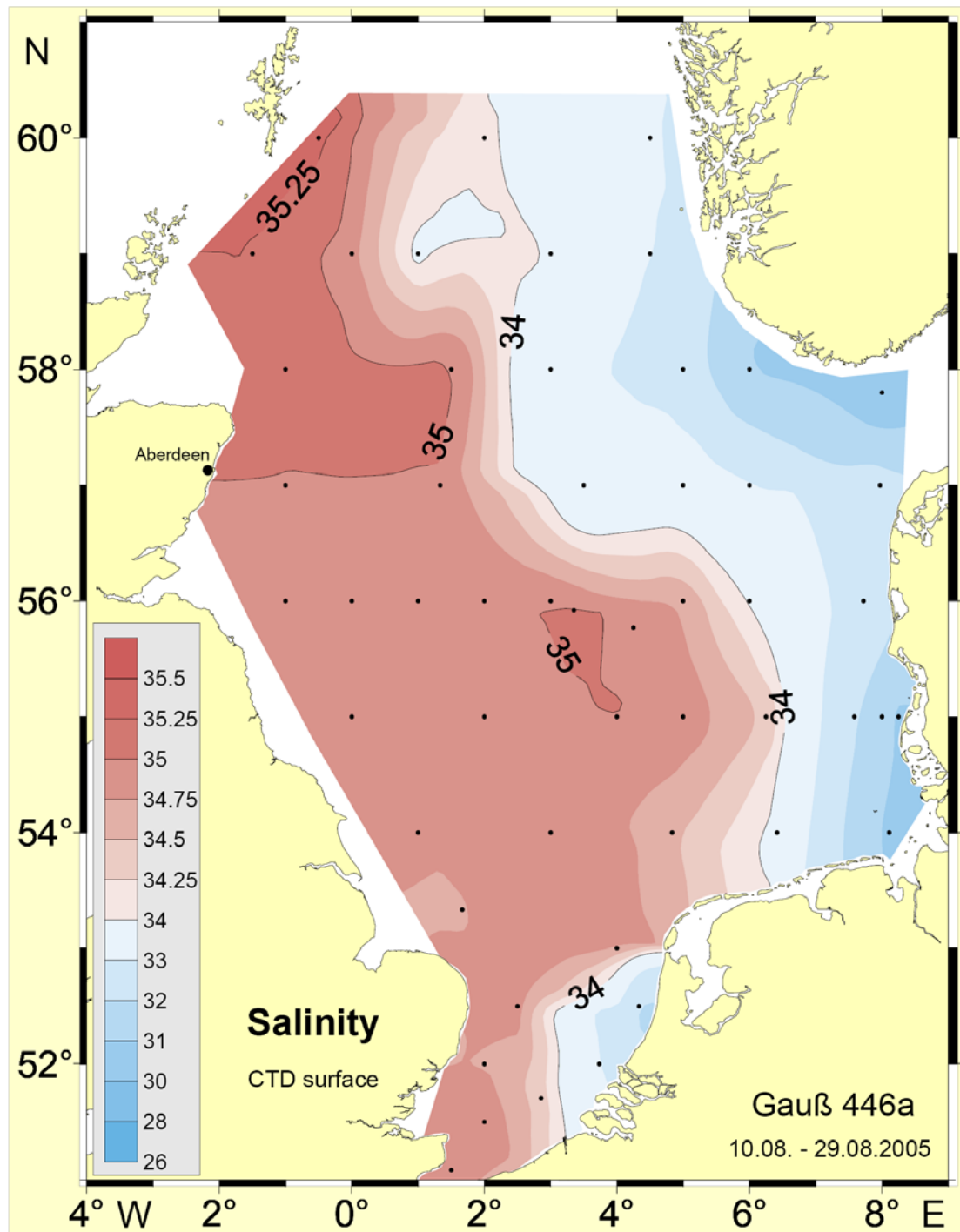
Ergänzende Abbildungen: Salinitäten in der Nordsee

Abbildung 85: Salinitäten im Oberflächenwasser der Nordsee, Augustreise 2005 (Gauß 446 a). Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

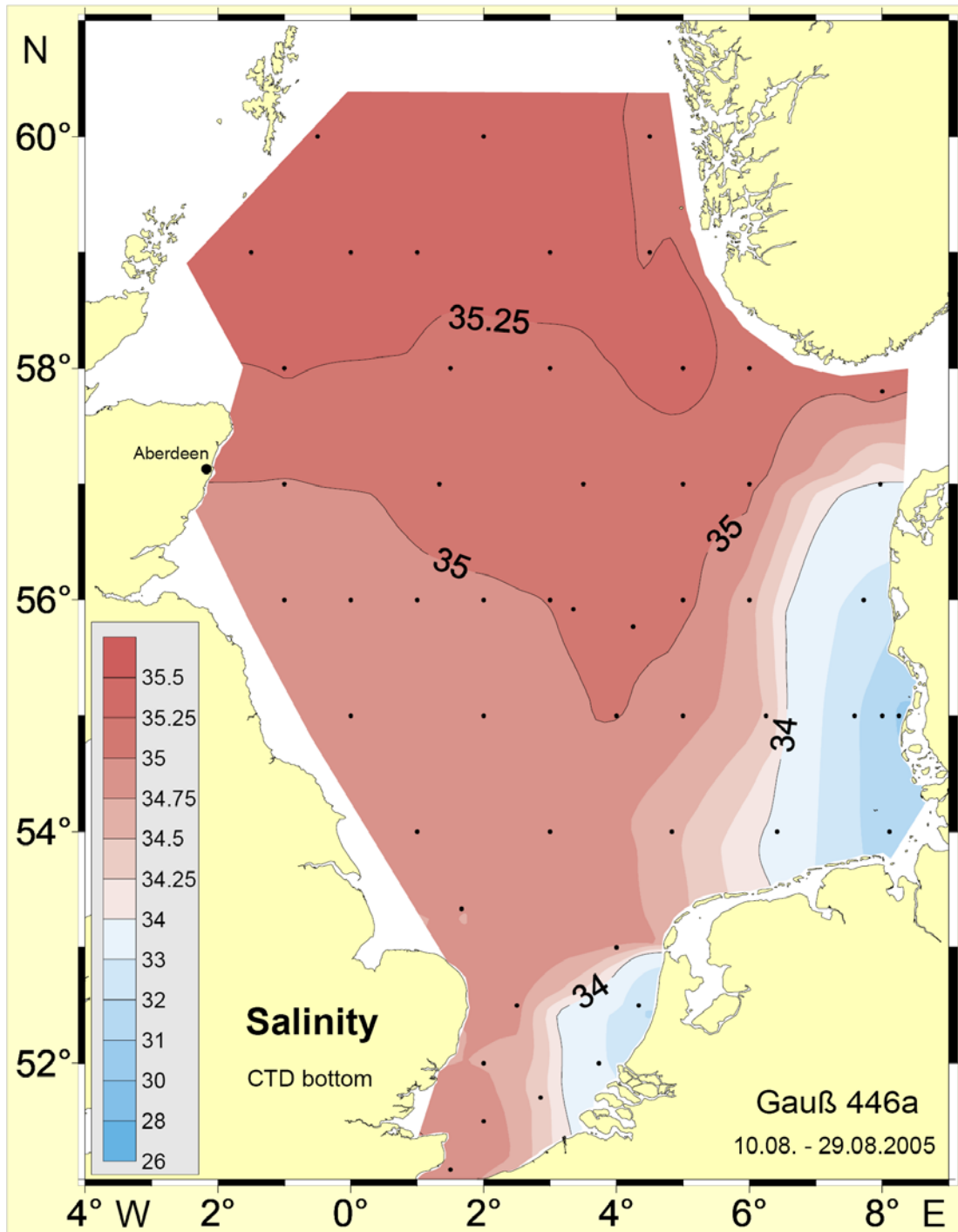


Abbildung 86: Salinitäten in Bodennähe der Nordseereise vom August 2005, Gauß 446 a. Diese Karte wurde freundlicherweise vom BSH in Hamburg zur Verfügung gestellt.

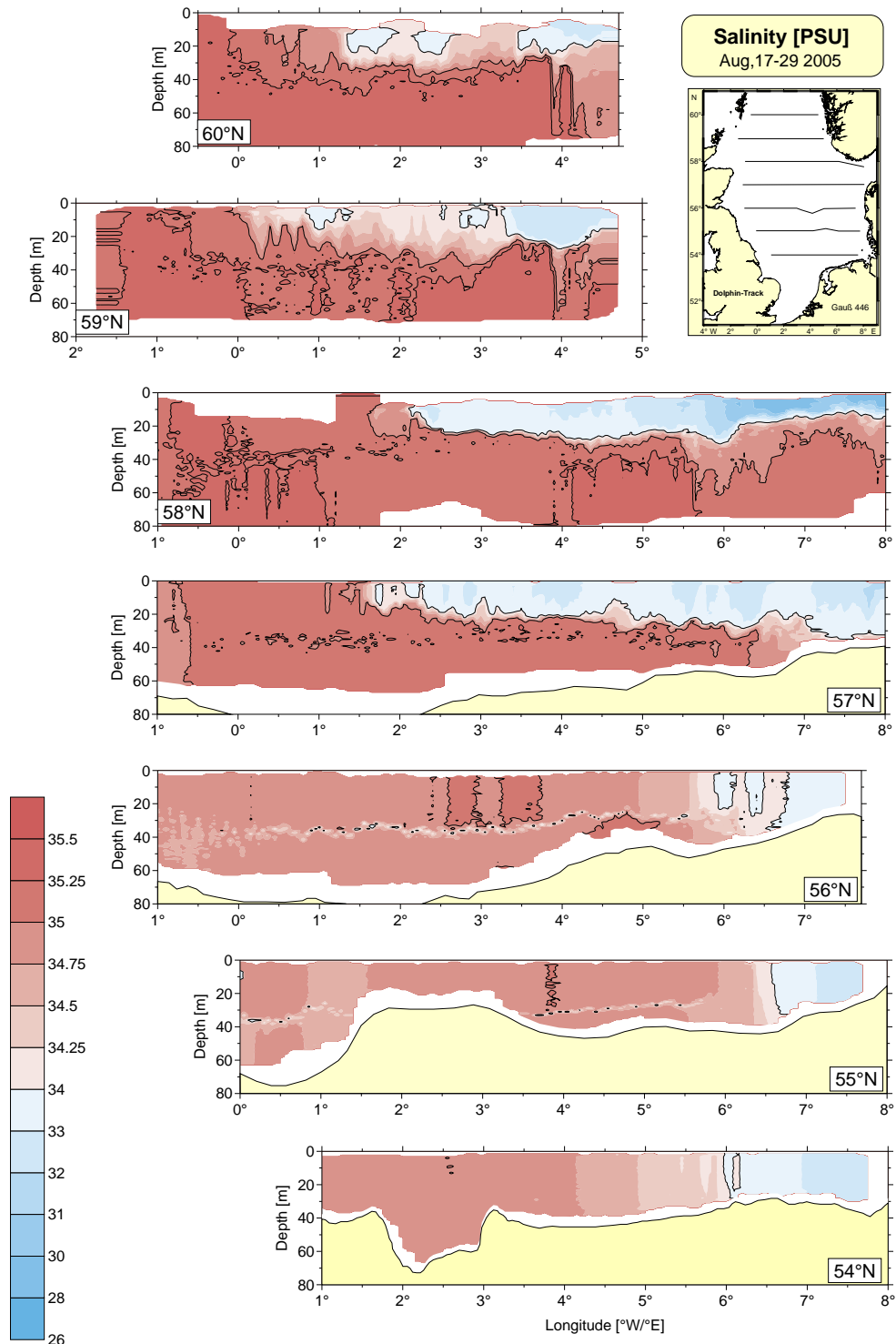


Abbildung 87: Salinitätsquerschnitte entlang der Breitengrade, Nordseereise vom August 2005, Gauß 446 a. Diese Karte wurde freundlicherweise vom BSH in Hamburg zur Verfügung gestellt.

In Abbildung 87 ist deutlich der Eintrag von Ostseewasser entlang des 57. und 58. Breitengrades zu sehen. Im südlichen Bereich der Nordsee sind die Salinitäten geringer und in vertikaler Richtung ist eine bessere Durchmischung erkennbar.

Ergänzende Abbildungen: Verhältnisse der Salinitäten zu Strontium-90 und Iod-129

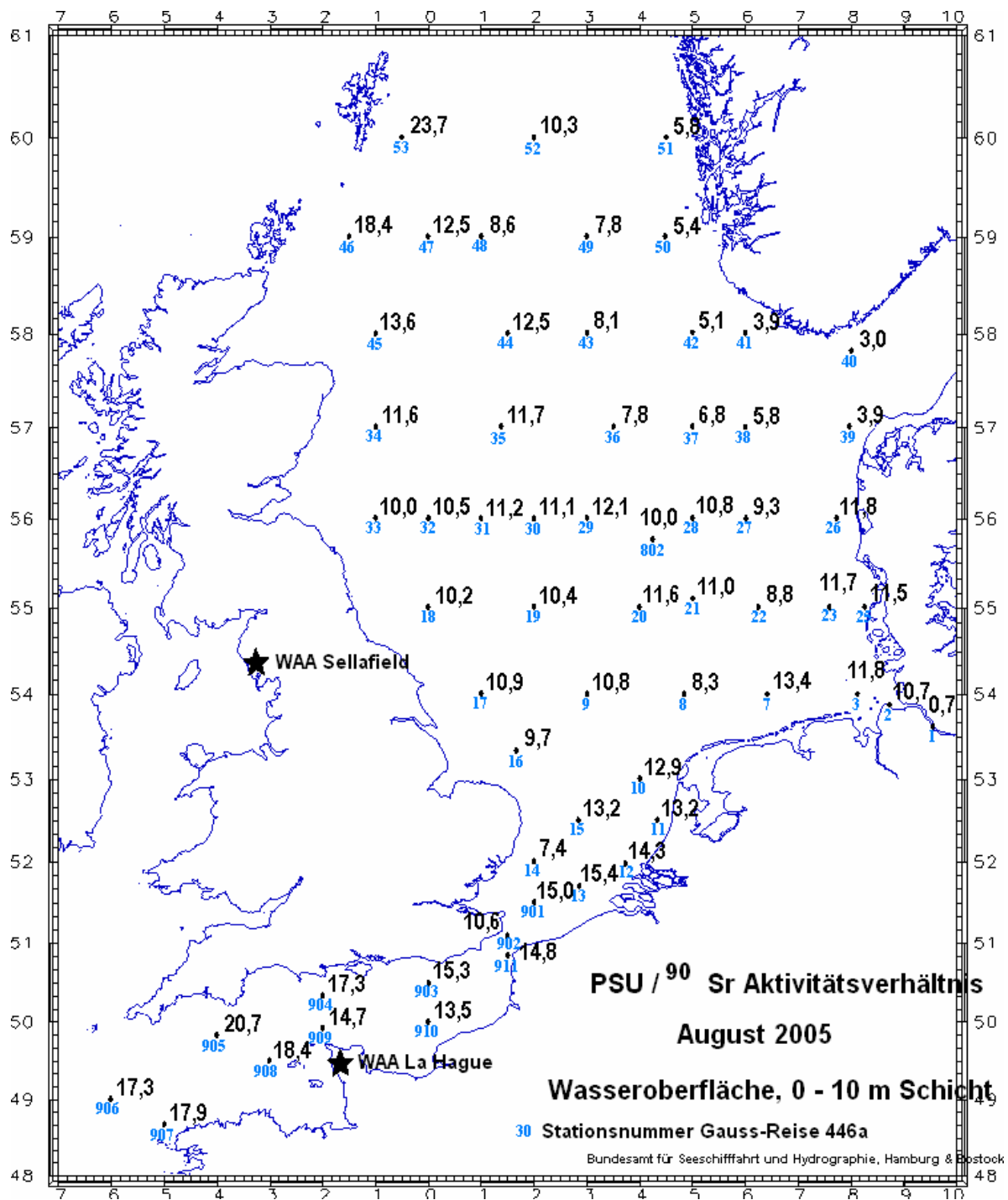


Abbildung 88: Verhältnisse der Salinitäten zu den ⁹⁰Sr-Aktivitätskonzentration (in Bq/m³) im Oberflächenwasser der Nordsee (Gaußreise 446 a von August 2005) [Nies et al., 2008]. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

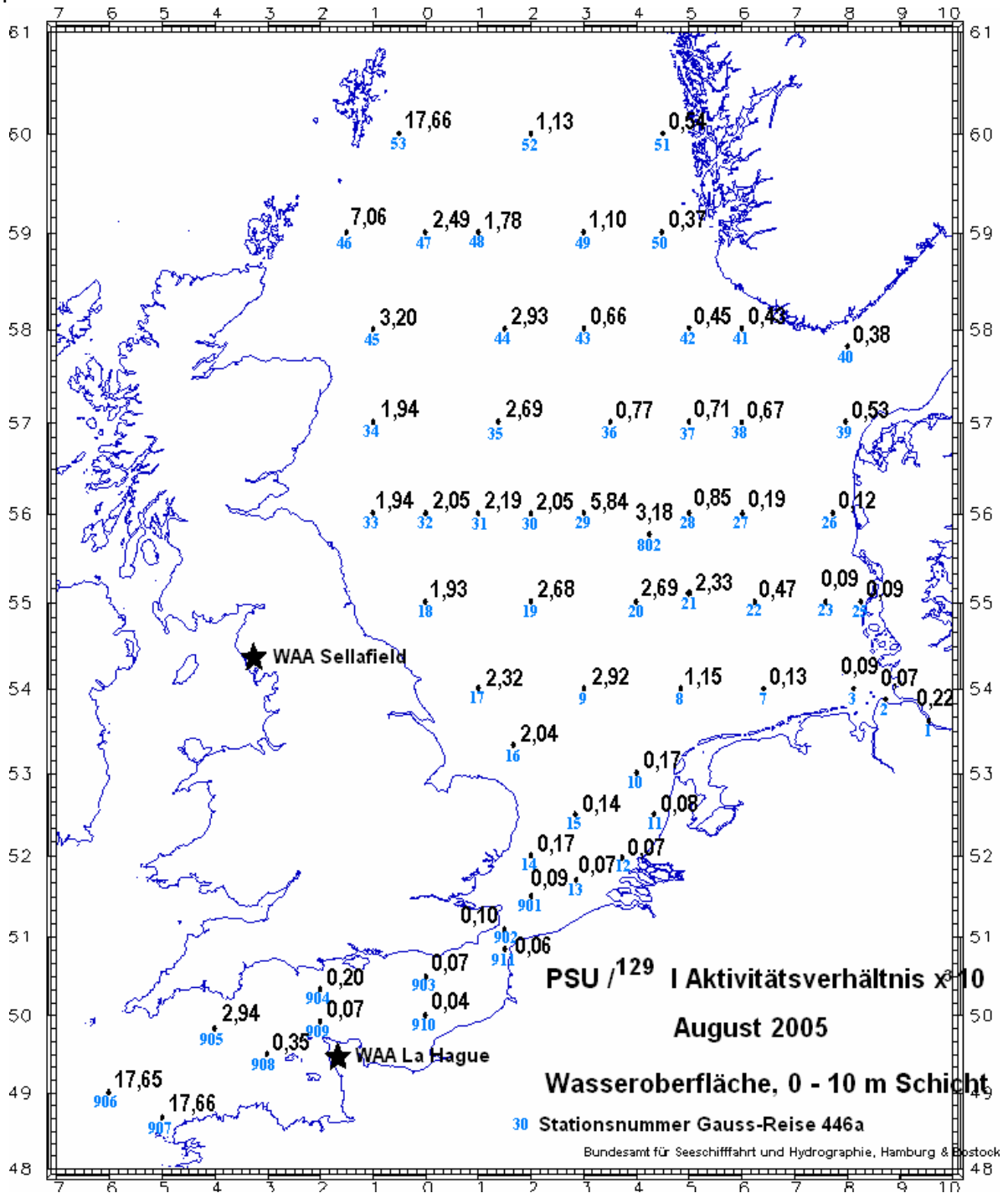


Abbildung 89: Verhältnisse der Salinitäten zu den ^{129}I -Aktivitätskonzentration (in mBq/m^3) im Oberflächenwasser der Nordsee (Gaußreise 446 a von August 2005) multipliziert mit dem Faktor 10. Das Kartenmaterial wurde freundlicherweise vom BSH zur Verfügung gestellt.

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a.

Station	Meßtiefe in m	Salinität PSU	Temperatur in °C	pH-Wert
2	4	20,98	16,94	
10	25	34,88	16,13	8,10
	19	34,88	16,13	8,10
	14	34,88	16,13	8,10
	5	34,88	16,16	8,11
14	22	34,72	17,43	8,10
	10	34,72	17,44	8,11
	5	34,72	17,44	8,10
901	42	34,95	17,24	8,05
	29	34,95	17,23	8,05
	20	34,95	17,23	8,06
	9	34,95	17,23	8,06
902	54	34,96	17,61	8,09
	40	34,96	17,61	8,09
	30	34,96	17,61	8,09
	20	34,96	17,60	8,09
	5	34,96	17,60	8,08
903	43	35,13	16,71	8,14
	30	35,13	16,71	8,13
	10	35,13	16,71	8,14
	5	35,13	16,93	8,14
904	52	35,20	16,84	8,11
	40	35,20	16,84	8,12
	31	35,20	16,83	8,14
	21	35,20	16,84	8,13
	5	35,20	16,84	8,14
905	74	35,35	13,33	8,00
	60	35,35	13,33	8,02
	50	35,35	13,34	8,03
	40	35,35	13,43	8,04
	25	35,34	13,48	8,05
	10	35,33	18,47	8,26
	5	35,33	18,48	8,29
906	119	35,33	10,78	7,96
	100	35,33	10,78	7,99
	68	35,33	10,78	8,01
	50	35,33	10,78	8,02
	37	35,31	10,85	8,14
	19	35,32	18,90	8,21
	10	35,32	18,91	8,22
	5	35,32	18,91	8,21

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung I).

Station	Meßtiefe	Salinität PSU	Temperatur	pH-Wert
	in m		in °C	
907	104	35,34	12,71	8,03
	50	35,34	12,74	8,03
	20	35,34	12,77	8,03
	10	35,34	13,00	8,04
	4	35,34	16,55	8,09
908	68	35,22	16,34	8,02
	52	35,21	16,34	8,03
	32	35,22	16,37	8,03
	21	35,24	17,30	8,07
	12	35,25	17,31	8,07
	5	35,25	17,31	8,08
909	86	35,15	16,99	7,89
	70	35,15	16,99	7,92
	52	35,14	16,99	7,94
	20	35,14	17,01	7,95
	10	35,14	17,08	7,96
	5	35,14	17,10	7,96
910	37	34,78	17,10	7,94
	31	34,78	17,10	7,98
	21	34,78	17,10	8,00
	10	34,78	17,10	8,01
	4	34,78	17,10	8,02
911	31	34,69	18,21	8,07
	20	34,69	18,21	8,08
	9	34,68	18,21	8,08
	5	34,68	18,20	8,09
13	33	34,42	17,95	7,97
	20	34,42	17,95	8,05
	10	34,41	17,95	8,06
	5	34,41	17,96	8,08
12	19	33,20	17,72	7,99
	10	33,21	17,72	8,02
	5	33,10	17,73	8,04
11	16	31,86	17,42	8,05
	5	31,76	17,43	8,06
15	42	34,86	16,34	8,07
	30	34,86	16,34	8,08
	20	34,86	16,34	8,08
	9	34,86	16,33	8,09
	5	34,86	16,33	8,09

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung II).

Station	Meßtiefe in m	Salinität PSU	Temperatur in °C	pH-Wert
16	25	34,73	15,56	8,04
	20	34,73	15,56	8,07
	10	34,73	15,56	8,07
	5	34,73	15,56	8,07
53	121	35,37	8,10	8,09
	101	35,37	8,30	
	76	35,37	8,82	8,14
	61	35,37	9,33	8,16
	31	35,35	12,81	8,30
	20	35,34	13,01	
	11	35,33	13,03	8,32
	4	35,33	13,04	8,32
52	100	35,36	8,22	8,03
	69	35,36	8,88	
	50	35,35	9,35	
	40	35,33	10,42	8,11
	30	35,19	12,16	8,16
	19	34,46	12,80	8,23
	11	34,15	13,10	8,25
	4	34,05	13,10	8,26
51	256	35,23	6,72	8,10
	201	35,25	7,14	
	152	35,26	7,55	
	101	35,23	7,82	8,15
	75	35,17	7,81	
	51	35,07	7,80	8,15
	25	34,75	7,36	8,15
	10	33,16	13,06	8,29
	5	33,04	13,11	8,29
50	238	35,24	6,83	8,19
	200	35,22	7,03	
	100	35,29	8,23	8,20
	75	35,27	8,27	
	49	35,21	8,17	8,24
	28	34,97	7,47	8,24
	9	34,31	12,08	8,31
	5	33,44	13,50	8,36

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung III).

Station	Meßtiefe in m	Salinität PSU	Temperatur in °C	pH-Wert
49	133	35,34	7,76	
	100	35,36	8,65	
	75	35,37	9,13	
	51	35,38	9,63	
	40	35,31	10,16	
	20	34,48	13,40	
	11	34,16	14,17	
	5	34,03	14,18	
48	119	35,30	7,25	8,04
	73	35,30	7,30	8,06
	48	35,29	8,81	8,19
	40	35,29	9,44	8,21
	10	34,27	14,00	8,28
	4	33,93	13,98	8,28
47	123	35,33	7,37	7,74
	102	35,33	7,38	
	76	35,33	7,48	7,82
	30	35,26	12,76	8,04
	20	35,22	13,45	8,06
	10	35,18	13,47	8,07
	5	34,95	13,70	8,08
46	101	35,31	10,17	8,12
	75	35,31	10,22	8,15
	46	35,28	11,41	8,20
	22	35,25	11,66	8,22
	12	35,30	12,83	8,28
	5	35,27	13,33	8,30
45	112	35,28	9,13	8,02
	74	35,27	9,28	8,05
	50	35,24	10,22	8,09
	19	35,20	12,87	8,20
	9	35,18	13,37	8,22
	4	35,16	13,37	8,23
44	102	35,21	8,32	8,23
	75	35,21	8,36	8,25
	51	35,16	9,11	8,27
	25	35,23	13,41	8,41
	9	35,19	14,00	8,41
	5	35,18	14,05	8,41

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung IV).

Station	Meßtiefe	Salinität	Temperatur	pH-Wert
	in m		in °C	
43	71	35,20	7,43	8,02
	49	35,20	7,43	8,04
	40	35,20	7,47	8,05
	31	35,20	8,84	8,17
	16	33,71	14,60	8,27
	5	33,18	14,64	8,28
42	114	35,34	7,53	8,12
	76	35,34	7,97	8,14
	51	35,33	8,47	8,17
	10	32,65	14,39	8,35
	4	32,58	14,58	8,35
41	302	35,18	6,05	8,13
	201	35,21	7,06	
	101	35,18	7,40	8,16
	75	35,15	7,62	
	50	35,05	8,02	8,18
	39	34,92	8,81	
	30	34,67	11,95	8,28
	15	34,21	16,51	8,20
	5	30,90	16,67	8,39
40	498	35,17	5,51	8,02
	485	35,17	5,52	
	400	35,16	5,89	8,08
	300	35,22	6,69	
	201	35,25	7,07	
	101	35,21	7,35	
	50	35,11	7,59	8,09
	41	35,06	7,56	8,10
	11	34,63	10,84	8,28
	5	29,65	17,37	8,34
	39	27	33,65	12,99
20		33,18	13,52	8,15
16		33,66	15,13	
10		33,32	16,16	8,22
5		32,78	15,88	8,22
38	51	35,08	7,64	7,92
	40	35,08	7,62	7,93
	30	35,11	9,89	8,12
	17	33,57	14,83	8,24
	10	33,19	15,04	8,25
	5	33,10	15,35	8,25

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung V).

Station	Meßtiefe	Salinität	Temperatur	pH-Wert
	in m		in °C	
37	56	35,13	7,34	7,96
	29	35,12	12,48	8,23
	20	34,34	15,77	8,26
	10	33,51	15,59	8,26
36	58	35,19	7,01	7,94
	40	35,19	7,02	7,97
	34	35,19	7,11	8,03
	11	34,53	15,33	8,22
	5	33,80	15,31	8,24
35	96	35,12	7,55	7,96
	77	35,12	7,55	7,99
	38	35,12	7,79	8,01
	11	35,04	14,67	8,14
	5	34,97	14,69	8,20
34	70	34,98	12,09	8,19
	50	34,98	12,09	8,20
	39	34,98	12,10	8,21
	24	34,98	12,72	8,22
	18	34,98	13,19	8,25
	11	34,98	13,26	8,27
	5	34,98	13,27	8,27
33	59	34,81	10,99	7,99
	50	34,81	10,99	8,02
	40	34,81	11,08	8,02
	31	34,81	11,18	8,04
	20	34,85	14,14	8,10
	10	34,88	14,43	8,18
	6	34,88	14,46	8,21
32	82	34,87	8,41	7,95
	51	34,88	8,48	7,97
	30	35,00	14,29	8,14
	18	34,92	14,72	8,17
	16	34,92	14,72	8,17
	6	34,92	14,72	8,17
31	66	34,93	7,88	7,94
	51	34,93	7,88	7,96
	40	34,93	7,88	7,97
	25	34,98	14,44	8,13
	11	34,98	14,55	8,15
	5	34,98	14,55	8,16

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung VI).

Station	Meßtiefe in m	Salinität PSU	Temperatur in °C	pH-Wert
30	81	34,97	7,36	7,96
	51	34,97	7,36	7,96
	31	35,00	13,62	8,07
	20	34,96	14,82	8,15
	10	34,97	14,83	8,15
	5	34,97	14,82	8,16
29	66	35,00	7,27	7,94
	50	35,00	7,27	7,93
	41	35,02	7,42	8,04
	20	35,02	14,60	8,13
	11	35,02	14,63	8,14
	5	35,02	14,63	8,15
ENTE3	59	35,02	7,64	
	51	35,01	7,98	
	40	35,00	8,05	
	25	35,03	14,69	
	11	35,05	14,69	
	5	35,05	14,69	
ENTE2	36	35,04	9,94	
	22	35,03	10,05	
	17	34,97	14,42	
	9	34,95	14,93	
	5	34,95	14,94	
28	36	35,07	10,66	8,00
	30	35,08	10,67	8,04
	21	34,85	15,50	8,17
	11	34,74	15,53	8,23
	5	34,74	15,53	8,23
27	42	34,57	10,93	7,94
	21	34,22	15,81	7,98
	11	33,99	15,81	8,10
	4	33,98	15,96	8,17
26	26	32,67	16,31	8,28
	11	32,67	16,31	8,27
	5	32,67	16,57	8,27
25	12	30,81	16,92	8,03
	5	30,82	16,91	8,04
24	16	31,41	16,83	8,26
	9	31,42	16,82	8,26
	5	31,42	16,82	8,26
23	24	32,11	16,47	8,20
	10	32,11	16,47	8,22
	5	32,12	16,47	8,22

Tabelle 58: Salinitäten, Temperaturen und pH-Werte bei verschiedenen Tiefen der Stationen der Nordseereise von August 2005, Gauß 446 a (Fortsetzung VII).

Station	Meßtiefe in m	Salinität PSU	Temperatur in °C	pH-Wert
22	38	34,56	15,14	8,12
	21	34,56	15,27	8,12
	10	34,54	15,38	8,14
	6	34,53	15,38	8,14
21	37	34,87	10,26	7,99
	29	34,85	10,27	7,99
	20	34,90	15,39	8,07
	10	34,89	15,39	8,15
	5	34,94	15,41	8,17
20	41	35,01	9,48	8,07
	28	35,01	9,56	8,07
	20	35,01	15,11	8,25
	11	35,01	15,23	8,27
	5	35,01	15,23	8,27
19	21	34,85	14,91	8,28
	11	34,85	14,90	8,28
	5	34,85	14,90	8,29
18	71	34,75	8,00	8,05
	50	34,75	8,04	8,07
	40	34,75	8,07	8,08
	27	34,79	15,08	8,23
	11	34,81	15,23	8,29
	6	34,81	15,27	8,29
17	38	34,80	14,54	8,09
	20	34,80	14,55	8,11
	10	34,79	14,59	8,12
	5	34,77	14,64	8,14
9	39	35,00	14,94	8,13
	20	35,00	15,01	8,15
	10	35,00	15,05	8,17
	5	35,00	15,05	8,18
8	37	34,54	16,29	8,08
	19	34,54	16,30	8,10
	9	34,54	16,35	8,11
	5	34,54	16,38	8,11
7	27	33,87	16,97	8,18
	10	33,87	16,97	8,22
	5	33,87	16,97	8,22
3	24	31,21	17,09	
	9	30,78	16,91	
	4	30,73	16,92	

Tabelle 59: Salinitäten und Temperaturen bei verschiedenen Tiefen in der Deutschen Bucht, Anschlußfahrt zur Nordseereise, Gauß 446 b.

Station	Meßtiefe	Salinität	Temperatur
	in m	PSU	in °C
ELBE1	20	31,57	17,07
	14	31,54	17,02
	5	30,77	17,19
UFSDB	36	32,88	17,00
	19	32,88	17,01
	5	32,88	17,04
HELGO	13	30,93	17,25
	5	30,59	17,25
EIDER	10	28,51	17,39
	5	28,43	17,35
AMRU1	10	30,68	17,37
	5	30,66	17,48
URST1	22	31,64	17,11
	10	31,51	17,19
	5	31,38	17,24
URST2	19	32,10	16,80
	10	31,98	16,99
	5	31,97	17,00
AMRU2	12	31,17	17,38
	5	31,17	17,39
LTIEF	11	30,93	17,02
	5	30,93	17,04
SYLT1	13	31,14	17,04
	5	31,14	17,05
SYLT2	21	32,23	16,41
	5	32,19	17,00
URST3	30	33,87	16,27
	10	33,50	16,77
	5	33,48	16,77
URST4	26	33,93	16,26
	10	33,92	16,41
	5	33,91	16,46
URST5	47	34,69	13,22
	20	34,44	15,54
	5	34,36	16,12

Tabelle 59: Salinitäten und Temperaturen bei verschiedenen Tiefen in der Deutschen Bucht, Anschlußfahrt zur Nordseereise, Gauß 446b (Fortsetzung).

Station	Meßtiefe in m	Salinität PSU	Temperatur in °C
WBANK	36	34,45	16,03
	5	34,39	16,75
ENTE1	42	34,95	8,92
	29	34,93	9,16
	5	35,03	15,26
NSGR1	38	34,87	9,22
	30	34,87	9,25
	4	34,90	15,67
SWWBA	39	34,70	15,45
	20	34,70	15,48
	5	34,70	16,28
NEFB	37	34,57	16,24
	10	34,57	16,59
	5	34,57	16,90
NGW8	33	33,82	17,01
	10	33,58	17,34
	5	33,57	17,38
NTG8	23	33,07	17,46
	5	32,92	17,70
BRGRU	24	33,74	17,43
	10	33,64	17,58
	5	33,58	17,61
BRIFF	20	32,62	17,73
	5	32,47	17,67
NORDE	19	32,17	17,58
	6	32,17	17,59
WESER	15	31,56	17,65

Anhang III: Ergänzende Abbildungen



Abbildung 90: Zur Probennahme der Tiefenprofile verwendeter Kranzwasserschöpfer.



Abbildung 91: Kranzwasserschöpfer bei der Probennahme.



Abbildung 92: Sediment im Kastengreifer unmittelbar nach der Probennahme bei Station KS 11.



Abbildung 93: Entnahme des Probenmaterials mit Hilfe eines unter Unterdruck stehenden Kunststoffrohres. Das Sediment befindet sich noch im Kastengreifer.



Abbildung 94: Seitenansicht des Sediments.

Anhang IV: Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen

In diesem Abschnitt werden die Emissionen der im Strahlenschutzvorhaben 4481 untersuchten anthropogenen Radionuklide aus den WAA Sellafield und La Hague dargestellt. Der zeitliche Verlauf der ^{129}I -Emissionen aus Sellafield und La Hague wurde bereits in Abbildung 4 und Abbildung 5 gezeigt, hier werden die den Abbildungen zugrundeliegenden Emissionsdaten tabellarisch zusammenfaßt.

Alle weiteren Emissionsdaten der Radionuklide sind, soweit Daten verfügbar waren, graphisch dargestellt. Die Abbildungen sind nach der Massenzahl der Nuklide sortiert. Die Graphiken beruhen auf einer Datenbank der OSPAR, die im Internet abgerufen werden kann. Die Emissionsdaten wurden vom BSH bei Fertigstellung des Abschlußberichts zum Strahlenschutzvorhaben an das ZSR übermittelt. Im Anschluß an die Emissionsverläufe der unterschiedlichen Nuklide werden die $X/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der Ableitungen gezeigt, wobei X ein in dieser Arbeit besprochenes Radionuklid ist.

Tabelle 60: Flüssige und luftgetragene ^{129}I -Emissionen aus La Hague von 1966 bis 2005.

Jahr	Iod-129-Ableitungen aus La Hague			
	flüssig in TBq/a	flüssig in kg/a	gasförmig in GBq/a	gasförmig in kg/a
1966	6,04E-04	9,24E-02	7,90E-02	1,21E-02
1967	1,74E-03	2,66E-01	2,30E-01	3,52E-02
1968	5,94E-03	9,09E-01	7,70E-01	1,18E-01
1969	6,00E-03	9,18E-01	7,80E-01	1,19E-01
1970	3,94E-03	6,03E-01	5,10E-01	7,80E-02
1971	1,06E-02	1,62E+00	1,40E+00	2,14E-01
1972	1,53E-02	2,34E+00	2,00E+00	3,06E-01
1973	1,44E-02	2,20E+00	1,90E+00	2,91E-01
1974	4,20E-02	6,43E+00	5,50E+00	8,41E-01
1975	3,89E-02	5,95E+00	5,10E+00	7,80E-01
1976	2,38E-02	3,64E+00	3,10E+00	4,74E-01
1977	4,48E-02	6,85E+00	2,20E+00	3,37E-01
1978	6,71E-02	1,03E+01	1,00E+01	1,53E+00
1979	7,26E-02	1,11E+01	7,40E+00	1,13E+00
1980	8,90E-02	1,36E+01	1,70E+01	2,60E+00
1981	1,02E-01	1,56E+01	9,80E+00	1,50E+00
1982	1,20E-01	1,84E+01	1,50E+01	2,29E+00
1983	1,63E-01	2,49E+01	2,10E+01	3,21E+00
1984	1,82E-01	2,78E+01	2,70E+01	4,13E+00
1985	3,00E-01	4,59E+01	2,10E+01	3,21E+00
1986	2,33E-01	3,56E+01	1,10E+01	1,68E+00
1987	3,21E-01	4,91E+01	1,40E+01	2,14E+00
1988	2,02E-01	3,09E+01	2,10E+01	3,21E+00
1989	2,62E-01	4,01E+01	2,70E+01	4,13E+00
1990	3,27E-01	5,00E+01	1,80E+01	2,75E+00
1991	4,55E-01	6,96E+01	2,30E+01	3,52E+00
1992	4,79E-01	7,33E+01	1,10E+01	1,68E+00
1993	6,46E-01	9,88E+01	1,00E+01	1,53E+00
1994	1,12E+00	1,71E+02	2,10E+01	3,21E+00
1995	1,53E+00	2,34E+02	3,20E+01	4,90E+00
1996	1,69E+00	2,59E+02	3,80E+01	5,81E+00
1997	1,63E+00	2,49E+02	1,63E+01	2,49E+00
1998	1,78E+00	2,73E+02	1,50E+01	2,29E+00
1999	1,83E+00	2,79E+02	7,21E+00	1,10E+00
2000	1,36E+00	2,08E+02	6,12E+00	9,36E-01
2001	1,20E+00	1,84E+02	4,45E+00	6,81E-01
2002	1,33E+00	2,03E+02	5,42E+00	8,29E-01
2003	1,28E+00	1,96E+02	5,19E+00	7,94E-01
2004	1,40E+00	2,14E+02	5,21E+00	7,97E-01
2005	1,42E+00	2,17E+02	6,58E+00	1,01E+00

Tabelle 61: Flüssige und luftgetragene ¹²⁹I-Emissionen aus Sellafield von 1966 bzw. 1951 bis 2005.

Jahr	Iod-129-Ableitungen aus Sellafield			
	flüssig in TBq/a	flüssig in kg/a	gasförmig in GBq/a	gasförmig in kg/a
1951			2,20E+01	3,37E+00
1952			2,20E+01	3,37E+00
1953			2,20E+01	3,37E+00
1954			2,20E+01	3,37E+00
1955			2,20E+01	3,37E+00
1956			2,20E+01	3,37E+00
1957			2,20E+01	3,37E+00
1958			2,20E+01	3,37E+00
1959			2,20E+01	3,37E+00
1960			2,20E+01	3,37E+00
1961			2,20E+01	3,37E+00
1962			2,20E+01	3,37E+00
1963			2,20E+01	3,37E+00
1964			2,20E+01	3,37E+00
1965			2,20E+01	3,37E+00
1966	2,41E-02	3,69E+00	2,20E+01	3,37E+00
1967	4,34E-02	6,63E+00	2,20E+01	3,37E+00
1968	6,74E-02	1,03E+01	2,20E+01	3,37E+00
1969	1,73E-01	2,65E+01	2,20E+01	3,37E+00
1970	1,06E-01	1,62E+01	2,20E+01	3,37E+00
1971	1,16E-01	1,77E+01	2,20E+01	3,37E+00
1972	1,49E-01	2,28E+01	2,20E+01	3,37E+00
1973	5,78E-02	8,84E+00	2,20E+01	3,37E+00
1974	1,49E-01	2,28E+01	2,20E+01	3,37E+00
1975	7,71E-02	1,18E+01	2,40E+01	3,67E+00
1976	1,59E-01	2,43E+01	1,80E+01	2,75E+00
1977	1,16E-01	1,77E+01	7,80E+00	1,19E+00
1978	9,15E-02	1,40E+01	1,70E+01	2,60E+00
1979	1,20E-01	1,84E+01	4,50E+01	6,88E+00
1980	1,40E-01	2,14E+01	2,70E+01	4,13E+00
1981	1,98E-01	3,02E+01	3,30E+01	5,05E+00
1982	1,40E-01	2,14E+01	2,70E+01	4,13E+00
1983	1,78E-01	2,73E+01	3,00E+01	4,59E+00
1984	1,01E-01	1,55E+01	2,10E+01	3,21E+00
1985	8,19E-02	1,25E+01	3,00E+01	4,59E+00
1986	1,16E-01	1,77E+01	1,90E+01	2,91E+00
1987	1,01E-01	1,55E+01	2,40E+01	3,67E+00
1988	1,35E-01	2,06E+01	2,40E+01	3,67E+00
1989	1,69E-01	2,58E+01	1,20E+01	1,84E+00
1990	1,06E-01	1,62E+01	1,20E+01	1,84E+00

Tabelle 61: Flüssige und luftgetragene ¹²⁹I-Emissionen aus Sellafield von 1966 bzw. 1951 bis 2005 (Fortsetzung).

Jahr	Iod-129-Ableitungen aus Sellafield			
	flüssig in TBq/a	flüssig in kg/a	gasförmig in GBq/a	gasförmig in kg/a
1991	1,64E-01	2,51E+01	1,90E+01	2,91E+00
1992	7,23E-02	1,11E+01	3,90E+01	3,83E+00
1993	1,64E-01	2,51E+01	2,50E+01	3,82E+00
1994	1,59E-01	2,43E+01	2,00E+01	3,06E+00
1995	2,50E-01	3,83E+01	2,50E+01	3,82E+00
1996	4,24E-01	6,49E+01	2,50E+01	3,82E+00
1997	5,25E-01	8,03E+01	2,70E+01	4,13E+00
1998	5,50E-01	8,41E+01	2,53E+01	3,87E+00
1999	4,85E-01	7,42E+01	2,50E+01	3,82E+00
2000	4,70E-01	7,19E+01	2,00E+01	3,06E+00
2001	6,30E-01	9,64E+01	2,10E+01	3,21E+00
2002	7,30E-01	1,12E+02	1,70E+01	2,60E+00
2003	5,54E-01	8,48E+01	1,58E+01	2,42E+00
2004	6,50E-01	9,94E+01	1,05E+00	1,61E-01
2005	2,98E-01	4,56E+01	2,20E+01	3,37E+00

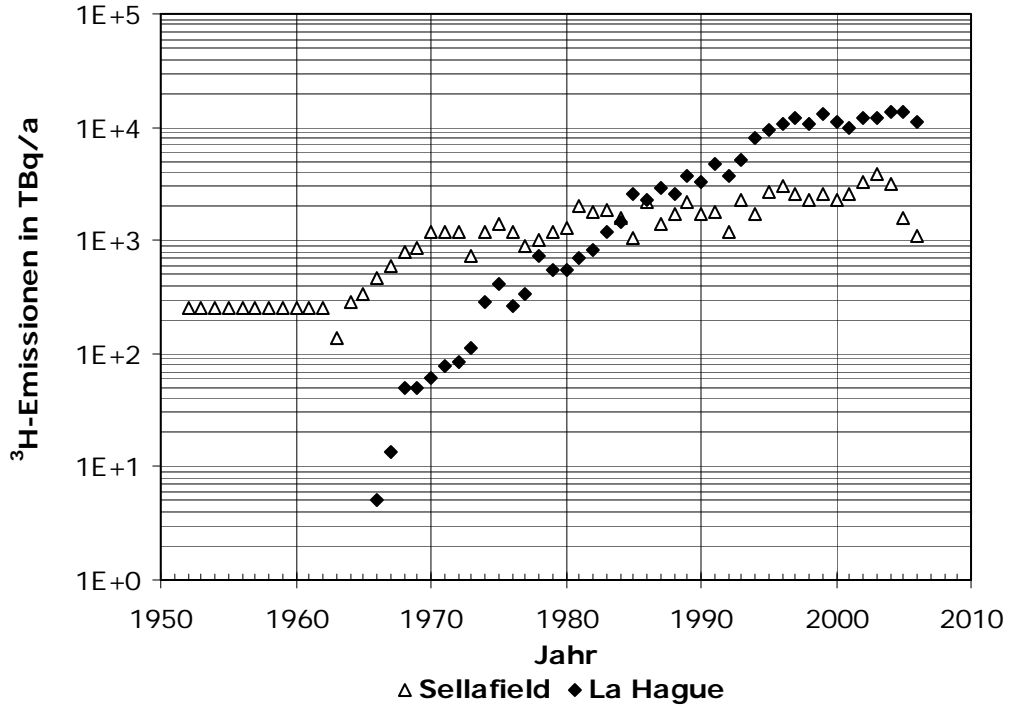


Abbildung 95: Flüssige Tritiumemissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

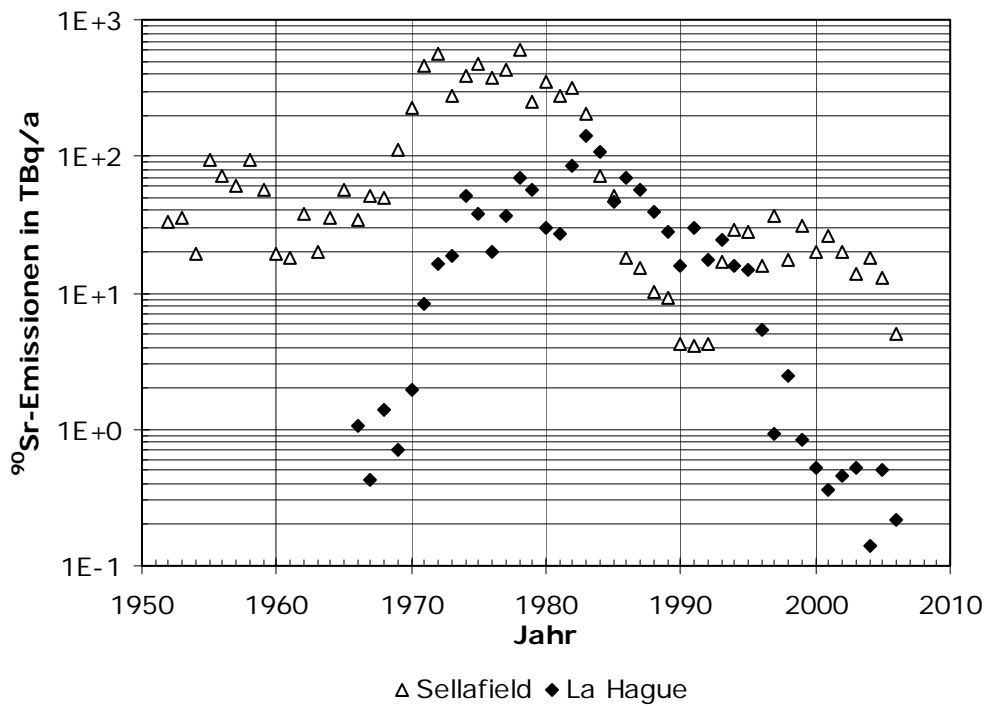


Abbildung 96: Flüssige ^{90}Sr -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

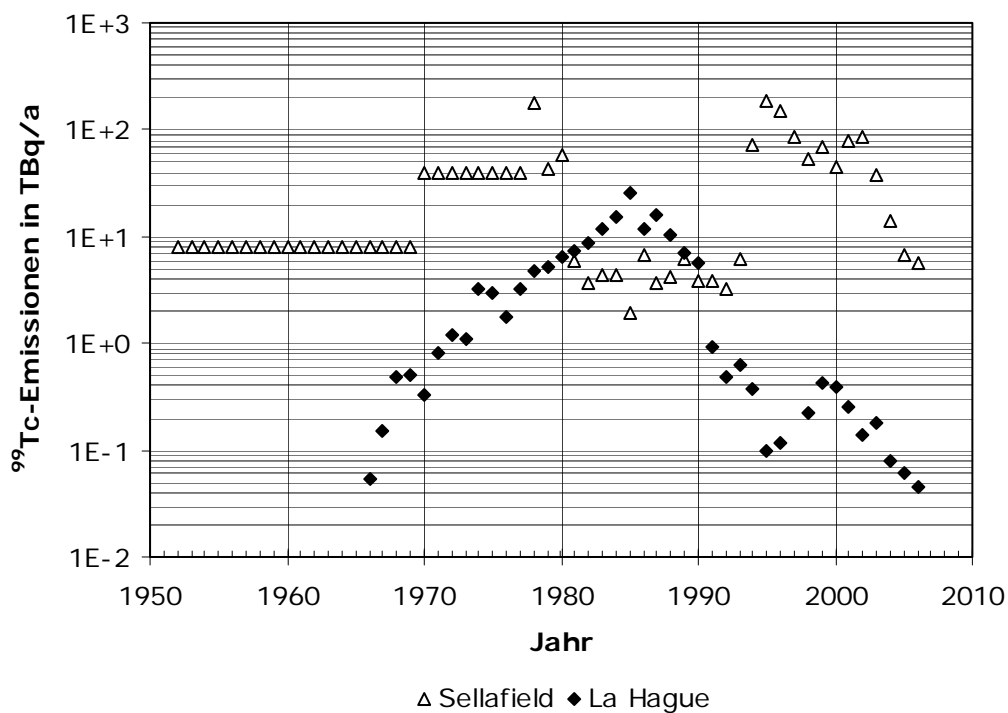


Abbildung 97: Flüssige ^{99}Tc -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

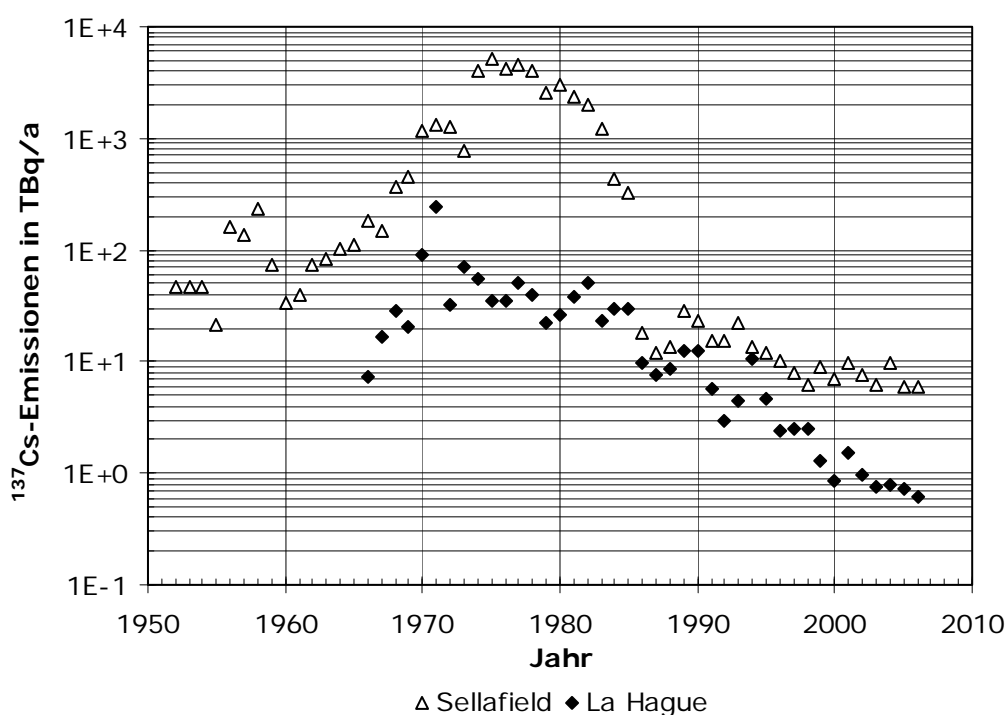


Abbildung 98: Flüssige ^{137}Cs -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

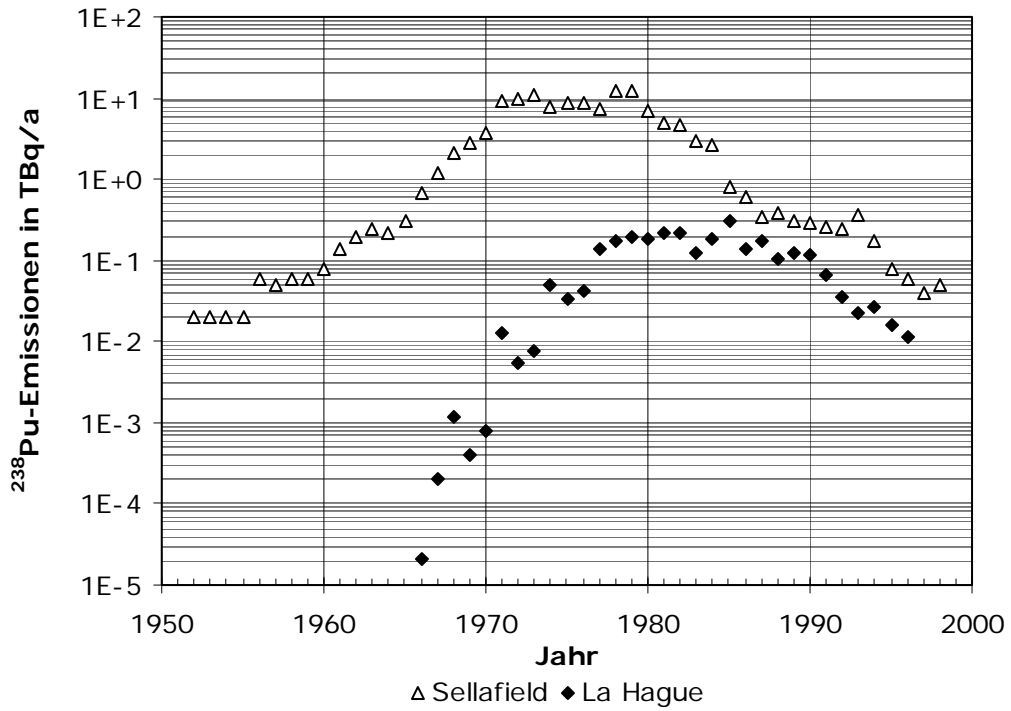


Abbildung 99: Flüssige ^{238}Pu -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

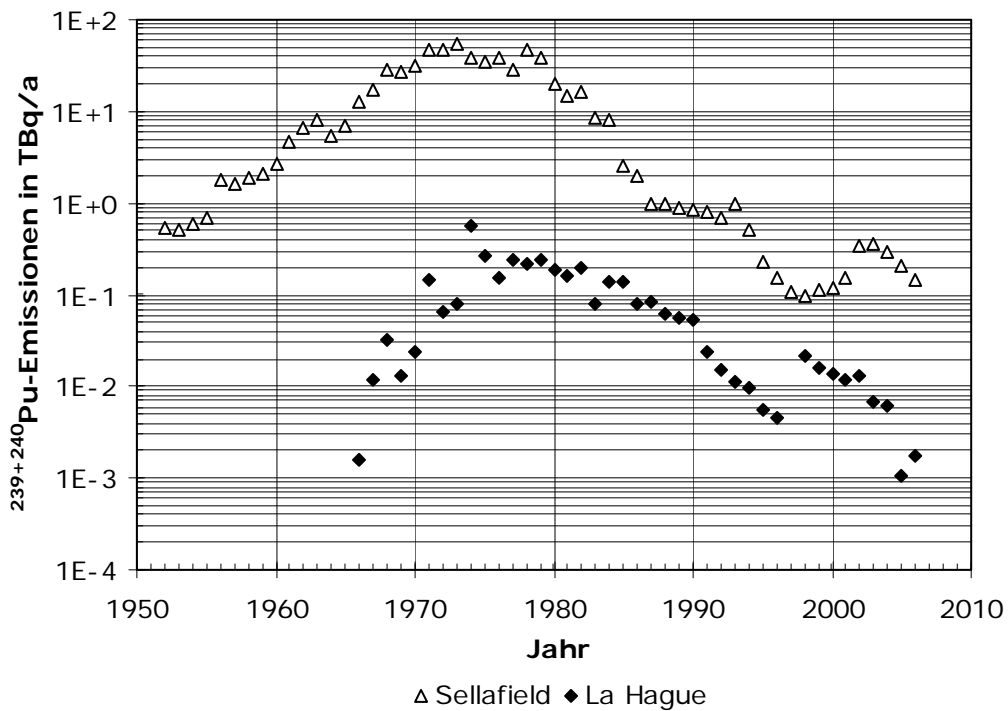


Abbildung 100: Flüssige $^{239+240}\text{Pu}$ -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

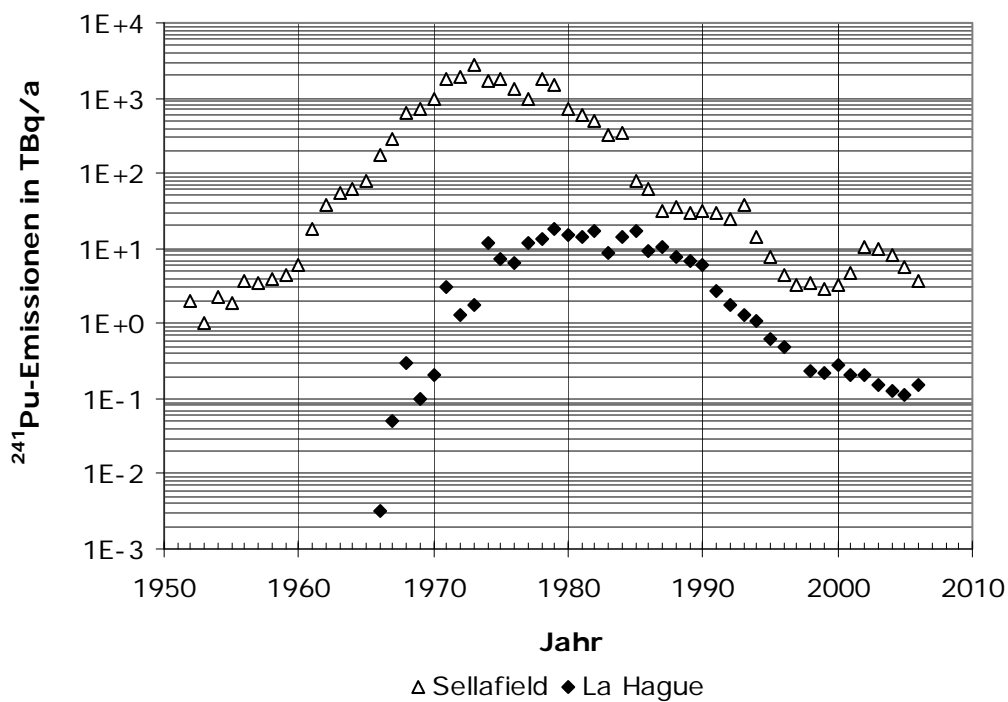


Abbildung 101: Flüssige ^{241}Pu -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

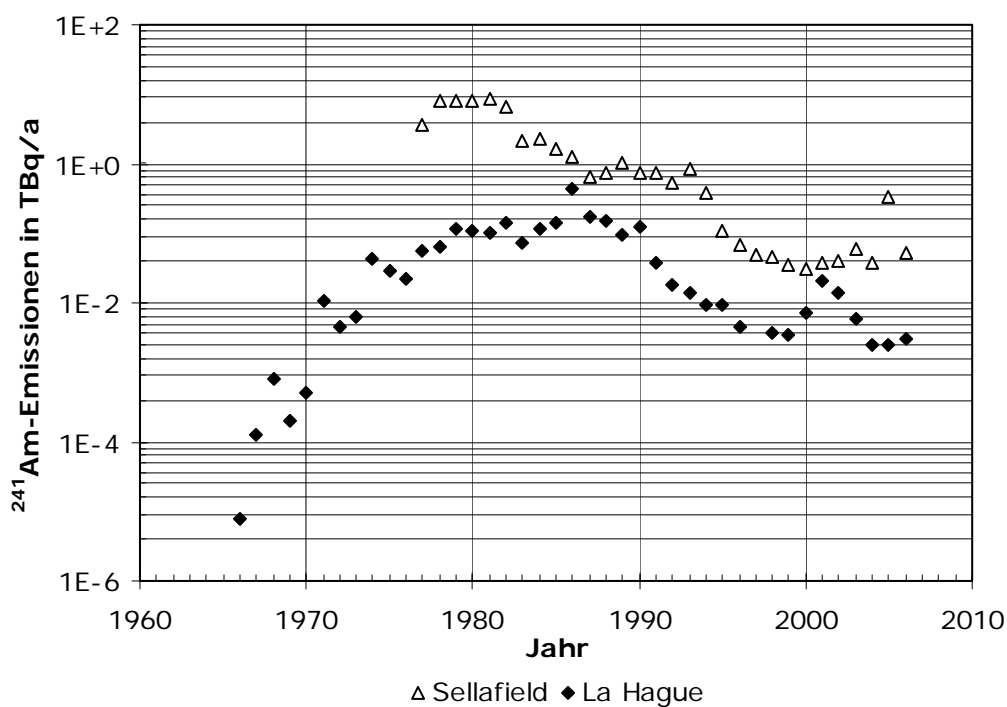


Abbildung 102: Flüssige ^{241}Am -Emissionen in TBq/a aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

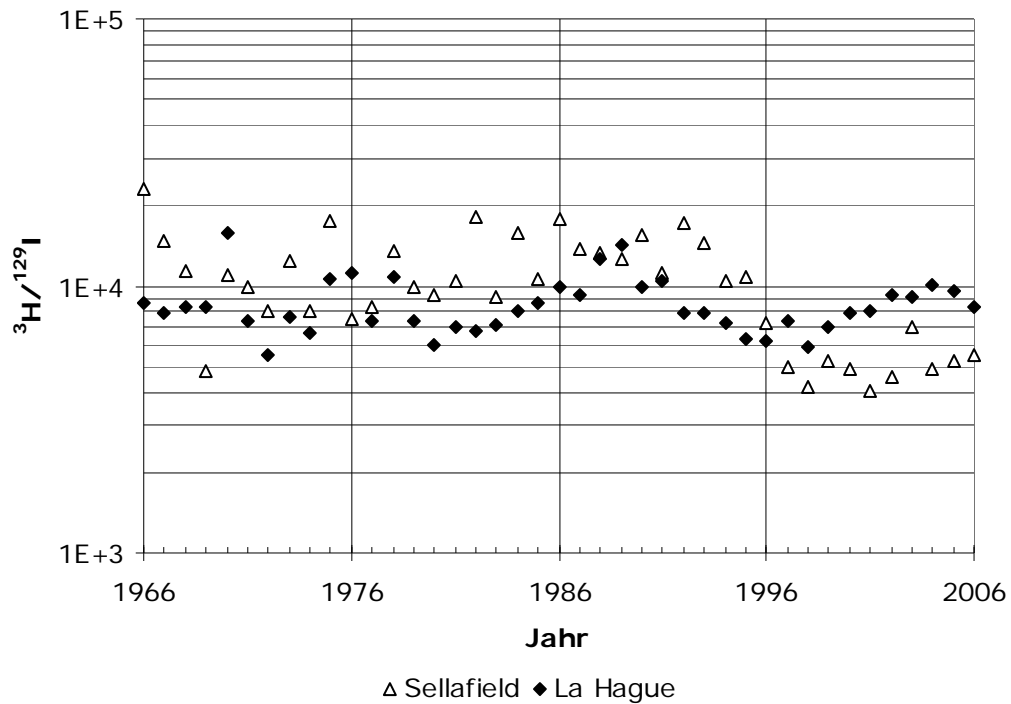


Abbildung 103: $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

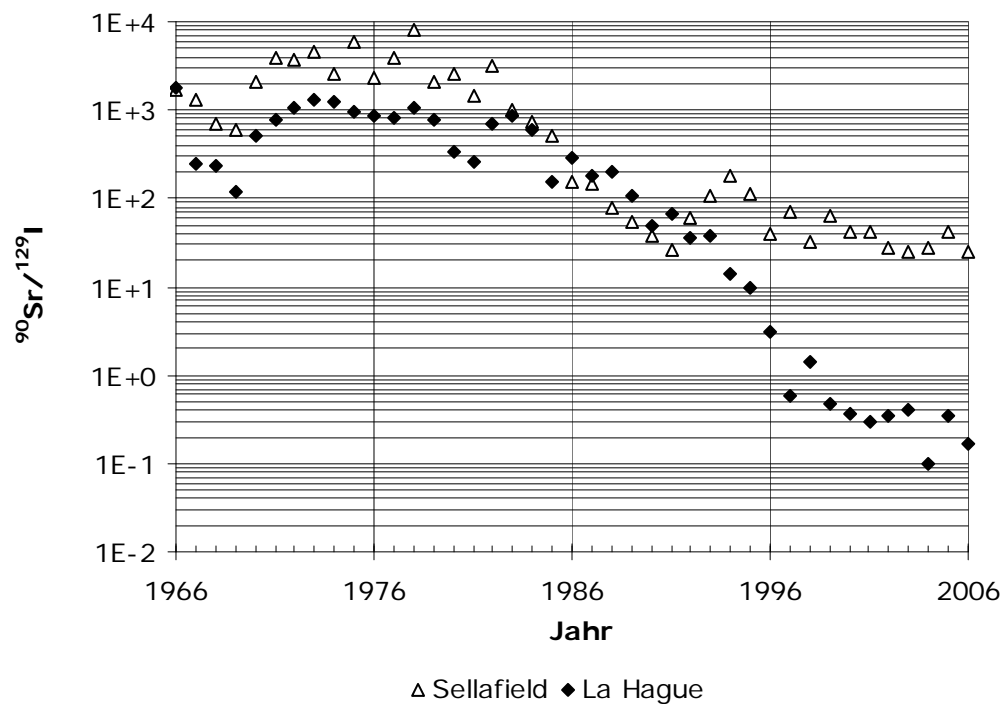


Abbildung 104: $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

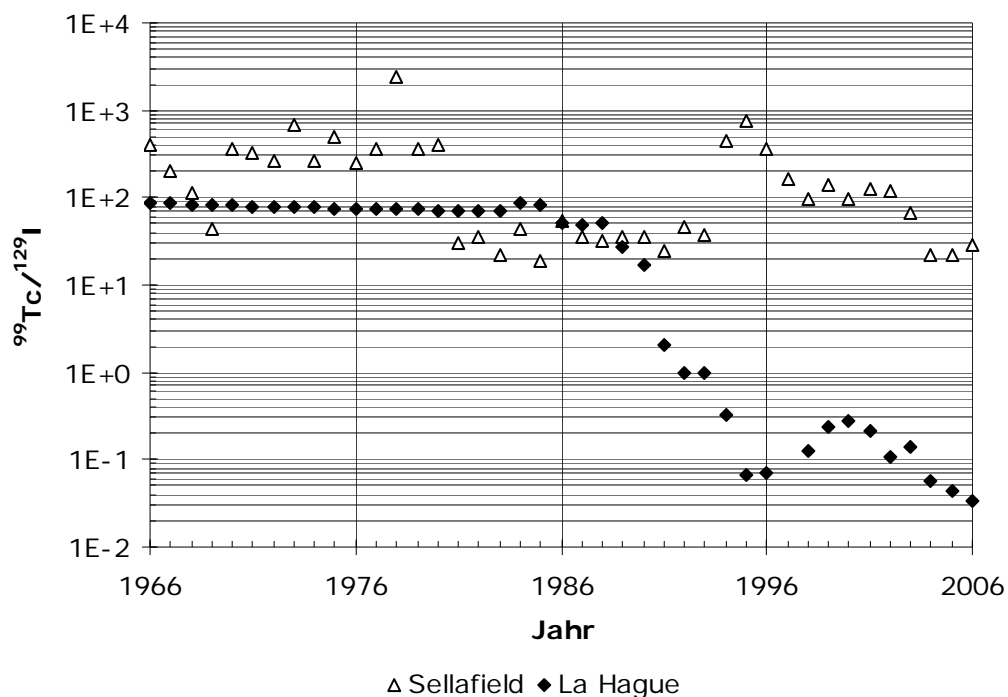


Abbildung 105: $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

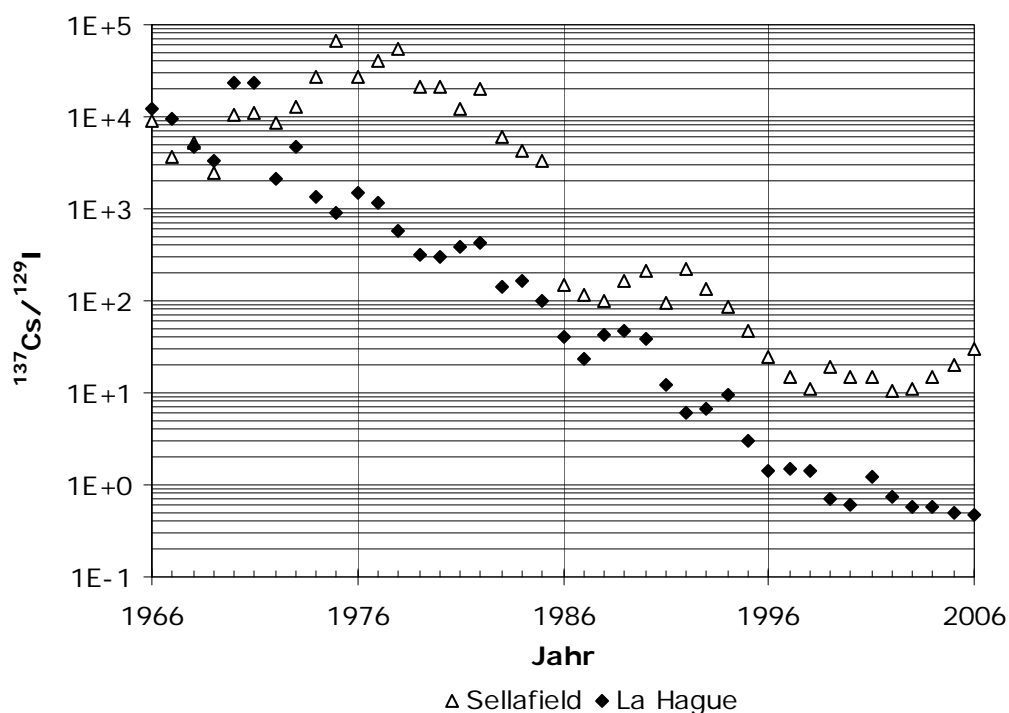


Abbildung 106: $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

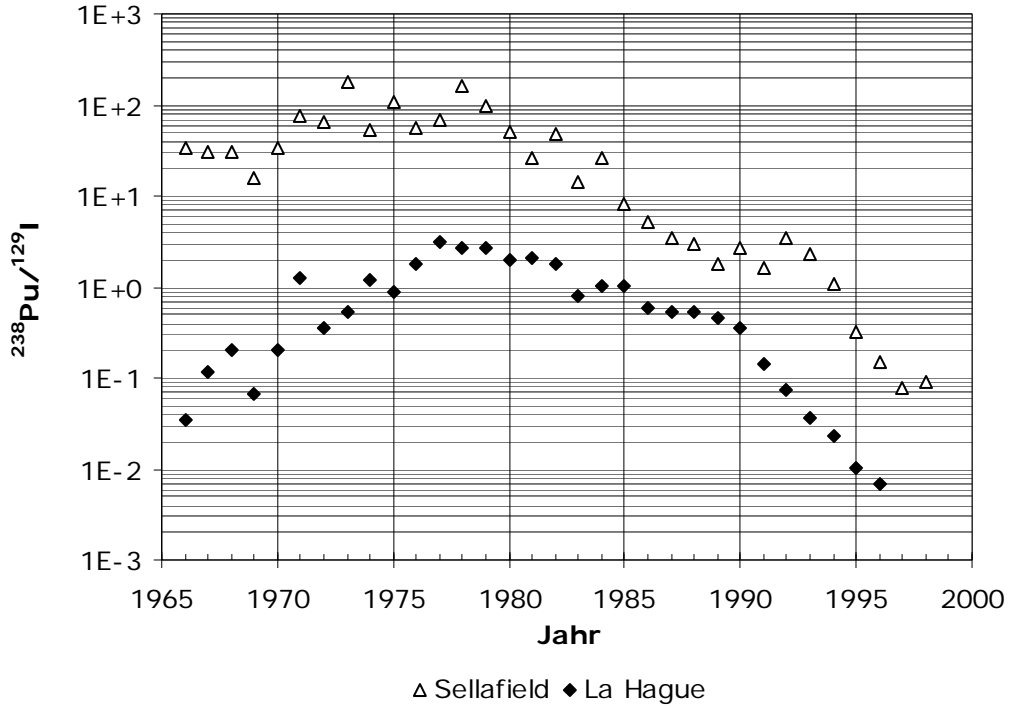


Abbildung 107: $^{238}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

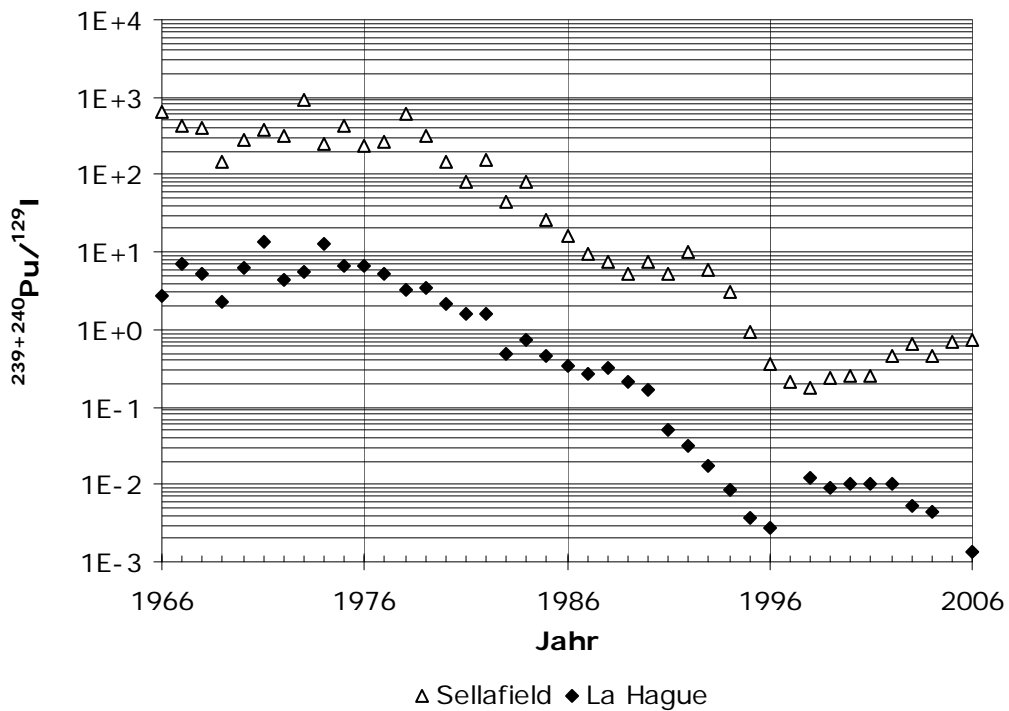


Abbildung 108: $^{239+240}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

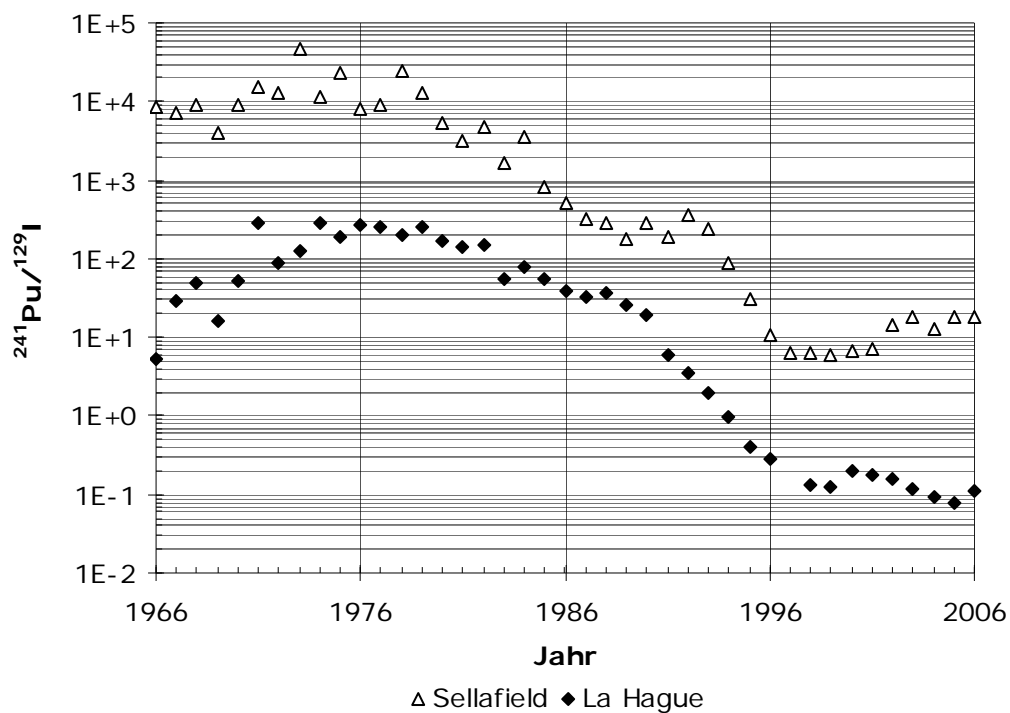


Abbildung 109: $^{241}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

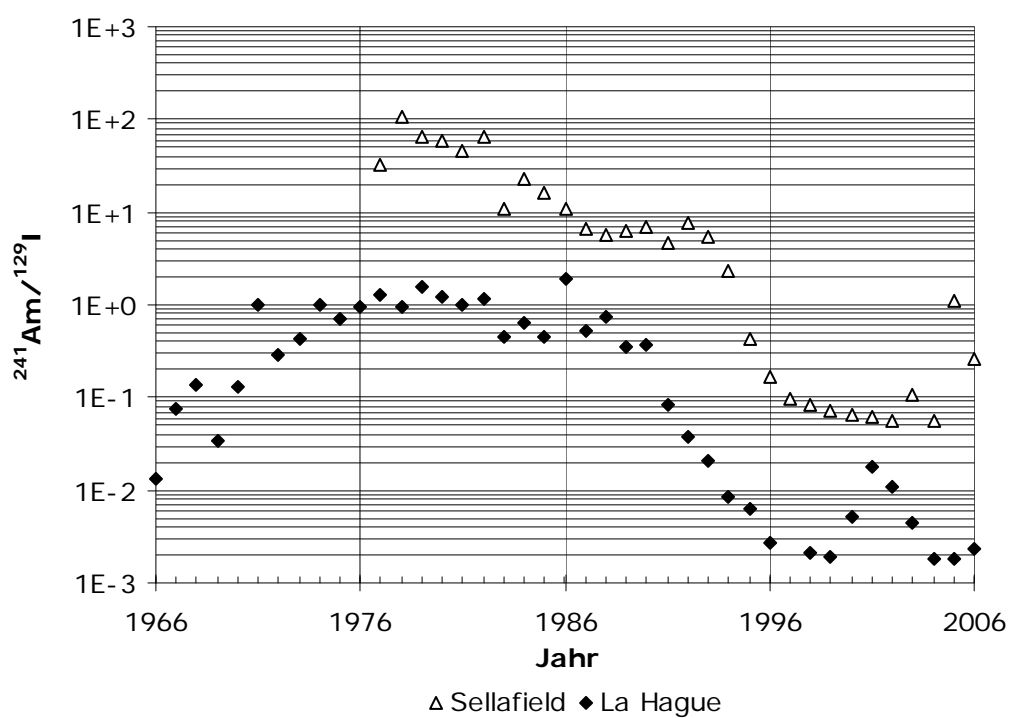


Abbildung 110: $^{241}\text{Am}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Ableitungen aus Sellafield (Dreiecke) und La Hague (ausgefüllte Rauten) im zeitlichen Verlauf.

Danksagung

Ich danke ganz besonders Herrn Prof. Dr. Rolf Michel für die Überlassung des interessanten Themas und die Möglichkeit, diese Dissertation am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR) anzufertigen. Insbesondere bin ich für die stetige Unterstützung, hervorragende Betreuung und immerwährende Diskussionsbereitschaft dankbar. Ebenso danke ich Frau Prof. Dr. Carla Vogt für die Betreuung dieser Arbeit und dem gesamten Arbeitskreis der Analytischen Chemie für die Ermöglichung der ICP-MS-Messungen.

Der Arbeitsgruppe Ionenstrahlphysik der ETH Zürich danke ich für die nette und freundliche Aufnahme während der AMS-Messungen. Mein besonderer Dank für die Durchführung der Meßreihen gilt dabei Dr. Vasily Alfimov und Dr. Hans-Arno Synal.

Diese Arbeit wurde vom Bundesamt für Strahlenschutz, einer dem BMU untergeordneten Behörde, im Rahmen des Strahlenschutzvorhabens 4481 gefördert. Diese Arbeit gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) übereinstimmen. Allen anderen an diesem Vorhaben mitwirkenden Wissenschaftlern danke ich für die Bereitstellung der Daten, die die eigenen Ergebnisse in wertvoller Weise ergänzten. Unter Leitung des BSH in Hamburg waren das Risø in Dänemark, die norwegische Strahlenschutzbehörde NRPA, die ETH Zürich und das ZSR in Hannover am Strahlenschutzvorhaben beteiligt. Prof. Dr. Hartmut Nies und Dr. Jürgen Herrmann vom Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie in Hamburg danke ich für die Leitung des Strahlenschutzvorhabens, die Beschaffung der Wasserproben und die Bereitstellung des Kartenmaterials. Darüber hinaus danke ich Prof. Dr. Hartmut Nies und Dr. Jürgen Herrmann für die schönen und lehrreichen Stunden im BSH.

Die Erstellung dieser Arbeit erforderte einen erheblichen experimentellen und logistischen Aufwand, die ohne die Mithilfe von Rüdiger Sachse, Karl-Heinz Iwanek, Abdelouahed (Wahid) Daraoui, Alexander Solle und Monika Gorny nicht zu bewältigen gewesen wäre. Darüber hinaus möchte ich allen Mitarbeitern des ZSR danken, die sich dieser Arbeit zur Durchsicht angenommen haben. Birthe Klebow, Florian Jeschke, Claudia König, Dieter Jakob und in besonderem Maße Henryk Wicke bin ich an dieser Stelle zu Dank verpflichtet. Allen übrigen Mitgliedern des ZSR danke ich für die schöne Zeit in Herrenhausen.

Meinen Eltern danke ich dafür, daß sie mir alles ermöglicht haben.