Analytik von ^{127}I und ^{129}I in Umweltproben

Zur Erfüllung der Prüfungsbedingungen
der Diplomprüfung im Fach Chemie an der
Johannes-Gutenberg-Universität Mainz

Jens Korntheuer
geb. 1982 in Offenbach am Main

Hiermit versichere ich, die folgende Arbeit selbst angefertigt und alle verwendeten Hilfsmittel angegeben zu haben.

Hannover, den 25.02.2009

_____(Jens Korntheuer)

Danksagungen

Mein Dank geht an Professor Rolf Michel in Hannover für das interessante Thema und die Anleitung meiner Arbeit. Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei Professor Jens Volker Kratz für meine Betreuung in Mainz.

Des weiteren möchte ich mich bei allen Mitarbeitern des ZSR Hannover für ihre Hilfsbereitschaft und freundliche Unterstützung bedanken, besonders bei Dr. Jakob, Dr. Sachse, Monika Gorney, Lübbert Tosch, Wahid Daraoui und Karl Heinz Iwannek.
Außerdem bedanken möchte ich mich bei Dr. Vasilis Alfimov an der ETH Zürich für die Durchführung der AMS Messungen.

Gliederung

1. Einleitung 5
1.1. Iod in der Umwelt.....5
1.2. Das pränukleare $^{129}I/^{127}I$-Verhältnis 6
1.3. Anthropogene ^{129}I-Quellen.....6
1.4. Anwendungen der Iodanalysen in Umweltproben 8
2. Aufgabenstellung 9
3. Quantifizierung von ^{127}I und ^{129}I 11
3.1. AMS.....11
3.2. ICP-MS 14
3.2.1. Allgemeines zur Analytik 14
3.2.2. Aufbau.....15
4. Beschreibung der Proben.....17
4.1. Probennahme 17
4.2. Herkunft und Eigenschaften der Proben.....18
5. Experimentelles.....20
5.1. Iod-Matrixtrennung von Bodenproben 20
5.2. Iod-Matrixtrennung von Meeresproben.....23
5.3. AMS.....24
5.4. ICP-MS 24
6. Auswertung 26
6.1. Auswertung der ICP-MS Messungen 26
6.2. Berechnung der Ergebnisse für Bodenproben.....27
6.3. Berechnung der Ergebnisse für Wasserproben.....29
6.4. Erkennungsgrenzen der Proben.....29
6.5. Berechnung der integralen Depositionsdichten 30
7. Ergebnisse und Diskussion 31
7.1. Betrachtung der ^{127}I-Gehalte in Böden 33
7.2. Betrachtung der ^{129}I-Gehalte in Böden 37
7.3. Das $^{129}I/^{127}I$-Isotopenverhältnis 42
7.4. Vergleich der ^{129}I und ^{137}Cs Aktivitäten.....49
7.5. Ringversuch Mittelmeer und Irische See 53
7.6. Proben aus Gorleben.....53
7.7. soil IAEA-375 Referenz 54
8. Fehlerberechnung 55
9. Zusammenfassung/Ausblick 56
10. Literatur.....58
11. Anhang.....60

1. Einleitung

1.1. Iod in der Umwelt

Das Halogen Iod (Z=53) ist ein für den Menschen essentielles Spurenelement und besitzt nur ein einziges stabiles Isotop mit der Massenzahl 127. Es sind noch 34 weitere Isotope mit Massenzahlen zwischen 108 und 144 bekannt, die allesamt instabil sind und mit Halbwertszeiten von einigen μs bis einigen Millionen Jahren zerfallen.

^{129}I ist das für die Untersuchungen in dieser Arbeit relevante Radioisotop. Für dieses Isotop gibt es natürliche und anthropogene Quellen. Dem Isotop ^{129}I kommt eine besondere Bedeutung zu, da das Vorkommen dieses Radionuklids durch den Menschen am stärksten und nachhaltigsten beeinflusst wurde. Um zwischen dem natürlichen und dem anthropogenen ^{129}I unterscheiden zu können, muss das Inventar an natürlichen ^{129}I sowie der Eintrag an künstlich erzeugtem ^{129}I bekannt sein.

^{129}I zerfällt mit einer Halbwertszeit von $1{,}57 \times 10^7$ Jahren unter Aussendung eines Elektrons mit einer maximalen Zerfallsenergie von 0,194 MeV in ^{129}Xenon. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 7,52 % kommt es dabei zur Emission eines γ-Quants mit einer Energie von 39,58 keV.

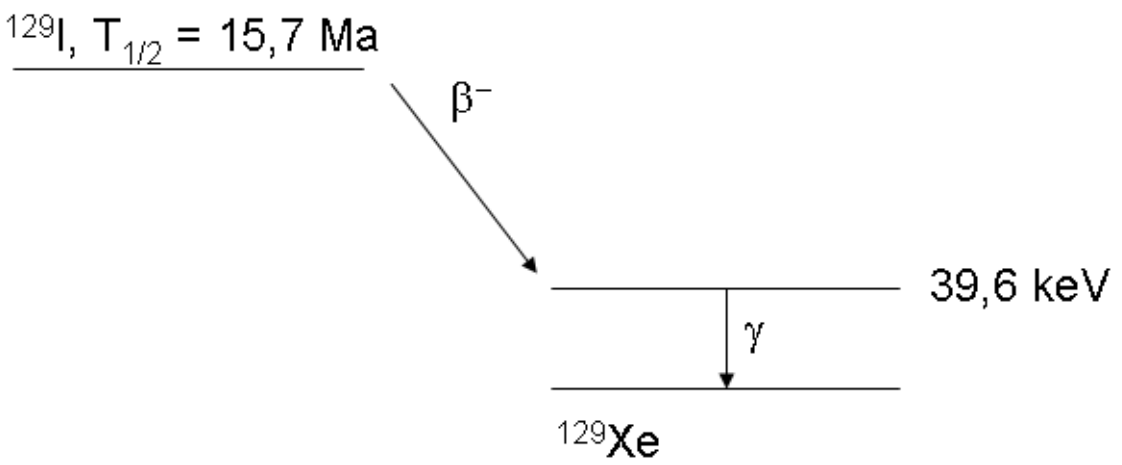

Abb. 1.1: Zerfallsschema von ^{129}I

1.2. Das pränukleare $^{129}I/^{127}I$-Verhältnis

Natürliches ^{129}I entsteht als fissiogenes Radionuklid durch die spontane Spaltung von prämordialem ^{238}U und als kosmogenes Radionuklid durch die Wechselwirkung von kosmischer Strahlung mit Xenon. Durch die langen Halbwertszeiten des ^{129}I und seiner geringen Bildungsraten in der Umwelt ist die Menge an natürlichem ^{129}I als konstant anzunehmen und liegt durch den andauernden Austausch zwischen und innerhalb der Umweltkompartimente im Gleichgewicht mit ^{127}I vor. Das daraus abgeleitete Isotopenverhältnis wird als pränuklear bezeichnet und ist in allen Umweltkompartimenten vor der anthropogenen Veränderung annähernd gleich. Es liegt bei $(2 \times 1{,}4^{\pm 1}) \times 10^{-13}$, wie in mehreren Messungen bestätigt wurde [Erd03]. Messungen in ozeanischen Sedimenten und Ozeanwässern aus großen Tiefen lieferten Isotopenverhältnisse von $1{,}5 \times 10^{-12}$ [Mor98] respektive $1{,}4 \pm 0{,}9 \times 10^{-12}$ [Ern03]. Berechnungen des Isotopenverhältnisses ergaben Werte zwischen $5{,}6 \times 10^{-13}$ und $1{,}5 \times 10^{-12}$ [Ern03] [Mor98] [Liu97] [Fab85].

Das gesamte ^{129}I-Inventar der Erde wird auf 50.000 kg geschätzt [Sch98]. Der größte Teil davon findet sich in der Erdkruste (Lithosphäre), und nur 263 kg sind als ‚freies' Inventar in Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre vorhanden.

1.3. Anthropogene ^{129}I-Quellen

Der anthropogene Eintrag von ^{129}I in die Umwelt begann mit der Nutzung der Kerntechnik um 1940. Er erfolgt primär durch die Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen. Atmosphärische Atomwaffentests und das Reaktorunglück von Tschernobyl 1986 trugen ebenfalls zu erhöhten ^{129}I-Gehalten bei. Das natürliche Isotopenverhältnis wurde dadurch nachhaltig gestört und man findet heute Werte, die um ein vielfaches höher liegen als die pränuklearen Verhältnisse. Für Europa sind besonders die Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague von Bedeutung.

Bis zum Jahr 2000 wurden durch die Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield und La Hague etwa 3200 kg ^{129}I größtenteils über Abwässer in die Umwelt entlassen. 70 % der gesamten Emissionen stammen dabei aus der französischen Wiederaufarbeitungsanlage La Hague. Die Menge des durch oberirdische Atomwaffentests freigesetzten ^{129}I ist dagegen geringer. Es werden hier Mengen zwischen 43 und 150 kg angenommen, da man aufgrund der Ungenauigkeiten bei

der Angabe der Sprengkraft der oberirdischen Kernwaffenexplosionen zu keiner besseren Abschätzung kommt [Mic04].

Die Menge an ^{129}I, die durch den Unfall von Tschernobyl emittiert wurde, beläuft sich auf ca. 2 kg [Scd98] [Str96] [Mic04].

Aufgrund der langen Halbwertszeit von ^{129}I ist seine Anreicherung in der Umwelt nicht zu vermeiden, allerdings besitzt es wegen seiner geringen spezifischen Aktivität keine radiologische Relevanz. Im der Nähe der Wiederaufarbeitungsanlagen wurden jedoch stark erhöhte Isotopenverhältnisse gemessen. In Küstengewässern der Irischen See wurden zum Bespiel Werte von 3,4 x 10^{-6} festgestellt [Sch07].

^{129}I entsteht, neben allen anderen neutronenreichen Iod-Isotopen, bei der Spaltung von ^{239}Pu und ^{235}U mit thermischen Neutronen. Die Isobarenausbeuten liegen bei 0,74 % für Uran (siehe Abb.1.2), und 1,6 % für Plutonium [Erd03] [Eng94].

Für durch induzierte Spaltung von ^{235}U erzeugtes Iod liegt das Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$ bei 6,06.

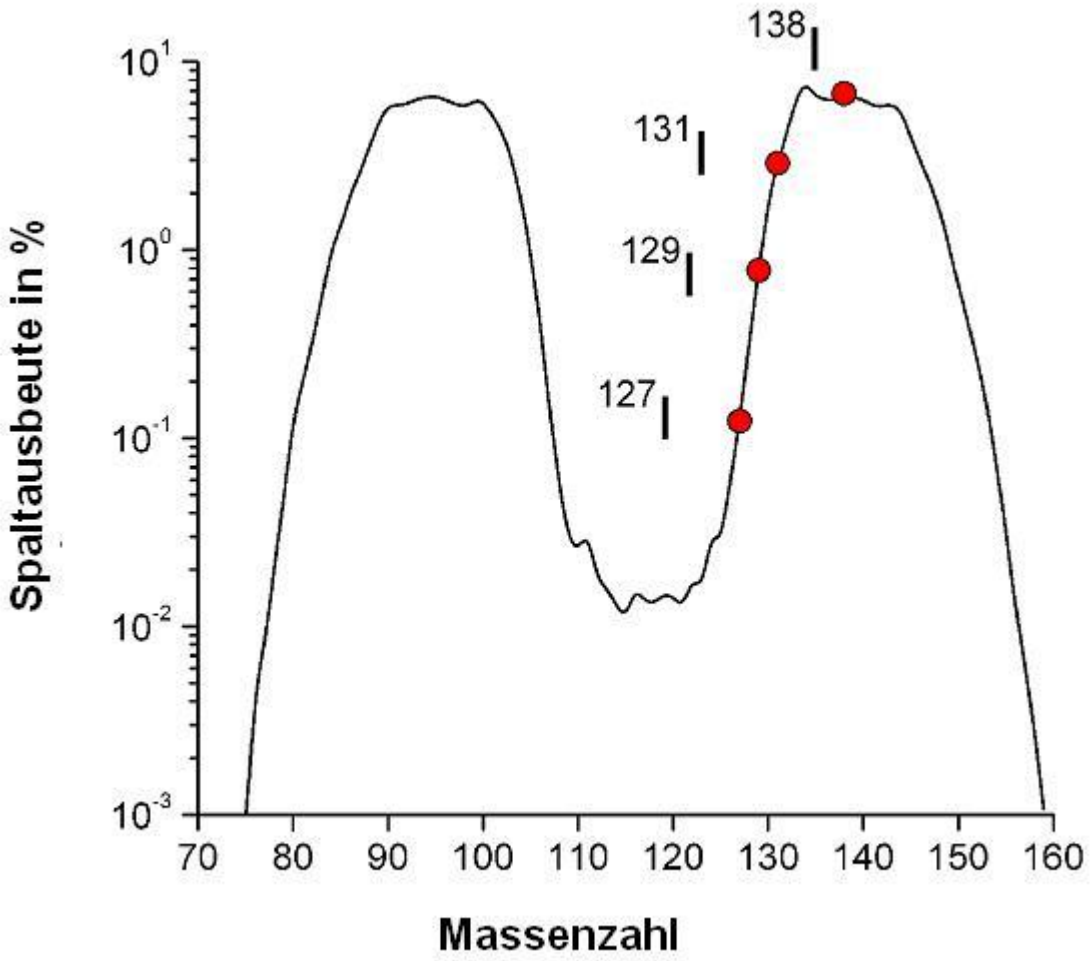

Abb. 1.2: Spaltausbeute von U^{235} mit thermischen Neutronen [Eng94]

1.4. Anwendungen der Iodanalysen in Umweltproben

Für die Analyse von ^{129}I als langlebiges Isotop in Umweltproben gibt es mehrere Anwendungen. Besondere Bedeutung hat ^{129}I in Bezug auf den Reaktorunfall von Tschernobyl. Obwohl die emittierte Menge mit circa. zwei Kilogramm gering war, ist es möglich, über die Depositionsdichte Aussagen zur retrospektiven Dosimetrie für die Kontamination durch ^{131}I ($T_{1/2}$ = 8,02 d) zu treffen, lange nachdem dieses zerfallen ist. Aus der Verteilung von ^{129}I in der Umwelt kann man Austauschparameter und Verweilzeiten von Iod in Böden ableiten. Durch Iodanalysen von Seewasserproben lassen sich Meeresströmungen verfolgen. ^{129}I ist ein wichtiger Tracer für maritime und geologische Prozesse. Für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen in geologischen Formationen ist Iod aufgrund seiner hohen Mobilität für Langzeitbetrachtungen eines der dosisrelevantesten Radionuklide [Nea99].

2. Aufgabenstellung

In dieser Arbeit soll der anthropogene Eintrag des radioaktiven Isotops ^{129}I in Böden untersucht werden, speziell die Migration in tiefere Bodenhorizonte bis zu zwei Metern. Hierzu wurden drei Bodenprofile aus der Kontaminationszone II der Umgebung um Tschernobyl in der Ukraine analysiert. Diese Profile sind von Interesse, da man hier einen definierten Eintrag von ^{129}I zu einem bestimmten Zeitpunkt findet. Verursacht wurde dies durch das Reaktorunglück im April 1986 und die daraus resultierende Kontamination. Der Anteil der kontinuierlichen Kontamination aus anderen Quellen wie den Eintrag aus den Wiederaufarbeitungsanlagen, wie es in Deutschland der Fall wäre, ist dagegen geringer.
Zum Vergleich wurde noch ein Bodenprofil vom Ufer der Vereinigten Mulde in Sachsen hinzugezogen. Dieses Gebiet ist aufgrund der radiologischen Belastung durch den Uranbergbau zu Zeiten der ehemaligen DDR interessant und wird im Rahmen eines am ZSR laufenden Projektes auf Radionuklide analysiert. Diese Gelegenheit wurde genutzt, um eines der bestehenden Profile ebenfalls auf ^{129}I hin zu untersuchen.

Im Rahmen laufender Messreihen geschah zudem die Analyse von zwei Bodenproben aus Gorleben.

Zusätzlich wurden Wasserproben der IAEA, genommen aus der Irischen See und dem Mittelmeer, im Zuge eines Ringversuchs zur Qualitätssicherung analysiert.

Die Proben untersucht man auf das radioaktive Isotop ^{129}I und das stabile Isotop ^{127}I. Dafür hat sich ein Verfahren durchgesetzt, das heute routinemäßig angewandt wird. Zuerst erfolgt eine chemische Aufarbeitung, die von der Probenmatrix abhängt. Danach ermittelt man das intrinsische Isotopenverhältnis $^{129}I/^{127}I$ der Proben mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS für accelerator mass spectrometry) und den gesamten Iodgehalt der Probe mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS für inductively coupled plasma mass spectrometry).
Da an der Universität Hannover keine AMS Apparatur zu Verfügung steht, geschahen die entsprechenden Messungen am Paul Scherer Institut der

Eidgenössischen Technischen Hochschule Zürich. Die ICP-MS-Analyse konnte am Institut für Analytische Chemie der Leibniz Universität Hannover durchgeführt werden.

3. Quantifizierung von ^{127}I und ^{129}I

Für die Quantifizierung von ^{127}I und ^{129}I hat sich in neuester Zeit ein Verfahren durchgesetzt, das AMS und ICP-MS kombiniert. Als die AMS als Analysemethode noch nicht zur Verfügung stand wurde für die Bestimmung von Iod die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) benutzt. Die RNAA ist jedoch nur in der Lage, Isotopenverhältnisse bis zu einer Nachweisgrenze von 2×10^{-10} zu messen [Kli05]. Aus diesem Grund werden heute AMS-Messungen bevorzugt.

3.1. AMS

Die Messung der Isotopenverhältnisse von ^{129}I zu ^{127}I wurde am 0,5 MV ‚Tandy' Beschleuniger der PSI/ETH Zürich AMS Einrichtung durchgeführt.

In der Massenspektrometrie trennt man Ionen nach ihrem Verhältnis von Masse zu Ladung. Bei der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) erreichen die zu analysierenden Teilchen sehr hohe Energien, was es möglich macht, zwischen den unterschiedlichen Massen der Isotope eines bestimmten Elementes zu unterscheiden.

Der Vorteil in der AMS liegt darin, auch bei sehr unterschiedlichen Isotopenverhältnissen (hier $^{129}I/^{127}I$) noch massenselektiv messen zu können. An diesem AMS System können routinemäßig Isotopenverhältnisse in der Probe von 2×10^{-13} bis 10^{-8} gemessen werden [Alf07]. Der Aufbau ist verhältnismäßig einfach, die Durchführung stabil und verlässlich, und die Qualität der Ergebnisse genau so gut oder sogar besser als solche, die an größeren Tandemgeräten erhalten wurden.

Die Messungen werden mit $^{129}I^{+3}$ durchgeführt, da man hier einen sehr geringen Isobarenhintergrund ($^{43}Ca^{+}$ und $^{86}Sr^{+2}$) erhält. Einzig der $\{43\}^{+}$-Molekül-Hintergrund bereitet Probleme und muss gegebenenfalls durch eine erhöhte Gasstripperdichte auf Kosten der Ausbeute verringert werden [Zha07].

Die AMS ist keine absolute Bestimmungsmethode, sondern gibt nur relative Verhältnisse an. Daher kann man Umweltproben mit geringen Iod-Gehalten mit ^{127}I anzureichern, um auch bei solchen Proben ^{129}I-Analysen zu ermöglichen [Erd03]. Das hierzu verwendete Woodward-Iod wird in Abschnitt 5.1. (s.S. 20) beschrieben.

Der Aufbau des 0,5 MV Beschleuniger-Massenspektrometers ist in Abb. 3.1 dargestellt. Es besteht aus einer Cäsium-Sputter-Ionenquelle, gefolgt von einem

Niederenergie-Massenspektrometer, dem 0,5 MV Pelletron Tandem-Beschleuniger mit Stripper, einem Hochenergie-Massenspektrometer und einem elektrostatischen Deflektor, und schließlich einem Gasionisationsdetektor. Um die Anzahl der optischen Komponenten gering zu halten, wird die gesamte Fokussierung durch die Beschleunigungs- und Ablenk-Magneten und eine Einzel-Linse durchgeführt. [Sto05]

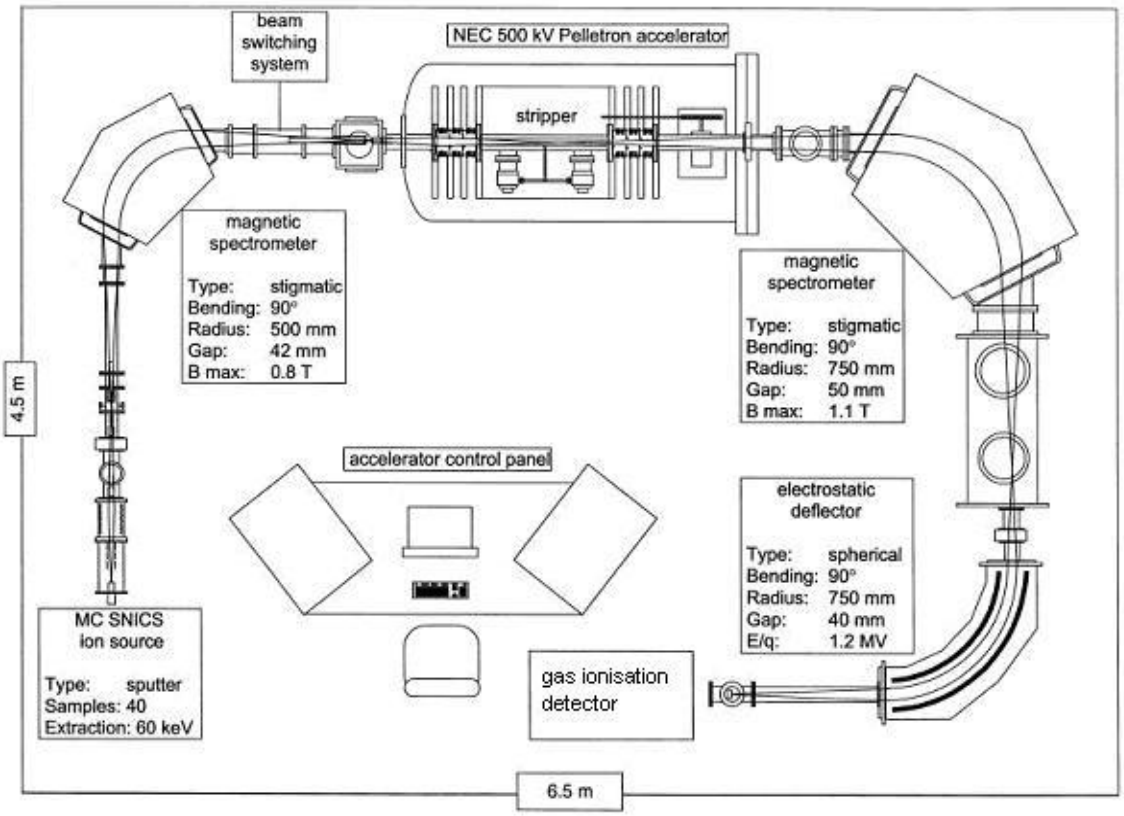

Abb. 3.1: Aufbau AMS [Syn00]

In die Ionenquelle wird ein Probenrad eingesetzt, das die Analyseproben in kleinen Titanbechern enthält, die als Targets dienen. Ein Probenrad kann 40 dieser Titanbecher enthalten, wovon 32 Proben sind, 4 Maschinenblanks und 4 interne Standards. Die Proben-Titanbecher enthalten ein Gemisch aus dem Probenmaterial mit einer etwa fünffachen Menge Silberpulver, das mit einer Stempelpresse bei 200 bar gepresst wurde.

Verwendet wird eine kommerziell erhältliche NEC MC-SNICS Sputter-Ionenquelle [Nor92] die auf einer Hochspannungsplattform montiert ist. Um einen negativ geladenen Strahl zu erzeugen, wird eine negative Spannung angelegt. So werden Cs^+-Ionen zum Target hin beschleunigt, wo sie I^--Ionen aus der Oberfläche des Targets herausschlagen. Da nur negativ geladene Ionen die Ionenquelle verlassen,

wird schon bei Beginn der Analyse verhindert, ^{129}Xe als Isobarenhintergrund zu erhalten.

Die Ionen aus der Ionenquelle werden zu einem 90° Massenspektrometer auf der Niedrig-Energie-Seite hin beschleunigt, an dem eine erste Massentrennung stattfindet. Der Krümmungsradius des Spektrometers beträgt 50 cm.
Von da aus durchläuft der Strahl den 500 kV Pelletron Tandembeschleuniger, in welchem die I^--Ionen durch ein Argon-Stripper-Gas mit einer Dichte von 0,22 $\mu g/cm^2$ zu I^{+3} umgepolt werden [Zha07]. Molekül-Ionen werden durch Stöße mit dem Strippergas zerstört, da Moleküle mit der Ladung 3+ oder höher instabil sind [Syn00]. Der Untergrund des Gerätes wird hierdurch verringert. Durch die angelegte Spannung erhalten die Ionen eine Energie von zwei Megavolt. Jeweils vor und nach dem Tandembeschleuniger befinden sich Faraday-Becher im Strahlengang, die es erlauben, die Transmissions-Wahrscheinlichkeit der Ionen durch den Stripper zu berechnen.
Die Kationen werden zum Hochenergie-Massenspektrometer hin beschleunigt. Hier wird das Masse/Ladungs-Verhältnis Mz/e = 43 von den restlichen Strahlbestandteilen getrennt. Dann passiert der Strahl einen elektrostatischen Deflektor. Die Kombination aus Magnet und elektrostatischem Deflektor sorgt für eine Fokussierung des Strahls auf den Detektor. Dadurch ist die Position des Strahls unabhängig von geringen Variationen seiner Energie. Im Detektor werden die ankommenden Teilchen schließlich analysiert.

<u>Gasionisationsdetektor:</u>

Zur Detektion der ^{129}I-Isotope wird ein Gasionisations-Detektor verwendet. Diese Art von Detektor wird auch als ΔE-$E_{residual}$-Detektor bezeichnet und ist in der Lage, ähnliche Masse/Ladungsverhältnisse von Teilchen anhand ihrer Gesamtenergie und ihres Energieverlustes bei beim Durchgang durch Materie zu unterscheiden.

Die Elementaranalyse in Gasionisationsdetektoren basiert auf der Ermittlung der Gesamtenergie und dem Energieverlust der Ionen dE über eine Strecke dx, welcher eine Funktion der Kernladungszahl des eintreffenden Ions Z_1 zum Quadrat, der Kernladungszahl des Target-Materials Z_2 sowie der Geschwindigkeit des Ions v_1 ist

[Alf05] Dies geschieht nach der Bethe-Bloch-Gleichung, die in Formel 3.1 in verkürzter Form widergegeben ist.

$$\frac{dE_1}{dx} \propto \frac{Z_1^2}{v_1^2} \times Z_2 \qquad (3.1)$$

Der Detektor besteht aus einer mit Gas gefüllten Kammer, an deren Innenwände Elektroden angebracht sind, an denen ein elektrisches Feld anliegt. Die Ionen gelangen durch ein SiN-Fenster in die Ionisationskammer und erzeugen auf ihrem Weg durch Stöße mit dem Detektorgas Elektronen, wobei sie Energie abgeben. Die erzeugten Ladungsträger werden durch eine angelegte Spannung an zwei Detektorplatten abgefangen und können als elektrischer Strom gemessen werden. Hierbei ist die Stärke des Stromes ein Maß für den Energieverlust der Teilchen. Durch die Anordnung mehrerer Anoden ist es möglich, den Energieverlust über eine definierte Strecke zu messen.

Am Ende der Ionisationskammer wird die Restenergie ermittelt. Daraus sowie aus dem vorhergegangenen Energieverlust wird die Gesamtenergie berechnet. Aus der Auftragung des Energieverlustes über die Strecke gegen die Gesamtenergie lassen sich Teilchen verschiedener Ladung, aber (fast) gleicher Masse-Ladungs-Verhältnissen differenzieren. Im Falle von $^{129}I^{+3}$ ist es also möglich, das Iod von $^{86}Sr^{+2}$ und Molekülfragmente $\{43\}^+$ zu unterscheiden. [Alf05]

3.2. ICP-MS

3.2.1. Allgemeines zur Analytik

Der Gehalt an stabilem Iod in den Proben wurde mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (kurz: ICP-MS) ermittelt. Die Analyse von ^{129}I ist durch Interferenzen mit dem in dem Plasmagas enthaltenem ^{129}Xe nicht möglich.

Ein Massenspektrometer besteht im Prinzip aus vier Einheiten: einer Probenzufuhr mit Zerstäuber, dem Plasma, einem Massenseparator und einer Auswerteeinheit.

Bei der ICP-MS wird die Probenmatrix einem Plasma zugeführt. Dieses Plasma hat ausreichend Energie, um vorhandene Moleküle zu atomisieren und die Atome zu ionisieren. Die Ionen werden dann einem Massenspektrometer zugeführt, das die Ionen nach ihrem Masse-Ladungs-Verhältnis trennt. Nach erfolgter Auftrennung werden die ausgewählten Ionen dann detektiert und über eine Elektronik ausgewertet. Die Gerätespezifikationen werden im Anhang gegeben [Kli05].

3.2.2. Aufbau

Der Aufbau der ICP-MS-Anlage wird schematisch in Abbildung. 3.2 gezeigt. Die Probe wird über eine peristaltische Pumpe in einen Zerstäuber geleitet, der die Probe als Aerosol über eine Sprühkammer in das Plasma einführt. Die Sprühkammer hat den Zweck zu verhindern, dass Aerosoltröpfchen, die größer sind als einige Mikrometer, in das Plasma gelangen. Größere Tröpfchen würden während der kurzen Verweilzeit im Plasma nicht verdampfen und es instabil werden lassen. Das gebildet Aerosol wird über eine Kapillare direkt in die Plasmafackel geleitet.

Das Plasma entsteht aus einem Argon-Gas, das mit einem Tesla-Funken gezündet und damit teilweise ionisiert wird. Ein elektrischer Strom mit 27,12 MHz erzeugt im Plasmabereich ein oszillierendes Magnetfeld, das die zuvor erzeugten Elektronen beschleunigt. Durch Stöße kommt es dabei zu lawinenartigen Ionisationen, die ein stabiles Plasma erzeugen. Die erreichten Temperaturen liegen bei 10000 K im äußeren Bereich des Plasmas, und bei 5000 bis 6000 K im inneren, da hier das Probenaerosol für Kühlung sorgt [Erd03] [Kli05].

Die eintreffenden Ionen eines bestimmten m/z-Verhältnisses werden durch einen Sekundärelektronenvervielfacher als elektrischer Impuls detektiert.

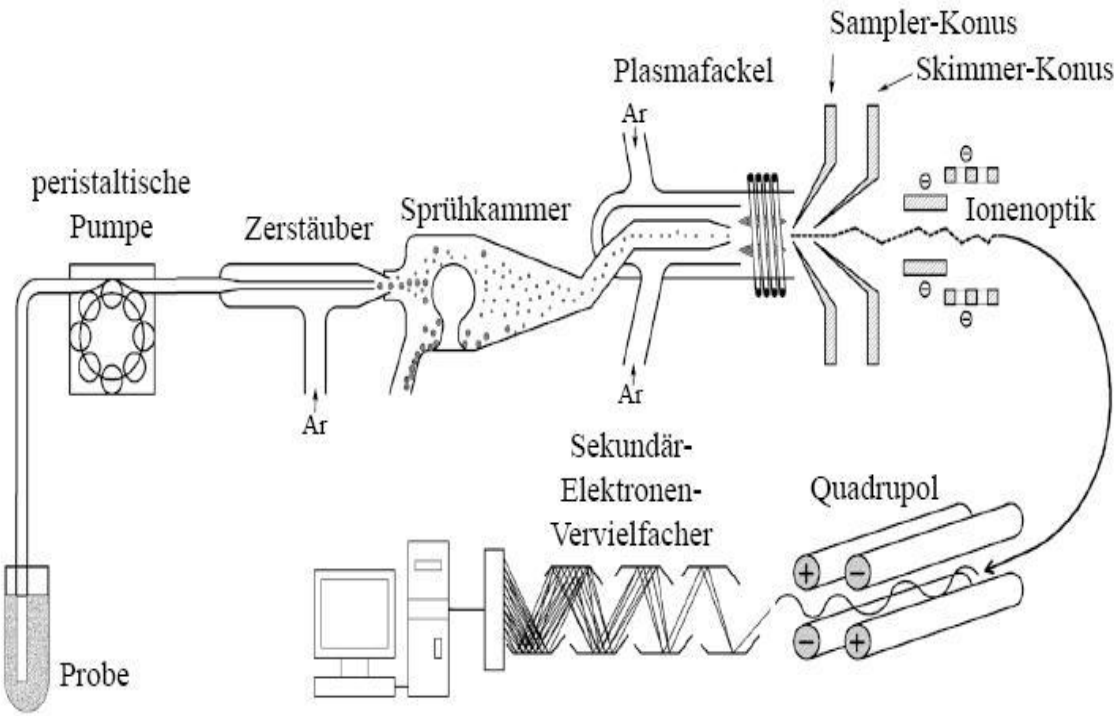

Abb. 3.2: Schematischer Aufbau des ICP-MS

Der Anteil derjenigen Ionen der Probe, die den Detektor erreichen, ist von verschiedenen Geräteparametern abhängig. Aufgrund der Beweglichkeit der einzelnen Bauteile wie Konen und Ionenlinsen, ist es möglich, durch ein so genanntes ‚Tuning' die Nachweiswahrscheinlichkeit zu erhöhen. Auch die Spannung, die am Quadrupol anliegt, sowie weitere Parameter können variiert werden. Die Geräte-Parameter werden zu Beginn eines jeden Messtages mithilfe einer Lösung, die die Isotope ^{9}B, ^{238}U und ^{115}In enthält optimiert. So erhält man möglichst hohe Zählraten und damit eine große Nachweiswahrscheinlichkeit.

Da die Nachweiswahrscheinlichkeit im Laufe eines Messtages Schwankungen unterworfen ist (in den meisten Fällen nimmt sie ab) werden ^{129}Xe und ^{132}Xe als interner Standard mit gemessen. Xenon ist im Plasmagas enthalten. ^{129}I, welches in der Probenmatrix enthalten ist, stört aufgrund seiner geringen Konzentration nicht.
Es kann davon ausgegangen werden, dass die Nachweiswahrscheinlichkeiten bei dem m/z-Verhältnis 127 und 129 gleich sind. Somit ergibt sich auch bei Nachweiswahrscheinlichkeiten, die sich mit der Zeit ändern stets dasselbe $^{127}I/^{129}Xe$ Verhältnis Q

$$Q = \frac{N-127}{N-129} \tag{4.2}$$

N-127 und N-129 bezeichnen hierbei die Ereignisse (Counts) pro Messintervall (run, Index r) in den m/z-Bereichen 126,5 -127,3 beziehungsweise 128,5- 129,3. In einem Run wird der gewählt m/z Bereich 100-mal ‚abgefahren'. Ein so genannter sweep dauert 180 ms. Dies wird für alle Probenlösungen, Standards und Spüllösungen durchgeführt.

4. Beschreibung der Proben

4.1. Probennahme

Insgesamt wurden vier Tiefenprofile analysiert für diese Arbeit. Drei ukrainische Tiefenprofile kommen aus der Umgebung von Tschernobyl aus den Orten Zhurba, Dowgij-Lis sowie Christinowka in Kontaminationszone II. Die Profiltiefe an diesen Orten beträgt zwei Meter.

Zum Vergleich führte man auch eine Untersuchung eines 100 cm tiefen Profils vom Ufer der Vereinigten Mulde in Sachsen durch.

Der Zeitraum der Probennahme der Ukraineproben war von Juli bis August 2006. Das Mulde-Profil wurde am 26.06.2008 erstellt.

Das Vorgehen bei der Probennahme ist in Abbildung 4.1 skizziert. Der Boden wird bis zu der gewünschten Tiefe abgetragen, wobei in der so ausgehobenen Grube eine Ecke mit einer Fläche von 20 x 20 cm ausgespart wird. Von dieser Fläche wurden die einzelnen Horizonte nacheinander abgetragen.

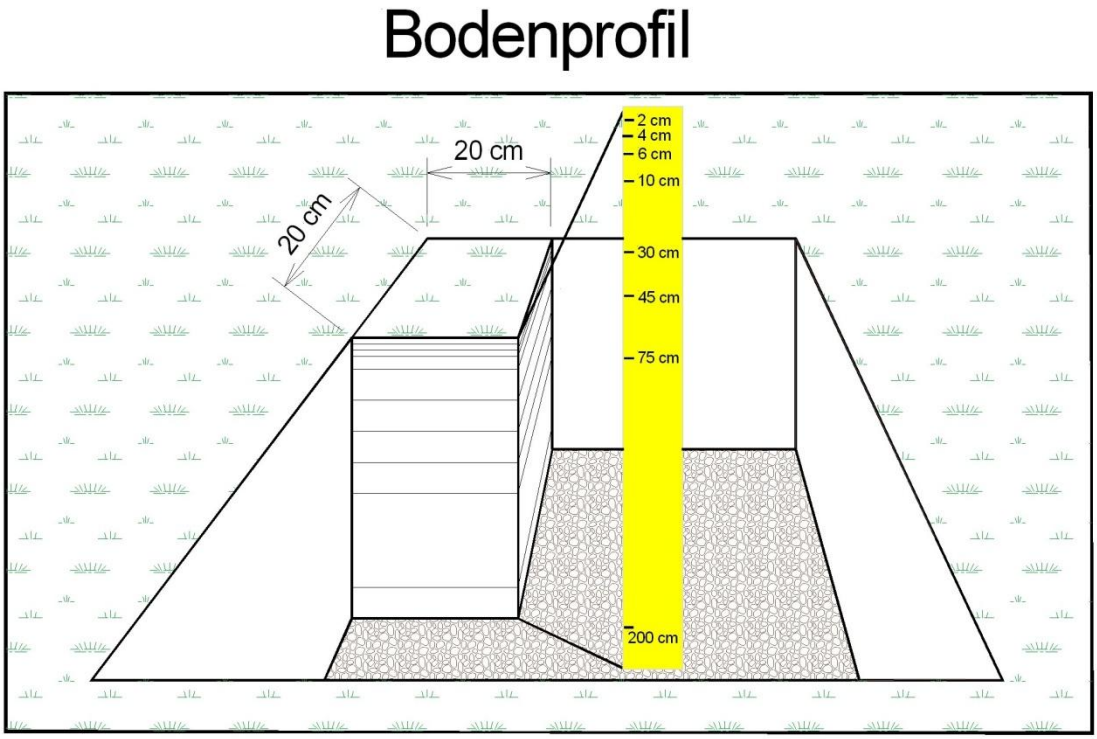

Abb. 4.1: Schema zur Entnahme von Bodenproben

Nach Entfernen des Bewuchses ließ man die Proben in einem abgedunkelten Raum bei Zimmertemperatur trocknen, bis auf Filterpapier ausgepresste Bodenklumpen keine erkennbare Feuchtigkeit mehr abgaben. Trocknung bei höheren Temperaturen ist nicht möglich, da sonst die Gefahr besteht, das Iod aus der Probe entweicht und dadurch die Analyseergebnisse verfälscht.
Um Steine und größere Wurzeln zu entfernen und möglichst homogene Proben zu erhalten, verwendete man ein Sieb mit einer Porengröße von 2 mm. Die für die Analysen eingesetzten Mengen betrugen zwischen 10 und 50 Gramm.

4.2. Herkunft und Eigenschaften der Proben

Die im Auftrag des ZSR unter Anleitung von Frau Dr. Romantschuk von der agrarwissenschaftlichen Universität Zythomir erstellten Profile stammen aus den Orten Christinowka, Dowgij-Lis und Zhurba in Kontaminationszone II.
Das Dorf Christinowka im Narodychi-Bezirk in der Ukraine hat die Koordinaten 51°14’31“N, 29°12’32“O. Der Boden wurde vor dem Unglück von Tschernobyl als Weideland genutzt. Es handelt sich hierbei um einen humosen Gley aus schwach lehmigem Sand. Die Gegend ist eben und aufgrund seiner Nähe zu dem Fluss Uzh steht das Gebiet häufig unter Wasser, wobei der Wasserstand im Boden starken Schwankungen unterworfen ist. Dies wird durch Rostflecken im Go-Horizont ab 30 cm Tiefe deutlich.
Das Dorf Zhurba liegt im Ovruch-Bezirk in der Ukraine auf den Koordinaten 51°24’08“N, 29°07’16“O. Vor dem Reaktorunfall nutze man den Boden, eine Fahlerde aus Schmelzwassersanden als Ackerland.
Das Dorf Dowgij-Lis ist im Narodyzkyj-Bezirk gelegen und hat die Koordinaten 51°23’50“N, 29°16’35“O. Der Boden ist hier ebenfalls eine Fahlerde aus Schmelzwassersanden, die bis zum Zeitpunkt des Unglücks als Ackerland verwendet wurde.

Die Vereinigte Mulde fließt östlich von Leipzig durch Sachsen. An einem Punkt an ihrem Ufer in der Nähe des Ortes Pausitz mit den Koordinaten 51°19‘N; 12°44’O wurde ein Tiefenprofil von 100 cm Tiefe erstellt. Hierbei handelt es sich um Auenboden, der aufgrund seiner Lage häufig überschwemmt ist. Die Beprobung

geschah im Rahmen einer am ZSR Hannover laufenden Arbeit unter Anleitung von Dr. Beate Riebe.

Die Tabellen mit bodenkundlichen Beschreibungen der einzelnen Schichten der Tiefenprofile finden sich im Anhang unter Tab. A.1 – Tab. A.4.

Abb. 4.2.: Teilauschnitt der Ukraine, mit den Orten der Probenahme Christinowka, Zhurba (Žurba), Dowgij-Lis und dem Standort des Reaktors von Tschernobyl.

Zu den ukrainischen Profilen gibt es nur Informationen, die dem ZSR zusammen mit den Proben zugeschickt wurden. Da diese in kyrillischer Schrift verfasst waren, mussten sie übersetzt werden, wobei es aufgrund der spezifischen bodenkundlichen Ausdrücke zu Fehlern und Ungenauigkeiten gekommen sein kann.

5. Experimentelles

Zur Bestimmung der ^{127}I und ^{129}I-Gehalte in den zu analysierenden Bodenproben wurden nach einer chemischen Aufarbeitung die Beschleunigermassenspektrometrie (Accelerator Mass Spectrometry = AMS) und die Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (inductively coupled plasma mass spectrometry = ICP-MS) herangezogen. Diese einzelnen Schritte der Analyse werden im Folgenden erläutert.

5.1. Iod-Matrixtrennung von Bodenproben

Die Matrixtrennung von Iod aus Bodenproben wurde bereits in mehreren Arbeiten behandelt [Scd98] [Erd03].

Für die Analyse des Verhältnisses der Iod-Isotope ^{127}I und ^{129}I in den Umweltproben muss das Iod aus den Proben extrahiert und isoliert werden. Allerdings soll nur der Anteil an Iod aus der Probe entfernt werden, der im chemischen Austausch mit den benachbarten Umweltkompartiment steht. Dies sind im Wesentlichen organische Verbindungen im Boden, die hierzu vollständig aufgeschlossen werden müssen. Aus Matrixsystemen, die keinen Austausch zulassen, wie zum Bespiel Gesteinen, soll nur reversibel gebundenes Iod herausgelöst werden.

Dies geschieht mit Hilfe einer Verbrennungsapparatur. In einem Röhrenofen wird bei 1100 °C unter Sauerstoffstrom die organische Matrix möglichst vollständig zu Kohlendioxid und Wasser oxidiert. Höhere Temperaturen sind aufgrund des eingesetzten Quarzglases nicht anwendbar. Das in der Bodenprobe enthaltene Iod wird zunächst in Form von Iod-Oxiden freigesetzt. Diese zerfallen bei höheren Temperaturen in elementares Iod und Sauerstoff. Das stabilste Iod-Oxid ist Diiodpentaoxid I_2O_5 und es zerfällt schon bei 300 °C in die Elemente.

$$2\ HIO_3 \rightarrow I_2O_5 + H_2O$$
$$152{,}8\ kJ + I_2O_5 \rightarrow I_2 + {}^{5}/_{2}\ O_2$$

Abb. 5.1 zeigt die für die Matrixtrennung verwendete Verbrennungsapparatur. Hauptbestandteil sind zwei ineinander verschiebbare Quarzrohre, die Anschlüsse für das Verbrennungsgas besitzen. Das innere Rohr enthält die Probe enthält (bei Bodenproben ca. 10-50 g) und wird im Laufe der Verbrennung in den Ofen geschoben. Für eine vollständige Verbrennung beträgt die Verweildauer der Probe

im Ofen mehrere Stunden. Die Bodenproben wurden vor der Verbrennung γ–spektroskopisch auf ihren ^{137}Cs-Gehalt untersucht. Da in ukrainischen Proben hohe ^{137}Cs-Konzentrationen auf hohe Kontaminationen mit ^{129}I hinweisen [Mic05], wurde in solchen Fällen die Probenmenge verringert. Durch einen Anschluss gelangen Stickstoff und Sauerstoff zur Probe. Man nutzt dieses Gasgemisch, um Verpuffungen im Verbrennungsrohr zu vermeiden. Das äußere Rohr besitzt ebenfalls einen Gasanschluss, durch den reiner Sauerstoff ins Innere gelangt, und hier dafür sorgt, dass die Verbrennung vollständig verläuft.

Abb. 5.1: Verbrennungsapparatur zur Extraktion von Iod aus Bodenproben

Um die Verweilzeit der Reaktionsgase im Quarzrohr zu erhöhen, wurde an beide Enden des inneren Rohres Quarzwolle eingesetzt.

Das Verbrennungsgas wird in eine alkalische Hydrogensulfit-Lösung geleitet, die das Iod zu Iodid reduziert, um es in Lösung zu halten und somit Verluste aus der Absorptionslösung zu verhindern. Bei Proben mit einem hohen organischen Anteil kann es passieren, dass sich hinter dem Ofen Ruß am äußeren Verbrennungsrohr ablagert, was auf eine teilweise unvollständige Verbrennung hindeutet. Sollte dies

der Fall sein, kann bei geringfügigen Ablagerungen mit der Bunsenbrennerflamme die Verbrennung nachträglich vervollständigt werden.
Nach Ende der Verbrennung wird das Gewicht der Absorptionslösung ermittelt. Durch unterschiedliche Gasstromdichten innerhalb des Verbrennungsrohres verlaufen die Verbrennungen nicht immer gleichmäßig. Aus diesem Grund wird zur Ausbeutebestimmung der Probenaufarbeitung ^{125}I als radioaktiver Tracer eingesetzt. Dieser zerfällt mit einer Halbwertszeit von 60,14 Tagen unter Elektroneneinfang und emittiert dabei γ-Strahlung mit 35,5 keV [Szd00] [Icr83].Neben der γ-Linie treten auch Te-Röntgenlinien mit Energien von 27,2 bis 31,7 keV auf, deren Intensitäten weit höher sind.
Der Tracer wird in flüssiger Form auf die Probe getropft. Unmittelbar vor Beginn der Verbrennung wird die Probe mit einem Bunsenbrenner erhitzt, damit die Trägerflüssigkeit verdampft und das ^{125}I an der Probenmatrix haftet.
Die nach der Probenaufarbeitung in der Absorptionslösung enthaltene ^{125}I-Aktivität wird mit einem NaI-Detektor ermittelt. Die Absorptionslösung wird relativ zu einem Standard bekannter Aktivität in der gleichen Geometrie gemessen, und aus dem Quotienten der beiden Aktivitäten die Ausbeute bestimmt. Dabei kann der NaI-Detektor die einzelnen Linien nicht separieren, was aber auch in diesem Anwendungsfall nicht nötig ist. Das Integral der Impulszahlen der ausgewerteten Kanäle sollte über 10000 liegen, damit definierte Spektren erhalten werden.
Bei Proben, bei denen die chemische Ausbeute bei unter 50 % lag, wurde die Verbrennung wiederholt. Gründe für solch geringe Ausbeuten können Lecks in der Apparatur, unvollständige Verbrennung oder Probleme mit der Absorptionslösung sein. Typische Ausbeuten lagen im Bereich von 90 %.

Nach der Ausbeutebestimmung wird für die ICP-MS-Analyse des ^{127}I ein Aliquot von 4 ml für die ICP-MS-Analyse genommen.
Für die AMS-Analyse wird die Absorptionslösung mit Salpetersäure versetzt und Silberiodid (AgI) durch Zugabe von Silbernitrat ausgefällt. Da die Iodgehalte in den eingesetzten Probenmengen allerdings nicht ausreichend sind, um analysierbare Mengen an AgI zu erhalten, werden einige Milligramm ^{127}I als Träger hinzu gegeben. Isotopenreines ^{127}I ist in den benötigten Mengen nicht herstellbar, daher verwendet

man stattdessen das so genannte Woodward-Iod. Dieses Woodward-Iod[1] wird aus einer 300 Millionen Jahre alten Sole gewonnen und besitzt ein Iod-Isotopenverhältnis von $(1,3 \pm 0,6)*10^{-14}$ [Boa94]. Dieses Isotopenverhältnis ist um etwa einen Faktor 100 kleiner als das rezenter Umweltproben und das zusätzliche ^{129}I kann in Bezug auf die Berechnungen vernachlässigt werden [Ern03].

Der Niederschlag wird zentrifugiert. über einen Cellulosenitratfilter abgesaugt und bei 50-70 °C getrocknet. Um die Proben auf ihr $^{129}I/^{127}I$-Verhältnis untersuchen zu können, wird etwa 1 mg des Filtrats abgewogen und mit einer fünffachen Menge an Silberpulver versetzt. Dieses Pulver wird dann in Titanbecher gefüllt, bei 200 bar gepresst und zur Analyse in die AMS Apparatur eingesetzt. Durch die Verwendung des WWI-Trägers erhält man durch die Analyse nicht das tatsächliche Verhältnis im Boden, sondern ein geringeres Verhältnis, aus dem das zusätzlich zugegebene ^{127}I nachträglich heraus gerechnet werden muss.

5.2. Iod-Matrixtrennung von Meeresproben

Zur Extraktion von Iod aus flüssigen Umweltproben wird ein Verfahren benutzt, bei dem sämtliches Iod in Iodid überführt und dann über einen Ionenaustauscherharz aus dem wässrigen Medium entfernt wird [Szd00], [Scd98].

Dafür wird zuerst die Probe über einen Cellulosenitratfilter mit einer Porengröße von 0,8 ηm abgesaugt, um Schwebeteilchen, die später den Ionentauscher verstopfen könnten, zu entfernen. Von der gefilterten Probe werden 4 ml eines Aliquoten genommen, um mit Hilfe der ICP-MS den Gesamt-Iod-Gehalt zu ermitteln.

Als Ionenaustauscher wird das stark basische DOWEX® 1X8 (analytical grade) der Firma SERVA verwendet. Dies Austauscher-Harz ist selektiv für Iodid-Ionen. Da es nicht gewährleistet ist, dass Iod in natürlichen Medien als Iodid vorliegt, muss sämtliches Iod vor der Analyse durch einen Oxidations-Reduktions-Schritt in diese chemische Spezies überführt werden.

Hierzu stellt man die Probenlösung als Erstes mit 7 molarer Natriumhydroxid-Lösung (NaOH) auf einen pH-Wert von etwa 9-10 ein. Um später das extrahierte Iod analysieren zu können, gibt man 100 µl einer WWI-Lösung als Träger zu (vgl. Abschnitt 5.1). Im folgenden Schritt wird das Iod mittels einer Calciumhypochloridlösung ($Ca(ClO)_2$) zu Iodat oxidiert. Danach reduziert man mit

[1] Im Folgenden mit WWI abgekürzt.

Hydroxylammoniumhydrochlorid ($(NH_2OH)HCl$) und Natriumhydrogensulfit ($NaHSO_3$) das Iodat wieder zu Iodid.

Der Anionenaustauscher besteht aus einem Polymersubstrat, das mit quartären Ammoniumgruppen funktionalisiert ist. In der kommerziell erhältlichen Form sind die austauschenden Plätze mit Chlorid-Ionen belegt. Die Bindungsstärke für Ionen nimmt in der Reihe

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

ab.

Die Chlorid-Anionen werden durch Nitrat-Ionen ersetzt, indem man eine Kaliumnitratlösung über die Säule laufen lässt. Da nur Iodid-Ionen in der Lage sind Nitrat-Ionen zu ersetzten, wird somit die Selektivität erhöht. Wenn nun die Probe auf die Säule mit dem Austauscherharz gegeben wird, bleibt das Iodid darauf zurück, während die anderen Ionen durchlaufen.

Mit konzentrierter Kaliumnitratlösung wird die Säule danach gespült, um das Iodid wieder von der Säule zu lösen und getrennt von anderen Ionen in mehreren Fraktionen aufzufangen. Das Eluat wird dann mit Silbernitratlösung als Silberiodid ausgefällt. Das Silberiodid wird über einen Cellulosenitratfilter abgesaugt und bei 50 °C getrocknet. Das Isotopenverhältnis wird wie bei den Bodenproben mit Hilfe der AMS ermittelt.

5.3. AMS

Die am ZSR Hannover vorbereiteten Bodenproben wurden im Auftrag des ZSR am 0,5 MV Pelletron Beschleuniger des PSI/ETH in Zürich auf ihr $^{129}I/^{127}I$-Verhältnis untersucht. Neben Boden- und Wasserproben wurden Blindproben (z.T. mit einem Zusatz von WWI) untersucht, um den Untergrund der Verbrennungsapparatur zu bestimmen. Die Ergebnisse der Messungen finden sich im Anhang in den Tabellen A.5 – A.7.

5.4. ICP-MS

Die im Verlauf der Aufarbeitung der Proben genommenen Aliquoten werden benutzt, um daraus die Iod- bzw. ^{127}I-Gehalte zu ermitteln. Die ICP-MS Messungen werden in einem Bereich von 0,5-20 ng Iod pro Gramm Lösung durchgeführt. Für diesen Bereich werden Kalibrierungslösungen mit Konzentrationen von 0,5; 1; 2; 5; 10;

(20) ppb angesetzt und gemessen. Höhere Analytionenkonzentratione hätten zur Folge, dass der Anteil der ionisierten Isotope absinken würde, und die Messungen damit ungenau würden. Deshalb müssen die Proben vor der Analyse gegebenenfalls mit Tetramethylammoniumhydroxid (TMAH)-Lösung und deionisiertem Wasser verdünnt werden. Um Kontaminationen innerhalb des ICP-MS Systems zu vermeiden, wird nach jeder Blank- oder Probenmessung das System mit einer HNO_3-Lösung und anschließend mit einer TMAH-Lösung gespült, bis der gemessene Untergrund stabil ist. Dieser wird bei der Auswertung von den Messwerten abgezogen.

6. Auswertung

In diesem Abschnitt wird beschrieben, wie mit den Ergebnissen der ICP-MS und AMS die Konzentrationen und das Verhältnis der beiden Iodisotope berechnet werden. Dafür wird zuerst die Auswertung der ICP-MS-Messungen beschrieben, dann die einzelnen Schritte der Rechnungen jeweils für Boden- und Wasserproben dargestellt.

Des Weiteren wird die Berechnung der Erkennungsgrenzen und der Depositionsdichten beschrieben.

Die für die Berechnungen benötigten Konstanten wurden hier wie folgt verwendet:

Avogadro-Zahl: N_A=4,022 x 10^{23}

Zerfallskonstante von ^{129}I: 1,400 x 10^{-15} s^{-1}

6.1. Auswertung der ICP-MS Messungen

Während der ICP-MS Messungen wurden in regelmäßigen Abständen Standardlösungen gemessen, um die apparativen Schwankungen auszugleichen. Dazu wurden aus den gemessenen Massenverhältnissen von ^{127}I zu ^{129}Xe zweier Standardproben (*ratio(5ppb$_x$) und ratio(5ppb$_{x+1}$)*), jeweils eine vor und eine nach den Analyseproben zu den Zeitpunkten *t(x)* bzw. *t(x+1)*, eine Steigung m_x und ein y-Achsenabschnitt b_x berechnet. Diese Werte wurden zur Ermittlung des Massenverhältnisse (*ratio(5ppb,t)*), welches die Messung der Standardlösung zum dem Zeitpunkt t der Messung der Analyselösung ergeben hätte, berechnet.

Es wurden Standardlösungen mit einer ^{127}I-Konzentration von 5 ppb. verwendet.

$$m_x = \frac{(ratio(5ppb_{x+1}) - ratio(5ppb_x))}{t(x+1) - t(x)} \quad ; \quad b_x = m_x - t * ratio(5ppb_x) \tag{6.1}$$

$$ratio(5ppb,t) = m_x \times t + b_x \tag{6.2}$$

Um die Drift des Gerätes über den Messtag auszugleichen, wird ein Normierungsfaktor F_n verwendet. Dieser vergleicht alle errechneten Massenverhältnisse (*ratio(5ppb,t)*) mit einem Massenverhältnis, welches gegen Ende des Messtages aus einer Standardlösung ermittelt wurde (*ratio(5ppb,t$_{final}$)*).

$$F_N = \frac{ratio(5ppb,t)}{ratio(5ppb,t_{final})} \tag{6.3}$$

Das normierte Verhältnis der Analyten (*ratio(normiert)*) ergibt sich so aus dem gemessenen Wert für das Massenverhältnis der Probe (ratio), dividiert durch den Normierungsfaktor F_N

$$ratio(normiert) = \frac{ratio}{F_N} \tag{6.4}$$

Der normierte Wert wird dann in die Gleichung für die Eichgerade eingesetzt, und so die reale Konzentration an ^{127}I in der Analyselösung berechnet.

$$c(^{127}I) = \frac{ratio\ (normiert) - b}{m} \tag{6.5}$$

Für die Erstellung der Eichgerade selbst werden die bekannten Konzentrationen der Eichlösungen gegen ihre durch die ICP-MS ermittelten Konzentrationen aufgetragen.

6.2. Berechnung der Ergebnisse für Bodenproben

Die ^{127}I-Gehalte der Absorptionslösung wurden mit Hilfe der ICP-MS bestimmt. Um den ^{127}I-Gehalt des Ausfällungsanteils der Absorptionslösung zu berechnen, muss die zugegebene Menge an WWI ausgerechnet werden.

$$m(WWI) = c(WWI) \times V(WWI) \tag{6.6}$$

Um zu berechnen, wie viel ^{127}I sich vor Zugabe des WWI in der analysierten Lösung befindet, wird das Volumen der Lösung mit der durch die ICP-MS berechneten Konzentration multipliziert:

$$m_{ABS}(^{127}I) = c_{ICP-MS}(^{127}I) \times V_{Abs-Lsg.} \tag{6.7}$$

Addiert ergeben beide Werte den Gesamtgehalt an stabilem Iod in der Lösung, aus der Silberiodid ausgefällt wurde:

$$m(^{127}I)_{AUSGEFÄLLT} = m(WWI) + m(^{127}I)) \tag{6.8}$$

Die Masse an ^{129}I, die mit ausgefällt wurde, wird aus dem mittels AMS bestimmten Isotopenverhältnis (ratio(AMS) mal dem Gesamtgehalt an stabilem Iod und einem Faktor, der die unterschiedlichen Isotopenmassen berücksichtigt, ermittelt:

$$m(^{129}I)_{AUSGEFÄLLT} = ratio(AMS) \times m\ (^{127}I)_{AUSGEFÄLLT} \times \frac{128{,}9}{126{,}9}) \tag{6.9}$$

Der Gesamtgehalt an ^{129}I in der Probe $m_{GESAMT}(^{129}I)$ wird aus der Masse an ^{129}I im Ausfällungsanteil, der Ausbeute der Verbrennung sowie dem Quotienten aus der

Gesamtmasse der Absorptionslösung m_{ABS} und dem Ausfällungsanteil der Absorptionslösung m_{ABS}(Ausfällungsanteil) bestimmt:

$$m_{GESAMT}(^{129}I) = \frac{m(^{129}I)_{AUSGEFÄLLT}}{Ausbeute} \times \frac{m_{ABS}}{m_{ABS}(Ausfällungsanteil)} \tag{6.10}$$

Die Ergebnisse werden um den Mittelwert der Blindproben $m_{BLANK}(^{129}I)$ korrigiert:

$$m(^{129}I\ abzgl.\ Blank) = m_{GESAMT}(^{129}I) - m_{BLANK}(^{129}I) \tag{6.11}$$

Die Konzentration an ^{129}I in der Probe in Gramm pro Gramm wird aus der um den Blindwert korrigierten Masse von ^{129}I und der eingewogenen Probenmenge berechnet:

$$c_{PROBE}(^{129}I)\,[g/g] = \frac{m(^{129}I\ abzgl.\ Blank)}{m_{PROBE}} \tag{6.12}$$

Die Gesamtmasse des Iod in der analysierten Probe errechnet sich aus der Gesamtmasse des Iod aus dem Ausfällungsanteil der Absorptionslösung (vor Zugabe des WWI) multipliziert mit dem Gewicht der Absorptionslösung, dividiert durch den Ausfällungsanteil der Absorptionslösung und die Ausbeute der Verbrennung:

$$m_{GESAMT}(^{127}I) = \frac{m_{ABS}(^{127}I) \times m_{ABS}}{m_{ABS}(Ausfällungsanteil) \times (Ausbeute)} \tag{6.13}$$

Die spezifische Erkennungsgrenze für ^{129}I wurde bestimmt als die Erkennungsgrenze der Blindproben γ^*, multipliziert mit dem Gewicht der Absorptionslösung und geteilt durch die Ausbeute der Verbrennung und das Gewicht des Ausfällungsanteils der Absorptionslösung:

$$\gamma^*_{SPEZ} = \frac{\gamma^* \times m_{ABS}}{Ausbeute \times m_{ABS}(Ausfällungsanteil)} \tag{6.14}$$

Nur wenn der um den Blindwert korrigierte ^{129}I-Gehalt größer ist als die spezifische Erkennungsgrenze, wurde das Ergebnis gewertet.

Aus der Gesamtmasse des Iod in der eingesetzten Probe geteilt durch das Gewicht der Probe erhält man die Gesamt-Iod-Konzentration:

$$c_{GESAMT}(^{127}I)[g/g] = \frac{m(^{127}I)}{m_{PROBE}} \tag{6.15}$$

Das Verhältnis der Isotope ^{129}I zu ^{127}I berechnet sich aus der Konzentration des ^{129}I dividiert durch die Konzentration des Gesamten Iods in der Probe:

$$Isotopenverhältnis\ \frac{^{129}I}{^{127}I} = \frac{c_{PROBE}(^{129}I)}{c_{GESAMT}(^{127}I)} \tag{6.16}$$

6.3. Berechnung der Ergebnisse für Wasserproben

Zur Auswertung der Wasserproben muss zunächst die Menge des als Träger zugesetzten WWI ermittelt werden. Dazu wurde ein Wichtungsfaktor F_W für die Pipette bestimmt. Mit diesem kann man aus dem Volumen in der Pipettenspitze das entsprechende Gewicht berechnen. Danach ergibt sich für die Masse des zugegebenen WWI mit dem Pipettenvolumen $V_{Pipette}$ und der Konzentration der WWI-Lösung c(WWI):

$$m(WWI) = V_{Pipette} \times F_W \times c(WWI) \tag{6.17}$$

Aus dem Gewicht der eingesetzten Probe und ihrer mittels ICP-MS ermitteltem Iod-Gewichtskonzentration lässt sich der Iodgehalt vor Zugabe des WWI ermitteln zu:

$$m(^{127}I) = c(^{127}I) \times m(\mathrm{Pr}obe) \tag{6.18}$$

Deren Summe ergibt den Gesamt-Iodgehalt der Probe:

$$m(I_{ges}) = m(^{127}I) + m(WWI) \tag{6.19}$$

Die Masse des ^{129}I in der eingesetzten Probe erhält man aus dem Isotopenverhältnis I^{129}/I^{127}, welches durch AMS ermittelt wurde, und $m(I_{ges})$.

$$m(^{129}I) = \frac{^{129}I}{^{127}I} \times m(I_{ges}) \tag{6.20}$$

Von diesem Wert wird der Blank-Untergrund, der aus dem Mittelwert der Blindproben errechnet wurde abgezogen.

$$m(^{129}I_{korr}) = m(^{129}I) - m(^{129}I_{Blank}) \tag{6.21}$$

Das Isotopenverhältnis erhält man dann aus:

$$\frac{^{129}I}{^{127}I} = \frac{m(^{129}I_{korr})}{m(^{127}I)} \times \frac{126{,}9}{128{,}9} \tag{6.22}$$

6.4. Erkennungsgrenzen der Proben

Die Erkennungsgrenze γ^* nach DIN 25 482 wird nach der Formel

$$\gamma^* = k_{(1-\alpha)} \times \tilde{u}(0) \tag{6.23}$$

ermittelt. Sie ist definiert als der kritische Test der Nullhypothese gegen die Alternativhypothese.

Der Faktor $k_{(1-\alpha)}$ ist ein Quantil der Standardnormalverteilung, das sich aus der gewählten Wahrscheinlichkeit α für das Auftreten eines Fehlers 1. Art ergibt. Ein Fehler erster Art tritt auf, wenn die Nullhypothese (kein Probenbeitrag liegt vor) fälschlicherweise abgelehnt wird.

Es wurde α = 0,05 gewählt. Damit ergibt sich $k_{1-\alpha}$ = 1, 645

Für ũ(0) ergibt sich mit der Standardabweichung u(0):

$$\tilde{u}^2(0) = 2u^2(0) \qquad \tilde{u}(0) = \sqrt{2u^2(0)} \tag{6.24}$$

In Proben, bei denen die Messwerte dabei unterhalb der Erkennungsgrenze lagen, wurde hiernach kein Analytenbeitrag quantifiziert [Szd00].

6.5. Berechnung der integralen Depositionsdichten

Für die Berechnung der Depositionsdichten wurden die Gewichts-Konzentrationen im Falle des ^{129}I in Aktivitätskonzentrationen umgerechnet. Die Konzentrationen wurden mit der Schichtdicke und –Dichte multipliziert, wodurch man die Deposition für die jeweilige Schicht erhält. Durch Aufsummieren von der untersten bis zu einer gewünschten Schicht erhält man die Depositionsdichte an der Oberkante eben dieser Schicht.

$$D_i(I) = \sum_i c(I) \times \delta_i \times d_i \tag{6.25}$$

Da die Dichten der Ukraine-Profile nur in den obersten neun Zentimetern bekannt sind, mussten sie für tiefere Horizonte abgeschätzt werden. Der Fehler dieser Abschätzung wurde nach ISO Guide to the expression of uncertainty in measurement nach einer Rechtecksverteilung berechnet [Iso95].

$$u(\delta) = \sqrt{\frac{(\delta_{\max} - \delta_{\min})^2}{12}} \tag{6.26}$$

7. Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt und diskutiert. Zudem sollen an geeigneten Stellen Bezüge zu bereits veröffentlichten Arbeiten hergestellt werden.

Bisher sind nur Untersuchungen von Bodenproben der Ukraine mit einer Tiefe von 40 cm bekannt, jedoch keine für Profiltiefen von 200 cm. Aus der Analyse dieser Profile erhofft man sich daher weitere Erkenntnisse über das Verhalten von ^{129}I in Böden erwartet.

Für die Diskussion werden nicht alle Proben einzeln analysiert, sondern in graphischer Form dargestellt. Die entsprechenden Ergebnisse finden sich in Tabellen im Anhang.

Die Messergebnisse für die Konzentrationen von ^{127}I und ^{129}I sowie das $^{129}I/^{127}I$-Verhältnis wurde für alle untersuchten Profile gegen die mittlere Tiefe der jeweiligen Bodenschichten aufgetragen. Die horizontalen Fehlerbalken der Graphen, bei denen gegen die Tiefe aufgetragen wurde, stehen hier für die Schichtdicke der Horizonte. Anhand der Tiefenverläufe erhält man Informationen über die Unterschiede der Verteilung der beiden Iodisotope im Boden.

Die Ergebnisse der drei ukrainischen Tiefenprofile wurden jeweils in einem Graphen zusammen dargestellt, die Mulde-Proben werden separat präsentiert. Bodenkundliche Beschreibungen der Probe finden sich im Anhang in den Tabellen A.1 - A.4.

Die Depositionsdichten wurden wie in Abschnitt 6.5 (s.S. 30) beschrieben ermittelt. Aufgrund mehrerer Faktoren wie Trocknung, Verdichtung durch Begehen/Befahren der Böden, dem Sieben der Proben und Ähnlichem stimmen die Lagerungsdichten dabei nicht mit den bei der Probennahme gemessenen Dichten überein. Deshalb verwendete man nicht die Lagerungsdichten für die Berechnung der Depositionsdichten, sondern die Dichten, die mit Hilfe eines Stechzylinders bei der Probennahme ermittelt wurden. Durch Steine oder Hohlräume im Boden sowie Unsicherheiten bei der Bestimmung des Wassergehaltes der Proben kommt es bei der Dichtebestimmung zu Fehlern bis 6 %. Die Dichten der einzelnen Schichten der ukrainischen Proben sind nicht bekannt. Es wurde nur ein einziger Wert aus einem Probevolumen berechnet, das aus einem Zylinder mit dem Radius von 2,9 cm und

aus einer Tiefe von 0 bis 9 cm berechnet wurde. Die Tiefe von 0 bis 9 cm schließt die ersten vier Schichten aller drei Ukraine-Profile ein, und sollte zumindest für diese annähernd richtige Werte liefern. Für die Berechnung der Depositionsdichte von ^{129}I wird derselbe Wert für alle Schichten eines Profils verwendet.

Die verwendeten Dichten sind:
1,420 g/cm^3 für das Profil aus Dowgij-Lis
1,293 g/cm^3 für das Profil aus Zhurba
1,147 g/cm^3 für das Profil aus Christinowka

Für alle Schichten unter zehn Zentimeter Tiefe erhält man nach Abschnitt 6.5 eine Unsicherheit, die mit einer bodenkundlich abgeschätzten maximalen Bodendichte von 1,7 g/cm^3 berechnet wurde.
Da allerdings der größte Teil der Kontamination in den oberen Schichten, für die Dichten bekannt sind, zu finden ist, sollte der Fehler für die Gesamtgehalte aller Schichten nicht allzu groß sein.

Für das Mulde-Profil wurden für die Horizonte 1,2,3 und 5 die Dichten bestimmt. Dafür wurde mit einem Stechzylinder von 5 Höhe und einem Durchmesser von 8 cm eine Probe mit einem Volumen von 251,3 cm^3 genommen und gewogen. Für Schicht 4 wurde der Mittelwert von Schicht 3 und 5 angenommen und der Fehler mit 8 % berechnet. Für die Schicht 6 und 7 wurde dieselbe Dichte wie Schicht 5 verwendet, der Fehler wurde hier ebenfalls wie in 6.5 beschrieben mit einer maximalen Dichte von 1,7 g/cm^3 berechnet (Tab.7.1).

Nr. des Horizonts	Tiefe in cm	Dichte in g/cm^2	Unsicherheit der Dichte
1	0-12	1,15	6%
2	12-21	1,22	6%
3	21-35	1,27	6%
4	35-45	1,31*	8%
5	45-70	1,35	6%
6	70-84	1,35*	17%
7	84-100	1,35*	17%

Tab. 7.1: Dichten des Mulde-Profils. Die mit * gekennzeichneten Werte wurde nicht gemessen und stellen lediglich genäherte Werte dar.

7.1. Betrachtung der ^{127}I-Gehalte in Böden

In Abbildung 7.1 (s.S. 35) sind die ^{127}I-Konzentrationen der Ukraineproben in g/g gegen die mittlere Tiefe der Probenhorizonte aufgetragen, Abbildung 7.2 die ^{127}I-Inventare. Die beobachteten Werte stellen dabei den Verlauf des Langzeitgleichgewichts der Verteilung des Iods im Boden dar.

Hier ist bereits gut zu erkennen, dass die drei Profile aus der Ukraine sowohl in der Iod-Konzentration als auch in der Verteilung sehr unterschiedliche Eigenschaften aufweisen. Die Iod-Konzentrationen in den oberen Schichten zeigen eine starke Streuung, und die Verläufe der Konzentrationsänderung mit der Tiefe sind ebenfalls keinem einheitlichen Schema zuzuordnen. Auffallend ist, dass das Christinowka-Profil einen völlig anderen Verlauf als die Profile von Zhurba und Dowgij-Lis hat. Dies kann damit erklärt werden, dass man in Christinowka einen Gley-Boden vorfindet, in den beiden anderen Orten jedoch Fahlerde. Die Unterschiede in der Bodenart sind auch für die Unterschiede der ^{129}I-Konzentration sowie der Verhältnisse der Iodisotope, die in den folgenden Kapiteln dargestellt werden, mitverantwortlich.

Der atmosphärische Eintrag von ^{127}I sollte für die drei Orte sehr ähnlich sein, da starke Abweichungen in der Deposition nur über weite Entfernungen zu erwarten sind. Die großen Unterschiede der ^{127}I-Inventare in den Ukraine-Böden sind daher mit den verschiedenen Bodenbeschaffenheiten und hydrologischen Bedingungen zu erklären. Das bedeutet, dass in Böden mit geringen ^{127}I-Konzentrationen über die Zeit ein signifikanter Verlust des stabilen Iods stattgefunden haben muss. Solche Profile weisen auf schnelle Migration im Boden und eine geringe Sorptionsrate von Iod hin. Profile mit hohen ^{127}I-Konzentrationen und daher größeren ^{127}I-Inventaren lassen auf einen geringeren Anteil der Migration und eine höhere Sorptionsrate schließen [Mic05].

Von den drei Ukraineprofilen hat das Christinowka-Profil die höchsten ^{127}I-Konzentrationen und das größte ^{127}I-Inventar. Bis in eine Tiefe von 25 cm finden sich 3×10^{-6} Gramm ^{127}I pro Gramm Probe, und erst darunter werden die Konzentrationen geringer. Das Gesamtinventar an ^{127}I beträgt 2,4 g/m^2.

In Dowgij-Lis findet man ebenfalls Konzentrationen von 3×10^{-6} g/g, allerdings nur bis 4 cm Tiefe. Darunter fällt die Konzentration schnell ab, bis man in den unteren

beiden Horizonten wieder einen schwachen Anstieg verzeichnet. Dowgij-Lis besitzt mit 1,26 g/m^2 ein etwa halb so großes ^{127}I-Inventar wie Christinowka.

Das Profil in Zhurba ist das mit dem niedrigsten Gehalt an ^{127}I. Die Konzentration in den oberen Schichten liegt bei 5 x 10^{-7} g/g und fällt gleichmäßig auf knapp 2 x 10^{-7} g/g ab. Auch ist dieses das Profil mit den geringsten Unterschieden zwischen den oberen und unteren Horizonten. In Zhurba findet man mit 0,63 g/m^2 das geringste ^{127}I-Inventar. Es zeigt sich, dass die Inventare mit zunehmender Tiefe konstant und fast linear abfallen. Die Steigungen der einzelnen Profile sind dabei allerdings sehr unterschiedlich.

Die ^{127}I-Konzentrationen des Mulde-Profils (Abbildung 7.3) weisen nur geringe Unterschiede mit der Tiefe auf. Sie liegen zwischen 8 x 10^{-7} und 3 x 10^{-6} g/g. Der hierbei niedrigste Wert liegt allerdings nicht in der tiefsten Schicht, sondern in einer Tiefe von 35 - 45 cm. Dies ist auffällig, da alle anderen Horizonte höhere und zudem recht ähnliche Konzentrationen aufweisen, was auf eine gleichmäßige Verteilung des Iods im Boden hindeutet.

Die ^{127}I-Konzentrationen und das Inventar an ^{127}I der Mulde sind von denselben Größenordnungen wie die der Ukraine. Besondere Ähnlichkeiten zeigen sie mit dem Christinowka-Profil. Das Inventar an ^{127}I beträgt hier 2,34 g/m^2. Abbildung 7.4 zeigt einen linearen Anstieg des Gehaltes an stabilem Iod im Mulde-Profil. Dies folgt aus der relativ gleichmäßigen Verteilung des ^{127}I über die gesamte Bodentiefe.

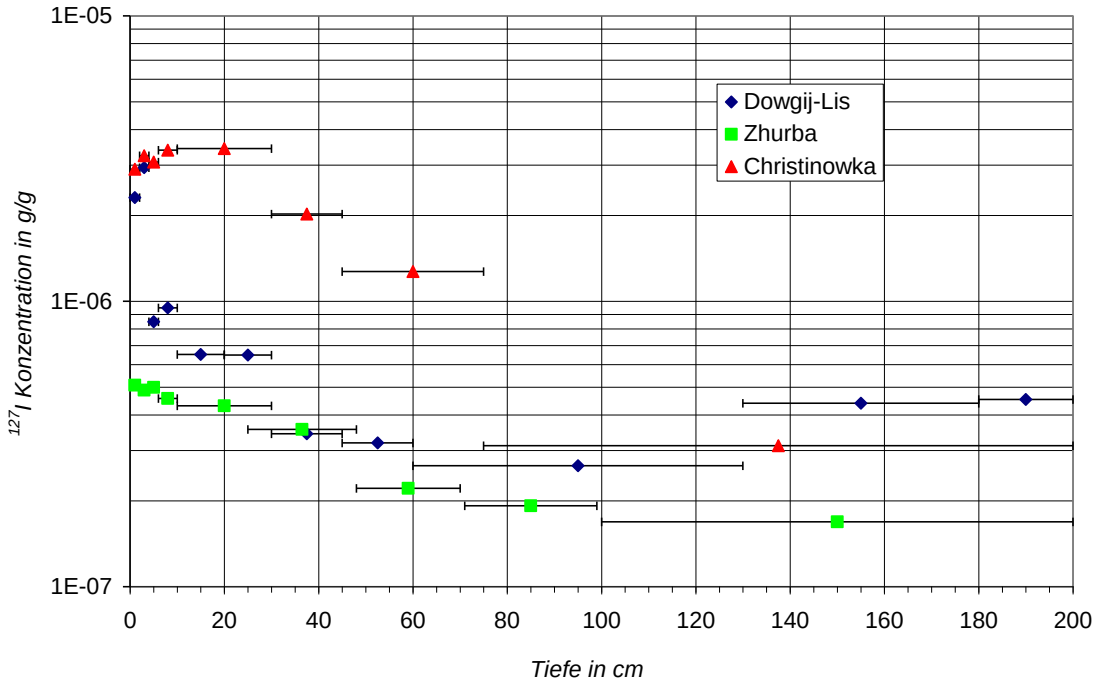

Abb. 7.1: ^{127}I-Konzentration gegen Tiefe für Ukraine-Profile

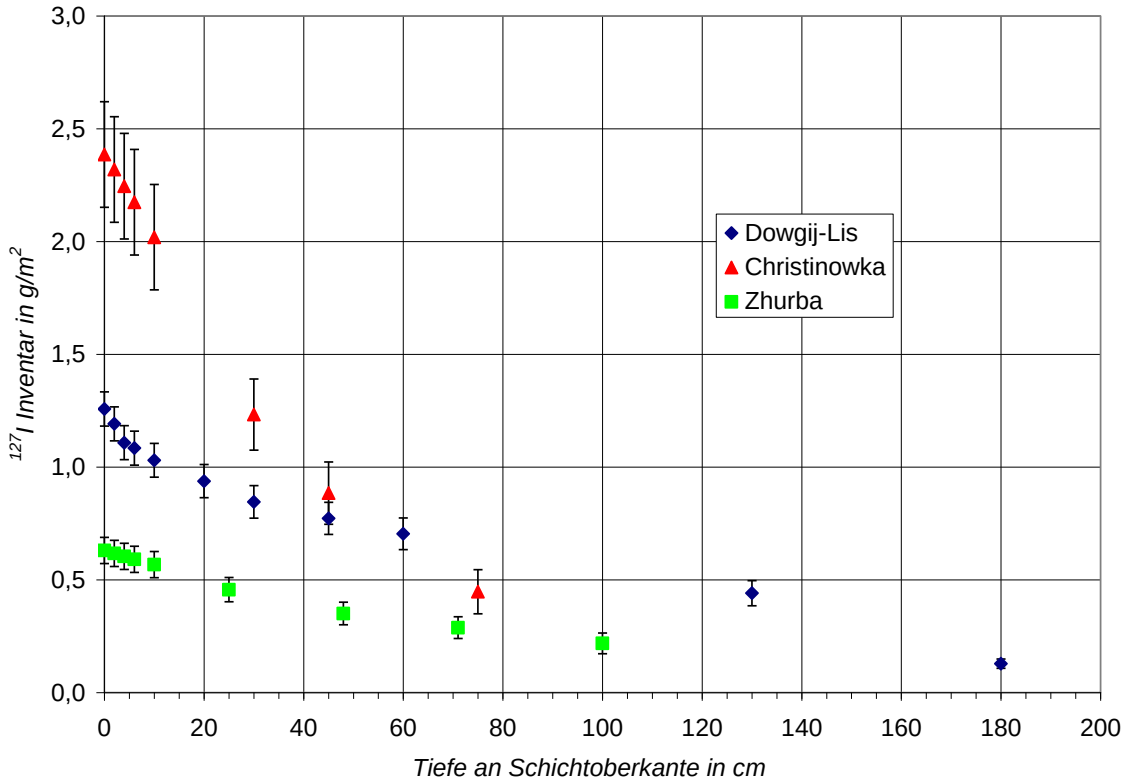

Abb.7.2: ^{127}I-Inventar gegen Tiefe an der Schichtoberkante für Ukraine-Profile

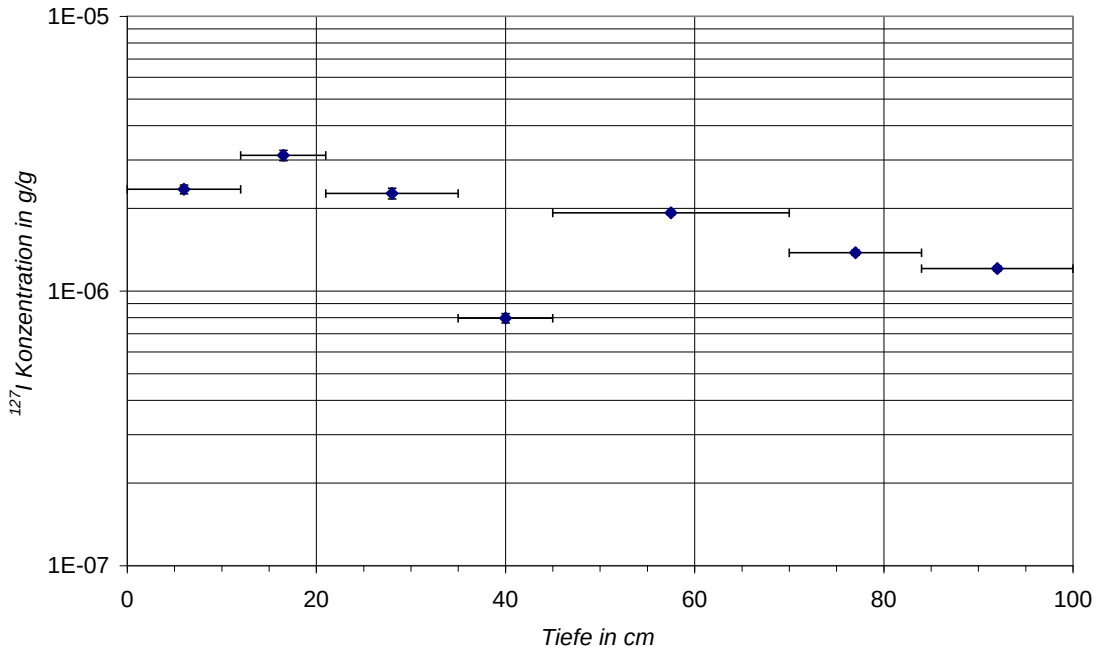

Abb. 7.3: Tiefenverlauf der ^{127}I-Konzentration des Mulde-Profils

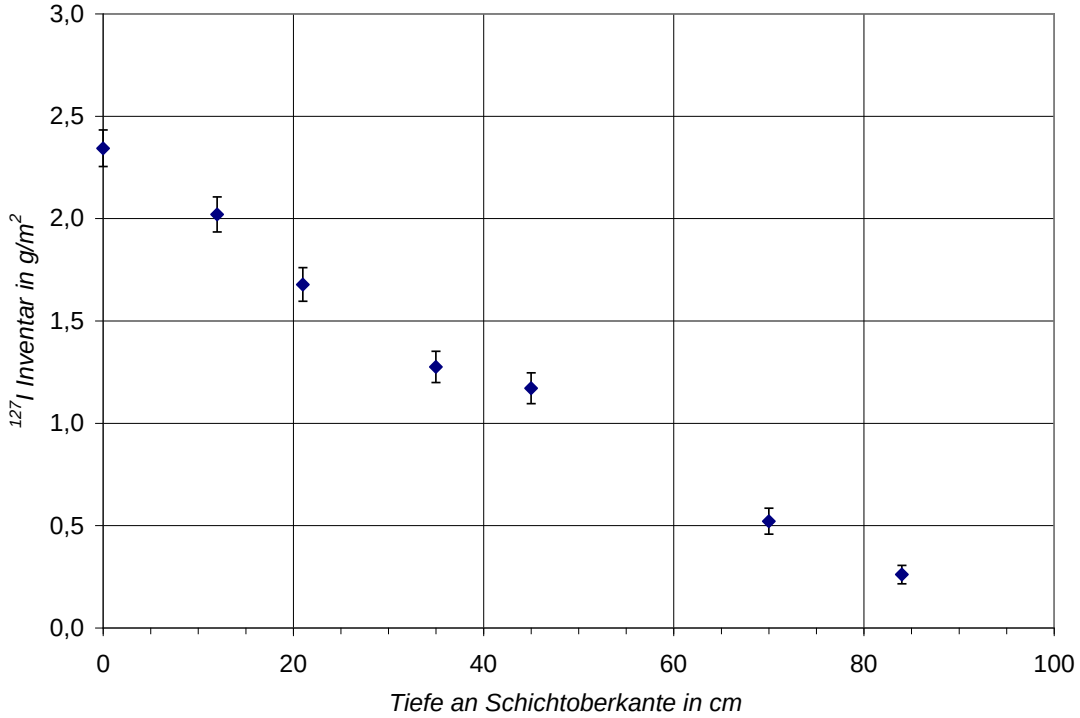

Abb. 7.4: ^{127}I-Inventar gegen Tiefe an der Schichtoberkante des Mulde-Profils

7.2. Betrachtung der ^{129}I-Gehalte in Böden

Die hier untersuchten Ukraine-Profile stammen alle aus Zone II und ihre ^{129}I-Depositionsdichten liegen über 100 mBq/m^2, wie in Abbildung 7.5 dargestellt ist. Damit ist der pränukleare Anteil von 0,084 ± 0,017 mBq/m^2 für die hier durchgeführten Analysen bedeutungslos [Mic05].

Verglichen mit den ^{127}I-Konzentrationen weisen die ^{129}I-Aktivitäten sehr viel größere Unterschiede im Tiefenverlauf auf. Doch auch hier gibt es keinen einheitlichen Verlauf in der Verteilung. Die maximalen Aktivitäten finden sich erwartungsgemäß in den oberen Schichten. Sie liegen für alle drei Profile zwischen 2 und 4 mBq/kg. In den tiefsten Schichten sind die Aktivitäten um etwa drei Größenordnungen niedriger.

In Christinowka findet man mit 660 mBq/m^2 am meisten ^{129}I. Der Wert für die hier ermittelte integrale Depositionsdichte von ^{129}I liegt nahe bei dem von Michel et. al. bestimmten Wert von 602 x 2,2$^{\pm 1}$ mBq/m^2 [Mic05]. Das Profil besitzt in den vier Schichten der oberen zehn Zentimeter mit etwa 2,5 und 3,6 mBq/kg die höchsten ^{129}I-Konzentrationen. Das Maximum findet sich jedoch auch hier wie bei der Konzentration des ^{127}I nicht im obersten Horizont, sondern in einer Tiefe von sechs bis zehn Zentimetern. Auffällig ist die ^{129}I Konzentration im Christinowka-Horizont zwischen 75 und 200 cm, die höher ist, als die in der darüber liegenden Schicht. Damit ist ^{129}I auch in Grundwasser führenden Schichten zu finden.

In Dowgij-Lis beträgt die ^{129}I-Deposition 281 mBq/m^2. Die ^{129}I-Aktivität nimmt hier mit zunehmender Tiefe ab. An der Oberfläche wurden 4,4 x 10^{-3} Bq/kg gemessen. Der niedrigste Wert ist mit 4,5 x 10^{-6} Bq/kg im tiefsten Horizont zu finden. Allerdings ist die Abnahme zwischen 60 und 180 cm recht gering und der Konzentrationsverlauf zeigt hier über einen weiten Bereich ähnliche Werte.

Im Zhurba-Profil ist die Depositionsdichte mit 132 mBq/m^2 die geringste der drei. Die ^{129}I-Konzentration fällt stetig mit der Tiefe von 2 x 10^{-3} Bq/kg auf 2 x 10^{-6} Bq/kg ab.

In den drei Profilen sind unterschiedlichen Verteilungen der ^{129}I-Depositionen zu erkennen. Während die Depositionsdichten in Zhurba und Dowgij-Lis mit der Tiefe schnell abnehmen, passiert dies in Christinowka deutlich langsamer. Dies deutet darauf hin, dass in Christinowka der Transport von der Oberfläche in tiefere Schichten langsamer als in den beiden anderen Tiefenprofilen verläuft.

In dem Christinowka-Profil ändert sich die Depositionsdichte zwischen 30 und 75 cm Tiefe nur sehr geringfügig. Das ist ein Hinweis auf Horizonte, die nicht in der Lage sind, viel ^{129}I zu binden. Vermutlich wird ^{129}I mit dem Sickerwasser schnell in tiefere Schichten transportiert, ohne dass die höher gelegene Horizonte viel ^{129}I aufnehmen können. Diese Annahme wird dadurch bestärkt, dass in diesen Tiefen die ^{127}I-Inventare recht groß sind. Sorptionsplätze für Iod sollten daher vorhanden sein.

Der Tiefenverlauf der ^{129}I-Konzentrationen für das Mulde-Profil wird in den Abbildungen 7.7 und 7.8 gezeigt. Die Depositionsdichte des Mulde-Profils verzeichnet eine konstante Abnahme mit der Tiefe und beträgt 0,16 Bq/m^2 an der Oberfläche. Dieser Wert ist ähnlich dem geometrischen Mittel von 0,168 x 1,5$^{\pm 1}$ Bq/m^2 der Werte, die für Profile in Niedersachsen gefundenen wurden [Erd03]. Es ist bekannt, dass es sich dabei um Kontaminationen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague handelt. In dem Bereich zwischen 12 und 21 cm Tiefe ist ein besonders rasanter Rückgang zu beobachten. Dies erklärt sich mit dem Übergang zwischen Ober- und Unterboden, da hier ein Wechsel der Absorptionsmechanismen stattfindet. Im Oberboden sollten die Absorption schnell und reversibel erfolgen, im Unterboden dagegen langsamer [Erd03].

Anhand der Depositionsdichten lässt sich feststellen, ob der ^{129}I-Eintrag tatsächlich durch den Tschernobyl-Fallout oder andere äußere Einflüsse erfolgt ist [Mic05]. Da auch in der Ukraine das Isotopenverhältnis ^{129}I/^{127}I schon vor dem Reaktorunglück erhöht war, muss die Deposition bis zum Zeitpunkt des Unfalls in die Berechnungen mit eingezogen werden. Bei ^{129}I-Depositionsdichten von über 100 mBq/m^2 wird davon ausgegangen, dass durch das Reaktorunglück freigesetzte ^{129}I im Boden zu finden ist. Dies bedeutet, dass nur Proben aus den Kontaminationszonen II und III für die Berechnung der ^{129}I-Depositon durch den Unfall von Tschernobyl geeignet sind.
Die hier untersuchten Ukraine Proben weisen alle eine Kontamination von über 100 mBq/m^2 und fallen somit unter das Kriterium.
Diese Depositionsdichten müssen jedoch noch um einen Wert von 44 mBq/m^2 korrigiert werden. Dies ist der Anteil an ^{129}I, der aus anderen Quellen stammt und vor dem Reaktorunfall in den Böden enthalten war [Mic05].

Die hier erhaltenen ^{129}I-Depositionsdichten bestätigen die in der Arbeit von Prof. Michel und Mitarbeitern [Mic05] gemachten Schlüsse, dass eine Profiltiefe von 40 cm ausreicht, um den größten Anteil an ^{129}I-Fallout zu erfassen. Entsprechende Ergebnisse erhält man für die Ukraine-Profile. Für das Mulde-Profil scheint dies ebenfalls zu gelten, obwohl hier der ^{129}I-Eintrag überwiegend aus Wiederaufarbeitungsanlagen stammt und über einen längeren Zeitraum deponiert wurde. Zu beachten ist hierbei die geringere Tiefe des Mulde-Profils von nur 100 cm.
In den obersten 30 (35 für die Muldeproben) Zentimetern wurden zwischen 84 und 91 % des ^{129}I gefunden, in Tiefen bis 48 cm sogar zwischen 89 und 96 %. Die entsprechenden ^{127}I Anteile liegen zwischen 28 und 48 % bis 30 (35) cm und 39 bis 64 % bis 48 cm Tiefe.

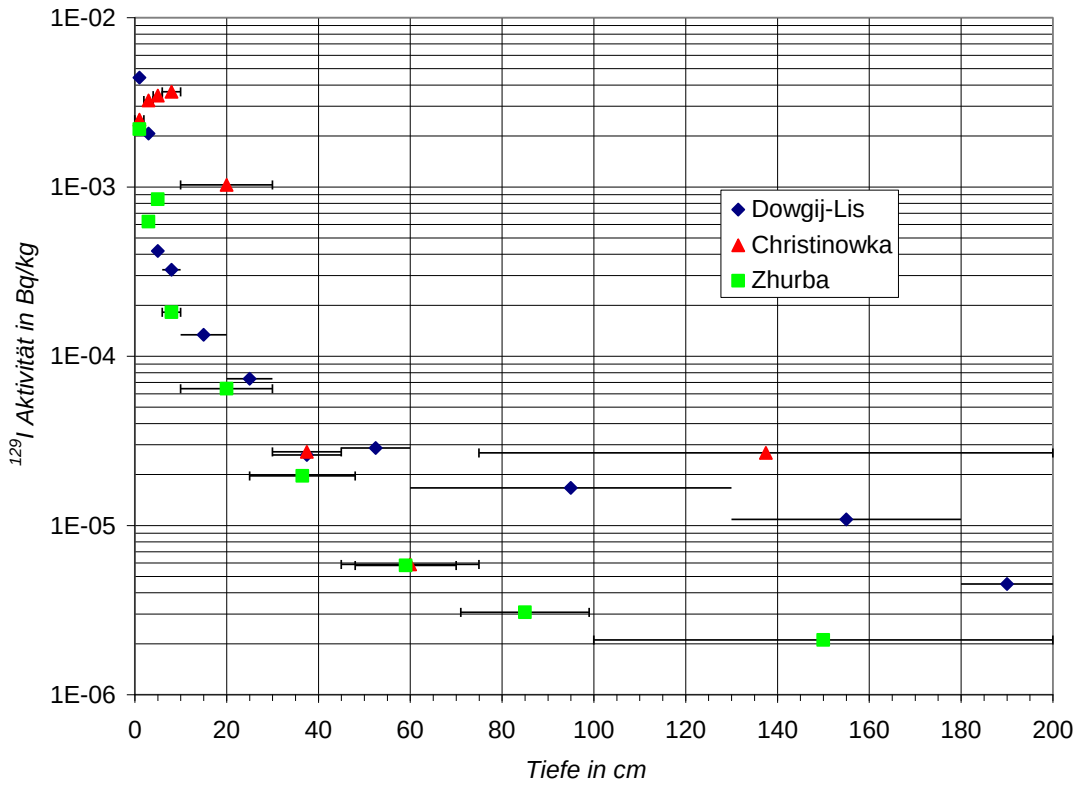

Abb. 7.5: ^{129}I-Konzentration gegen Tiefe für Ukraine-Profile

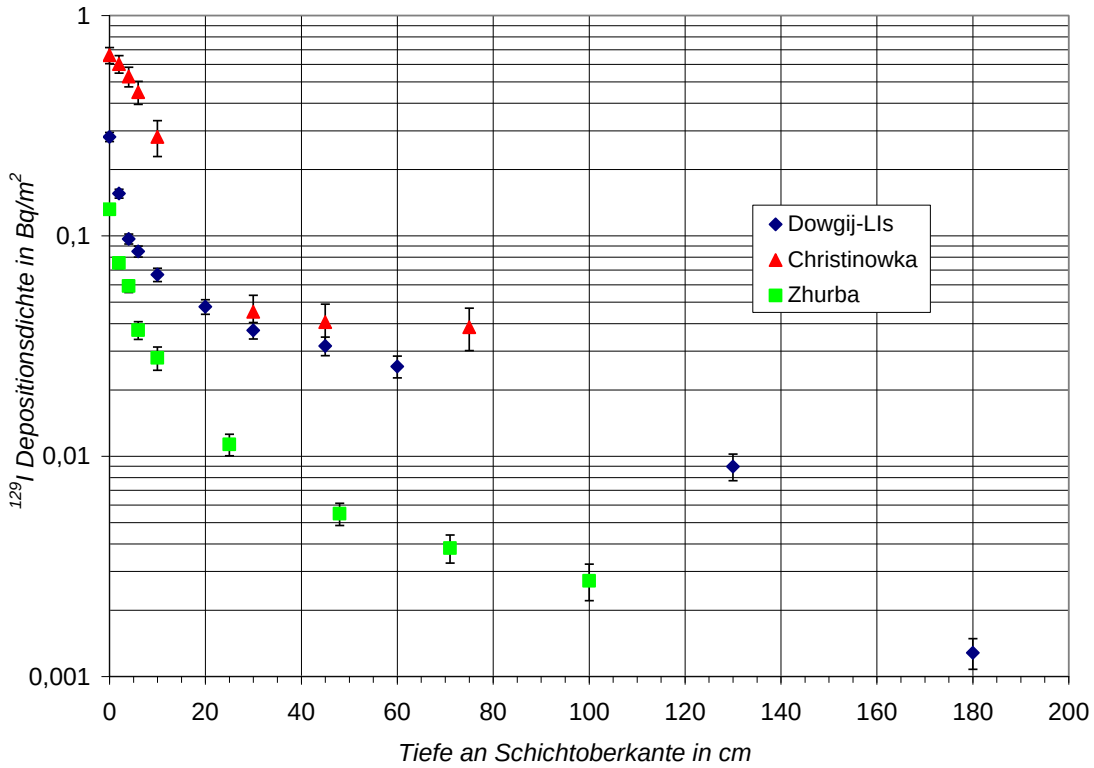

Abb. 7.6: ^{129}I Depositionsdichte gegen die Tiefe der Schichtoberkante

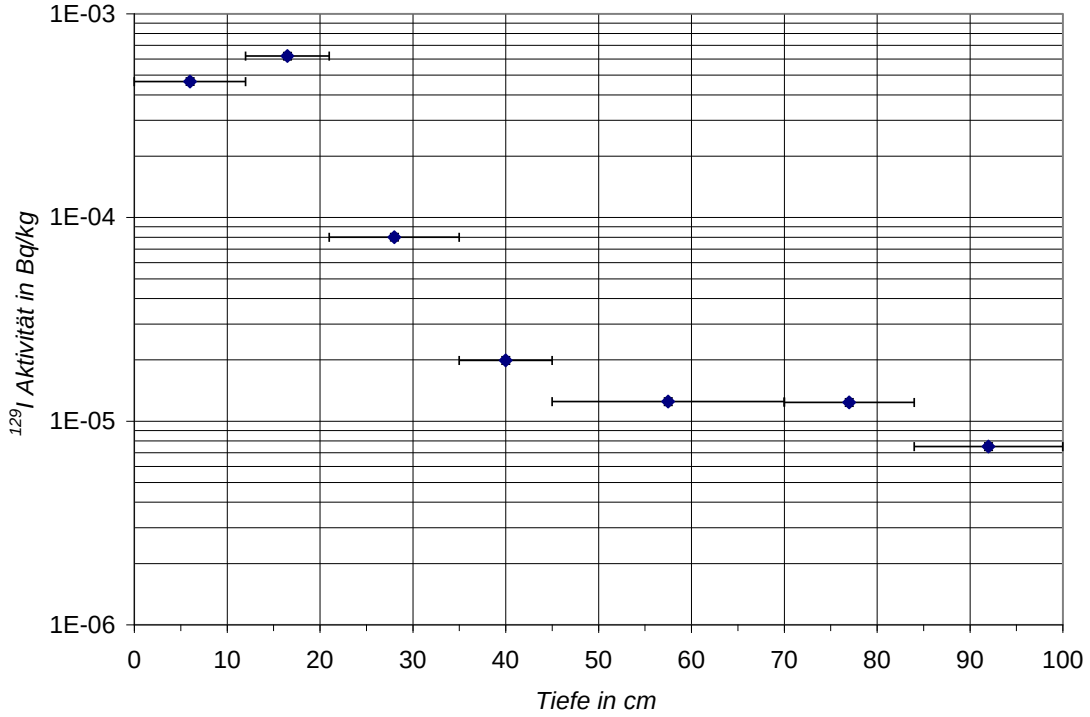

Abb. 7.7: ^{129}I-Konzentration gegen Tiefe für das Mulde-Profil

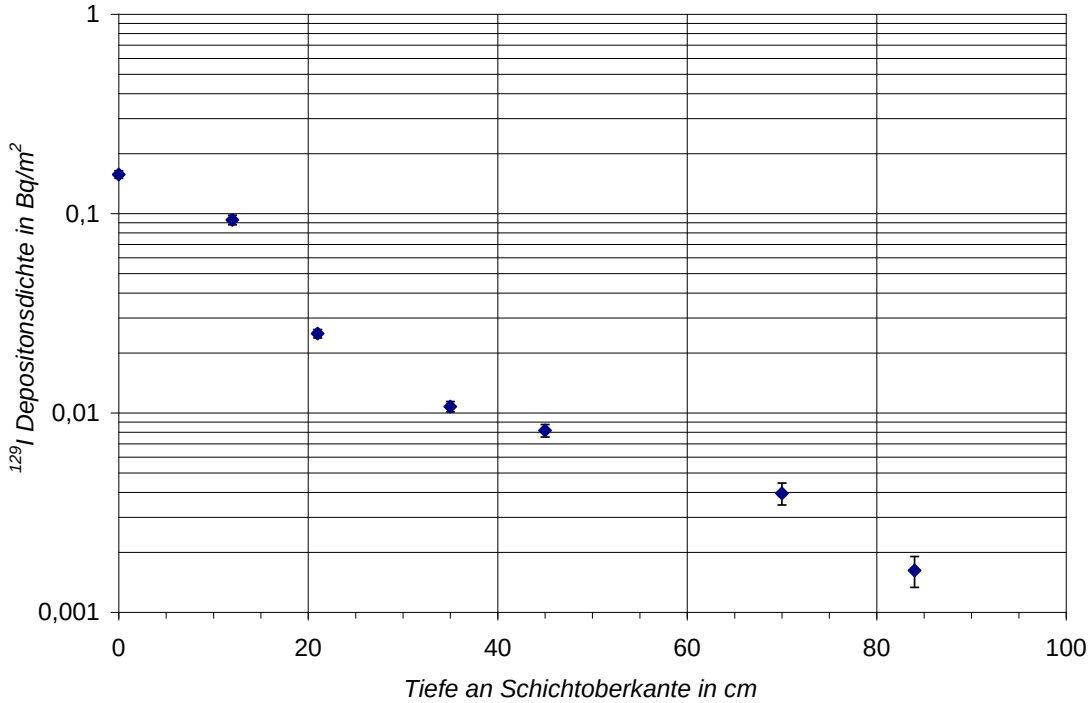

Abb. 7.8: ^{129}I-Depositionsdichte gegen die Tiefe an der Schichtoberkante (Mulde)

7.3. Das $^{129}I/^{127}I$-Isotopenverhältnis

Die Isotopenverhältnisse der Tiefenprofile werden in den Abbildungen 7.9 und 7.10 (s.S. 44) dargestellt. Es ist zu erkennen, dass fast alle Proben ein Isotopenverhältnis aufweisen, das drei oder mehr Zehnerpotenzen über dem natürlichen Verhältnis von $1{,}5 \times 10^{-12}$ liegt [Ern03]. Dies bedeutet, dass sämtliche Ukraine-Proben durch den Tschernobyl-Unfall kontaminiert wurden, und dass diese Kontamination bereits bis in Tiefen von zwei Metern vorgedrungen ist. Somit gelangen geringe Anteile des ^{129}I auch in Bereiche des Grundwassers. Für die Mulde-Proben sind die Emissionen von Sellafield und La Hague als Hauptquellen anzusehen.

In allen Profilen liegen die Isotopenverhältnisse in den oberen Schichten um etwa 2 Zehnerpotenzen höher als in den tieferen Schichten. Die Muldeproben zeigen dabei etwas niedrigere Verhältnisse als die Ukraineproben. An der Oberfläche besitzen die Isotopenverhältnisse der Ukraine-Profile Werte zwischen 1×10^{-7} und 6×10^{-7}. In tieferen Schichten findet man Verhältnisse zwischen 1×10^{-9} und 1×10^{-8}. Das niedrigste der gemessenen Isotopenverhältnisse liegt bei 7×10^{-10}.

Die Isotopenverhältnisse zeigen einen ähnlichen Verlauf wie die ^{129}I-Konzentrationen in Abbildung. 7.2 (s.S. 35). Der Verlauf der Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von den Konzentrationen an stabilem Iod wird in Abb. 7.12 (s.S. 46) gezeigt. Das Profil Zhurba weist trotz verhältnismäßig geringer Kontamination mit ^{129}I das höchste Isotopenverhältnis auf, da es ebenfalls sehr wenig ^{127}I besitzt

Sich stark ändernde Isotopenverhältnisse weisen auf eine gut Akkumulation und eine langsame Migration des ^{129}I hin. Geringe Iod-Konzentrationen im Boden deuten darauf hin, dass hier die Iodmigration schneller verläuft, da der Boden das Iod nicht binden kann. In Orten mit geringeren ^{127}I Inventaren und schneller Iod-Migration verläuft die Abnahmen der Isotopenverhältnisse mit der Tiefe tendenziell langsamer [Mic05].

Die Isotopenverhältnisse des Zhurba-Profils zeigen einen schnell abnehmenden Verlauf. Dies deutet auf Diffusion als bevorzugte Verteilungsform hin.

Die Isotopenverhältnisse des Dowgij-Lis-Profils fallen ebenfalls schnell ab, bis sie in einer Tiefe zwischen 30 und 130 cm auf eine Art Plateau bei einem Verhältnis von

1×10^{-8} bilden. In tieferen Schichten kommt es dann noch einmal zu einem Rückgang auf ein Verhältnis von 1×10^{-9}.

In Christinowka hat das Isotopenverhältnis zwischen vier und sechs Zentimetern Tiefe ein Maximum, welches unter zehn Zentimetern rasch auf einen Wert von 7×10^{-9} zwischen 45 und 75 Zentimetern abfällt. Darunter steigt das Verhältnis wieder auf einen Wert von über 1×10^{-8} an.

Die Isotopenverhältnisse im Christinowka-Profil fallen am schnellsten ab. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den von Michel et. al. (2005) gemachten Beobachtungen, dass hohe ^{127}I-Gehalte für langsame Migration und damit starke Änderungen der Isotopenverhältnisse mit der Tiefe stehen [Mic05]. Die Profile Zhurba und Dowgij-Lis, die beide geringere ^{127}I-Konzentrationen haben, zeigen langsamere Abnahmen.

In den hier bearbeiteten Proben ist der anthropogene Eintrag an ^{129}I deutlich bis in die tiefsten Bodenschichten zu erkennen. Die Eintragszeiten der beiden Iodisotope ^{129}I und ^{127}I sind sehr unterschiedlich. ^{127}I hatte über mehrere Tausend Jahre Zeit, ein Gleichgewicht im Boden aufzubauen. ^{129}I hatte nur die kurze Zeitspanne von Beginn der anthropogenen Emissionen bzw. dem Zeitpunkt des Reaktorunglücks bis heute. Die unterschiedlichen Sorptions-, Migrations- und Akkumulationsprozesse sind also in Zeitspannen abgelaufen, die sich stark voneinander unterscheiden. Dadurch entsteht ein Unterschied in der Beweglichkeit der beiden Isotope im Boden. Isotopeneffekte spielen hierbei keine Rolle. ^{127}I hat aufgrund der längeren Verweilzeit in Boden und den der höheren Konzentration eine höhere Wahrscheinlichkeit, die thermodynamisch stabileren Sorptionsplätze zu belegen. Damit sinkt die Tendenz, ^{129}I im Boden zu immobilisieren und seine Mobilität im Boden ist größer.

Die Verweilzeit des ^{129}I in den oberen Bodenschichten wird durch die entgegen gesetzten Transportwege der nach unten gerichteten Diffusion und der nach oben gerichteten Verdunstungstransports bestimmt. Sie reicht aus, um ^{129}I in dieselbe chemische Spezies wie ^{127}I zu überführen, was bedeutet, dass es für beide Isotope dieselben physikalischen und chemischen Eigenschaften angenommen werden können. In der Regel sollte Iod als Iodid im Boden vorliegen [Ern03].

Die erhöhten Isotopenverhältnisse in dem mit dem Grundwasser in Verbindung stehendem Horizont des Christinowka-Profils könnten ein Anzeichen dafür sein, dass ein Teil des ^{129}I bereits ausgewaschen wurde und damit für die Iodbestimmung als verloren angesehen werden muss.

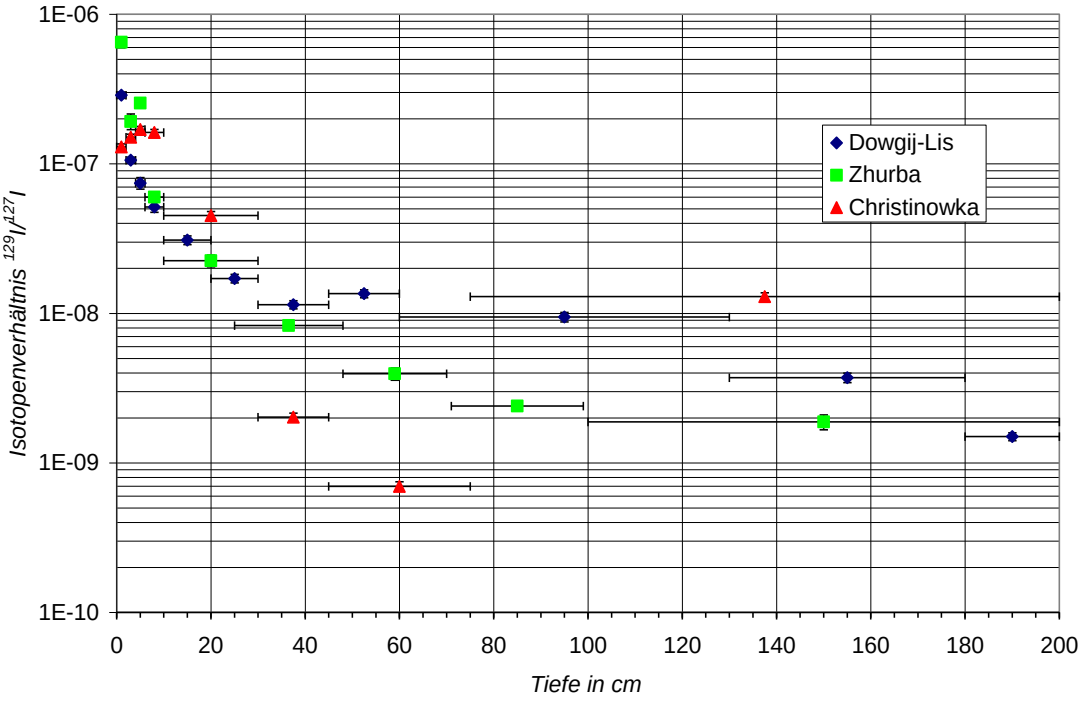

Abb. 7.9: Isotopenverhältnis als Funktion der Tiefe für Ukraine-Proben

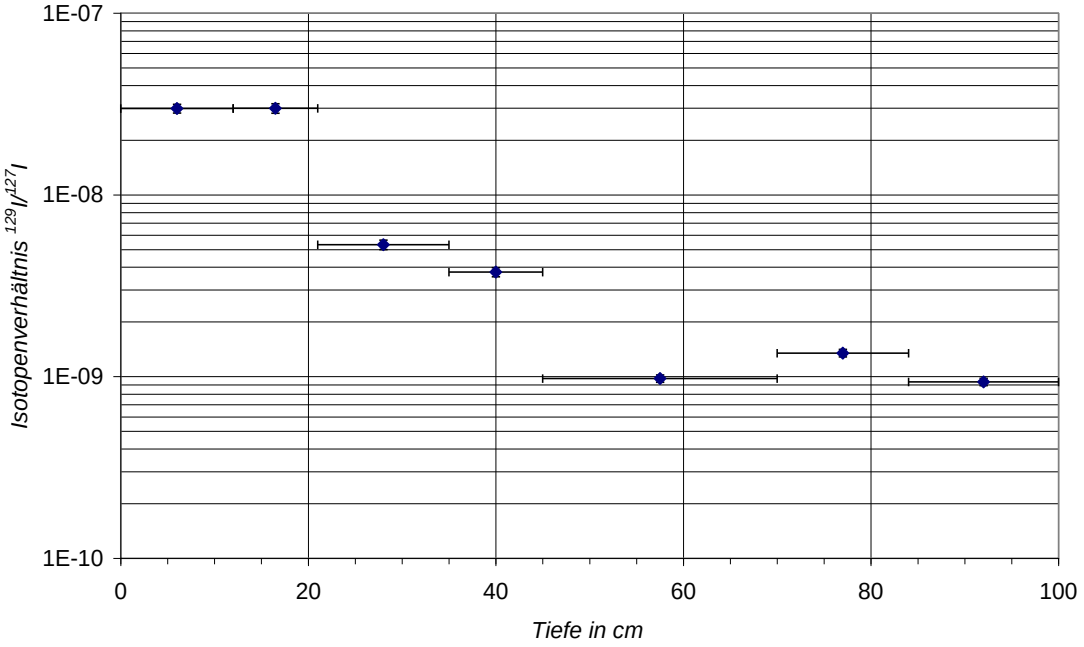

Abb. 7.10: Isotopenverhältnis gegen Tiefe für das Mulde-Profil

Abhängigkeiten der Isotopenverhältnisse für Ukraine-Proben

Die Abbildungen 7.11 und 7.12 (s.S. 46) zeigen die Isotopenverhältnisse der Ukraine-Proben in Abhängigkeit der ^{129}I bzw. ^{127}I-Konzentrationen. Diese Graphen lassen den Schluss zu, dass mit steigendem ^{129}I-Gehalt auch das Isotopenverhältnis ^{129}I/^{127}I steigt, wie auch zu erwarten war. Es besteht eine nahezu lineare Abhängigkeit. Eine Ausnahme bildet hier der tiefste Horizont des Christinowka-Profils, der ein besonders hohes Isotopenverhältnis aufweist. Als möglicher Grund kann in Betracht gezogen werden, dass dieser Horizont Grundwassereinflüsse hat und Iod mit einem hohen Isotopenverhältnis durch Sickerwasser bis in diese Tiefen vorgedrungen ist.

In Abschnitt 7.2. (s.S. 37) wurde festgestellt, dass sich die ^{129}I-Werte in einem sehr viel größeren Intervall bewegen als die ^{127}I Konzentrationen. Beide Isotope weisen mit zunehmender Tiefe des Horizontes eine Abnahme der Konzentration auf. Da die ^{129}I-Konzentrationen relativ gesehen stärker abnehmen, beobachtet man den Trend, dass das Isotopenverhältnis mit der ^{129}I-Konzentration abnimmt.

Da die ^{127}I-Gehalte in den oberen Schichten des Christinowka-Profils nur gering variieren, ist hier keine Abhängigkeit zu erkennen. Die Proben mit geringerem Anteil an ^{127}I weisen auch geringere Isotopenverhältnisse auf. Die Probe aus der größten Tiefe weicht aber allerdings von den anderen Werten ab. Trotz des niedrigen ^{127}I-Gehaltes in dieser Schicht ist das Isotopenverhältnis mit 1×10^{-8} relativ hoch.

Das Profil aus Dowgij-Lis zeigt unscharf den Trend, dass mit steigendem ^{127}I Gehalt auch das Isotopenverhältnis steigt. Die Werte weisen allerdings eine recht starke Streuung auf.

In Zhurba nehmen bei nahezu konstantem ^{127}I-Gehalt die Isotopenverhältnisse der fünf obersten Proben mit der Tiefe um gut eine Größenordnung ab. Darunter fällt das Isotopenverhältnis weiter, wird allerdings dann von einem stärkeren Abfall der ^{127}I-Konzentrationen begleitet.

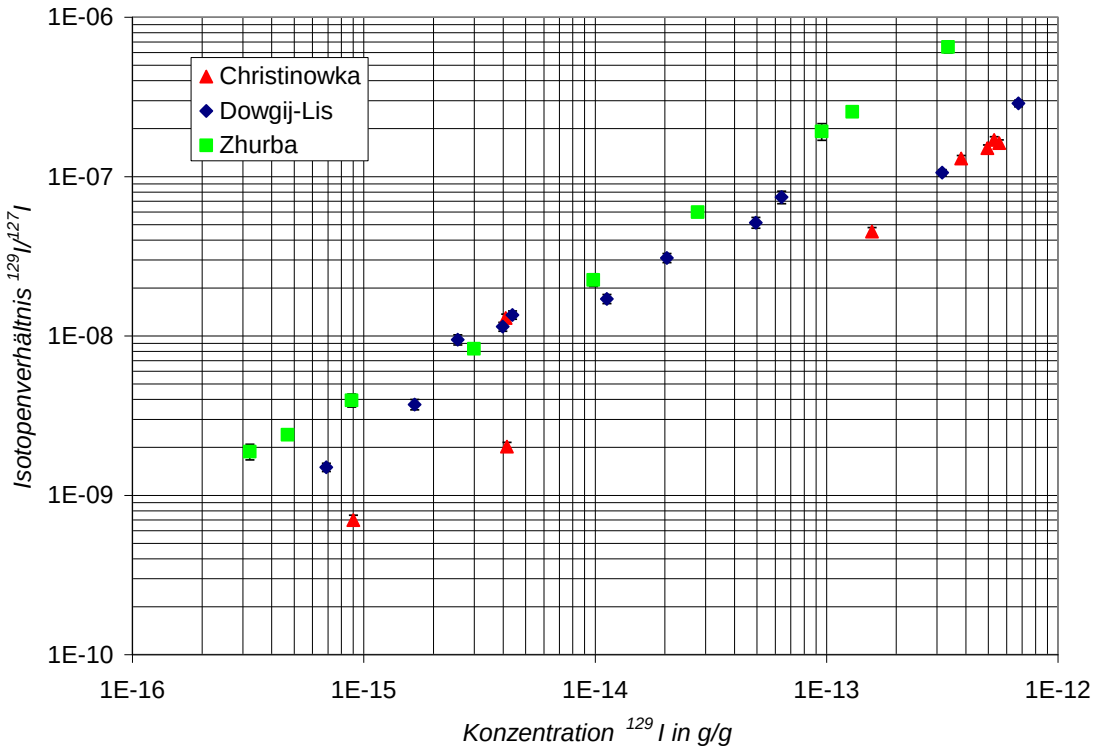

Abb. 7.11: Isotopenverhältnis gegen ^{129}I-Konzentration für Ukraine-Proben

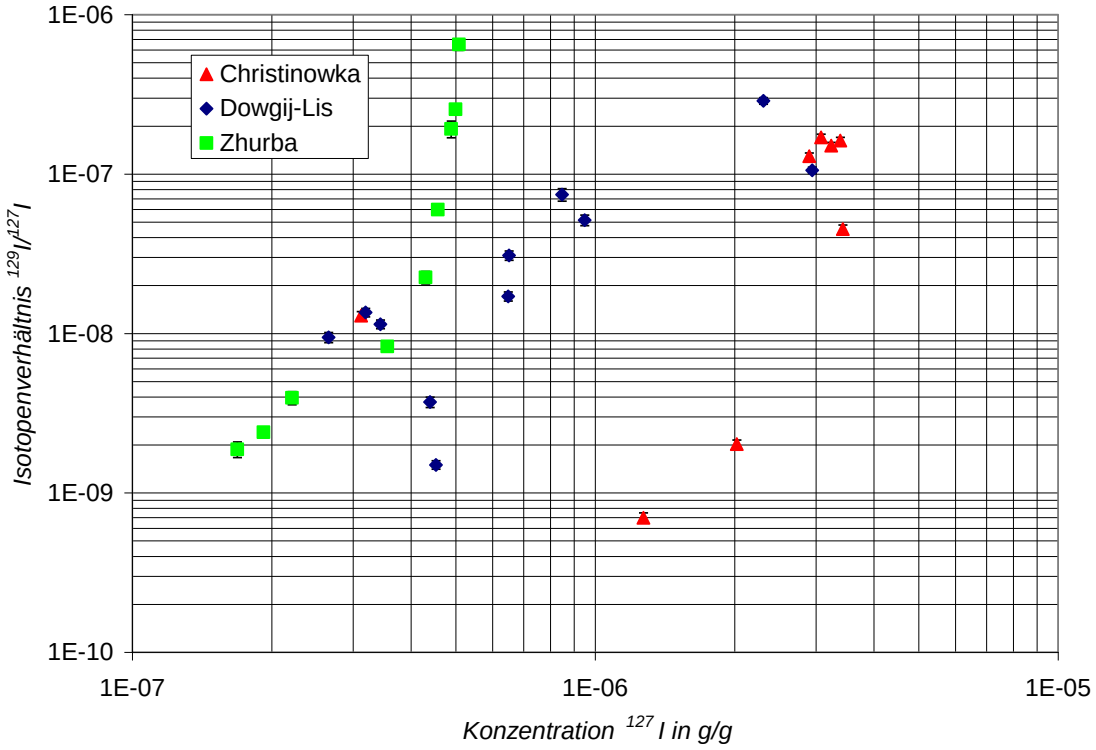

Abb. 7.12: Isotopenverhältnis gegen die ^{127}I Konzentration der Ukraine Profile

Abhängigkeiten der Isotopenverhältnisse für Mulde-Proben

In den Abbildungen 7.13 (s.S. 47) und 7.14 (s.S. 48) wird das Isotopenverhältnis in Abhängigkeit der ^{129}I bzw. der ^{127}I Konzentration für das Mulde-Profil dargestellt. Abb. 7.13 zeigt deutlich das mit der ^{129}I-Konzentration steigende Isotopenverhältnis. Dies ist verständlich, da die ^{127}I Konzentrationen mit der Tiefe nahezu konstant sind, die ^{129}I Konzentrationen im Gegensatz dazu mit der Tiefe stark abnehmen.

Das in Abbildung 7.14 gegen die Konzentration von stabilem Iod aufgetragen Isotopenverhältnis zeigt, dass hier keine nennenswerte Abhängigkeit von ^{127}I besteht. Die Unterschiede im Isotopenverhältnis sind und etwa drei Größenordnung höher als die Unterschiede in der Konzentration von ^{127}I. Die ^{129}I/^{127}I-Verhältnisse hängen also von dem Eintrag von ^{129}I in den Boden und seiner Verteilung darin ab.

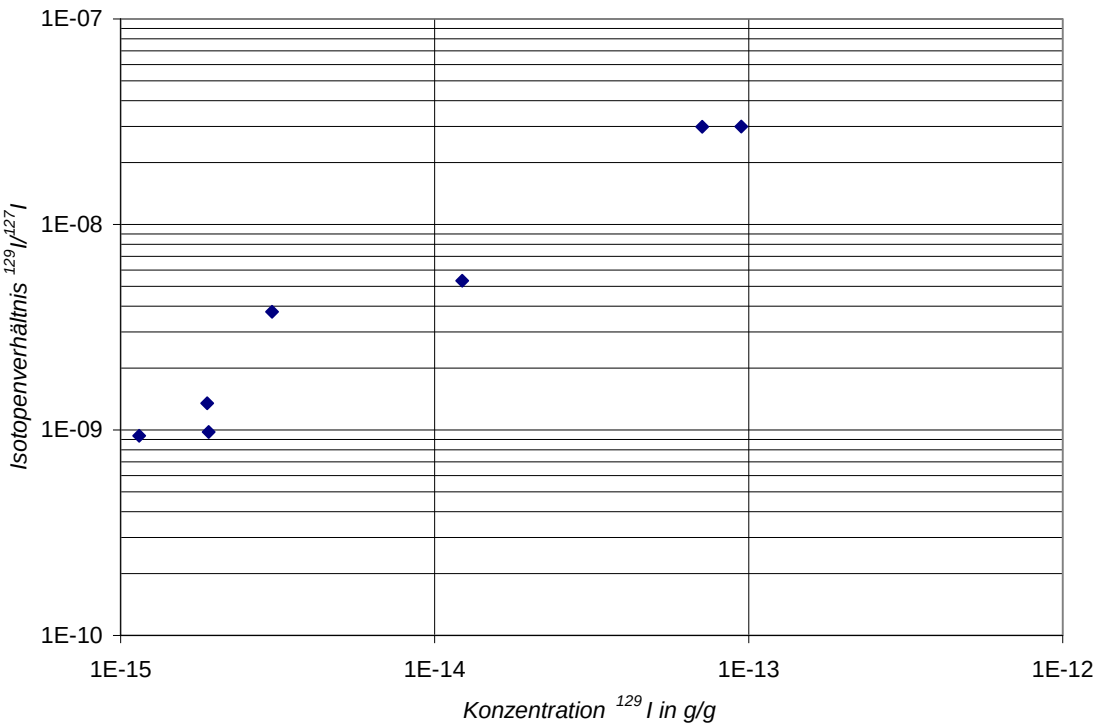

Abb. 7.13: Isotopenverhältnis gegen ^{129}I-Konzentration für das Mulde-Profil

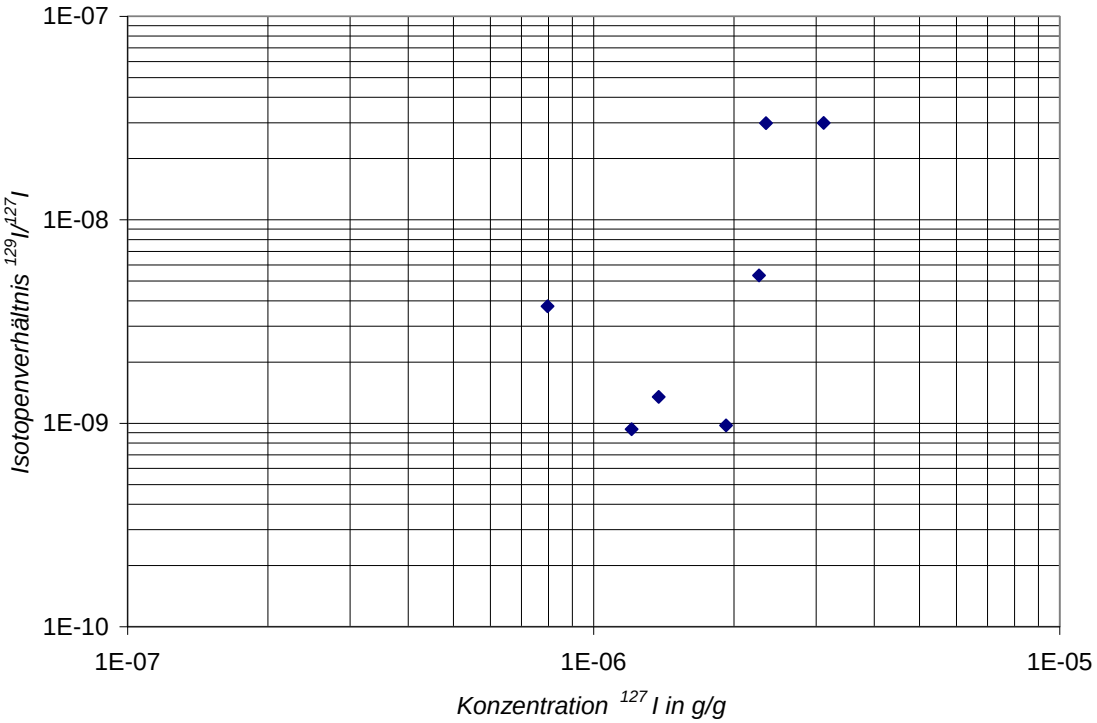

Abb. 7.14: Isotopenverhältnis gegen ^{127}I-Konzentration für das Mulde-Profil

7.4. Vergleich der ^{129}I und ^{137}Cs Aktivitäten

Die Radionuklide ^{129}I und ^{137}Cs wurden gleichzeitig durch den Reaktorunfall von Tschernobyl freigesetzt. Aus ihrem Verhältnis lassen sich Rückschlüsse auf die Herkunft des ^{129}I ziehen. Außerdem ist es möglich, die Aktivitätskonzentrationen und das Verhalten der beiden Nuklide im Boden zu vergleichen.

Die ^{137}Cs Konzentrationen der Proben aus Ukraine und des Mulde-Profils wurden mittels Gamma-Spektroskopie in den Monaten März, April und Juli 2008 am ZSR Hannover bestimmt [Lül09]. Die Berechnung der Depositionsdichten von ^{137}Cs erfolgte analog zu der Berechnung von ^{129}I. Die Ergebnisse finden sich im Anhang in Tabelle A.9 und A.10

In Abb. 7.15 (s.S. 50) sind die ^{137}Cs-Aktivitäten gegen die ^{129}I-Aktivitäten für die Ukraine-Profile aufgetragen. Wenn sich Iod und Cäsium im Boden gleich verhalten würden, würden alle Punkte auf einer Gerade liegen. Die Verhältnisse der Aktivitäten wären also unabhängig von der Tiefe.

Die Ergebnisse zeigen jedoch, dass sich das Verhältnis von Cäsium zu Iod in tieferen Schichten zum Iod hin verschiebt. Dies bedeutet, dass Iod im Boden mobiler ist als Cäsium und schneller in tiefere Schichten vordringt. Bei den Profilen aus Zhurba und Dowgij-Lis ist dieser Trend sehr eindeutig zu beobachten. Jedoch gibt es vier Proben, die von diesem Trend abweichen (eingefasst von roter Umrandung in Abb. 7.13). Das Christinowka-Profil zeigt, dass hier Iod und Cäsium bis in die unteren Schichten ihr Verhältnis beibehalten, und erst im tiefsten Horizont findet man einen schnelleren Transport von Iod und somit ein Verschieben des Gleichgewichts zugunsten des ^{129}I. Die einzelnen Werte sind im Anhang in Tabelle A.9 (s.S. 69) und A.10 (s.S. 70) dargestellt.

Die tiefsten Schichten der Profile Zhurba und Dowgij-Lis zeigen leicht erhöhte Cäsium-Werte. Eventuell spielt hierbei eine Rolle, dass in diesen Schichten Grundwasser zu finden ist und deshalb ^{137}Cs höhere Werte aufweist. Dagegen spricht jedoch, dass der tiefste Christinowka-Horizont ebenfalls Kontakt mit dem Grundwasser hat und hier das ^{137}Cs/^{129}I-Verhältnis mit den Werten aus den anderen beiden Profilen übereinstimmt. Allerdings können Kontaminationen bei der Probennahme, die diesen Effekt verursachen, nicht ausgeschlossen werden.

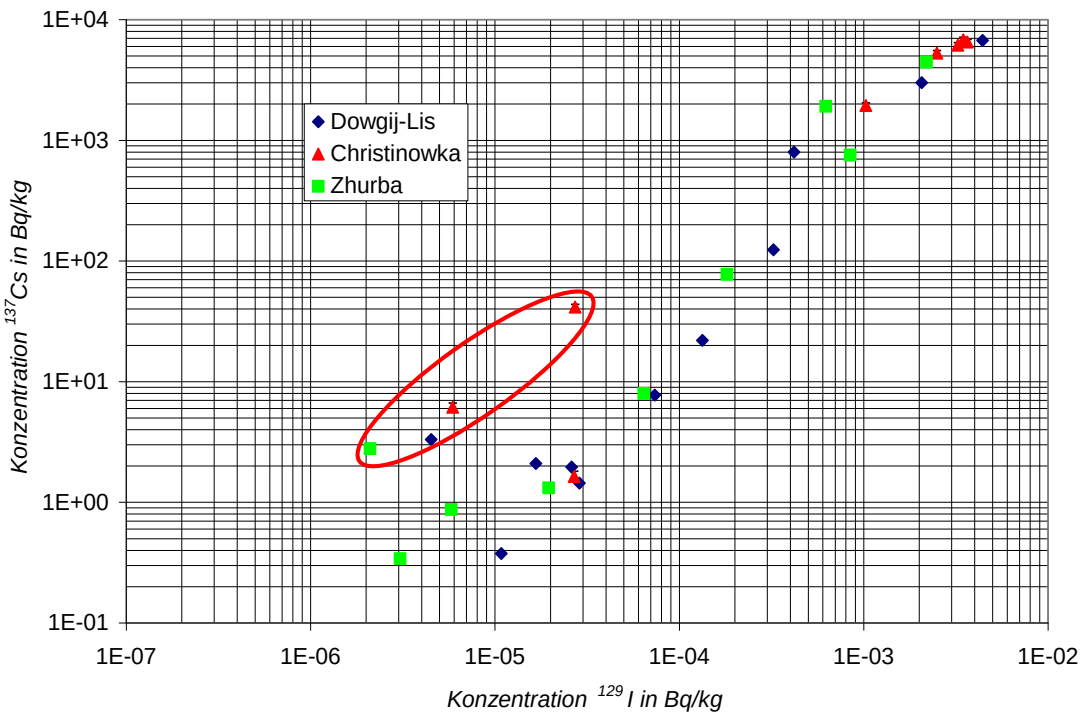

Abb. 7.15: ^{137}Cs gegen ^{129}I in Bq/kg (Ukraine)

^{129}I und ^{137}Cs sind neben vielen weiteren Isotopen Spaltprodukte von Uran und wurden im Reaktor von Tschernobyl gebildet. Mit bekannten Spaltausbeuten ist es daher möglich, die Depositionsdichten auszurechnen und mit den in den Bodenprofilen gefundenen Depositionsdichten zu vergleichen. Diesen Werten geben Hinweise auf den Ursprung des ^{129}I, da aus Wiederaufarbeitungsanlagen größtenteils ^{129}I emittiert wird. Das Aktivitätsverhältnis ergibt sich nach Gleichung 7.1 zu:

$$\frac{A(^{129}I)}{A(^{137}Cs)} = \frac{Y(129) \times \lambda(^{129}I)}{Y(137) \times \lambda(^{137}Cs)} \qquad (7.1)$$

Um von den gemessenen (heutigen) Verhältnissen auf die Verhältnisse zum Zeitpunkt der Explosion zurückzurechnen, muss die Formel um den Anteil des bereits zerfallenen ^{137}Cs korrigiert werden. Mit $T_{1/2}$ (^{137}Cs) = 30,17 Jahren berechnet sich das Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Deposition nach dem Reaktorunfall vor t = 22,5 Jahren (in Bezug auf den Zeitpunkt der ^{137}Cs-Messung):

$$\frac{A(^{129}I)}{A_0(^{137}Cs)} = \frac{Y(129) \times \lambda(^{129}I)}{Y(137) \times \lambda(^{137}Cs)} \times \exp\left[-t \times \lambda(^{137}Cs)\right] \qquad (7.1)$$

Spaltausbeute Y(A) der Isobaren A = 129 und A = 137 sind 0,65 % respektive 6,26 %. λ bezeichnet die Zerfallskonstante der Isotope ^{129}I und ^{137}Cs.

Das erwartete Aktivitätsverhältnis zur Zeit des Unglücks liegt bei 2,75 × 10^{-7} [Mir02]. Experimentell bestimmte, geometrisch gemittelte Verhältnisse wurden zu 2,8 × 10^{-7} mit einer Standardabweichung von 1,3 für Zone II und 2,0 × 10^{-7} mit einer Standardabweichungen von 1,9 für Zone III ermittelt und liegen damit nahe bei dem erwarteten Verhältnis [Mic05].

Aufgrund der ungleichmäßigen Verteilung der aus Tschernobyl ausgetretenen Radionuklide ^{129}I und ^{137}Cs in der Atmosphäre kommt es jedoch zu starken Schwankungen in den Verhältnissen. Das Verhältnis der Depositionsdichten $\frac{A(^{129}I)}{A(^{137}Cs)}$ ist in Dowgij-Lis mit 4,5 x 10^{-7} am höchsten. Christinowka und Zhurba liegen mit 3,1 x 10^{-7} bzw. 2,7 x 10^{-7} im Bereich des geometrischen Mittels von Zone II. Dass der Eintrag von ^{129}I damit hauptsächlich ein Resultat des Reaktorunfalls ist, kann damit als bestätigt angesehen werden.

	Isotopenverhältnis ^{129}I/ ^{137}Cs		Unsicherheit
Dowgij-Lis	4,5E-07	±	5,9E-08
Christinowka	3,1E-07	±	4,1E-08
Zhurba	2,7E-07	±	7,8E-08
Mulde	2,6E-05	±	4,3E-06

Tab. 7.2: Verhältnis der Depositionsdichten von ^{129}I und ^{137}Cs

Abbildung 7.14. zeigt das Verhältnis von ^{137}Cs zu ^{129}I in dem Mulde-Profil. Es ist ersichtlich, dass eine Durchmischung stattgefunden hat, da das Verhältnis von Cäsium zu Iod in den einzelnen Schichten sehr ähnliche Werte aufweist. Als Grund hierfür ist zu vermuten, dass die häufigen Überschwemmungen am Mulde-Ufer beide Elemente mehr oder weniger gleichmäßig über die gesamte Schichtdicke verteilt hat.

Das Verhältnis der Depositionsdichten $\frac{A(^{129}I)}{A(^{137}Cs)} = 2{,}6 \times 10^{-5}$ ist sehr viel höher als das der Ukraine Proben. Aus der geringen ^{137}Cs Konzentration kann man schließen, dass das hier eingetragene ^{129}I primär nicht aus Tschernobyl stammt, sondern aus den Wiederaufarbeitungsanlagen kommen muss.

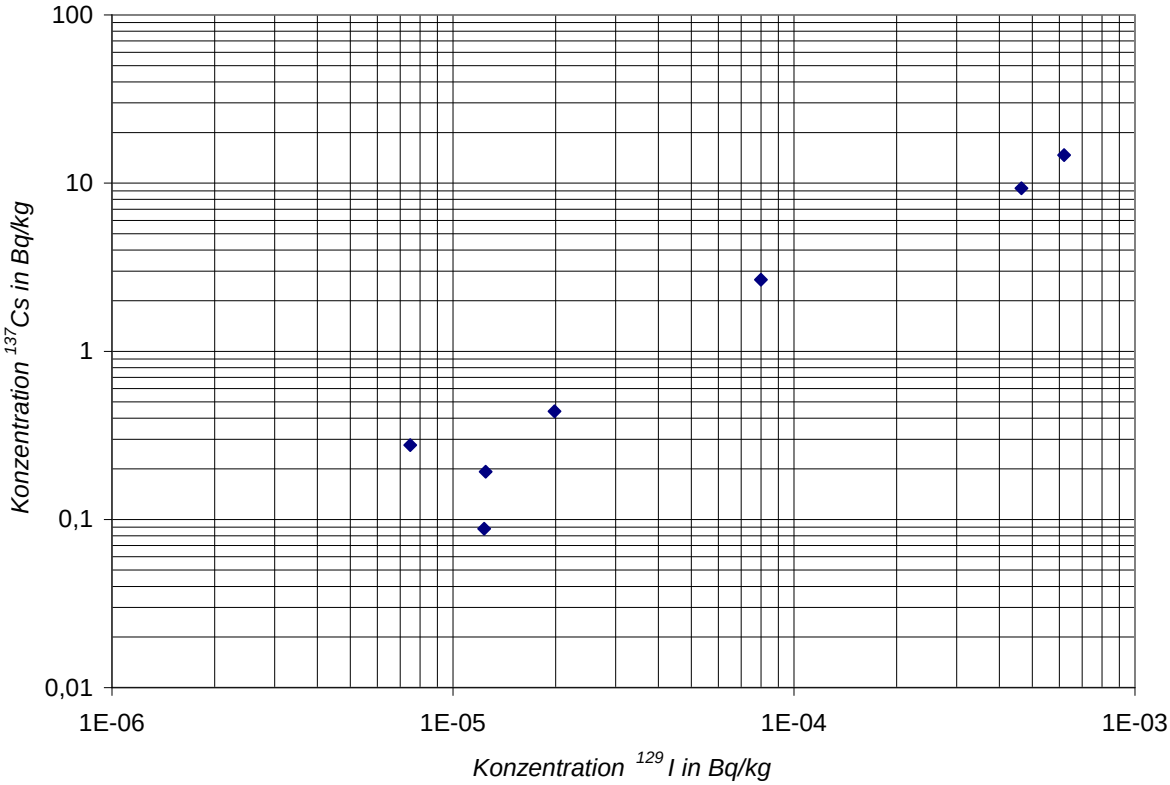

Abb. 7.14: ^{137}Cs-Konzentration gegen ^{129}I-Konzentration in Bq/kg (Mulde)

7.5. Ringversuch Mittelmeer und Irische See

Die Proben IAEA-443 und IAEA-418 wurden im Rahmen eines Ringversuches untersucht. Die Analyseergebnisse der Wasserproben sind in Tabelle 7.3 dargestellt. Die Konzentration an stabilem Iod ist in der Probe aus der Irischen See mehr als doppelt so hoch wie im Mittelmeer. Die Konzentrationen an ^{129}I unterscheiden sich allerdings um einen Faktor 1000, wobei die Irische See aufgrund der Zuleitungen aus Sellafield erwartungsgemäß den größeren Wert aufweist.

	I-127 in g/g		Standard-Unsicherheit in g/g	I-129 in g/g		Standard-Unsicherheit in g/g	I-129/I-127 Isotopen-Verhältnis		Standard-Unsicherheit
Mittelmeer (IAEA 418)	2,50E-08	±	8,15E-10	2,39E-16	±	2,92E-17	9,39E-09	±	1,19E-09
Irische See (IAEA 443)	5,44E-08	±	1,91E-09	2,20E-13	±	9,08E-15	3,99E-06	±	2,16E-07

Tab.7.3: Ergebnisse Wasserproben IAEA

7.6. Proben aus Gorleben

Im Atommülllager Gorleben werden radioaktive Abfälle gelagert und weiterbehandelt. Daher unterliegt die Umgebung der Lagerstätten der radiologischen Überwachung. Hierzu werden unter anderem Bodenproben von verschiedenen Messpunkten untersucht. Unter anderem wird auch das Isotopenverhältnis von ^{129}I zu ^{127}I überprüft. Die hier beschriebenen Proben stammen von den Messpunkten 1 und 5. Die Ergebnisse der Analysen sind in Tabelle 7.4. angegeben. Die Analyseergebnisse an beiden Punkten sind für alle gemessenen Parameter sehr ähnlich.

Schacht Konrad	Messpunkt 1		Unsicherheit	Messpunkt 5		Unsicherheit
Konzentration I-127 in g/g	1,02E-06	±	2,80E-08	1,03E-06	±	2,55E-08
Konzentration I-129 in g/g	7,72E-14	±	3,18E-15	7,39E-14	±	3,04E-15
Isotopenverhältnis I-129/I-127	7,43E-08	±	3,68E-09	7,09E-08	±	3,41E-09

Tab. 7.4: Ergebnisse für die Messpunkte 1 und 5 in Gorleben

7.7. soil IAEA-375 Referenz

Um die angewandten Analyseschritte zu verifizieren, wurde zusätzlich zu den Profilen eine Bodenprobe mit einem bekannten Isotopenverhältnis untersucht. Diese von der IAEA zu Verfügung gestellte Referenzprobe trägt die Bezeichnung ’soil IAEA-375’ und besitzt eine ^{129}I-Konzentration von 1,215 × 10^{-8} Atome/g [Str96].
Der Vergleich mit dem in dieser Arbeit bestimmten Wert von 1,27 ± 0,05 × 10^{-8} Atome/g zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Wert der IAEA, weshalb man davon ausgehen kann, dass die angewandte Methode richtige Ergebnisse liefert.

8. Fehlerberechnung

Für die Unsicherheiten der Ergebnisse in dieser Arbeit gibt es verschiedene Ursachen. Zum einen sind die Ergebnisse der AMS-Messungen mit Unsicherheiten behaftet. Diese wurden zusammen mit den Werten aus Zürich direkt berechnet und unverändert übernommen. Des Weiteren gibt es Ungenauigkeiten bei der Proben- und Chemikalieneinwaage bei der chemischen Aufarbeitung.
Um die Unsicherheiten bei der ICP-MS abzuschätzen, errechnet man den Mittelwert und die Standardabweichung für jede Probe über jeweils 6 Runs. Daraus erhält man die Messunsicherheit. Zusätzlich wurden alle errechneten Werte mittels eines Faktors, der sich auf eine Messung am Ende des Messtages bezieht, normiert. Des Weiteren wurde eine Kalibrierungsgerade erstellt, aus der die Steigung, der y-Achsenabschnitt und die jeweiligen Unsicherheiten statistisch nach der Methode der Kleinsten Quadrate ermittelt wurden. Für die notwendigen Rechnung wurde ein Microsoft Excel© Work Sheet verwendet. Mit der Formel für diese Gerade wurden aus den normierten Werten die endgültigen Werte für die Konzentration berechnet (siehe Abschnitt 6.1., S. 26).

Für die Auswertung der Daten wurden die Unsicherheiten nach der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung berechnet (Formeln 8.1 und 8.2)

$$\Delta y = \frac{\delta y}{\delta x_1}\Delta x_1 + \frac{\delta y}{\delta x_2}\Delta x_2 + ... \tag{8.1}$$

$$u_y = \sqrt{\left(\frac{\delta y}{\delta x_1}\Delta x_1\right)^2 + \left(\frac{\delta y}{\delta x_2}\Delta x_2\right)^2 + ...} \tag{8.2}$$

Die Unsicherheiten für die AMS und ICP-MS Messungen liegen im Bereich von einigen Prozent (Tabelle A.1.-A.8.)
Durch den Mangel an Informationen über die Dichte der Probenböden, musste eine Abschätzung gemacht werden. Die Behandlung der Unsicherheiten, die dabei auftreten, sind in Kapitel 6.5. (s.S. 30) dargestellt.

9. Zusammenfassung/Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war, anhand von Tiefenprofilen aus drei unterschiedlichen, in Kontaminationszone II gelegenen Orten der Ukraine, Erkenntnisse über das Verhalten von Iod im Boden zu gewinnen. Hierzu wurden erstmals Tiefenprofile von zwei Metern Tiefe analysiert.

Aufgrund der Analyseergebnisse lassen sich folgende Aussagen treffen. Es gibt in den einzelnen Tiefenprofilen unterschiedliche Verläufe von sowohl der ^{127}I als auch der ^{129}I-Konzentrationen. Grund hierfür sind die jeweiligen Bodeneigenschaften sowie die Mengen der ^{129}I-Depositionen. ^{129}I-Konzentrationen nehmen mit der Tiefe im Boden sehr viel schneller ab als die ^{127}I-Konzentrationen. Der Grund liegt darin, dass ^{129}I mit bereits gebundenem ^{127}I in Konkurrenz um die Sorptionsplätze steht. Die Wahrscheinlichkeit der Sorption von ^{127}I ist größer, da die Gesamtmenge und Aufenthaltszeit im Boden die des ^{129}I deutlich übersteigt.

Der größte Anteil an ^{129}I in den Ukraine Proben befindet sich auch 22 Jahre nach der Katastrophe von Tschernobyl in den obersten Bodenschichten.

Die Resultate aus den Bodenprofilen zeigen, dass mehr als 90 % der ^{129}I-Kontamination in den Bodenprofilen noch immer in den oberen 40 cm der Profile lokalisiert ist. Dies erlaubt die ^{129}I-Inventare in den Profilen in diesen Schichten als Näherungen für das gesamte anthropogene ^{129}I-Inventare zu betrachten. Damit wurden frühere Messungen bestätigt [Mic05]. Allerdings ist ^{129}I bereits bis in die tiefsten untersuchten Horizonte vorgedrungen. Der Anteil an ^{129}I, der durch den Transport in noch tiefere Bodenschichten als verloren zu betrachten ist, kann nicht quantifiziert werden.

Durch Messungen der Isotopenverhältnisse von ^{137}Cs und ^{129}I im Boden und dem Vergleich mit Werten, die aufgrund der Spaltausbeuten im Reaktor zu erwarten waren, zeigen, dass der größte Anteil an ^{129}I im Boden eine Folge des Reaktorunglücks ist. Messungen von Proben aus nicht kontaminierten Gebieten und pränuklearen Proben zeigen aber, dass es auch einen nicht zu vernachlässigenden Anteil an ^{129}I gibt, der aus anderen Quellen als dem Reaktorunfall stammen muss.

Die ^{129}I Inventare in der Ukraine sind mit den ^{137}Cs Inventaren in den hoch kontaminierten Gebieten korreliert. Allerdings ist die Variabilität der $^{129}I/^{137}Cs$ Verhältnisse aufgrund der inhomogenen Verteilung in der Atmosphäre nach dem Unfall groß, sodass für die retrospektive Dosimetrie von ^{131}I auf die ^{129}I-Daten zurückzugreifen ist. Für das Mulde-Profil besteht kein Zusammenhang zwischen ^{137}Cs und ^{127}I.

Um das Verhalten von ^{129}I in den hier untersuchten Böden besser zu verstehen, wären zusätzliche Informationen über die Proben hilfreich gewesen. So liegen keine Angaben über den pH-Wert, den Niederschlag, den Bewuchs und die im Boden enthaltene Feuchtigkeit vor.

Für weitere Iodanalysen ist es anzuraten, für Profile mit einer Tiefe von 200 Zentimetern die Proben in geringeren Abständen zu nehmen, um mehr aussagefähige Daten über die Verteilung des Iods in Böden zu erhalten.
Des Weiteren wäre parallel zur Analyse von Bodenprofilen eine Untersuchung von Grundwasserproben interessant, da beobachtet wurde, dass sich Horizonte, in denen Grundwassereinfluss erkennbar war, anders als solche ohne Grundwassereinfluss verhalten.

10. Literatur

[Alf05] V. ALFIMOV, Accelerator Mass Spectrometry of ^{36}Cl and ^{129}I, Analytical Aspects and Applications, Uppsala, Dissertation 2005

[Alf07] V. ALFIMOV, H.-A. SYNAL, ^{129}I AMS at 0.5MV tandem accelerator, (Preprint to Elsevier)

[Boa94] BOARETTO, E. BERKOVIT, D. DELMAS, R.R.R. JOHNSON, A. KAUFMAN, M. MAGARITZ, M. PAUL, M. POURCHET, Measurements of anthropogenic radionuclides in environmental samples, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B92 (1994) 350-356.

[Eng94] T.R. ENGLAND, B.F. RIDER; Evaluation and compilation of fission product yields; Rep. LA-UR-94-3106 (1994)

[Ern03] T. ERNST, S.SZIDAT, J.HANDL, D. JAKOB, R.MICHEL, Ch. SCHNABEL, H.-A. SYNAL et. al., Migration of iodine-129 and iodine-127 in soils, Kerntechnik, 68 (2003) 4, 155-167

[Erd03] T. ERNST, Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse; Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport, Universität Hannover, Dissertation 2003

[Fab85] J. FABRYKA-MARTIN, H. BENTLEY D. ELMORE, P. L. AIRLEY, Natural iodine-129 as an environmental tracer, Geochim. Cosmochim. Acta 49 (1985) 337-347

[Icr83] International Comission on Radiological Protection; Radionuclide transformations, energy and intensity of emissions; ICRP Publication 30, Pergamon Press, London (1983).

[Iso95] Guide to the expression of uncertainty in measurement, ISO, 1995

[Kli05] K. KLIPSCH, 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, Hannover

[Liu97] X. LIUO, U. FEHN, R. T. D. TENG, Oil formation and fluid convection in Railroad Valley, NV: a study using cosmogenic isotopes to determine the onset of hydrocarbonmigration, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B123 (1997) 356-360.

[Lül09] T. LÜLLAU, Gammaspektometrische Untersuchung Umweltproben, Diplomarbeit (in Vorbereitung)

[Mic04] R. MICHEL, K. KLIPSCH, T. ERNST, M. GORNY, D. JAKOB, J. VAHLBRUCH, H.-A. SYNAL, C. SCHNABEL, Abschlussbericht Vorhaben StSch 4285, Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129, Hannover 2004

[Mic05] R. MICHEL, J. HANDL, T.ERNST, W. BOTSCH, S. SZIDAT, A. SCHMIDT, D. JAKOB, L:D: ROMANTSCHUK, H.-A. SYNAL, C. SCHNABEL, J.M. LÓPEZ-GUTIÉRREZ, 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 (2005) 35-55

[Mir02] V. MIRONOV, V KUDRJASHOVA, F. YIOUB, G.M. RAISBECK, Use of ^{129}I and ^{137}Cs in soils for the estimation of ^{131}I deposition in Belarus as a result of the Chernobyl accident, Journal of Environmental Radioactivity 59 (2002) 293–307

[Mor98] J.E. MORAN, U.FEHN, R.T.D.TENG Variations in I-129/I-127 rations in marine sediments, evidence for a fossil organic component, Chem. Geol. 152 (1998) 193-203.

[Nea99] Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, NEA/OECD, Paris (1999).

[Nor92] NORTON et.al. Proceeding of the Symposium of Northeastern Accelerator Personnel (SNEAP), Santa Fe, World Scienti®c, Singapore, 1992, p. 295

[Sch95] D.R. SCHINK, P.H. SANTSCHI, Prospects for I-129 Dating of organic matter using AMS

[Scd98] A. SCHMIDT, ^{129}I und stabiles Iod in Umweltproben: Qualitätskontrolle von Analysenmethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie, Universität Hannover, 1998, Dissertation

[Sch98] A. SCHMIDT, CH. SCHNABEL, J. HANDL, D. JAKOB, R. MICHEL, H.-A. SYNAL, J. M. LOPEZ, M. SUTER, On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography, The Science of the Total Environment 223 (1998) 131-156

[Sto05] M. STOCKER, M. DÖBELI, M. GRAJCAR, M. SUTER, H.A. SYNAL, L. WACKER, A universal and competitive compact AMS facility, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 240 (2005) 483–489

[Str96] V. STRACHNOV, J. LaROSA R. DEKNER, R: ZEISLER, A: FAJGELJ, Report on the Intercomparison Run IAEA-375: Radionuclides in Soil. IAEA/AL/075, IAEA, Vienna, Austria 1996.

[Sch07] C. SCHNABEL, V.OLIVE, M.ATARASHI-ANDOH, A. DOUGANS, R.M. ELLAM, S.FREEMAN, C. MADEN , M. STOCKER, H.-A- SYNAL, L. WACKER , S. XU, ^{129}I/^{127}I ratios in Scottish coastal surface sea water: Geographical and temporal responses to changing emissions, Applied Geochemistry 22 (2007) 619–627

[Syn00] H.-A. SYNAL, S. JACOB, M. SUTER, The PSI/ETH small radiocarbon dating system, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 172 (2000) 1-7

[Szd00] S. SZIDAT, Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien, Hannover, Dissertation; 2000

[Zha07] X.-L. ZHAO, A.E. LITHERLAN, W.E. KIESER, C. SOTO, Assessment of ^{129}I measurement at low MV tandem voltages Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 259 (2007) 265–270

11. Anhang

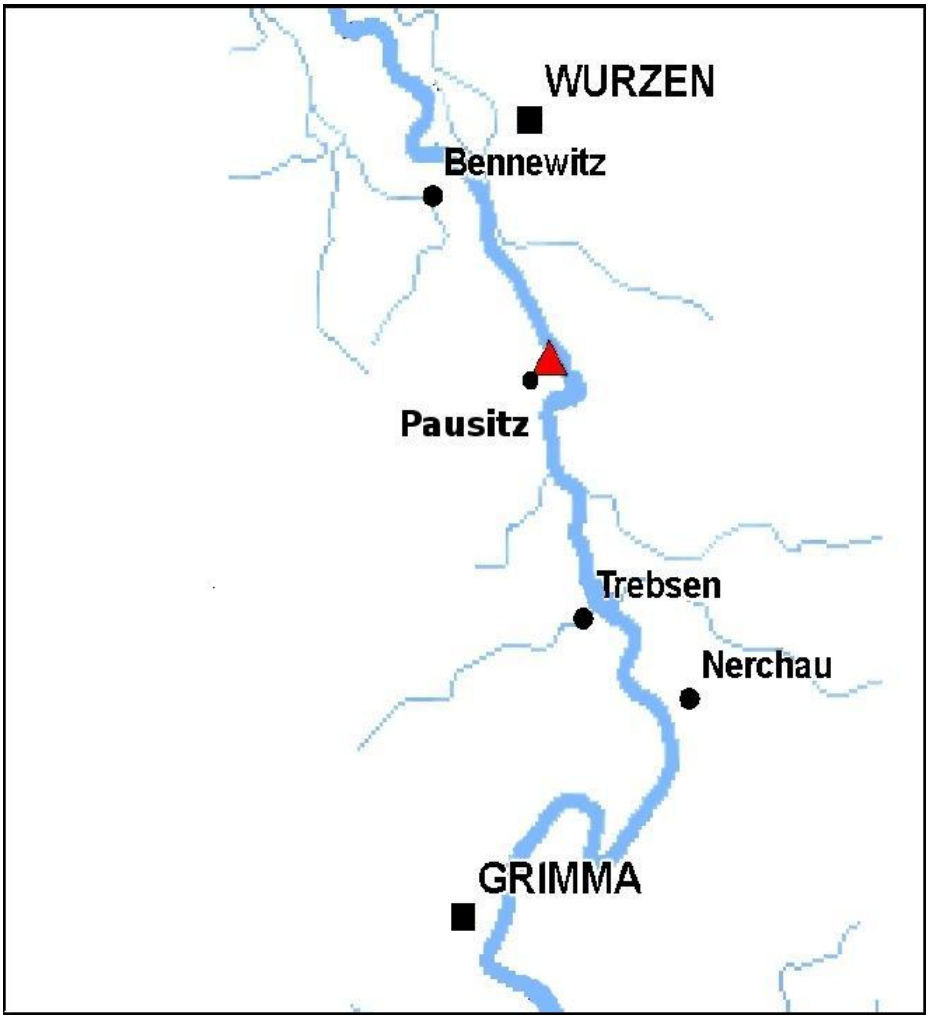

Abb. A.1: Ausschnitte des Verlaufs der Vereinigten Mulde zwischen Grimma und Wurzen. Das rote Dreieck markiert den Punkt der Probennahme des untersuchten Profils.

Horizont	Schichttiefe in cm	Bodenbeschaffenheit
Aeh	0-2	Ah-Horizont grau, schwach podsolig, frisch, stark durchwurzelt, lehmiger Sand, schwach verdichtet (Aggregierung unklar) scharfer Übergang zum nächsten Horizont
	2-4	
	4-6	
	6-10	
	10-25	
AeI	25-48	Eluvial-Horizont (Auswaschungshorizont): gelbweiß, lehmiger Sand, frisch, schwach verdichtet, Plattengefüge, schwach durchwurzelt, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
AeI/Bt	48-70	Übergangshorizont (Eluvial-Illuvialhorizont): graubraunweiß, ausgebleicht, Sand, verlehmt (Tonanreicherung), Rostflecken, feucht, verdichtet, unscharfer Übergang zum nächsten Horizont
Bt	70-100	Illuvialhorizont: schmutzigbraun, marmoriert, feucht, sandig, schwache Humuseinwaschung, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Gr	100-200	Mineralbodenhorizont mit Grundwassereinfluss nass, rotgraubraun marmoriert, Fe-/Mn-Konkretionen, carbonathaltig, verdichtet, verlehmt, Grundwasser ca. 150 cm unter GOF

Tab. A.1.: Bodenkundliche Betrachtung des Profils aus Zhurba

Horizont	Schichttiefe in cm	Bodenbeschaffenheit
Aeh	0-2	Ah-Horizont: schwach podsolig, locker, frisch, stark durchwurzelt, quarzhaltig, (klumpenstaubig), scharfer Übergang zum nächsten Horizont
	2-4	
	4-6	
	6-10	
	10-20	
Ael	20-30	Eluvial-Horizont (Auswaschungshorizont): weißgraubraun (aufgehellt durch Ton- und Humusverarmung), Sand, Einzelkorngefüge, frisch, schwach durchwurzelt, Rostflecken im unteren Teil des Horizonts, unscharfer Übergang zum nächsten Horizont
	30-45	
Ael/Bt	45-60	Übergangshorizont (Eluvial-Illuvial-Horizont): graubraun, ausgebleicht, Sand, (vermutlich im unteren Teil) verlehmt (Tonanreicherung), Rostflecken, feucht, verdichtet, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Bt:	60-130	Illuvialhorizont: schmutzigbraun, marmoriert, feucht, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Gr1	130-180	Mineralbodenhorizont mit Grundwassereinfluss: nass, rotgraubraun marmoriert, Fe-/Mn-Konkretionen, carbonathaltig, verdichtet, verlehmt, Grundwasser ca. 150 cm unter GOF, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Gr2	180-200	Mineralbodenhorizont mit Grundwassereinfluss nass, graugelb, carbonathaltig, verdichtet, sandig, verlehmt

Tab. A.2: Bodenkundliche Betrachtung des Profils aus Dowgij-Lis

Bodenprofil Christinowka

Horizont	Schichttiefe in cm	Bodenbeschaffenheit
Ah1	0-2 2-4 4-6 6-10	dunkelgrau, aggregiert, stark durchwurzelt, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Ah2	10-30	dunkelgrau, humoser schwach lehmiger Sand, frisch, leicht verdichtet, mäßig durchwurzelt, Übergang zum nächsten Horizont unscharf
: Ah/Go	30-45	Übergangshorizont: dunkelgrau mit graubraunen und graublauen (Reduktionfarbe) Flecken; Rostflecken, feucht, schwach lehmig, Säulengefüge, schwach/mäßig durchwurzelt, verdichtet, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Go	45-75	grau, marmoriert, schwach humos, feucht, carbonathaltig, Säulengefüge, scharfer Übergang zum nächsten Horizont
Go/Gr	75-200	Mineralbodenhorizont mit Grundwassereinfluss: nass, graublau (Reduktionsfarbe), Fe-/Mn-Konkretionen, carbonathaltig, Sand, Einzelkorngefüge, Grundwasser ca. 180 cm unter GOF

Tab. A.3: Bodenkundliche Betrachtung des Profils aus Christinowka

Bodenprofil Mulde

Horizont	Schichttiefe in cm	Bodenbeschaffenheit
aAh	0-12	graubraun (10YR 3/2); schwach humos, sehr stark durchwurzelt; sandiger Schluff, skelettfrei
II aAh	12-21	graubraun (10YR 3/2); schwach humos, stark durchwurzelt; schluffiger Sand mit kleinen (helleren) Sandnestern, skelettfrei
III aM-Go	21-35	graubraun (10YR 3/2) mit helleren Partien, teils geschichtet, teils marmoriert (10YR 4/3); sehr schwach humos; Fe/Mn-Fleckung; sandiger Schluff mit Bändern und Nestern aus schluffigem Sand
IV am-Go	35-45	graubraun (10YR 3/3) mit helleren Bändern (10YR 4/3); mittel durchwurzelt; sehr schwach humos; Fe/Mn-Fleckung; Holzkohlestückchen; lehmiger Schluff mit eingelagerten Sandbändern
V aGo	45-70	gelblich braun (10YR 5/4); mit Humus ausgekleidete, senkrechte Wurmgänge, sonst humusfrei; Fe/Mn-Fleckung; schwach durchwurzelt; Schluff
V aGo	70-84	gelblich braun (10YR 4/4); mit Humus ausgekleidete, senkrechte Wurmgänge, sonst humusfrei; Fe/Mn-Fleckung; schwach durchwurzelt; schwach toniger Schluff (Tonverlagerung)
VI aGo	84-100	braun (10YR 4/3); Fe/Mn-Fleckung; sehr schwach durchwurzelt, humusfrei; schluffiger Sand, einzelne Steine

Tab. A.4.: Bodenkundliche Betrachtung des Mulde-Profils

Probennummer Zürich	Isotopen-Verhältnis $^{129}I/^{127}I \times 10^{-12}$	Mess-Unsicherheit	Art der Probe
H10027	2,17	6%	Blank
H10028	1,54	8%	Blank
H10092	19,7	4%	Mittelmeer (IAEA 418)
H10093	19,5	4%	Mittelmeer (IAEA 418)
H10094	8,5	5%	Mittelmeer (IAEA 418)
H10029	5,99	4%	Blank
H10030	3,52	4%	Blank
H10031	4,54	4%	Blank
H10095	14376,1	4%	Irische See (IAEA-443)
H10096	14420,0	4%	Irische See (IAEA-443)
H10097	21137,9	4%	Irische See (IAEA-443)
H10032	5,84	4%	Blank
H10033	8,15	4%	Blank
H10034	9,38	4%	Blank

Tab. A.5: AMS-Messwerte der Wasserproben aus Zürich

Probennummer Zürich	Isotopen-Verhältnis $^{129}I/^{127}I \times 10^{-12}$	Mess-Unsicherheit	Art der Probe
H10010	0,63	19%	Blank
H10011	0,32	38%	Blank
H10012	0,58	21%	Blank
H10013	0,42	29%	Blank + WWI
H10014	1,96	6%	Blank
H10015	32,7	4%	Blank
H10016	28,79	4%	Blank
H10017	20,82	4%	Blank
H10018	23,34	4%	Blank
H10019	28,36	4%	Blank + WWI
H10020	66,89	4%	Blank
H10021	34,84	4%	Blank + WWI
H10022	4,41	4%	Blank
H10023	2,64	5%	Blank + WWI
H10024	1,01	12%	Blank
H10025	1,04	12%	Blank
H10026	0,59	20%	Blank
H10047	0,54	28%	Blank
H10048	0,81	19%	Blank + WWI
H10049	1,54	10%	Blank
H10050	0,33	45%	Blank + WWI
H10051	0,76	20%	Blank + WWI

Tab. A.6: AMS-Messwerte der Blankproben aus Zürich

Proben-Nummer Zürich	Isotopen-Verhältnis $^{129}I/^{127}I$ x 10^{-12}	Mess-Unsicherheit	Ort der Probennahme	Tiefe in cm
H10074	24,0	4%	Zhurba	0-2
H10071	7,6	7%	Zhurba	2-4
H10069	19,7	4%	Zhurba	4-6
H10067	384,2	4%	Zhurba	6-10
H10064	105,81	4%	Zhurba	10-25
H10056	42,94	4%	Zhurba	25-48
H10055	9,05	4%	Zhurba	48-70
H10054	14,92	4%	Zhurba	71-99
H10060	4,35	4%	Zhurba	100-200
H10080	45,4	4%	Dowgij-Lis	0-2
H10073	22,3	4%	Dowgij-Lis	2-4
H10070	10,6	5%	Dowgij-Lis	4-6
H10068	448,4	4%	Dowgij-Lis	6-10
H10065	280,1	4%	Dowgij-Lis	10-20
H10063	132,82	4%	Dowgij-Lis	20-30
H10058	66,54	4%	Dowgij-Lis	30-45
H10057	45,17	4%	Dowgij-Lis	45-60
H10059	32,21	4%	Dowgij-Lis	60-130
H10052	26,43	4%	Dowgij-Lis	130-180
H10061	11,07	4%	Dowgij-Lis	180-200
H10075	28,5	4%	Christinowka	0-2
H10076	32,8	4%	Christinowka	2-4
H10079	37,6	4%	Christinowka	4-6
H10078	40,6	4%	Christinowka	6-10
H10072	11,5	4%	Christinowka	10-30
H10066	62,4	4%	Christinowka	30-45
H10062	13,48	4%	Christinowka	45-75
H10053	57,85	4%	Christinowka	75-200
H10081	421,9	4%	Schacht Konrad	MP 1
H10083	490,1	4%	Schacht Konrad	MP 5
H10082	1427,1	4%	IAEA-375	-
H10091	509,3	4%	Mulde	0-12
H10089	497,7	4%	Mulde	12-21
H10088	81,0	4%	Mulde	21-35
H10087	25,9	4%	Mulde	35-45
H10086	14,7	4%	Mulde	45-70
H10085	14,2	4%	Mulde	70-84
H10084	10,8	4%	Mulde	84-100

Tab. A.7: AMS-Messwerte der Bodenproben aus Zürich

Ort der Probennahme	Tiefe an der Schichtoberkante in cm	^{127}I Inventar in g/m^2		Unsicherheit in g/m^2	Depositionsdichte ^{129}I in Bq/m^2		Unsicherheit in Bq/m^2
Dowgij-Lis	0	1,257	±	0,076	2,81E-01	±	1,32E-02
	2	1,192	±	0,076	1,56E-01	±	7,21E-03
	4	1,108	±	0,075	9,69E-02	±	5,01E-03
	6	1,084	±	0,075	8,50E-02	±	4,89E-03
	10	1,030	±	0,075	6,66E-02	±	4,68E-03
	20	0,938	±	0,074	4,76E-02	±	3,58E-03
	30	0,846	±	0,072	3,72E-02	±	3,18E-03
	45	0,772	±	0,071	3,16E-02	±	3,05E-03
	60	0,704	±	0,070	2,55E-02	±	2,90E-03
	130	0,441	±	0,055	8,98E-03	±	1,23E-03
	180	0,129	±	0,020	1,28E-03	±	2,03E-04
Christinowka	0	2,386	±	0,234	6,60E-01	±	5,49E-02
	2	2,319	±	0,234	6,02E-01	±	5,47E-02
	4	2,245	±	0,234	5,28E-01	±	5,43E-02
	6	2,174	±	0,234	4,49E-01	±	5,38E-02
	10	2,019	±	0,234	2,81E-01	±	5,23E-02
	30	1,233	±	0,158	4,52E-02	±	8,49E-03
	45	0,885	±	0,138	4,05E-02	±	8,43E-03
	75	0,447	±	0,098	3,85E-02	±	8,42E-03
Zhurba	0	0,630	±	0,058	1,32E-01	±	6,61E-03
	2	0,617	±	0,058	7,53E-02	±	4,31E-03
	4	0,604	±	0,058	5,92E-02	±	3,96E-03
	6	0,591	±	0,058	3,73E-02	±	3,46E-03
	10	0,568	±	0,058	2,79E-02	±	3,38E-03
	25	0,456	±	0,054	1,13E-02	±	1,27E-03
	48	0,351	±	0,050	5,48E-03	±	6,36E-04
	71	0,288	±	0,048	3,83E-03	±	5,54E-04
	100	0,218	±	0,046	2,72E-03	±	5,13E-04
Mulde	0	2,343	±	0,089	1,57E-01	±	6,98E-03
	12	2,020	±	0,086	9,30E-02	±	5,16E-03
	21	1,678	±	0,082	2,50E-02	±	1,22E-03
	35	1,275	±	0,076	1,08E-02	±	6,33E-04
	45	1,171	±	0,076	8,16E-03	±	5,86E-04
	70	0,521	±	0,063	3,95E-03	±	4,99E-04
	84	0,261	±	0,045	1,62E-03	±	2,85E-04

Tab. A.8: ^{127}I-Inventar und ^{129}I-Depositionsdichten der einzelnen Profile

Ort der Probennahme	Schichttiefe in cm	Konzentration ^{127}I in g/g		Unsicherheit in g/g	Konzentration ^{129}I in Bq/kg		Unsicherheit in Bq/kg	Isotopen-Verhältnis $^{129}I/^{127}I$		Unsicherheit	Konzentration ^{137}Cs in Bq/kg		Unsicherheit in Bq/kg
Dowgij-Lis	0-2	2,31E-06	±	5,53E-08	4,42E-03	±	1,82E-04	2,9E-07	±	1,4E-08	6713,37	±	336,90
	2-4	2,94E-06	±	6,01E-08	2,07E-03	±	8,52E-05	1,1E-07	±	4,9E-09	3007,89	±	151,16
	4-6	8,48E-07	±	6,22E-08	4,19E-04	±	2,13E-05	7,4E-08	±	6,6E-09	799,75	±	40,21
	6-10	9,49E-07	±	6,18E-08	3,24E-04	±	1,33E-05	5,1E-08	±	4,0E-09	123,91	±	6,22
	10-20	6,51E-07	±	3,40E-08	1,34E-04	±	5,50E-06	3,1E-08	±	2,1E-09	21,94	±	1,13
	20-30	6,48E-07	±	3,30E-08	7,36E-05	±	3,03E-06	1,7E-08	±	1,1E-09	7,72	±	0,45
	30-45	3,43E-07	±	1,65E-08	2,61E-05	±	1,07E-06	1,1E-08	±	7,2E-10	1,95	±	0,16
	45-60	3,19E-07	±	1,39E-08	2,87E-05	±	1,18E-06	1,4E-08	±	8,1E-10	1,44	±	0,15
	60-130	2,65E-07	±	1,60E-08	1,67E-05	±	6,87E-07	9,5E-09	±	6,9E-10	2,09	±	0,15
	130-180	4,39E-07	±	2,73E-08	1,08E-05	±	4,47E-07	3,7E-09	±	2,8E-10	0,38	±	0,08
	180-200	4,53E-07	±	1,99E-08	4,51E-06	±	1,86E-07	1,5E-09	±	9,0E-11	3,31	±	0,24
Christinowka	0-2	2,90E-06	±	5,84E-08	2,50E-03	±	1,03E-04	1,3E-07	±	5,9E-09	5279,26	±	264,40
	2-4	3,24E-06	±	6,65E-08	3,24E-03	±	1,34E-04	1,5E-07	±	6,9E-09	6149,32	±	308,87
	4-6	3,07E-06	±	6,38E-08	3,47E-03	±	1,43E-04	1,7E-07	±	7,8E-09	6802,36	±	340,73
	6-10	3,38E-06	±	6,67E-08	3,65E-03	±	1,50E-04	1,6E-07	±	7,4E-09	6514,06	±	326,22
	10-30	3,43E-06	±	1,54E-07	1,03E-03	±	4,24E-05	4,5E-08	±	2,8E-09	1945,80	±	97,96
	30-45	2,02E-06	±	9,22E-08	2,72E-05	±	1,12E-06	2,0E-09	±	1,2E-10	41,41	±	2,29
	45-75	1,27E-06	±	7,59E-08	5,89E-06	±	2,43E-07	7,0E-10	±	5,1E-11	6,12	±	0,53
	75-200	3,12E-07	±	1,30E-08	2,69E-05	±	1,11E-06	1,3E-08	±	7,6E-10	1,64	±	0,17

Tab. A.9: Iod und Cäsium Konzentrationen für die Profile Dowgij-Lis und Christinowka

Ort der Probennahme	Schichttiefe in cm	Konzentration ^{127}I in g/g		Unsicherheit in g/g	Konzentration ^{129}I in Bq/kg		Unsicherheit in Bq/kg	Isotopen-Verhältnis $^{129}I/^{127}I$		Unsicherheit	Konzentration ^{137}Cs in Bq/kg		Unsicherheit in Bq/kg
Zhurba	0-2	5,08E-07	±	3,59E-08	2,19E-03	±	9,04E-05	6,5E-07	±	5,3E-08	4453,59	±	223,19
	2-4	4,88E-07	±	4,73E-08	6,23E-04	±	4,41E-05	1,9E-07	±	2,3E-08	1916,60	±	96,22
	4-6	4,99E-07	±	2,70E-08	8,45E-04	±	3,49E-05	2,5E-07	±	1,7E-08	754,49	±	37,92
	6-10	4,57E-07	±	2,35E-08	1,82E-04	±	7,49E-06	6,0E-08	±	3,9E-09	77,47	±	4,02
	10-30	4,30E-07	±	3,45E-08	6,42E-05	±	2,65E-06	2,2E-08	±	2,0E-09	7,96	±	0,47
	25-48	3,56E-07	±	1,26E-08	1,96E-05	±	8,08E-07	8,3E-09	±	4,5E-10	1,31	±	0,09
	48-70	2,21E-07	±	1,87E-08	5,80E-06	±	2,39E-07	3,9E-09	±	3,7E-10	0,87	±	0,11
	71-99	1,92E-07	±	7,11E-09	3,06E-06	±	1,26E-07	2,4E-09	±	1,3E-10	0,34	±	0,06
	100-200	1,69E-07	±	1,77E-08	2,10E-06	±	8,67E-08	1,9E-09	±	2,1E-10	2,78	±	0,19
Mulde	0-12	2,34E-06	±	8,58E-08	4,65E-04	±	1,92E-05	3,0E-08	±	1,6E-09	9,3	±	0,5
	12-21	3,12E-06	±	1,35E-07	6,20E-04	±	2,55E-05	3,0E-08	±	1,8E-09	14,7	±	1,0
	21-35	2,26E-06	±	1,00E-07	8,00E-05	±	3,30E-06	5,3E-09	±	3,2E-10	2,7	±	0,3
	35-45	7,96E-07	±	3,14E-08	1,99E-05	±	8,19E-07	3,8E-09	±	2,1E-10	0,4	±	0,1
	45-70	1,92E-06	±	3,85E-08	1,25E-05	±	5,14E-07	9,8E-10	±	4,5E-11	0,2	±	0,1
	70-84	1,38E-06	±	2,99E-08	1,23E-05	±	5,09E-07	1,3E-09	±	6,3E-11	0,1	±	0,1
	84-100	1,21E-06	±	2,59E-08	7,50E-06	±	3,09E-07	9,4E-10	±	4,3E-11	0,3	±	0,1

Tab. A.10: Iod und Cäsium Konzentrationen für die Profile Zhurba und Mulde

Ort der Probennahme	Tiefe an der Schichtoberkante in cm	Depositionsdichte ^{137}Cs in Bq/m^2		Unsicherheit in Bq/m^2
Dowgij-Lis	0	3,14E+05	±	1,95E+04
	2	1,23E+05	±	8,26E+03
	4	3,80E+04	±	2,29E+03
	6	1,53E+04	±	8,84E+02
	10	8,22E+03	±	6,69E+02
	20	5,11E+03	±	4,41E+02
	30	4,01E+03	±	4,03E+02
	45	3,59E+03	±	3,96E+02
	60	3,29E+03	±	3,92E+02
	130	1,21E+03	±	1,73E+02
	180	9,39E+02	±	1,59E+02
Christinowka	0	1,18E+06	±	1,04E+05
	2	1,05E+06	±	1,03E+05
	4	9,13E+05	±	1,02E+05
	6	7,57E+05	±	1,01E+05
	10	4,58E+05	±	9,85E+04
	30	1,16E+04	±	1,75E+03
	45	4,46E+03	±	7,42E+02
	75	2,35E+03	±	5,59E+02
Zhurba	0	1,95E+05	±	1,18E+04
	2	7,95E+04	±	5,02E+03
	4	2,99E+04	±	2,02E+03
	6	1,04E+04	±	8,83E+02
	10	6,41E+03	±	8,18E+02
	25	4,35E+03	±	7,14E+02
	48	3,96E+03	±	7,10E+02
	71	3,71E+03	±	7,08E+02
	100	3,59E+03	±	7,07E+02
Mulde	0	3,57E+03	±	1,90E+02
	12	2,28E+03	±	1,59E+02
	21	6,73E+02	±	6,64E+01
	35	1,99E+02	±	3,72E+01
	45	1,41E+02	±	3,38E+01
	70	7,63E+01	±	2,59E+01
	84	5,97E+01	±	2,25E+01

Tab. A.11: ^{137}Cs-Depositionsdichten aller bearbeiteter Profile, gemessen 2008 am ZSR Hannover

Verwendete Chemikalien

Substanz	Hersteller	Reinheit
Silbernitrat	Merck	pro analysi
Salpetersäure 65 %	Fluka	pro analysi
Tetramethylammoniumhydroxid ~25 % in H_2O	Fluka	pur
Ammoniumsulfit-Hydrat	Aldrich	92%
Titan-Pulver 325 mesh	Alfa Aesar	99,99%
Silber-Pulver 325 mesh	Alfa Aesar	99,99%
Dowex® 1X8	Serva	analytical grade
Natriummetabisulfit	Fluka	pro analysi
Hydroxylammoniumchlorid	Merck	pro analysi
Kaliumnitrat	Merck	pro analysi
Natriumhydroxid	Fluka	pro analysi
Calciumhypochlorid	Merck	pro analysi