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

Masterarbeit

vorgelegt von

Katharina Gückel
geboren am 3.10.1984 in Detmold

vom 1.4.2009 bis 30.9.2009

angefertigt am
Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Leibniz Universität Hannover

eingereicht bei der
Naturwissenschaftlichen Fakultät der Leibniz Universität Hannover

Erstprüfer: Prof. Dr. Rolf Michel
Zweitprüfer: Prof. Dr. Carla Vogt

Danksagung

Recht herzlich möchte ich Herrn Prof. Dr. Michel für die Ermöglichung und die wissenschaftliche Betreuung der Masterarbeit danken.

Frau Prof. Dr. Vogt danke ich für die Betreuung während des Master-Studiums und die Übernahme der Koreferenz.

Danken möchte ich besonders A. Daraoui und M. Gorny für die Einführung in die Arbeitsweisen und die tatkräftige Unterstützung während der gesamten Zeit.

D. Jakob danke ich für die sorgfältige Durchsicht dieser Arbeit und viele aufschlussreiche Gespräche.

K.-H. Iwannek gilt Dank für die Anfertigung der Zeichnungen und eine Menge guter Gespräche.

A. Solle möchte ich für seine Vorarbeiten für die Blei-Bestimmung und die Unterstützung bei der für die Datierung benötigten Berechnungen danken.

Den gesamten Mitarbeitern des ZSR gilt Dank für die freundliche Aufnahme und das gute Arbeitsklima.

Meinen Eltern möchte ich für die Ermöglichung meines Studiums und die jahrelange intensive Unterstützung und ihr Vertrauen in mich sehr herzlich danken.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis i

Abkürzungsverzeichnis ii

1. Einleitung 3
   1.1 natürliches ^{129}I in der Umwelt 4
   1.2 anthropogenes ^{129}I in der Umwelt 5

2. Aufgabenstellung 6

3. Experimentelles 7
   3.1 Probennahme 7
   3.2 Iod-Matrix-Trennung 9
   3.3 Herstellung AMS-Targets 11
   3.4 ^{210}Pb-Datierung mittels Gamma-Spektrometrie 12
   3.5 Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) 14
   3.6 Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) 20

4. Ergebnisse 24
   4.1 Rasterelektronen-Mikroskopie (REM) 24
   4.2 Ergebnisse Sediment 25
   4.3 Ergebnisse Bodenprofil aus Brasilien 32
   4.4 Datierung des Sedimentes 37

5. Vergleiche 41
   5.1 Vergleich Sedimente 41
   5.2 Vergleich Bodenprofile 44

6. Diskussion 47
   6.1 Sediment aus dem Südpazifik 47
   6.2 Bodenprofil aus Brasilien 50

7. Problematiken bei der Analyse und Auswertung 51

8. Zusammenfassung und Ausblick 52

9. Literatur 55

10. Anhang 58

11. Eidesstattliche Versicherung 68

Abkürzungsverzeichnis

AMS	accelerated mass spectrometry - Beschleunigermassenspektrometrie
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
m/z-Verhältnis	Masse/Ladungs-Verhältnis
REM	Rasterelektronenmikroskopie
SEV	Sekundärelektronenvervielfacher
TMAH	Trimethylammoniumhydroxid
TM	Trockenmasse

1. Einleitung

Die Gehalte des Radionuklids ^{129}I in den Umweltkompartimenten Biosphäre, Atmosphäre und Hydrosphäre wurden seit Beginn der industriellen Nutzung der Kernenergie weltweit zum Teil erheblich verändert. Vor allem durch die Ableitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen gelangt anthropogenes ^{129}I in die Umwelt und verteilt sich in den Kompartimenten.

Diese Arbeit gibt einen kurzen Einblick in die Veränderungen der ^{129}I-Gehalte und ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisse auf der Südhalbkugel. Dies geschieht anhand eines Bodenprofils aus Brasilien und eines Sedimentprofils aus dem Südpazifik von der Küste vor Ecuador. Eine ^{210}Pb-Datierung erlaubt zudem eine grobe zeitliche Zuordnung der Ergebnisse des Sedimentes.

Das essentielle Spurenelement Iod (OZ = 53) gehört zu den Halogenen und hat 37 Isotope mit Massenzahlen von 108 bis 144. Nur das Isotop ^{127}I ist stabil. Alle anderen Isotope sind also radioaktiv und weisen Halbwertzeiten zwischen 100 µs (^{109}I) und $1{,}57 \times 10^7$ a (^{129}I) auf.

Das langlebigste radioaktive Iod-Isotop ^{129}I, welches für diese Arbeit relevant ist, ist ein β^--Strahler mit einer β-Maximalenergie von E_{max}= 154,42 eV [1]. Das Tochternuklid ^{129m}Xe ($T_{1/2}$= 8,9 d) emittiert beim Übergang in den Grundzustand mit einer Wahrscheinlichkeit von 7,51 % γ-Quanten mit einer Energie von 39,58 keV [1] (s. Abb. 1).

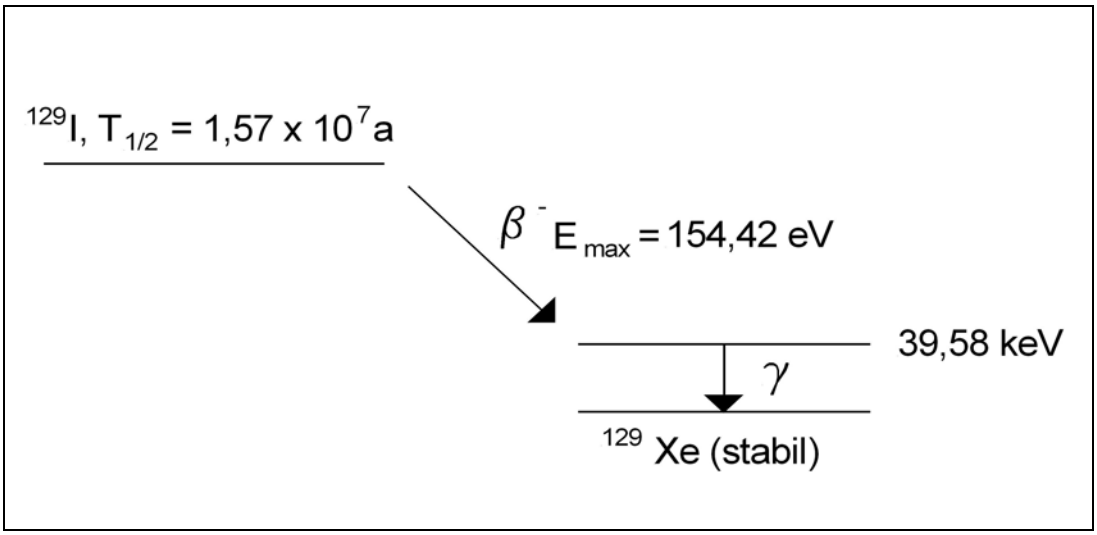

Abb. 1: Zerfallsschema von ^{129}I mit Halbwertszeit, β-Maximalenergie und γ-Energie

1.1 natürliches ^{129}I in der Umwelt

^{129}I entsteht auf natürliche Weise in der Umwelt durch 2 Prozesse. Zum einen wird sogenanntes fissiogenes ^{129}I durch Spontanspaltung von primordialem ^{238}U mit Spaltausbeuten zwischen 0,012 % und 0,088 % [2] gebildet. Zum anderen entsteht kosmogenes ^{129}I durch Spallationsreaktionen von Teilchen der kosmischen Strahlung mit Xenon-Atomen in der Erdatmosphäre ($Xe_{nat.}$ (n,x) ^{129}I; $Xe_{nat.}$ (p,x) ^{129}I). Das Gesamtinventar des durch diese natürlichen Prozesse erzeugten ^{129}I wird auf ca. 50.000 kg (327 TBq) geschätzt [2]. Wobei das *Gleichgewichtsinventar* der austauschenden, für den Menschen relevanten Umweltkompartimente Hydrosphäre, Biosphäre und Atmosphäre nur etwa 262 kg (1,7 TBq) beträgt [2].

Das Isotop ^{129}I steht in den genannten Kompartimenten im Gleichgewicht mit dem allgegenwärtigen stabilen Iod-Isotop. Aufgrund von sehr unterschiedlichen Gesamtiodkonzentrationen in der Umwelt wird neben der ^{129}I-Konzentration das Isotopenverhältnis n(^{129}I) / n(^{127}I) angegeben. Berechnungen des sogenannten pränuklearen, natürlichen Verhältnisses von *Fabryka-Martin et al.* [3] mit Hilfe eines globalen geochemischen Modells lieferten Werte von etwa 6×10^{-13}. Mehrere Schätzungen des natürlichen Verhältnisses von *Edwards* [4], *Edwards und Rey* [5] sowie *Kohman und Edwards* [6] ergaben Werte von 4×10^{-14} bis 3×10^{-12}. Messungen von pränuklearen Bodenproben, die aus dem Jahre 1899 stammten, lieferten ein Verhältnis von etwa 2×10^{-11} [7]. *Fehn et al.* [8] bestimmten das natürliche Isotopenverhältnis von Iod anhand eines Sedimentkerns von Cape Hatteras und erhielten einen Wert von $1{,}2 \times 10^{-12}$. *Moran et al.* [9] ermittelten Verhältnisse von ca. $1{,}5 \times 10^{-12}$ bei Messungen von Marinen Sedimenten aus der Küstenregion vor Peru.

1.2 anthropogenes ^{129}I in der Umwelt

Aufgrund von anthropogen eingetragenem ^{129}I seit Beginn der technischen Nutzung der Kernenergie ist es zum Teil zu einem starken Anstieg des Isotopenverhältnisses gekommen. Anthropogenes ^{129}I gelangt durch vier Eintragspfade in die Umwelt und verteilt sich in den Kompartimenten. Durch die oberirdischen Kernwaffentests seit 1945 wurden zwischen 43 kg und 150 kg ^{129}I emittiert. Der Unfall von Chernobyl im Jahr 1986 setzte ca. 2 - 8 kg ^{129}I frei. Nur ein kleiner Teil ^{129}I wird beim Routinebetrieb von Kernkraftwerken freigesetzt. Den größten Eintragpfad für anthropogenes ^{129}I stellen die Wiederaufarbeitungsanlagen dar. Von den im Rückbau befindlichen beiden Aufarbeitungsanlagen der USA (Hanford und West Valley) wurden bis in die 60er Jahre des letzten Jahrhunderts ca. 290 kg ^{129}I emittiert [7]. Die beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield setzten bis zur Jahrtausendwende 3200 kg ^{129}I frei [10; 11].

Dieser Eintrag von anthropogenem ^{129}I führte zu einem stetigen Anstieg des Isotopenverhältnisses ^{129}I / ^{127}I. In Fisch- und Algenproben aus der unmittelbaren Nähe von Wiederaufarbeitungsanlagen der USA wurden Verhältnisse von bis zu 10^{-3} gefunden [12]. *Michel et al.* [13] erhielten für Meerwasserproben von der Küstenregion vor La Hague Verhältnisse von $1{,}9 \times 10^{-6}$ bis $3{,}2 \times 10^{-6}$. Vor Sellafield wurden in Meerwasserproben Werte zwischen $0{,}6 \times 10^{-6}$ und $3{,}1 \times 10^{-6}$ gemessen.

Mit der Entfernung von den Emittenten nehmen die Isotopenverhältnisse aufgrund von Verdünnungsprozessen ab. Werden in der Nordsee noch Werte von $9{,}2 \times 10^{-7}$ bis $2{,}7 \times 10^{-6}$ [10; 11] gemessen, liegen die Verhältnisse bei Island nur zwischen $2{,}4 \times 10^{-10}$ und $2{,}9 \times 10^{-10}$ [15; 16]. Frische Sedimente aus dem Golf von Mexiko hatten 1995 ein Isotopenverhältnis von 7×10^{-11} [17]. Weit ab von Emittenten wurden an der kalifornischen Küste Verhältnisse von $0{,}9 \times 10^{-10}$ bis $1{,}5 \times 10^{-10}$ erhalten [18]. *Moran et al.* [9] erhielten im Jahr 1998 für einen Sedimentkern von der Küste Oregons Werte zwischen $3{,}5 \times 10^{-12}$ (0 - 5 cm) und $5{,}2 \times 10^{-13}$ (315 - 360 cm) und für einen Sedimentkern von der Küste Ecuadors Verhältnisse zwischen $1{,}1 \times 10^{-12}$ bis $5{,}2 \times 10^{-13}$ (315 - 360 cm). Diese Werte entsprechen den vorher erwähnten pränuklearen Verhältnissen oder liegen zum Teil unter diesen.

2. Aufgabenstellung

Ziel dieser Arbeit soll es sein, den zeitlichen Verlauf des ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisses weit ab von Emittenten zu ermitteln. Dies geschieht anhand eines Sedimentkerns aus dem Südpazifik vor der Küste Ecuadors. Zudem wird zum Abschätzen des ^{129}I Eintrages in die Biosphäre der Südhalbkugel ein Bodenprofil aus Manaus Brasilien, entnommen von *Handl et al.* im Jahr 2000 [19], analysiert (s. Abb. 2).

Von der Südhalbkugel und speziell der Pazifikküste Südamerikas liegen nur wenige Daten über das Isotopenverhältnis von Iod vor. ^{129}I-Emittenten liegen fast ausschließlich auf der Nordhalbkugel und eine Bestimmung der zeitlichen Entwicklung des Verhältnisses auf der Südhalbkugel kann Informationen über Verteilungsmuster und die Menge an ^{129}I, welches in weite Entfernung von Emittenten transportiert wurde, liefern.

Die Bestimmung des ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisses erfolgt mittels Beschleuniger-massenspektrometrie AMS am Paul Scherer Institut der ETH Zürich. Um den Gehalt an ^{129}I angeben zu können, wird die Konzentration an ^{127}I in der Probe mit Hilfe von Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma ICP-MS am Institut für Anorganische Chemie, Arbeitskreis Analytik, der Leibniz Universität Hannover ermittelt.

Abb. 2: Probennahmeorte im Südpazifik und in Manaus (Brasilien)

3. Experimentelles

3.1 Probennahme

Die Gewinnung des Bodenprofils *Manaus 2* aus Brasilien erfolgte von *Handl et al.* im Jahr 2000 [19]. Die Proben wurden von einer Fläche von 20 x 20 cm in Intervallen von einem cm bzw. zwei cm Tiefe (0-1, 1-2, 2-3 und 3-5) entnommen, getrocknet und gesiebt (Ø= 2 mm). Genauere Angaben sind der angegebenen Literatur zu entnehmen.

Die Probennahme des Sedimentkerns aus dem Pazifik sowie das Aufsägen des Entnahmerohres erfolgten durch die *Kawohl Marinetechnik*. Nach dem anschließenden Öffnen des Rohres im Institut (s. Abb. 3), wurde der 71 cm lange Sedimentkern in 35 Teile zerteilt. Dies erfolgte vom untersten Ende zur Oberfläche hin. Bis zu einer Tiefe von 20 cm wurden 3 cm dicke Stücke abgeteilt und in Kunststoffdosen verpackt. Der Rest wurde in 1 cm dicke Stücke zerteilt (s. Abb. 4) und in runde Kunststoffdosen gefüllt. Da die exakte Abteilung der Stücke schwierig war, wurden statt 20 nur 15 Stücke erhalten. Die Proben wurden bis zur Gefriertrocknung eingefroren. Nach dem Gefriertrocknen über 3 Tage wurden die Probendosen bis zur Weiterverwendung in PE-Beutel eingeschweißt.

Der feuchte Bohrkern hatte eine einheitlich grüne Färbung und eine feste sandartige Struktur. Es waren keine größeren organischen Bestandteile wie Pflanzen oder Tiere zu erkennen. In einigen Teilen des Kerns waren aber kleinere Teile von Muschelschalen vorhanden (s. Abb. 3 u. 4). Die getrockneten Stücke ließen sich leicht in Kunststoff-Beuteln mit den Fingern zerbröseln. Die immer noch grünen Proben bestanden aus kleinkörnigen, sandartigen Partikeln (s. Abb. 7 u. 8).

Abb. 3: gerade geöffnetes Entnahmerohr mit Bohrkern

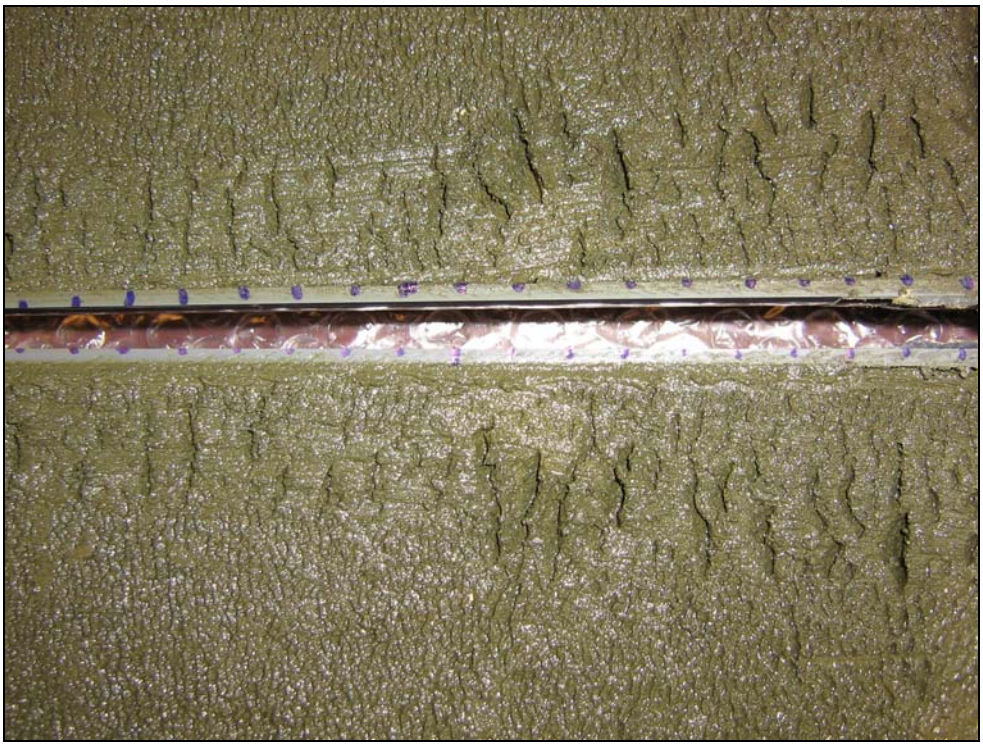

Abb. 4: Bohrkernhälften mit Markierungen für die Zerteilung in ein-cm-Stücke

3.2 Iod-Matrix-Trennung

Für diese Arbeit ist dasjenige Iod von Bedeutung, welches an den Austauschprozessen zwischen den Kompartimenten teilnimmt. Dieses Iod ist an organische Bestandteile des Bodens bzw. Sedimentes gebunden. Das irreversibel an Gestein gebundene Iod soll nicht berücksichtigt werden.

Die Abtrennung des Iods von den Probenbestandteilen und die Überführung in eine für die Messverfahren geeignete Form erfolgte mittels der Methode der Trockenveraschung unter Sauerstoffüberschuss und Auswaschen der Verbrennungsgase in alkalischer Ammoniumhydrogensulfitlösung. Die Verbrennung des genau eingewogenen Probenmaterials wurde bei 1100 °C in zwei ineinander geschobenen Quarzrohren mit Zuleitungen für Sauerstoff und Stickstoff durchgeführt (s. Abb. 5). Die Probe (ca. 45 g) befand sich dabei im Innenrohr, welches auf beiden Seiten mit Quarzwolle befüllt war. Die Erwärmung auf 1100 °C erfolgte automatisch mit einem Röhrenofen, der die Gesamtlänge des Außenrohres 2-mal abfuhr.

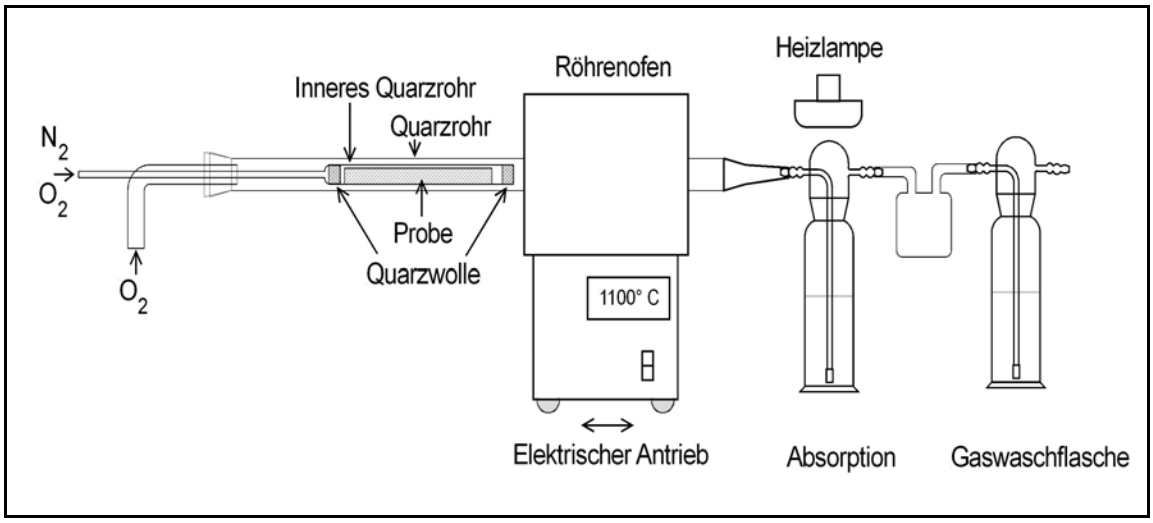

Abb. 5: Verbrennungsapparatur der Trockenveraschung

Die organischen Bestandteile wurden bei diesem Verfahren zu Kohlendioxid (CO_2) und Wasser (H_2O) oxidiert und elementares Iod (I_2) freigesetzt. In der alkalischen Ammoniumhydrogensulfitlösung mit Trimethylammoniumhydroxid (TMAH), die als Absorptionslösung diente, erfolgte die Reduktion von I_2 zu löslichem Iodid (I^-).

Da die Absorption nie vollständig verläuft, wurde ^{125}I (γ-Energie: 35,49 keV [1]) als Ausbeutetracer verwendet. Dazu wurden 100 µL ^{125}I-Lösung vor Beginn der Verbrennung auf die Probe gegeben. Die Bestimmung der Ausbeute erfolgte durch Vergleich mit Standardlösungen, die aus mit 100 µL Tracer versetzten Absorptionslösungen bestanden.

Von der genau ausgewogenen Absorptionslösung wurden nach der Verbrennung für die Ausbeutebestimmung und die ICP-MS-Messung je 4 mL aliquote Teile entnommen und die Absorptionslösung jeweils nach der Entnahme erneut gewogen. Anschließend erfolgte die Zugabe von 100 µL *Woodward-Iod-Lösung* als Fällungsträger zu der restlichen Absorptionslösung. Dieses Iod der Woodward-Corporation, Oklahoma (USA) weist ein Isotopenverhältnis von $2 \cdot 10^{-14}$ und liefert nur einen sehr geringen ^{129}I-Untergrund.

Für die Herstellung der AMS-Präparate hat das in der Absorptionslösung enthaltene Iod als Feststoff vorzuliegen und wurde als Silberiodid AgI gefällt. Dazu wurde die Absorptionslösung mittels Salpertersäure (HNO_3) angesäuert und das Iod mit Silbernitrat ($AgNO_3$) gefällt. Nach Stehen für ca. 14 Stunden wurde der Niederschlag abfiltriert, getrocknet und in verschlossenen Glasampullen bis zur Präparateherstellung im Dunkeln aufbewahrt.

Zur Qualitätssicherung wurden nach 3 - 4 Proben je eine Blindwertprobe für ^{127}I und ^{129}I angefertigt. Zur Bestimmung der Blindwerte für ^{127}I erfolgte die Verbrennung von Filterpapier, welches mit 100 µL ^{125}I als Tracer versetzt wurde. Für die Blindwerte für ^{129}I wurde das Filterpapier neben dem Tracer zusätzlich mit 100 µL 1:1000 *Woodward-Iod* als Träger für die sich in der Apparatur befindlichen ^{129}I-Atome versetzt. Die anschließende Entnahme der aliquoten Teile und die Fällung erfolgten wie bei den Boden- bzw. Sedimentproben.

3.3 Herstellung AMS-Targets

Für die Messungen am AMS wurden die AgI-Proben in Titanbecher, so genannte Targets, gepresst (s. Abb. 6). Dazu wurde etwa ein mg Silberiodid mit der fünffachen Menge Silberpulver zur Steigerung der Leitfähigkeit vermischt und mit einem Achatmörser verrieben. Danach wurde das erhaltene Pulver mit einer Stempelpresse mit 220 bar in die Targets gepresst. Oberhalb der Probe wurde zum Abschluss etwas Titanpulver in die Targets gefüllt. Die Lagerung bis zur Verwendung der so erhaltenen Proben erfolgte im Trockenschrank.

Abb. 6: leere Titantargets mit Größenskala

3.4 ^{210}Pb-Datierung mittels Gamma-Spektrometrie

Zur Abschätzung des Alters der Sedimentproben, wurde eine Blei-Datierung (^{210}Pb) nach dem *C.I.C.-Modell* (constant initial concentration) vorgenommen [20]. Bei dieser Methode wird ausgenutzt, dass der Eintrag von atmosphärischem ^{210}Pb, sogenanntes *überschüssiges Blei* (unsupported Pb), nahezu konstant ist. Durch Auftragen der Aktivität von ^{210}Pb gegen die Tiefe lässt sich die Sedimentationsrate berechnen. Vorraussetzung ist der Erhalt eines exponentiellen Abfalls der Aktivität mit konstanten Endwerten. Diese Endwerte stellen das sogenannte *unterstützte Blei* (supported Pb) dar, welches durch im Sediment enthaltenes ^{226}Radium gebildet wurde. Die mittels Gamma-Spektrometrie ermittelten spezifischen Aktivitäten werden um die Werte des „supported Pb“ korrigiert und aus der exponentiellen Ausgleichskurve die Sedimentationsrate berechnet.

Für die Bestimmung der spezifischen Aktivität mittels Gamma-Spektrometrie wurden je 50 g Probe in eine runde Kunststoffdose eingewogen (s. Abb. 7 u. 8) und für 24 h bei geöffnetem Deckel das Signal der 46,54 keV-Linie von ^{210}Pb gemessen. Die Kalibrierung erfolgte über die *Folienmethode* [21; 22]. Hierbei wurde ein Folienstandard zuerst ohne Probe für 2 h gemessen. Anschließend erfolgte die Messung von Probe und oben aufgelegtem Standard für ebenfalls 2 h. Aus beiden Messwerten wurde dann für die Berechnung der Aktivität die Nachweiswahrscheinlichkeit „efficiency“ bestimmt. Die efficiency ist definiert als das Verhältnis der vom Detektor bei einer bestimmten Energie registrierten Anzahl von Photonen zu der Anzahl der zum selben Zeitpunkt von der Probe emittierten Photonen. Durch die Absorption von den Proben bzw. den Filter des Standards und die Detektion der nur in eine Richtung emittierten Photonen ist die efficiency kleiner eins. Aufgrund der Kürze der für die Arbeit zur Verfügung stehenden Zeit wurde die Standardmessung nur für zehn Proben durchgeführt und die erhaltenen Nachweiswahrscheinlichkeiten ε_{log} gemittelt. Dies war durchführbar, da alle Proben die gleiche berechnete Dichte von 0,9 g / cm^3 aufwiesen.

Die Messung von anderen Nukliden, wie ^{226}Ra, war aufgrund der auf sechs Monate begrenzten Arbeitszeit nicht machbar. Bei vielen Elementen ist die Messung erst nach einer Gleichgewichtseinstellung, die einige Wochen dauern kann, möglich.

Abb. 7: für die Gamma-Spektrometrie abgewogene Sedimentprobe

Abb. 8: trockene Sedimentprobe in Kunststoffdose

3.5 Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS)

Grundlagen

Bei der Massenspektrometrie werden gasförmige Ionen nach ihren Masse/Ladungs-Verhältnissen (m/z-Verhältnis) getrennt und detektiert. Mit dieser analytischen Methode können qualitative und quantitative Aussagen über organische und anorganische Substanzen und Elemente gemacht werden. Außerdem können Strukturen von komplexen Proben ermittelt und atomare Isotopenverhältnisse bestimmt werden.

Die Proben gelangen über einen Einlass in das Massenspektrometer, werden zunächst in einer Ionenquelle ionisiert, dann im Massenanalysator nach ihren m/z-Verhältnissen getrennt und anschließend detektiert.

Bei flüssigen Proben erfolgt der Einlass über einen Zerstäuber. Dort wird die Probe mit einem Trägergas in kleinste Tröpfchen zerlegt und zur Ionenquelle transportiert. Die Ionisierung der Analytmoleküle erfolgt hier in drei Schritten: Verdampfung, Atomisierung und Ionisierung. In der Praxis der Massenspektrometrie werden verschiedene Arten der Ionisierung unterschieden. Für die Ionisierung von organischen Molekülen kommen Elektronenstoß- und chemische Ionisierung zum Einsatz. Bei der Elektronenstoß-ionisierung werden die Moleküle durch Zusammenstöße mit Elektronen ionisiert. Die chemische Ionisierung erfolgt durch Kollision der gasförmigen Probenbestandteile mit Reaktantgas-Ionen. Glimmentladungen und induktiv gekoppeltes Plasma dienen in der Elementanalyse zur Ionisierung. Die Glimmentladungsquelle wandelt feste Proben in gasförmige Analyt-Ionen um. Dies geschieht in einem Zwei-Elektronen-System, das Argon enthält. Durch die angelegte Gleichstromspannung von mehreren 100 Volt bilden sich Argon-Ionen, die in Richtung der Kathode beschleunigt werden. Beim Auftreffen auf die Kathode, die aus der Probe besteht, werden Atome aus dieser herausgeschlagen. Durch Zusammenstöße der frei werdenden Atome mit Argon-Ionen und Elektronen kommt es zur Ionisierung des Analyten.

Bei der ICP-MS (s. Abb. 11, S. 17) wird eine elektrisch leitende gasförmige Mischung aus Kationen und Elektronen mit signifikanter Konzentration, also ein Plasma, zur Ionisierung der Probe genutzt. Das Plasma wird durch ein Hochfrequenzfeld mit einer elektrischen Leistung von 0,5 bis 2,5 kW und einer Frequenz von meist 27,12 MHz induktiv erzeugt. Der Plasmabrenner besteht aus drei konzentrischen Quarzröhren (s. Abb. 9). Im innersten Rohr findet der Transport der Probentröpfchen durch den Argonstrom in das Plasma statt. Im mittleren Rohr strömt Argon als Hilfsgasstrom (0-1 L / min) in das Plasma hinein. Im äußersten Rohr fließt der Hauptargonstrom mit Fließgeschwindigkeiten von 11 bis 17 L / min, der das Plasma mit Argon versorgt. Durch einen Funken einer Teslaspule erfolgt die Anfangsionisation des Argons. Die dabei gebildeten Argon-Ionen und Elektronen treten mit dem fluktuierenden Magnetfeld, welches durch das angelegte Hochfrequenzfeld induziert wird, in Wechselwirkung. Dabei kommt es zur Energieaufnahme bzw. Beschleunigung der geladenen Gasteilchen, was eine lawinenartige Erzeugung weiterer Elektronen, Argon-Ionen und metastabiler Argon-Atome nach sich zieht. Dadurch bildet sich bei ausreichender Dichte der geladenen Spezies ein torroidales Plasma mit maximalen Elektronentemperaturen von 10 000 K aus. Die geladenen Gasbestandteile bewegen sich dabei innerhalb der Spule auf geschlossenen Kreisbahnen. Durch ihren Widerstand gegen diese Bewegung kommt es zu ohmscher Aufheizung. Die Anregung der Analyt-Atome erfolgt durch energieübertragende Stoßreaktionen mit metastabilen Argon-Atomen bzw. Argon-Ionen hoher kinetischer Energie.

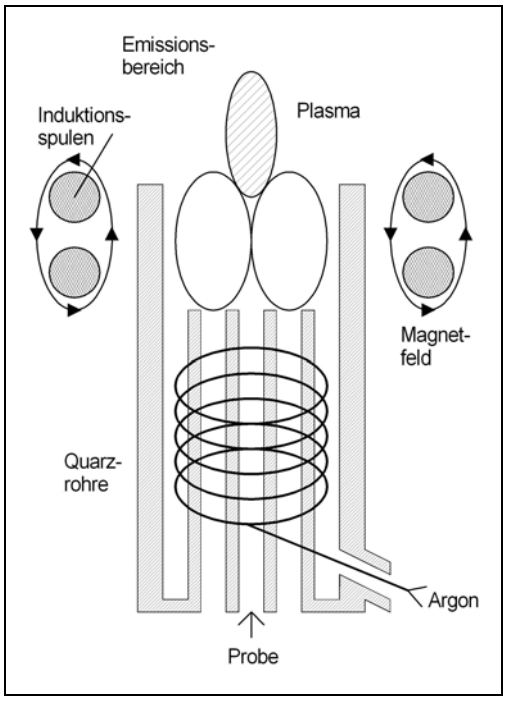

Abb. 9: Schematischer Aufbau eines Plasmabrenners

Nach der Ionisierung gelangen die erzeugten Ionen in den Massenanalysator und werden dort nach ihren m/z-Verhältnissen getrennt. Bei dem ICP-MS geschieht die Weiterleitung zum unter Vakuumbedingungen arbeitenden Analysator über ein Interface, bestehend aus einem metallischen, wassergekühlten Sampler Cone und einer Skimmer Cone (s. Abb. 10). Beide Bauteile bestehen aus Nickel, Platin oder Kupfer. Die Öffnung des Sampler Cone wird direkt im Plasma platziert und aufgrund der Druckdifferenz strömt das Gas mit den Ionen durch eine ca. 1 mm große Öffnung durch die Cones. Hinter dem Skimmer Cone befinden sich Photonenstops, die verhindern, dass Photonen des Plasmas den Detektor erreichen und die Messung stören. Die nachfolgende sogenannte Ionenoptik, bestehend aus Linsen, beschleunigt die Ionen und fokussiert sie zum Eingang des Massenanalysators hin.

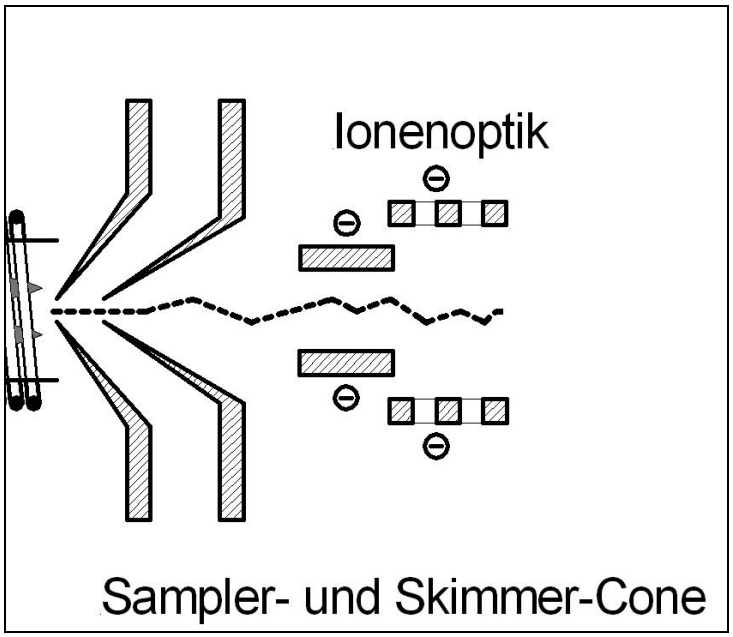

Abb. 10: Schematischer Aufbau Interface und Ionenoptik

Als Analysatoren werden neben dem in diesem Versuch verwendeten Quadropol-Massenfilter auch Sektrofeld-Analysatoren und Flugzeitspektrometer verwendet. Bei einem Magnetsektor-Analysator lenkt ein Magnet die Ionen auf Kreisbahnen. Je nach m/z-Verhältnis werden die Ionen unterschiedlich stark abgelenkt. Durch Variation der Magnetfeldstärke, des Radius oder der Beschleunigungsspannung können die Ionen verschiedener m/z-Verhältnisse nacheinander den Austrittsspalt in Richtung Detektor passieren. Bei dem Flugzeitspektrometer wird ausgenutzt, dass Ionen mit unterschiedlichen Massen verschiedene Fluggeschwindigkeiten haben und danach getrennt werden können.

Der häufigste verwendete Analysator ist der Quadropol-Massenfilter. Dieser besteht aus vier zylindrischen Metallstäben. Gegenüberliegende Stäbe sind jeweils durch Gleichstrom elektrisch verbunden. Außerdem liegt ein um 180° phasenverschobenes Hochfrequenz-Wechselstrompotential an den Stäben an. Durch Variation der Gleich- und Wechselspannung werden die Ionen auf spiralförmige Bahnen durch den Quadropol gelenkt. Für jedes m/z-Verhältnis existieren stabile Bahnen bei ganz bestimmten Potentialen, die ein Passieren ohne Kontakt mit den Stäben ermöglichen. Durch Veränderung der angelegten Spannungen können nacheinander alle Ionenarten den Detektor erreichen.

Als Detektor wird ein Sekundärelektronenvervielfacher SEV, der nach dem Prinzip des Photomultipliers arbeitet, eingesetzt. Der SEV besteht aus Dynoden, an die ein steigendes Potential angelegt ist. Trifft ein Ion auf die erste Dynode, werden Elektronen herausgeschlagen, die zu den nachfolgenden Dynoden hin beschleunigt werden. Beim Aufprall auf die Dynoden werden weitere Elektronen herausgelöst und eine Elektronenlawine, die als elektrischer Impuls registriert wird, entsteht. Die Intensität der Lawine ist ein Maß für die Häufigkeit der Detektion eines Ions des gewählten m/z-Verhältnisses.

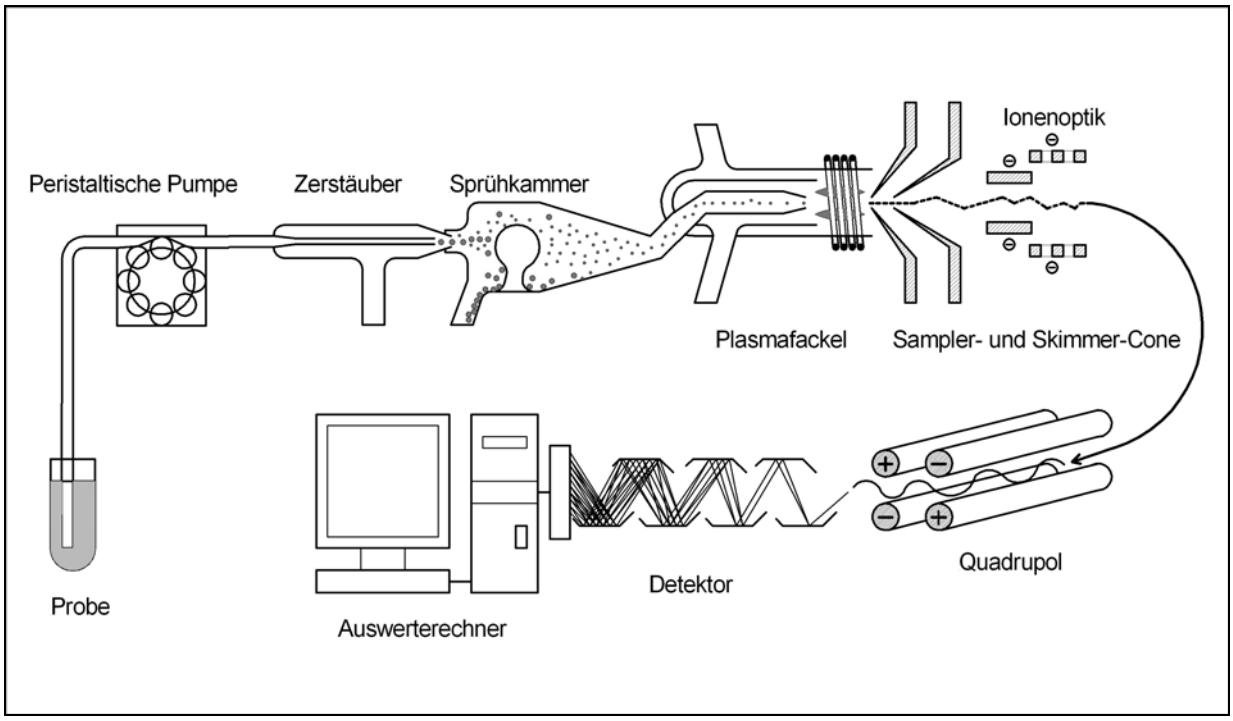

Abb. 11: Schematischer Aufbau ICP-MS (nicht maßstabsgerecht)

Messung

Vor Beginn jeder Messung erfolgt ein Tuning zur Steigerung des Anteils der Ionen, die aus der Probe zum Detektor gelangen (Nachweiswahrscheinlichkeit). Dabei werden durch Verändern von Geräteparametern wie Linsenstellung, Gasflüsse und Cone-Stellung die Signale von Beryllium, Indium und Uran, die in einer Tuniglösung enthalten sind, auf ein hohes und stabiles Level, also eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit, eingestellt. Die Nachweiswahrscheinlichkeit ändert sich während des Messtages. Aus diesem Grund wird ^{129}Xe, welches im Plasma enthalten ist, als interner Standard verwendet. Die Konzentration an in der Probe enthaltenem ^{129}I ist zu gering, um die Messung von ^{129}Xe zu beeinflussen. Wiederum ist aufgrund der hohen Konzentration an ^{129}Xe im Plasma eine ^{129}I-Bestimmung mittels ICP-MS nicht möglich und wird mittels AMS durchgeführt. Da die Nachweiswahrscheinlichkeiten für die m/z-Verhältnisse 127 und 129 gleich sind, ändert sich das ^{127}I / ^{129}Xe-Countverhältnis Q bei derselben Probe auch bei sinkender Nachweiswahrscheinlichkeit nicht. Aus diesem Grund wird das Verhältnis Q zur ^{127}I-Bestimmung genutzt.

In den m/z-Bereichen von 126,5 u - 127,3 u und 128,5 u - 129,3 u werden die Counts pro Messintervall erfasst und das Verhältnis daraus gebildet. Für alle Proben-, Standard- und Spüllösungen erfolgt die Aufzeichnung von Q über diese m/z-Bereiche. In einem von 6 Runs je Lösung werden dabei die m/z-Bereiche 100-mal gescannt, wobei einer dieser so genannten Sweeps 180 ms dauert.

Vor der Messung werden die bei der Probenvorbereitung entnommenen aliquoten Teile im Verhältnis 1:5000 verdünnt, um eine Überlastung des Detektors zu verhindern und Memoryeffekte zu minimieren. Die Messung erfolgt in der Reihenfolge HNO_3-Spüllösung, TMAH-Lösung (10 mmol) und Probe, um ebenfalls Memoryeffekte zu verkleinern.

Aufgrund von Änderungen der Betriebsbedingungen kommt es im Laufe des Messtages zur sogenannten *Drift*. Dies führt bei ein und derselben Probe je nach Messzeit zu unterschiedlichen Messergebnissen. Um diese Drift korrigieren zu können, wird nach je 5 Proben ein und derselbe 5 ppb-Standard als Probe gemessen. Vor Beginn der Standardmessungen am Ende der Messreihe erfolgt nochmals die Messung des 5 ppb-Standards. Mit diesem Wert wird eine Normierung der Ergebnisse für den 5 ppb-Standard und damit eine Korrektur der erhaltenen Messwerte durchgeführt. Die verwendeten Standards zur Kalibrierung der Messreihe haben die Konzentrationen 0,5, 1, 2, 5, 7 und 10 oder 12 ppb.

Das genaue Vorgehen bei der Berechnung der Ergebnisse wurde von *Klipsch* [14] ausführlich beschrieben und wird hier nicht wiederholt.

3.6 Beschleunigermassenspektrometrie (AMS)

Grundlagen

Bei der konventionellen Massenspektrometrie erfolgt die Trennung der Ionen nach ihrem Masse/Ladungs-Verhältnis durch Kombinationen aus elektrostatischen, magnetischen und ggf. Hochfrequenzfeldern. Mit diesen Techniken sind Trennungen von Isotopen mit Massendifferenzen von $\Delta m = 1$ u möglich.

Bei der Bestimmung von ^{129}I bzw. des ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisses treten einige Probleme auf, welche die Verwendung von konventionellen Massenspektrometern verhindern. Zum einen liegen die Isotope nicht in gleicher Konzentration, sondern mit mehreren Größenordnungen Unterschied, in der Probe vor. Aufgrund von Peakverbreiterungen und -überlappungen können die Peaks der Isotope nicht mehr hinreichend getrennt werden. Zum anderen kommt es durch Elemente (Isobare) und Molekül-Ionen mit gleichem Masse/Ladungs-Verhältnis zu störenden Interferenzen. Beispiele hierfür sind das Isobar $^{129}Xe^{+}$ und das Molekül-Ion $^{127}IH_2^{+}$. Eine Trennung der Massen ist zwar möglich, aber nur unter starkem Verlust der Nachweiswahrscheinlichkeit. Da in Umweltproben ^{129}I meist nur in Spuren vorliegt und eine Erhöhung des Probenvolumens schwierig sein kann, ist eine Quantifizierung bei Isotopenverhältnissen kleiner 10^{-6} mit konventioneller Massenspektrometrie nicht möglich. In den zu untersuchenden Proben liegen die Verhältnisse, wie erwähnt, im Bereich zwischen 10^{-12} und 10^{-7}. Daher werden andere Methoden zur Bestimmung des Isotopenverhältnisses und des ^{129}I-Gehaltes benötigt.

Seit Anfang der 80er Jahre steht die Technik der Beschleunigermassenspektrometrie für die Bestimmung des Isotopenverhältnisses zur Verfügung. Spezielle Prinzipien der Ionisierung, Unterdrückung von Molekülinterferenzen und nuklidspezifische Detektion ermöglichen die Bestimmung des ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisses bis zu Werten von 10^{-13}.

Die für diese Arbeit verwendete AMS-Anlage „Tandy“ des Paul Scherer Instituts der ETH Zürich besteht aus einer Ionenquelle, einem Niederenergie-Massenspektrometer, dem Tandembeschleuniger mit Stripper, einem Hochenergie-Massenspektrometer und einem Detektorsystem (s. Abb. 12, S. 21).

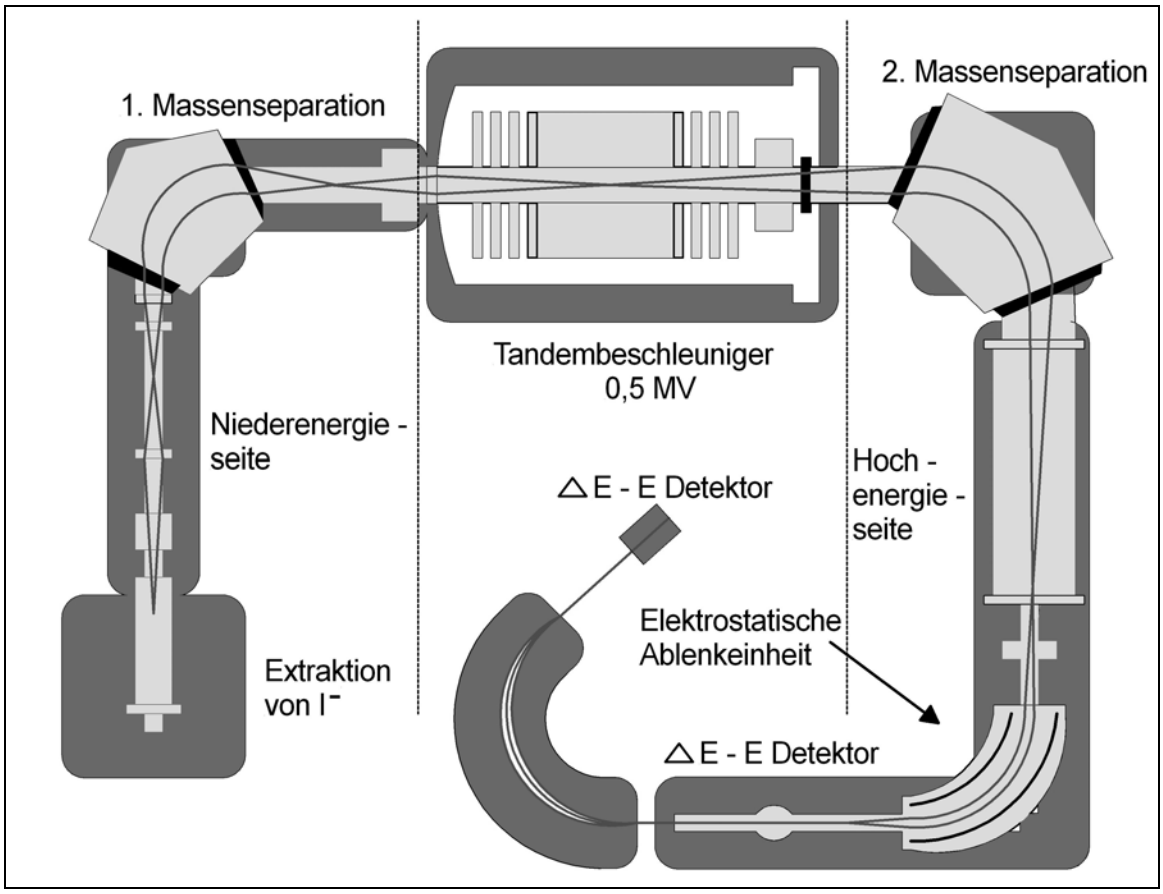

Abb. 12: Schematischer Aufbau der AMS-Anlage „Tandy“ (nicht maßstabsgerecht)

Die Ionisierung erfolgt mittels einer Cäsium-Sputterionenquelle, aus der positiv geladene Cäsium-Ionen austreten, beschleunigt werden und auf die Silberiodid-Probentargets treffen. Dort schlagen die geladenen Teilchen Iodid-Ionen heraus, welche mittels elektrostatischer Linsen in Richtung des Niederenergie-Massenspektrometers geleitet werden. Durch diese Art der Ionisierung erfolgt eine Abtrennung von Atomen, die keine stabilen negativ geladenen Ionen bilden können, wie z.B. Xenon, und eine Zerstörung von Molekülen.

Im nachfolgenden Massenspektrometer werden alle Ionen, die außerhalb eines vorgegebenen m/z-Bereiches liegen, herausgefiltert. Anschließend wird der Ionenstrahl gepulst und der ^{127}I-Strom auf der Niederenergieseite mittels Faradaybechern gemessen. Zusammen mit dem ^{127}I-Strom von der Hochenergieseite lässt sich aus den beiden gemessenen Strömen die Transmission, welche nur einige Prozent beträgt, bestimmen.

Nach der Messung des Stroms gelangen die Ionen in den 0,5 MV Tandembeschleuniger. Im ersten Schritt werden die negativen Teilchen in Richtung des positiven Potentials beschleunigt. Anschließend erfolgt im sogenannten Stripper eine Umladung. Die Ionen mit einer Energie von 0,5 MV treffen auf ein Strippergas (Argon) und verlieren dabei die Elektronen der äußeren Schale. Hierbei erfolgt zusätzlich die Fragmentierung und damit Abtrennung von störenden Molekül-Ionen. Im zweiten Schritt werden die nun positiv geladenen Ionen vom ebenfalls positiven Potential weg beschleunigt. An dieser Stelle wird der Ladungszustand, welcher für die Detektion genutzt wird, festgelegt. Hierdurch sinkt die Nachweiswahrscheinlichkeit, da nur ein Zustand verwendet werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit wurden I^{3+}-Ionen mit einer Gesamtenergie von 2 MeV zur Detektion genutzt.

Diese hohe Energie wird zur nachfolgenden Massenseparation und Detektion auf der Hochenergieseite benötigt. Nach der Umladung und Beschleunigung treffen die Ionen auf ein zweites Massenspektrometer. Anschließend wird der ^{127}I-Strom erneut mit Hilfe von Faradaybechern gemessen. Neben der Bestimmung der Transmission wird dieser Wert zur Ermittlung des Isotopenverhältnisses benötigt.

Vor der Detektion mittels Gasionisationsdetektor durchläuft der Ionenstrahl eine elektrostatische und eine magnetische Ablenkeinheit. Anschließend wird der Energieverlust der Teilchen in einer Gaskammer, an deren Innenwand sich Elektroden befinden, gemessen. Durch Ionisation übertragen die Ionen ihre Energie auf die Gasteilchen, welche geladen zur Kathode wandern und dort als Strom detektiert werden. Der gemessene Strom stellt ein Maß für die abgegebene Energie dar. Durch mehrere Elektroden erfolgt die Bestimmung des Energieverlustes über eine bestimmte Strecke. Am Ende des Detektors wird die Restenergie bestimmt. Durch Auftragen des Energieverlustes gegen die Gesamtenergie können Ionen verschiedener Ladung aber ähnlichem m/z-Verhältnis unterschieden werden.

Messung

Die Arbeit an der AMS-Anlage und die Auswertung der Rohdaten erfolgten am Paul Scherer Institut der ETH Zürich durch Dr. V. Alfimov.

Neben den zuvor in Hannover hergestellten Probentargets werden zwei verschiedene Standards und *Woodward-Iod-Blanks* zur Messung verwendet. Die Standards haben Konzentrationen von $4{,}81 \times 10^{-11}$ und $5{,}10 \times 10^{-11}$ und dienen zur Kalibrierung der Anlage. Die *Woodward-Iod-Blanks* werden zur Bestimmung des Geräteuntergrundes verwendet.

Jeweils 32 Proben, 4 Standards und 4 *Woodward-Iod-Blanks* können in ein Probenrad, welches in die Ionenquelle gebaut wird, einsortiert werden. Vor Beginn der Messung erfolgt ein Schnellscann der Proben mittels Strom, um die Gehalte abschätzen zu können. Anschließend kann eine Messreihenfolge von niedrigen zu hohen Gehalten festgelegt werden. Dies dient zur Verhinderung von Kontaminationen von Proben mit niedrigem Gehalt durch Proben mit hohem Gehalt.

Die Messung der Proben erfolgt in Zyklen während denen die ^{129}I-Ergebnisse und die ^{127}I-Ströme über eine gewisse Zeit gemessen werden. Jeder Zyklus besteht aus 10 Messungen und erfolgt bis zu dreimal, bis ein stabiles Signal erhalten wird.

Aufgrund der Zugabe von *Woodward-Iod* bei der Probenvorbereitung sind die gemessenen Isotopenverhältnisse kleiner als die tatsächlichen Verhältnisse der Proben. Aus den Ergebnissen der ICP-MS- und der AMS-Messungen können die genauen Isotopenverhältnisse sowie die Gehalte an ^{129}I und ^{127}I berechnet werden. Die ausführlichen Beschreibungen der Berechnungen sind bei *Klipsch* [14], *Schmidt* [2] und *Szidat* [7] dargestellt und brauchen hier nicht wiederholt zu werden.

4. Ergebnisse

Im folgenden Abschnitt werden die berechneten Endergebnisse für das Pazifiksediment und das Bodenprofil aus Brasilen graphisch dargestellt und erläutert. Die Ergebnisse jeder einzelnen Probe werden im Anhang dokumentiert.

4.1 Rasterelektronen-Mikroskopie (REM)

Am Institut für Bodenkunde der Leibniz Universität Hannover wurden von einer Sedimentprobe Aufnahmen mit dem Rasterelektronen-Mikroskop gemacht und mittels energiedispersiver Röntgenfluoreszenzanalyse die Zusammensetzung der Probe bestimmt (s. Abb. 13).

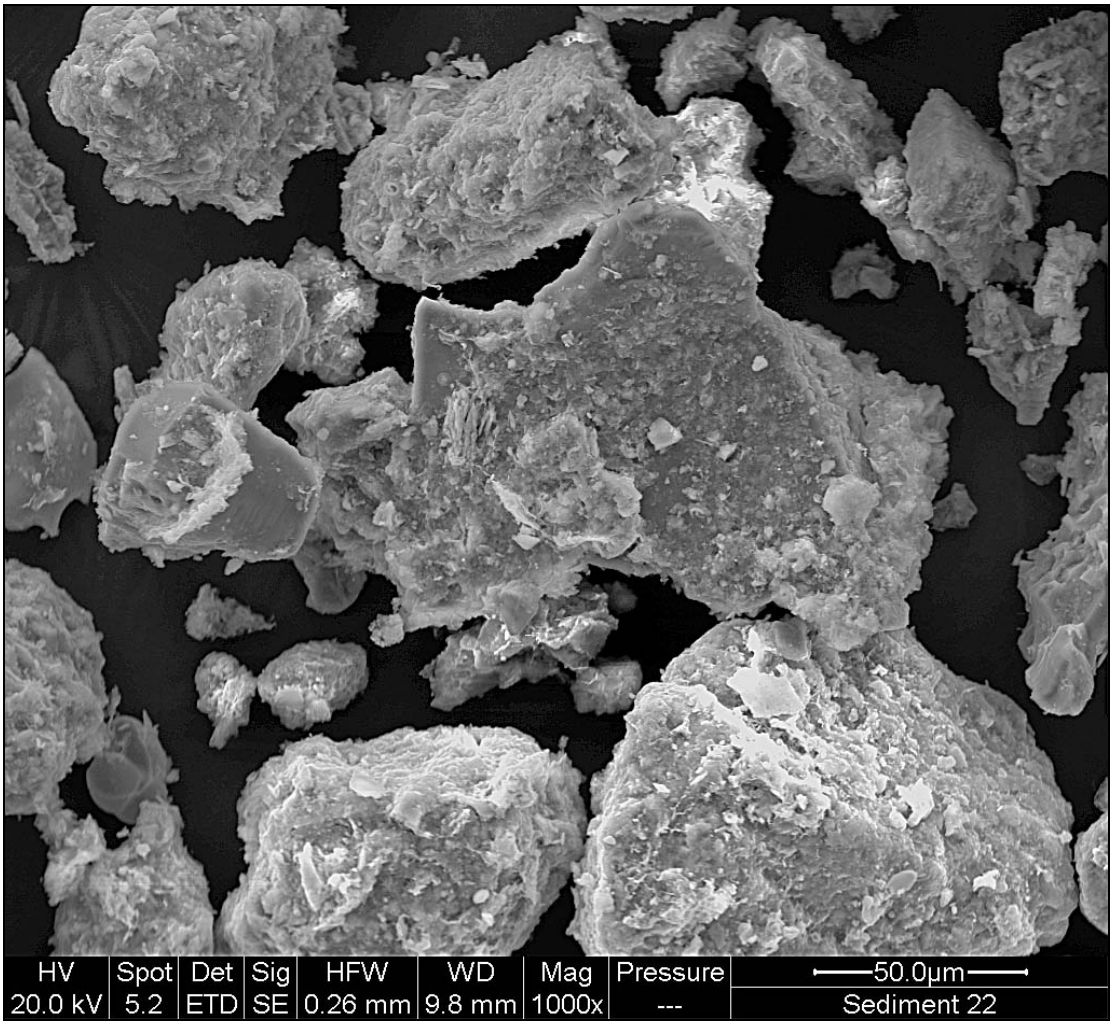

Abb. 13: REM-Aufnahme Sedimentprobe Nr. 22

Tabelle 1. Zusammensetzung Sedimentprobe Nr. 22

Element	Gehalt in Gewichts-%
O	42,4
Na	3,1
Mg	1,8
Al	6,0
Si	31,9
S	0,5
Cl	3,0
K	1,9
Ca	4,5
Fe	4,8

Die Zusammensetzung des Sedimentes und die grüne Farbe deuten auf das Mineral Chlorit als Bestandteil der Proben hin (s. Tab. 1 u. [24]).

4.2 Ergebnisse Sediment

Das untersuchte Sediment stammt aus dem Südpazifik (01°57,173S; 081°07,563W) aus einer Tiefe von 212 m, weist eine Dichte von 0,94 g/cm^3 auf und wurde erst kurz vor der Probenvorbereitung in einem verschlossenen Entnahmerohr nach Deutschland verbracht und aufgesägt. Aus diesem Grund ist eine Kontamination durch in Deutschland allgegenwärtiges ^{129}I, wie es bei europäischen Proben vorkommen kann, nahezu ausgeschlossen und eine Bestimmung von pränuklearen ^{129}I / ^{127}I-Verhältnissen möglich.

Die ^{127}I-Gehalte, die aus den Ergebnissen der ICP-MS-Messung berechnet wurden, liegen zwischen 30 und 95 µg / g (s. Abb. 14) und steigen mit leichten Schwankungen bis zur obersten Schicht an. Das Maximum bei 50 cm liegt im Vergleich an zu niedrigen Ausbeuten (rot markiert). Trotz Werten von nur ca. 60 % (andere Proben bei 90 %), lagen die mittels ICP-MS ermittelten Gehalte im gleichen Bereich wie die anderen Proben. Dies führte bei der anschließenden Einberechnung der Ausbeute zu höheren ^{127}I-Gehalten.

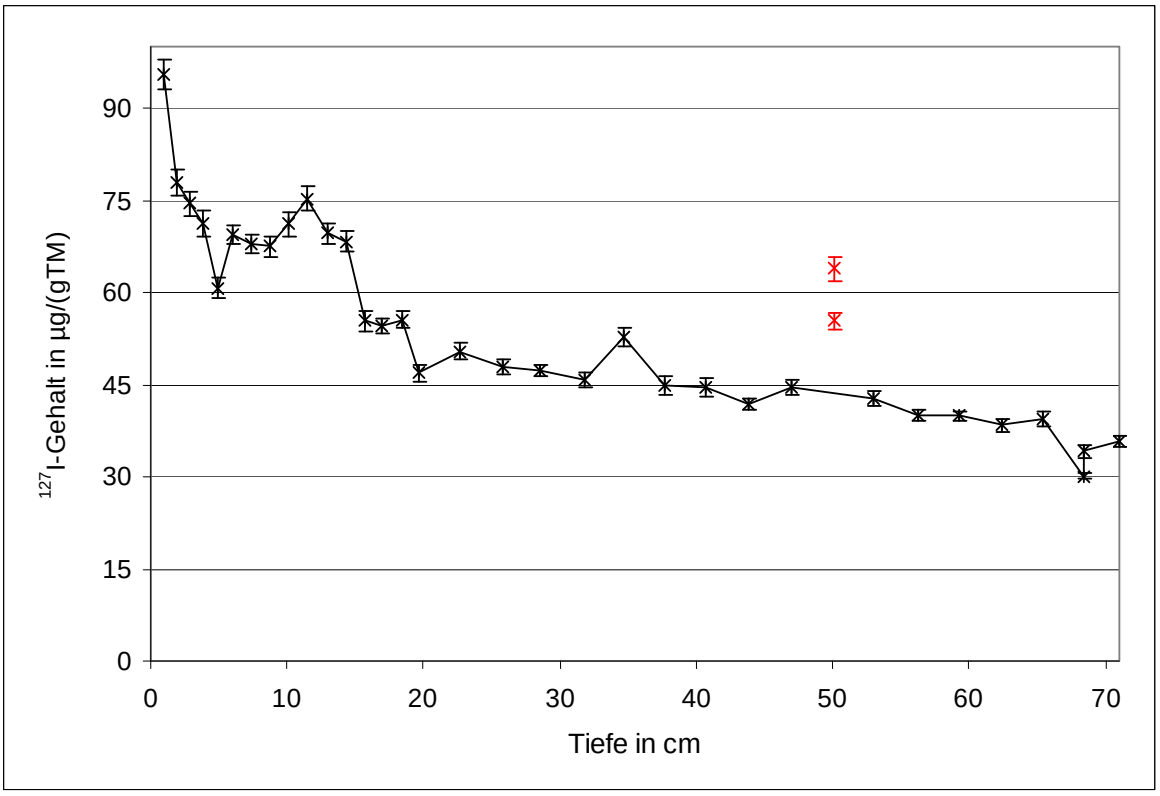

Abb. 14: ^{127}I-Gehalte in µg / g Trockenmasse im Verlauf der Tiefe (Linie dient nur zur besseren Visualisierung)

Vom tiefsten Entnahmepunkt bei 71 cm bis zu einer Tiefe von 38 cm werden Isotopenverhältnisse zwischen 3×10^{-13} und 5×10^{-12} erhalten. In diesem Bereich steigen die Verhältnisse stetig mit einem nahezu linearen Verlauf an. Der Wert bei einer Tiefe von 71 cm ist aufgrund von Kontaminationen bei der Probennahme durch größere Verhältnisse im Meerwasser und in den darüber liegenden Schichten erhöht. Die beiden erhöhten Werte der Schichten bei 31 und 35 cm Tiefe (rot markiert) sind auf Schwierigkeiten bei der Fällung mit Silbernitrat und der Messung mittels AMS zurückzuführen. Aufgrund von hohen Chlorkonzentrationen in den Proben, kam es zu einer Verminderung des ausgefällten Silberiodid im Niederschlag und damit zu einer Erniedrigung des ^{127}I-Stromes durch zu niedrige Iodkonzentrationen in der AMS-Probe. Dies führte zu erhöhten Isotopenverhältnissen.

Im Bereich von 29 bis 13 cm Tiefe sind die Isotopenverhältnisse nahezu konstant. In den darüber liegenden Schichten variieren die Verhältnisse stark zwischen 1×10^{-11} und 6×10^{-11}. Die größten Isotopenverhältnisse werden in den Schichten bei 3, 6 und 10 cm Tiefe mit Werten von $4{,}4 \times 10^{-11}$, $5{,}1 \times 10^{-11}$ und $3{,}5 \times 10^{-11}$ gefunden (s. Abb. 15). Der Mittelwert der Isotopenverhältnisse in diesem Bereich hat einen Wert von $2{,}5 \times 10^{-11} \pm 1{,}4 \times 10^{-11}$.

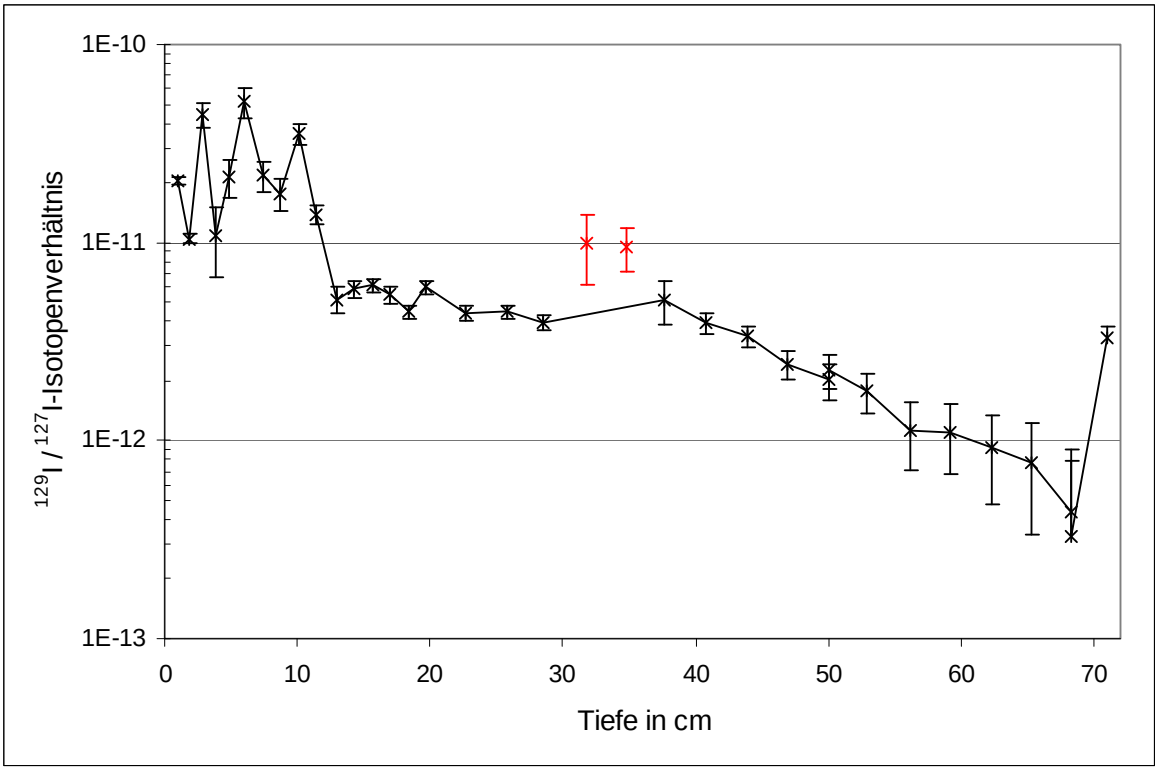

Abb. 15: Verlauf Isotopenverhältnis mit der Tiefe (logarithmische Darstellung) (Linie dient nur zur Visualisierung)

Aus den Isotopenverhältnissen und den ^{127}I-Gehalten werden die ^{129}I-Konzentrationen der Proben berechnet. Genau wie bei den Verhältnissen steigt die Menge an ^{129}I in den Proben bis zu einer Tiefe von 13 cm langsam bis zu einem Wert von $3{,}7 \times 10^{-10}$ µg / g an (s. Abb. 16). In den höheren Schichten werden ebenfalls starke Schwankungen der Konzentrationen mit den drei Maxima erhalten. Auch die beiden erhöhten Verhältnisse in den Schichten bei 31 und 34 cm wirken sich auf die ^{129}I-Gehalte aus (rot markiert). In den nachfolgenden Abbildungen werden die Werte dieser Tiefen nicht mehr mit dargestellt, da sie aufgrund der Schwierigkeiten bei der Messung als Ausreißer anzusehen sind.

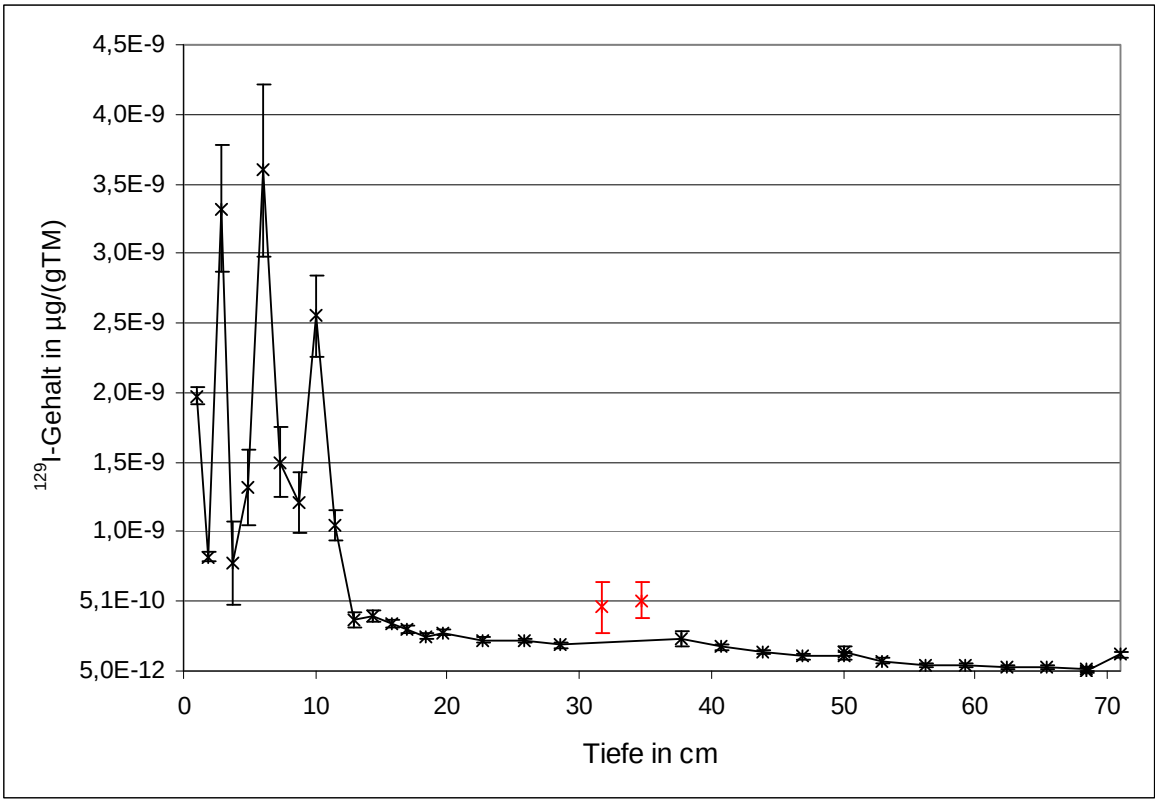

Abb. 16: Gehalt an ^{129}I in µg / g Trockenmasse aufgetragen gegen die Tiefe (Linie dient nur zur besseren Darstellung)

Unter zu Hilfenahme der Dichte (0,9 g / cm^3) und den Schichtdicken kann aus der spezifischen Aktivität (s. Abb. 17) die Depositionsdichte für ^{129}I in µBq / m² berechnet werden.

Die Aktivitäten der einzelnen Schichten liegen ab einer Tiefe von 13 cm zwischen 0,07 und 2,4 µBq / kg. Darüber schwanken die Werte, genau wie die ^{129}I-Gehalte, stark im Bereich von 5,1 bis 23,5 µBq / kg.

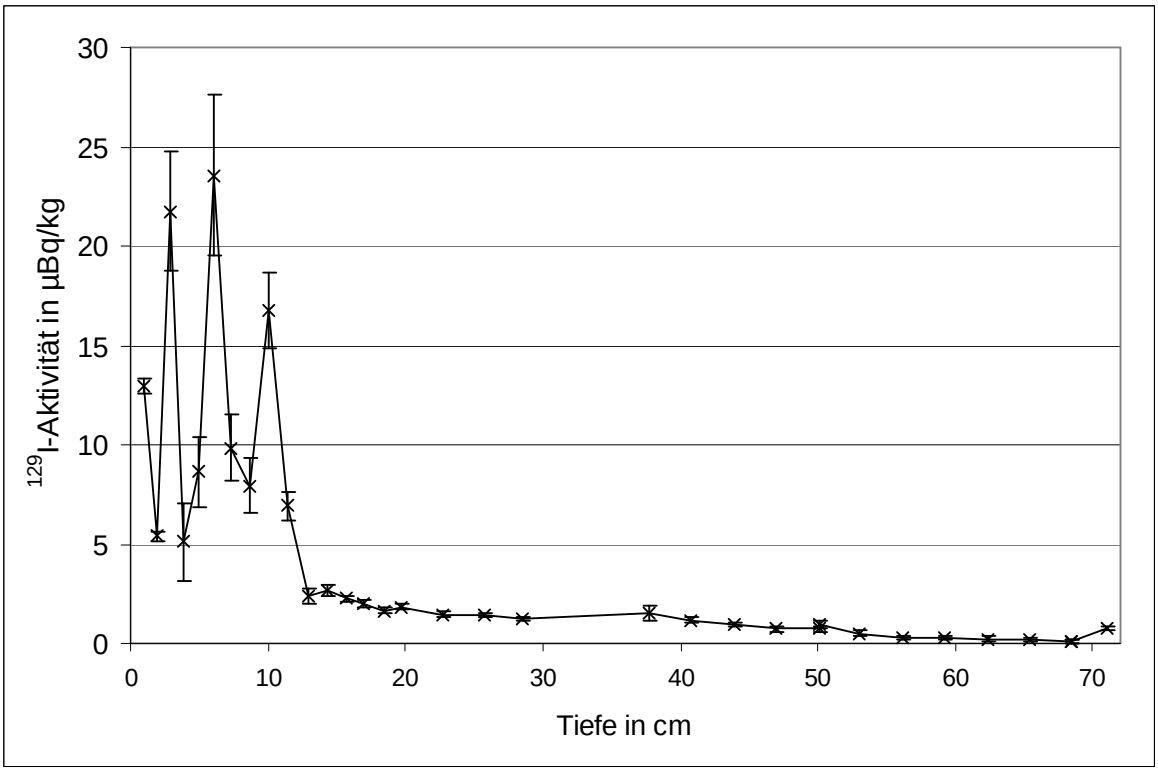

Abb. 17: Verlauf der Aktivität von ^{129}I in µBq / kg mit der Tiefe (Linie dient nur zur Visualisierung)

Die ^{129}I-Depositionsdichte gibt die ^{129}I-Menge an, welche pro Zeiteinheit und pro Fläche abgelagert wurde. Berechnet wird dieser Wert durch Multiplikation der spezifischen Aktivität mit der Dichte und der Schichtdicke.

Die erhaltenen ^{129}I-Depositionsdichten weisen Werte von 2 bis 250 µBq / m² auf. Die größten Werte werden, wie bei der Aktivität, in den Schichten in 3, 6 und 10 cm Tiefe erhalten (s. Abb. 18).

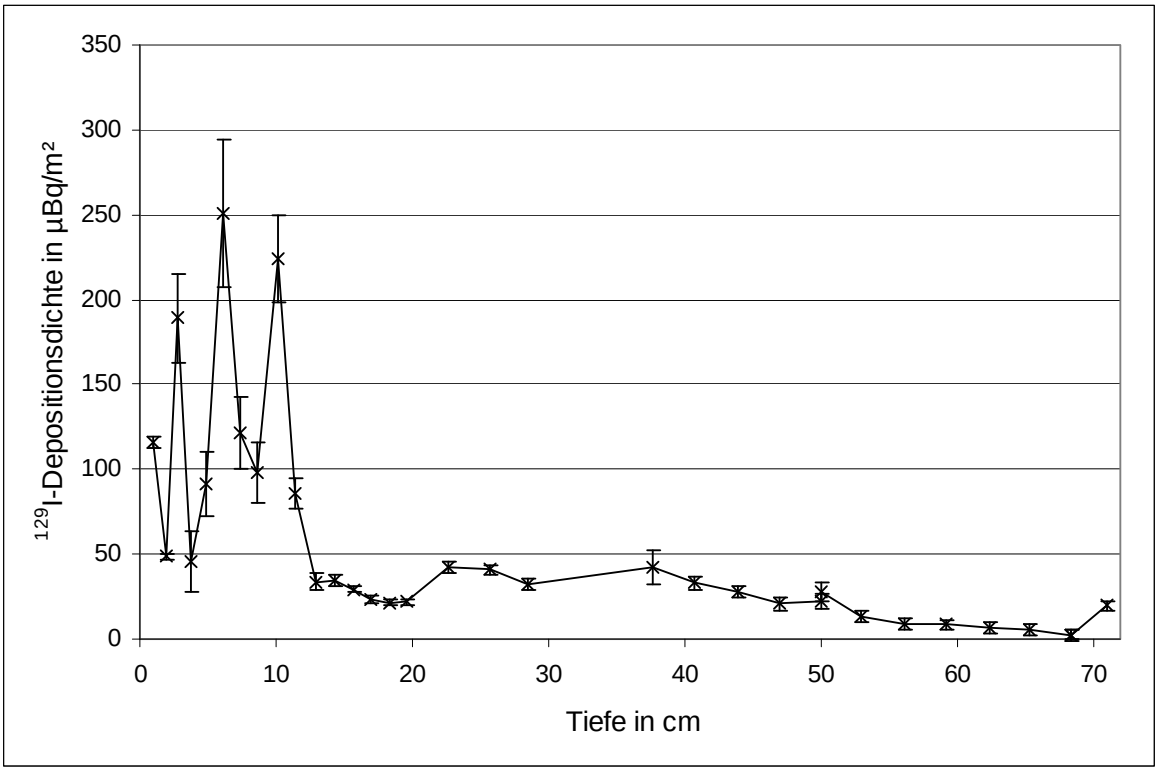

Abb. 18: ^{129}I-Depositionsdichte in µBq / m² des Pazifiksediments (Linie dient nur zur besseren Darstellung)

Aufsummieren der ^{129}I-Depositionsdichten liefert das ^{129}I-Inventar des Sedimentkernes. Dieser Wert liegt bei 2 mBq / m². Werden die einzelnen Inventare gegen die Tiefe aufgetragen, ist die stetige Zunahme an ^{129}I zu erkennen (s. Abb. 19, S. 31).

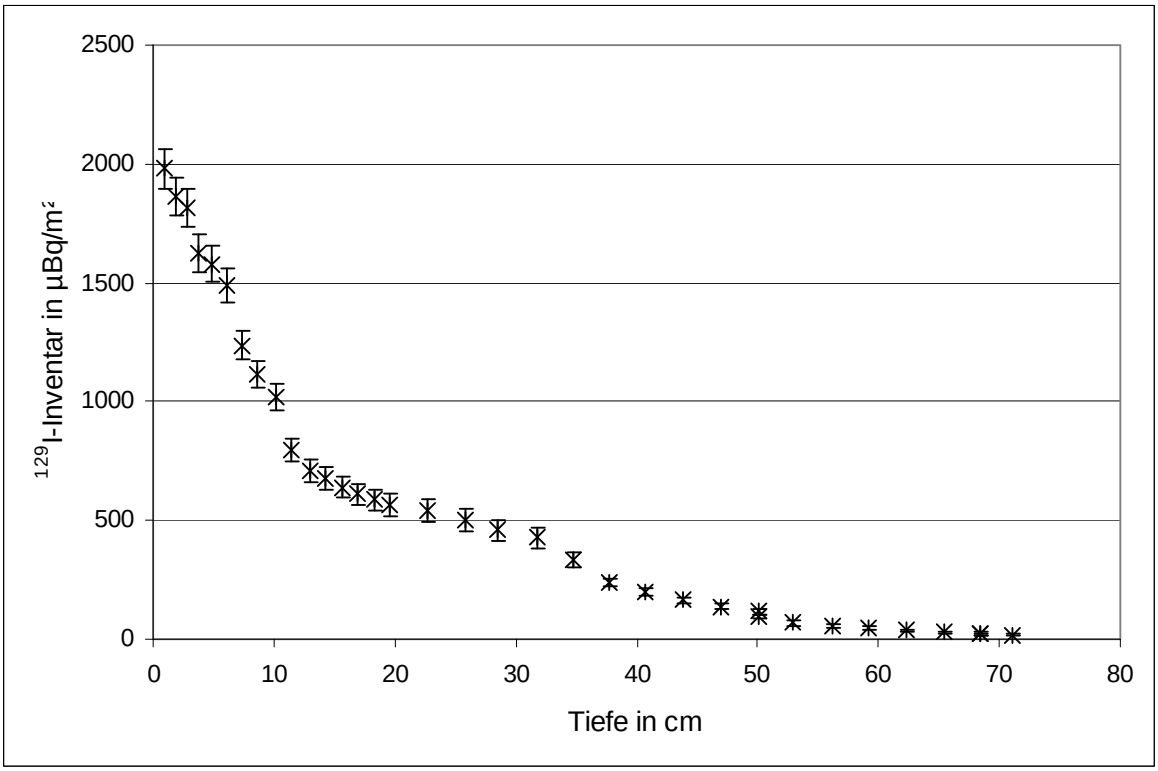

Abb. 19: ^{129}I-Inventar in µBq / m² im Verlauf mit der Tiefe

4.3 Ergebnisse Bodenprofil aus Brasilien

Das brasilianische Bodenprofil stammt aus Manaus und besteht zum größten Teil aus Sand und wenigen trockenen organischen Bestandteilen. Nach der Messung der Proben für die Arbeit von *Hand et al.* [19] im Jahr 2000 wurden diese in verschlossenen PE-Flaschen im Dunkeln aufbewahrt. Im Gegensatz zu den Sedimentproben ist eine Kontamination dieser Proben somit nicht ausgeschlossen.

Die Gehalte an ^{127}I liegen zwischen 0,22 und 0,32 µg / g, wobei die kleinste Konzentration in 2,5 cm Tiefe erhalten wird (s. Abb. 20).

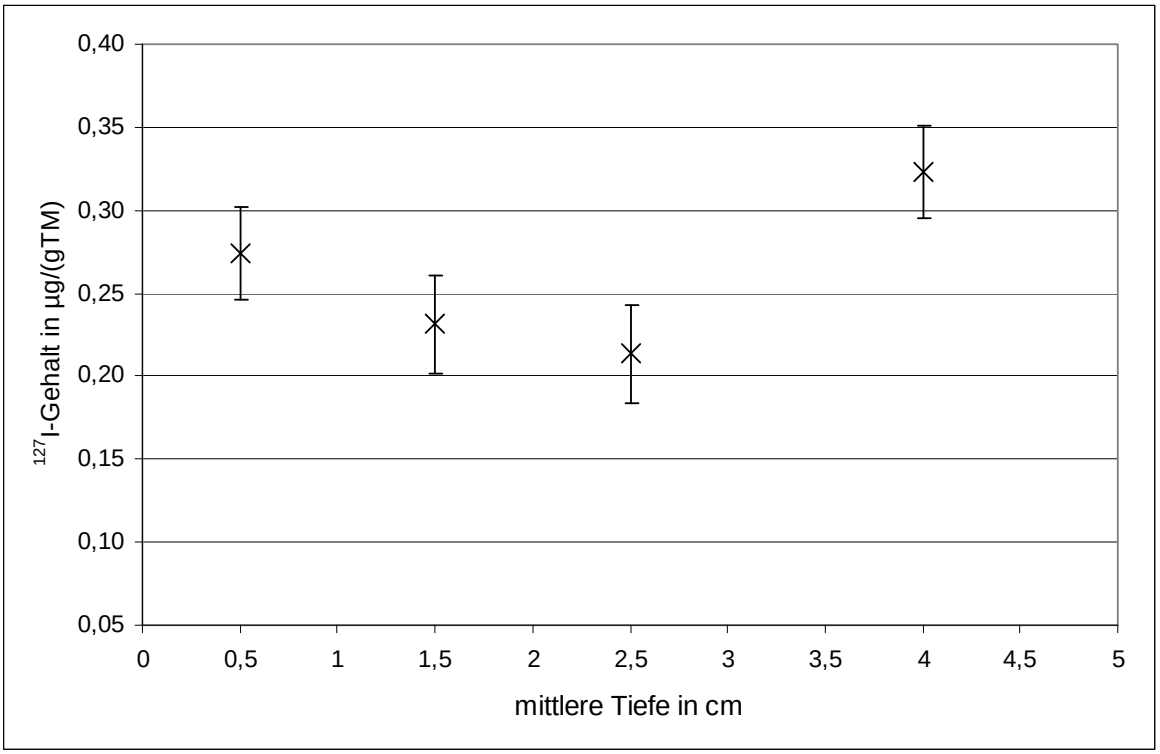

Abb. 20: ^{127}I-Gehalt in µg / g Trockenmasse des brasilianischen Bodenprofils *Manaus 2*

Das Isotopenverhältnis weist bei einer mittleren Tiefe von 2,5 cm ein Maximum mit einem Wert von $1{,}8 \times 10^{-9}$ auf. Die Werte der Verhältnisse der drei verbleibenden Proben des Profils liegen zwischen $1{,}3 \times 10^{-9}$ und $1{,}5 \times 10^{-9}$ (s. Abb. 21).

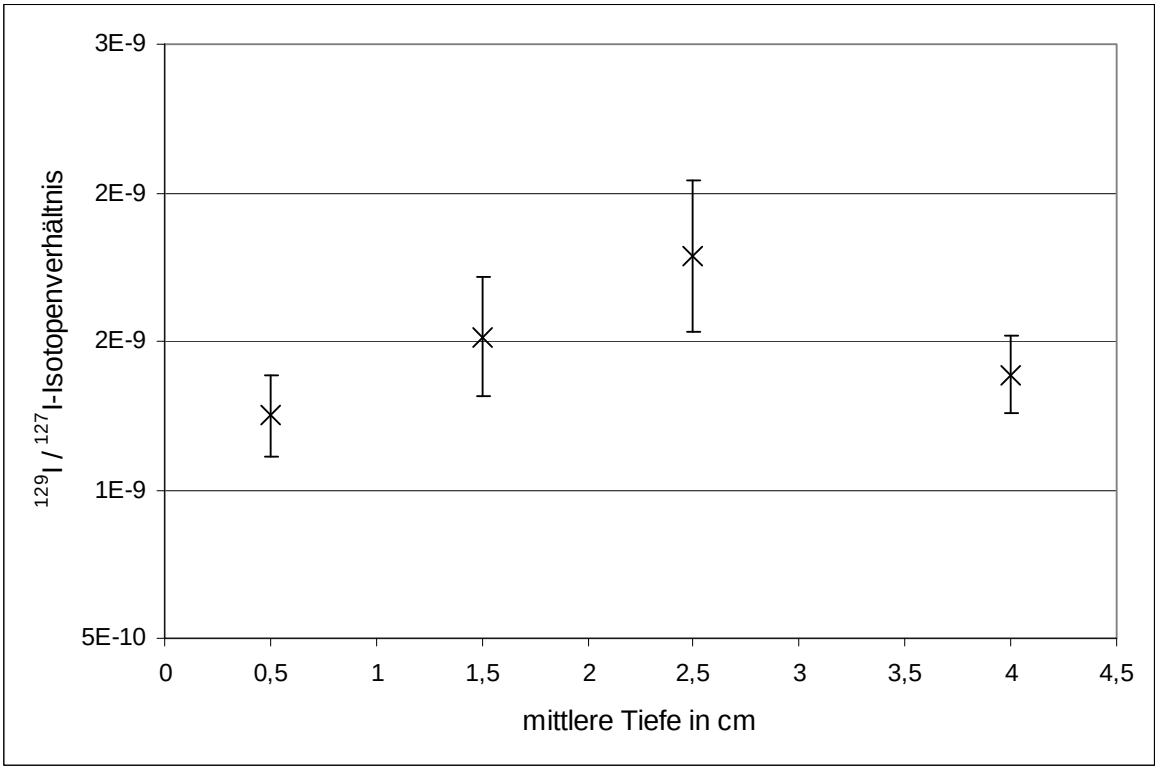

Abb. 21: Isotopenverhältnis des Bodenprofils aus Brasilien

Der Gehalt an ^{129}I in den Proben steigt bis zu einem Wert von $4{,}6 \times 10^{-10}$ µg / g bei einer mittleren Tiefe von 4 cm an. In der oberen Schicht ist mit $3{,}5 \times 10^{-10}$ µg / g die geringste Konzentration zu finden (s. Abb. 22, S. 33).

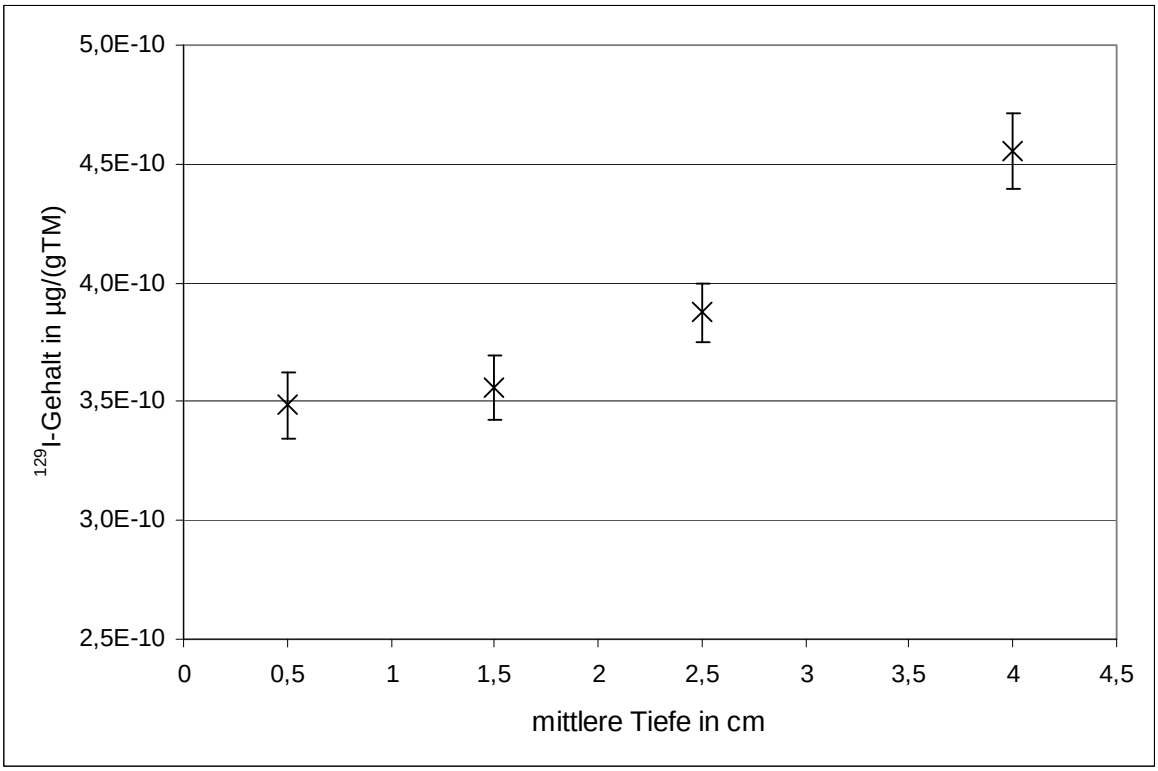

Abb. 22: ^{129}I-Gehalte in µg / g Trockenmasse der brasilianischen Proben

Genau wie der ^{129}I-Gehalt steigt die spezifische Aktivität mit der Tiefe (s. Abb. 23). Die erhaltenen Werte liegen zwischen 2,3 und 3,0 µBq / kg.

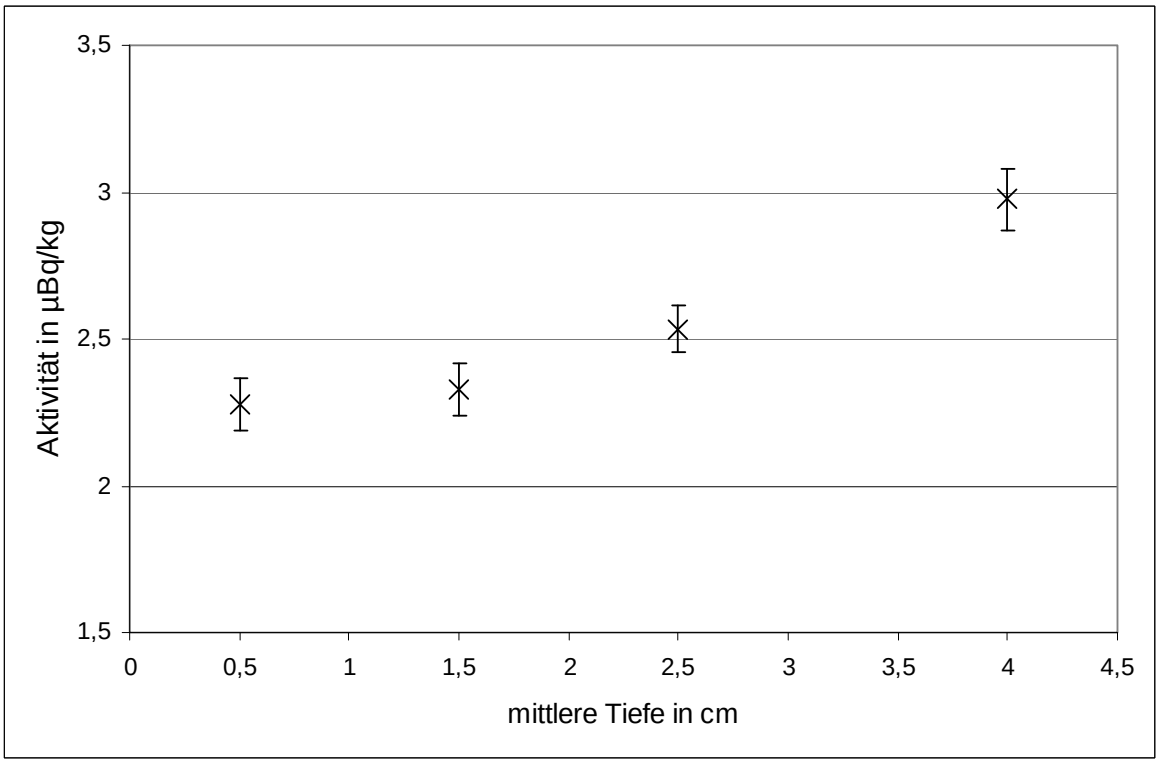

Abb. 23: spezifische Aktivität in µBq / kg des brasilianischen Bodens

Die aus den spezifischen Aktivitäten berechneten ^{129}I-Depositionsdichten weisen Werte von 23,6 bis 61,3 µBq / m² auf, wobei die kleinste Dichte bei einer Tiefe von 2,5 cm liegt (s. Abb. 24).

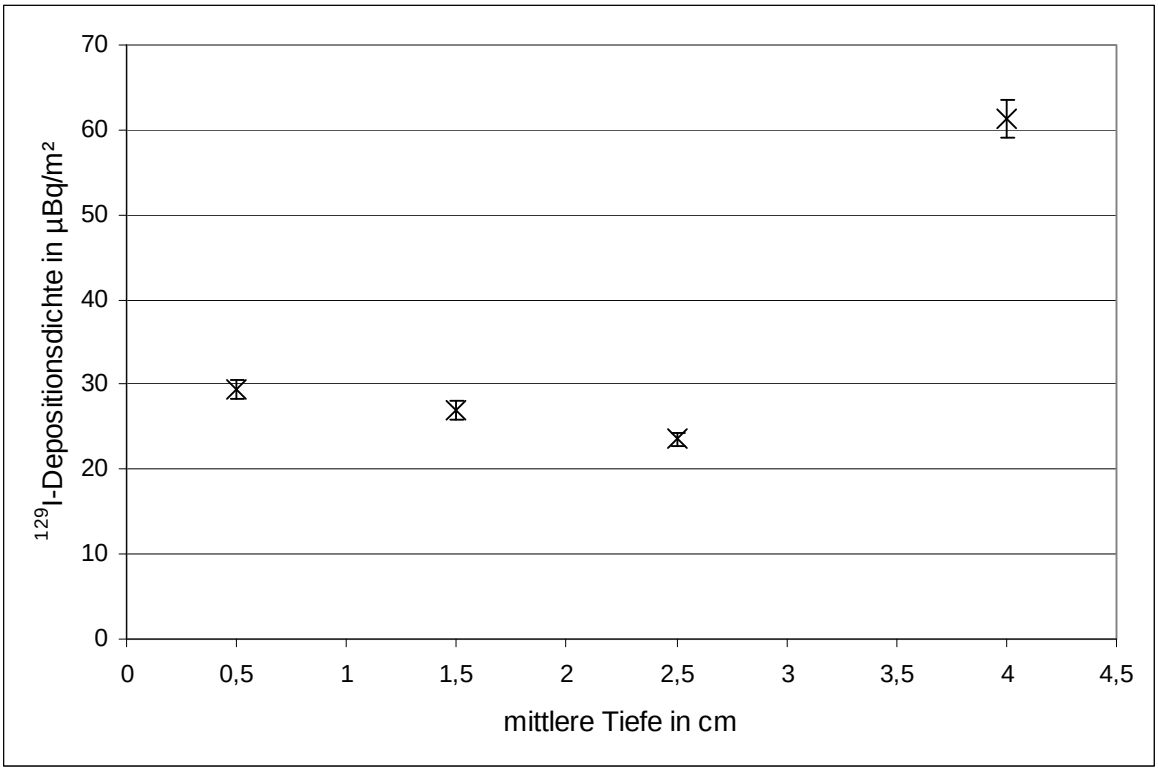

Abb. 24: ^{129}I-Depositionsdichte in µBq / m² des Profils *Manaus 2*

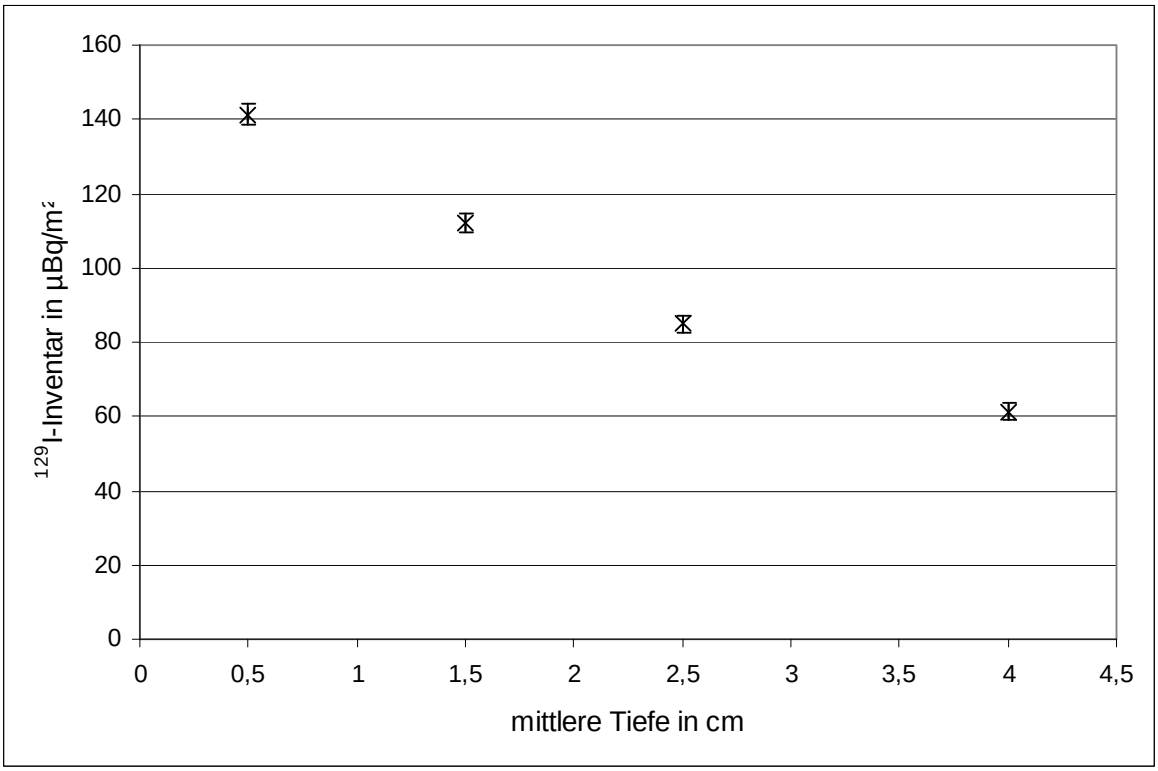

Abb. 25: Verlauf des ^{129}I-Inventars in µBq / m² mit der Tiefe

Das ^{129}I-Inventar des Bodenprofils aus Brasilien hat einen Wert von 141,3 µBq / m². Mit abnehmender Schichttiefe steigt das ^{129}I-Inventar von 60 µBq/m² auf 141,3 µBq / m² nahezu linear an (s. Abb. 25).

4.4 Datierung des Sedimentes

Für die ^{210}Pb-Datierung werden die spezifischen Aktivitäten der einzelnen Proben benötigt. Dazu werden aus den mittels Gamma-Spektrometrie gemessenen Zählraten R_x die efficiencies ε_{SU} und ε_{SO} berechnet (Gl. 1 u. 2). Mit Hilfe des logarithmischen Mittelwertes ε_{log} (Gl. 3) dieser Werte und anderer Parameter wird dann die Aktivität jeder Probe berechnet (Gl. 4).

$$\varepsilon_{SU} = \frac{R_{n,SU}}{R_{Std.}} = \frac{R_{b,SU} - R_0}{R_{Std.}} \qquad (1)$$

mit:

ε_{SU}= efficiency des Standards

$R_{n,SU}$= Nettozählrate Standard gemessen

$R_{Std.}$= Zählrate Standard theoretisch berechnet

$R_{b,SU}$= Bruttozählrate Standard gemessen

R_0= Zählrate Nulleffekt

$$\varepsilon_{SO} = \frac{R_{n,SO}}{R_{Std.}} = \frac{R_{b,SO} - R_{\mathrm{Pr}obe}}{R_{Std.}} \qquad (2)$$

mit:

ε_{SO}= efficiency Probe mit oben aufgelegtem Standard

$R_{n,SO}$= Nettozählrate Probe + Standard

$R_{Std.}$= Zählrate Standard theoretisch berechnet

$R_{b,SO}$= Bruttozählrate Probe + Standard gemessen

R_{Probe}= Zählrate Probe ohne Standard

$$\varepsilon_{\log} = \frac{\varepsilon_{SO} - \varepsilon_{SU}}{\ln(\varepsilon_{SO}) - \ln(\varepsilon_{SU})} \tag{3}$$

mit:

ε_{log}= logarithmischer Mittelwert efficiencies

ε_{SU}= efficiency des Standards

ε_{SO}= efficiency Probe mit oben aufgelegtem Standard

$$a = \frac{1}{m \cdot \varepsilon_{\log} \cdot p} \cdot \left(\frac{N_n}{t_n} - \frac{N_0}{t_0} \right) \tag{4}$$

mit:

a= spezifische Aktivität

m= eingewogene Menge Probe

p= Emissionswahrscheinlichkeit

N_n= Nettoereigniszahl Probe

N_0= Nettoereigniszahl Nulleffekt

t_n= Messzeit Probe

t_0= Messzeit Nulleffekt

Die erhaltenen Aktivitäten aufgetragen gegen die Schichttiefe ermöglicht die Ermittlung des „supported Pb“. Dieses wird durch die nahezu konstanten Endwerte des exponentiellen Verlaufes wiedergegeben (s. Abb. 26, S. 38). Der Mittelwert der zugehörigen Aktivitäten abgezogen von den übrigen Werten liefert die benötigten Aktivitäten des „unsupported Pb“. Die Aktivitäten der Schichten tiefer als 50 cm wurden für die Bestimmung des „supported Pb“ nicht mit berücksichtigt. Die Gamma-Messungen dieser Schichten erfolgten mit größeren Probenmengen, wodurch eine Dichtekorrektur notwendig würde. Aufgrund der Kürze der zur Verfügung stehenden Zeit konnte dies nicht durchgeführt werden.

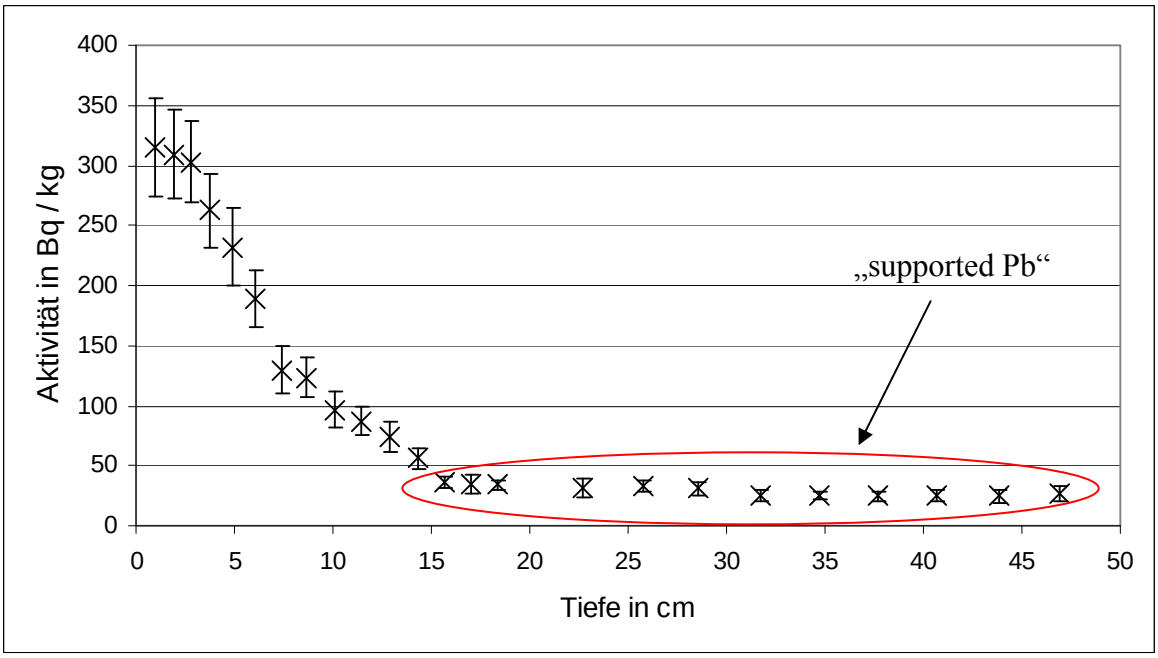

Abb. 26: Verlauf Aktivitäten von ^{210}Pb mit eingekreistem „supported Pb“

Die um den Mittelwert korrigierten Aktivitäten werden erneut gegen die Tiefe aufgetragen und aus dem Exponenten der Ausgleichskurve die Sedimentationsrate berechnet (s. Abb. 27 u. Gl. 5).

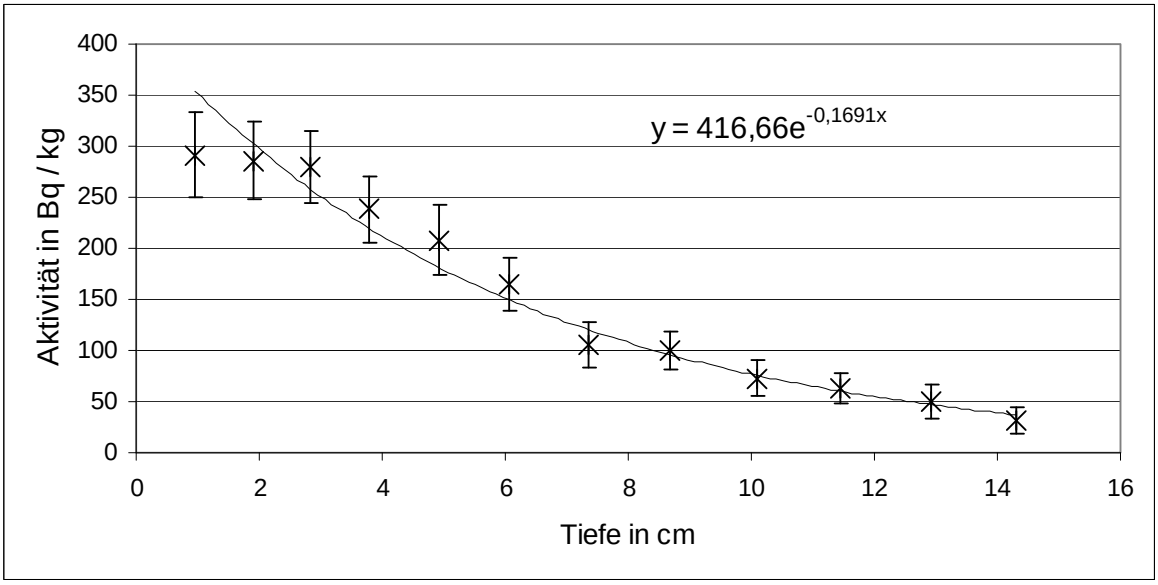

Abb. 27: korrigierte Aktivitäten aufgetragen gegen die Tiefe mit Ausgleichskurve

$$S = \frac{-\ln(2)}{b \cdot \tau} = \frac{-\ln(2)}{-0{,}1691 \cdot 22{,}3} = 0{,}18 \qquad (5)$$

Mit:

S= Sedimentationsrate in cm / a

b= Exponent der Ausgleichskurve in 1 / cm

τ= Halbwertszeit von ^{210}Pb (22,3 a)

Aus der Sedimentationsrate und den Schichtdicken lässt sich nun das Alter jeder Schicht und damit das Jahr der Sedimentation bestimmen (s. Tab. 2).

Tabelle 2: Sedimentationsrate und errechnete Alter bzw. Jahre

Tiefe in cm	Schichtdicke in cm	Sedimentationsrate in cm / a	Jahre pro Schicht	Alter in a	Jahr
1,0	0,95	0,18	5,3	5	2004
1,9	0,96	0,18	5,3	11	1998
2,8	0,92	0,18	5,1	16	1993
3,8	0,95	0,18	5,3	21	1988
4,9	1,13	0,18	6,3	27	1982
6,1	1,13	0,18	6,3	34	1975
7,4	1,31	0,18	7,3	41	1968
8,7	1,32	0,18	7,3	48	1961
10,1	1,42	0,18	7,9	56	1953
11,4	1,33	0,18	7,4	64	1945
12,9	1,49	0,18	8,3	72	1937
14,3	1,39	0,18	7,7	80	1929
15,7	1,40	0,18	7,8	87	1922
17,0	1,27	0,18	7,1	94	1915
18,4	1,40	0,18	7,8	102	1907

Unsicherheiten für die Sedimentationsrate und das Alter der Schichten können aufgrund der sehr komplexen Rechnungen und unbekannter Vorgänge im Sediment nicht angegeben werden.

5. Vergleiche

Im folgenden Abschnitt werden die Ergebnisse des Pazifiksedimentes mit Ergebnissen eines Nordseesedimentes, analysiert von *Tosch* [24], und pränuklearen Proben, untersucht von *Daraoui* [25], verglichen. Zudem erfolgt ein Vergleich der oben dargestellten Werte des Bodenprofils aus Brasilien mit Werten von Bodenprofilen aus Chile, erhalten von *Daraoui* [25].

5.1 Vergleich Sedimente

Die Isotopenverhältnisse des Nordseesediments liegen mit Werten zwischen $3{,}3 \times 10^{-8}$ und $6{,}7 \times 10^{-7}$ deutlich höher als die Isotopenverhältnisse des Pazifiksediments, dessen höchste Verhältnisse bei 5×10^{-11} liegen (s. Abb. 28). Diese Werte liegen im Bereich von Verhältnissen, die bei pränuklearen Sedimentproben der Nord- und Ostsee gemessen wurden (s. Tab. 3, S. 42).

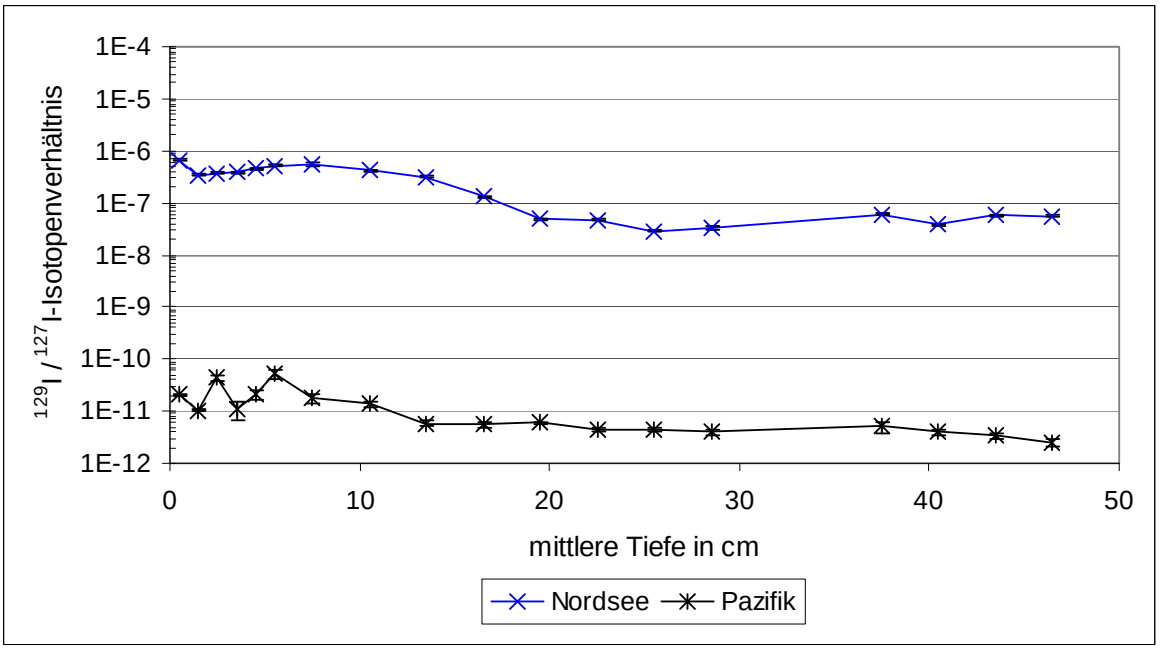

Abb. 28: Vergleich der Isotopenverhältnisse vom Nordsee- und Pazifiksediment (logarithmische Darstellung)

Tabelle 3: pränukleare Sedimentproben (Daraoui [25])

Probe	Datum	Verhältnis $\times 10^{-12}$	^{127}I-Gehalt in µg / g	^{129}I-Gehalt in µg / g $\times 10^{-11}$
Ostsee 1	10.05.1938	131,9 ± 6,3	2,8 ± 0,1	38,1 ± 1,6
Ostsee 2	20.08.1937	30,6 ± 3,3	3,0 ± 0,1	9,4 ± 1,0
Ostsee 3	15.07.1939	1,4 ± 0,1	197,2 ± 7,0	27,8 ± 2,4
Ostsee 4	21.09.1938	5,1 ± 0,5	16,5 ± 0,6	8,5 ± 0,8
Ostsee 5	1939	9,6 ± 1,2	5,1 ± 0,3	5,0 ± 0,6
Nordsee 6	-	40,2 ± 1,9	14,9 ± 0,3	60,9 ± 2,5
Nordsee 7	1937	34,0 ± 1,5	13,2 ± 0,2	45,4 ± 1,9
Nordsee 8	10.06.1937	17,9 ± 1,1	13,3 ± 0,3	24,2 ± 1,3
Nordsee 9	08.06.1937	37,5 ± 2,0	14,4 ± 0,5	55,0 ± 2,3

Die höheren Verhältnisse des Nordseesedimentes sind auf den größeren Eintrag von anthropogenem ^{129}I, vor allem aus den Wiederaufarbeitungsanlagen, zurückzuführen. Die ^{129}I-Gehalte liegen in den ersten 40 cm mit Werten von 1×10^{-6} bis 3×10^{-5} vier Größenordnungen höher als die Gehalte des Pazifiksediments (s. Abb. 29, S. 43). Die ^{127}I-Konzentrationen sind dabei bei beiden Sedimenten annähernd im gleichen Bereich (s. Abb. 30, S. 43). Im Vergleich zu den pränuklearen Proben sind die ^{129}I-Gehalte der oberen Schichten bis zu einer mittleren Tiefe von 10,5 cm des Pazifiksedimentes mit Werten um 2×10^{-9} durch anthropogene Einflüsse leicht erhöht. In den tiefen Schichten stimmt die Größenordnung der Gehalte mit den pränuklearen Proben überein (s. Tab. 3 u. Abb. 29, S. 43).

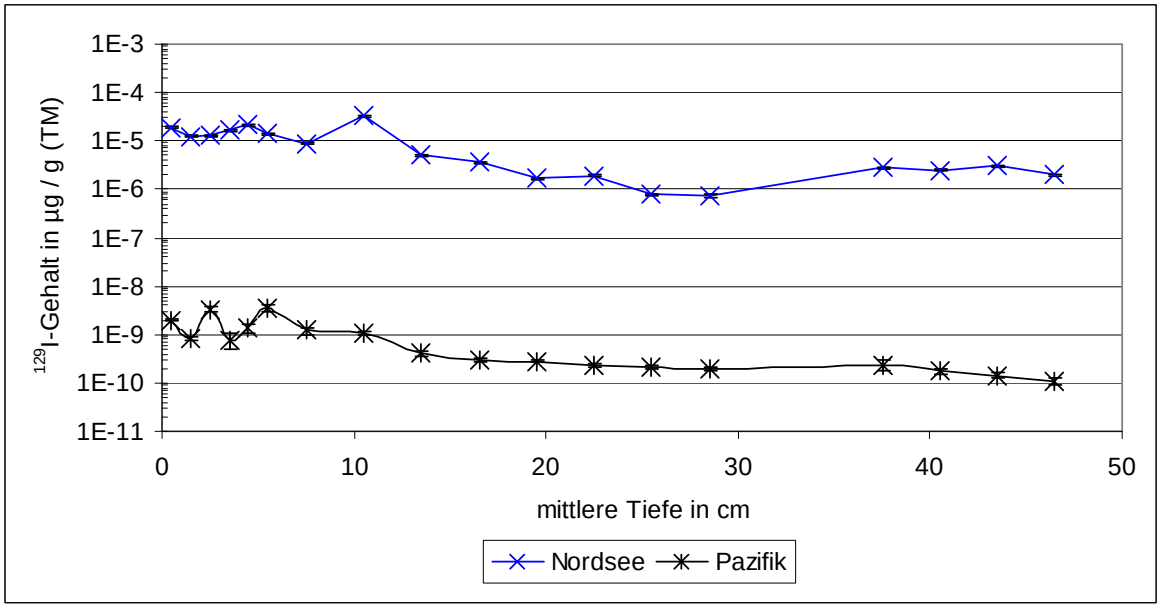

Abb. 29: Vergleich der ^{129}I-Gehalte vom Nordsee- und Pazifiksediment (logarithmische Darstellung)

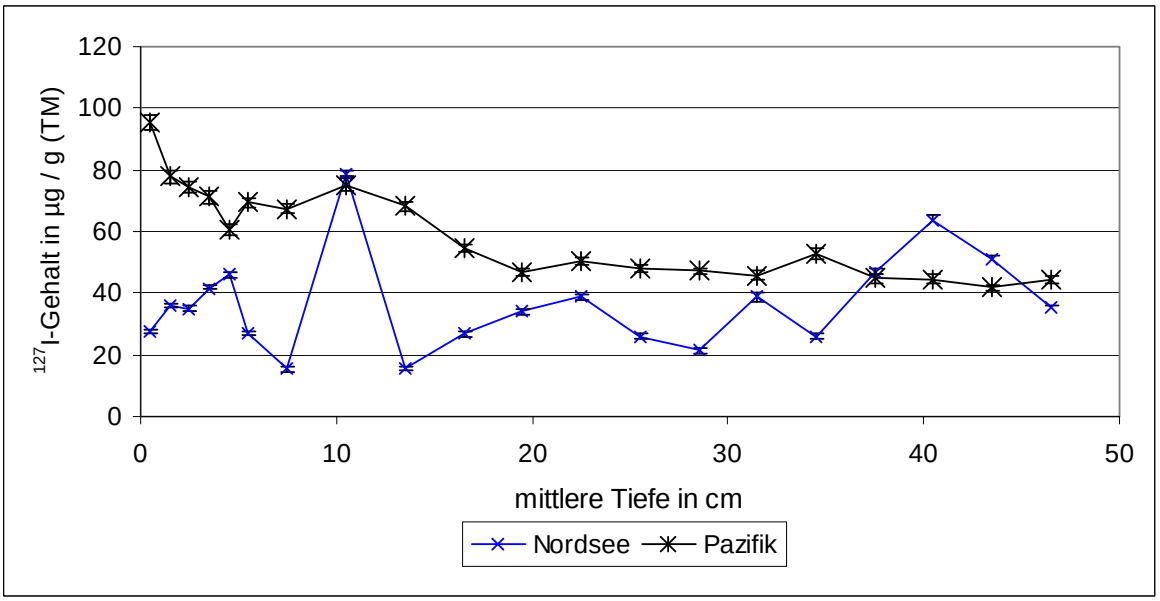

Abb. 30: Vergleich der ^{127}I-Gehalte vom Nordsee- und Pazifiksediment

5.2 Vergleich Bodenprofile

Das chilenische Bodenprofil *Curinanco Bajo 2* wurde am 10.1.2003 an der Pazifikküste in der Region zehn entnommen. Die Entnahme des Profils *Küstenkordilleren* erfolgte am 9.1.2003 in der Region neun [24].

Die Isotopenverhältnisse der Bodenprofile aus Chile sind mit Werten um 2×10^{-11} um zwei Größenordnungen kleiner als die Isotopenverhältnisse des brasilianischen Profils (s. Abb. 31). Obwohl die ^{129}I-Gehalte in der gleichen Größenordnung liegen (s. Abb. 32, S. 45), unterscheiden sich die Verhältnisse stark. Dies liegt an den relativ geringen ^{127}I-Gehalten des brasilianischen Bodenprofils, die zwei Größenordnungen kleiner sind als bei den chilenischen Böden (s. Abb. 33, S. 45). Iod lagert sich vor allem in den organischen Bestandteilen an, welche im Bodenprofil aus Manaus in sehr geringen Mengen enthalten waren. Zudem liegen in Chile große Iod-Vorkommen, die zu erhöhten Iod-Gehalten im Boden führen.

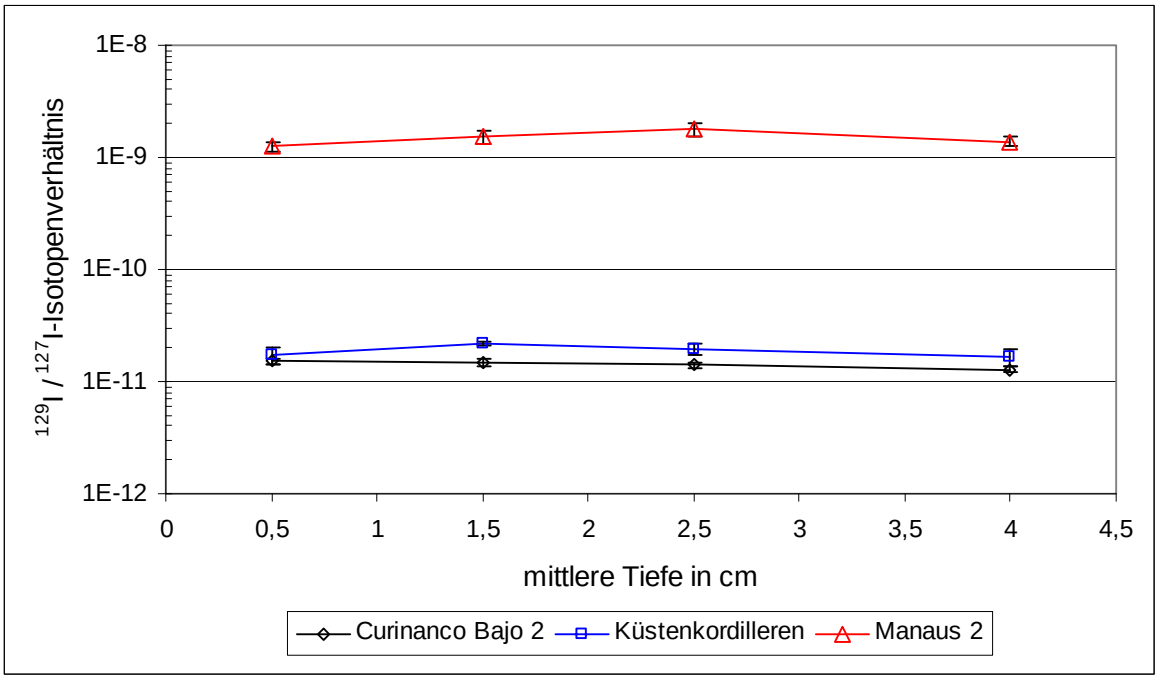

Abb. 31: Vergleich der Isotopenverhältnisse der Bodenproben (logarithmische Darstellung)

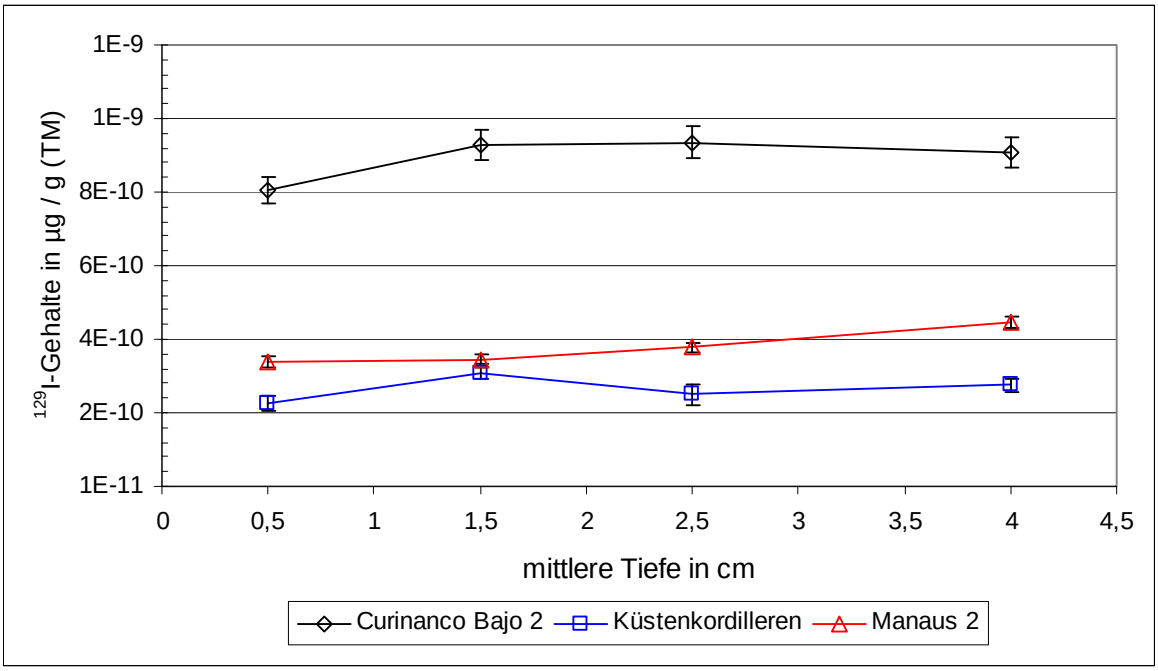

Abb. 32: Vergleich der ^{129}I-Gehalte der drei Bodenprofile aus Südamerika (logarithmische Darstellung)

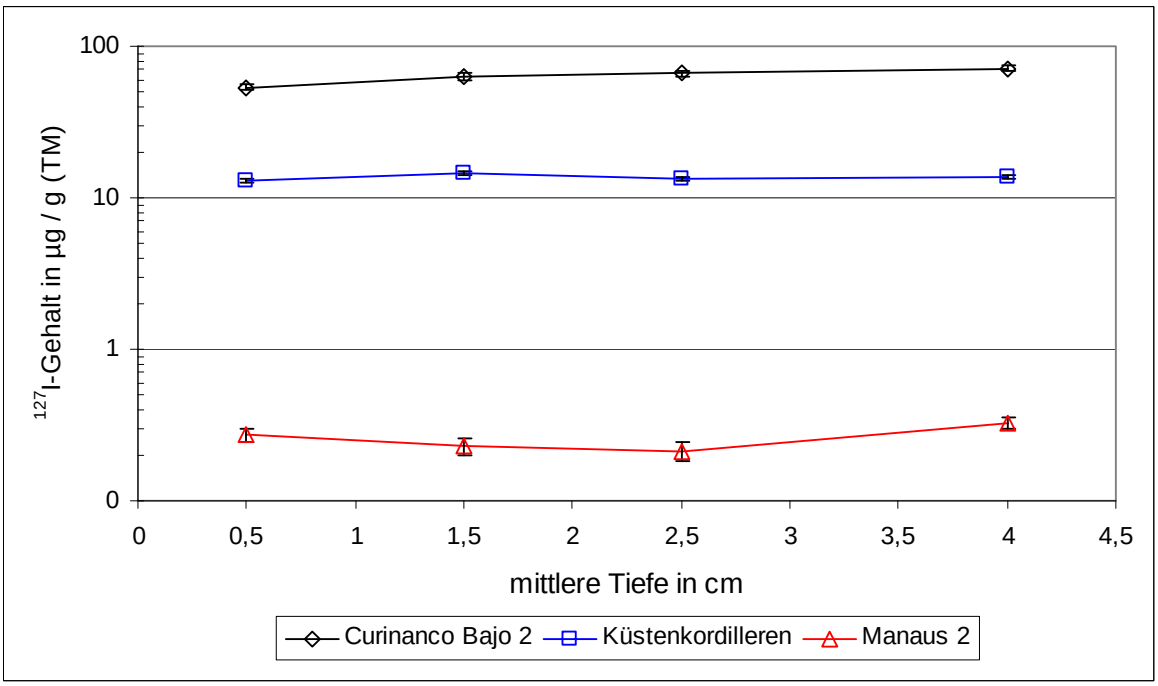

Abb. 33: Vergleich der ^{127}I-Gehalte der drei Bodenprofile aus Südamerika (logarithmische Darstellung)

Aufgrund von ähnlichen ^{129}I-Gehalten und Dichten der Profile *Küstenkordilleren* und *Manaus 2* unterscheiden sich die jeweiligen ^{129}I-Depositionsdichten und ^{129}I-Inventare wenig. Die Gehalte an ^{129}I des Profils *Curinanco Bajo 2* sind dreimal so groß, was auch zu höheren ^{129}I-Depositionsdichten und somit zu einem höheren ^{129}I-Inventar führt (s. Abb. 34 u. Tab. 4).

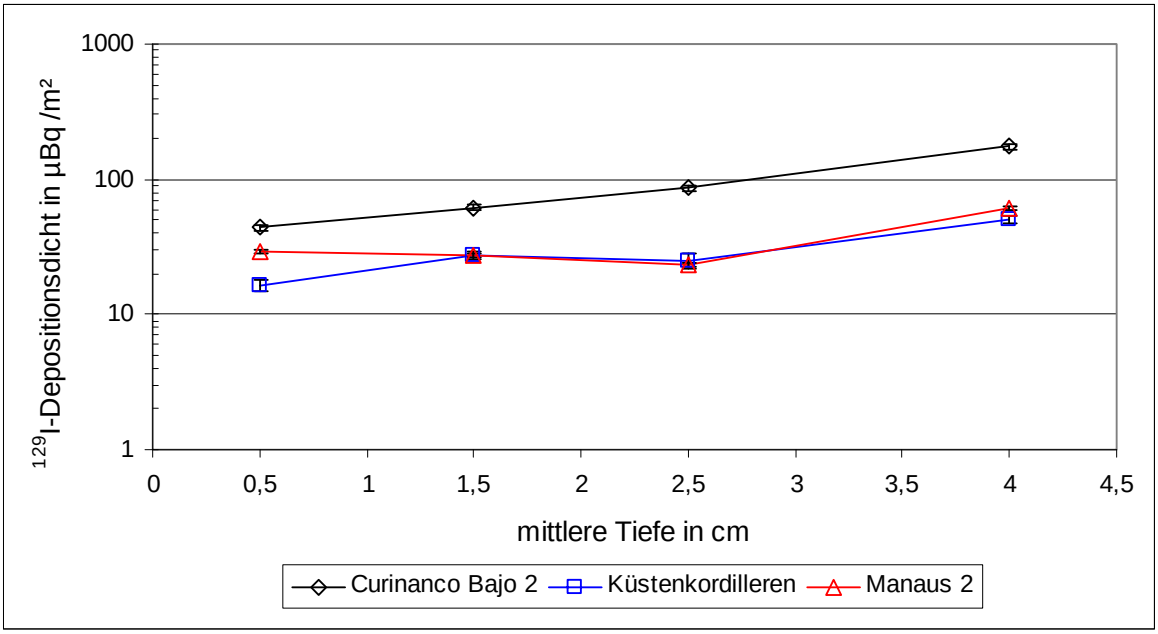

Abb. 34: ^{129}I-Depositionsdichten der Böden (logarithmische Darstellung)

Tabelle 4: Vergleich ^{129}I-Inventar

Ort	Curinanco Bajo 2	Küstenkordilleren	Manaus 2
Inventar in µBq / m²	367,5 ± 9,6	119,9 ± 4,9	141,3 ± 2,8

6. Diskussion

Im folgenden Abschnitt 6 sollen die zuvor dargestellten Ergebnisse und Vergleiche mit von anderen Autoren analysierten Proben diskutiert werden.

6.1 Sediment aus dem Südpazifik

Bis zu einer Schichttiefe von 13 cm haben die Sedimentproben Isotopenverhältnisse mit Werten größer als 1×10^{-11} und sind somit durch anthropogen eingetragenes ^{129}I verändert. Die anthropogenen Einflüsse im Südpazifik sind im Vergleich zur Nordsee aber sehr viel geringer. Dort sind durch die Wiederaufarbeitungsanlagen die Gehalte an ^{129}I mit Werten von bis zu 3×10^{-5} µg / g (TM) im Sediment stark erhöht. Der anthropogene Eintrag von ^{129}I im Südpazifik führte im Vergleich nur zu einer geringen Erhöhung der Gehalte im Sediment ($3{,}6 \times 10^{-9}$ µg / g (TM)).

Inwieweit die Maxima der Isotopenverhältnisse des Pazifiksedimentes in Verbindung mit den Kernwaffentests und anderen Ereignissen, die Radionuklide freigesetzt haben, stehen, ist schwierig nachzuweisen. In Abbildung 35 aus dem Bericht *UNSCEAR 2000, ANNEX C* [26] sind die Explosionskräfte der weltweit durchgeführten Atomtests in Mt dargestellt. Diese Kräfte weisen ebenfalls drei Maxima auf, die sich in den im Sediment gefundenen Maxima widerspiegeln könnten.

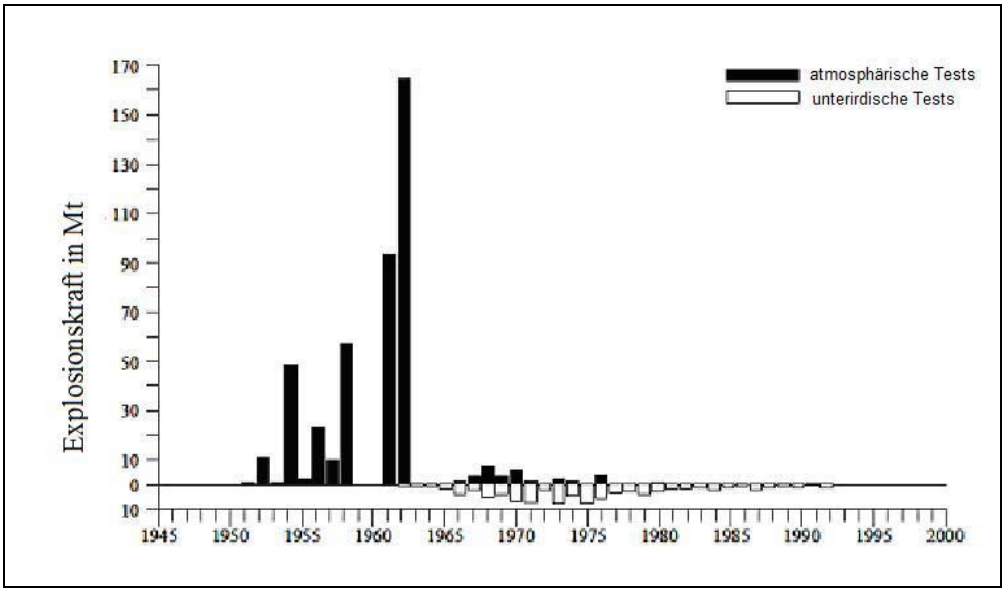

Abb. 35: Explosionskraft in Mt der atmosphärischen und unterirdischen Tests (aus [26], S. 160)

Oktay et al. [27] fanden als einzige in einem Sediment aus dem Mississippi einen sogenannten Bombenpeak, der dem Jahr 1963 zugeordnet werden konnte. Für die genaue Zuordnung der in dieser Arbeit erhaltenen Isotopenverhältnisse wäre eine exakte Datierung nötig. Die durchgeführte ^{210}Pb-Datierung dient aber nur zur groben Abschätzung des Alters der Proben. Eine genauere Altersbestimmung ist nur mit ^{226}Ra und ^{210}Pb durchführbar. Die zusätzliche Messung von ^{226}Ra konnte aufgrund der zeitlichen Begrenzung der Masterarbeit auf sechs Monate nicht durchgeführt werden. Festzustellen ist aber, dass die Proben bis zu einer Schichttiefe von 13 cm im nuklearen Zeitalter, also nach 1940, liegen.

Die sich darunter befindenden Schichten bis zu einer Tiefe von 38 cm liegen mit nahezu konstanten Verhältnissen um 5×10^{-12} im pränuklearen Bereich. Die leichte Erhöhung der Werte im Vergleich zu Verhältnissen von pränuklearen Proben ($1{,}2 \times 10^{-12}$ [8]) ist wohl auf einen konvektiven Transport von anthropogenem ^{129}I aus den höher liegenden Schichten zurückzuführen.

In den nachfolgenden Schichten bis zur Entnahmetiefe von 71 cm nehmen die Isotopenverhältnisse mit einem fast linearen Verlauf ab. Dies deutet auf einen Transport von ^{129}I mittels Diffusion aus den höheren Schichten hin. Die Verhältnisse liegen mit Werten zwischen 4×10^{-12} und $3{,}3 \times 10^{-13}$ zum Teil unterhalb des pränuklearen Wertes von $1{,}2 \times 10^{-12}$, der von Fehn et al. [8] in einem Sediment von Cape Hatteras gefunden wurde. Auch schon andere Autoren wie Moran et al. [9] fanden in Sedimenten Isotopenverhältnisse mit Werten um 4×10^{-13}, die somit unterhalb des Wertes von Fehn et al. [8] liegen. T. Ernst [10] ermittelte in Iodtinkturen und Proben aus der Atacama-Wüste sogar pränukleare Isotopenverhältnisse von 2×10^{-13}.

Die Zunahme des Verhältnisses in der untersten Schicht wurde durch Kontaminationen bei der Probennahme verursacht. Der Verschluss des Bohrkernnehmers ist nicht wasserdicht und somit kommt die unterste Schicht bei der Bergung mit dem Meerwasser in Berührung. Zudem können beim Bohrvorgang Partikel der oberen Schichten gelöst und in der untersten Schicht angelagert werden.

Im Ganzen ist sowohl bei den ^{129}I- Gehalten als auch bei den ^{127}I-Gehalten eine Abnahme zu tieferen Schichten hin zu erkennen. Dieser Iodverlust könnte durch Auswaschung oder Mineralisierung ausgelöst worden sein. Der ablaufende Mechanismus ist aber noch nicht verstanden und sollte in nachfolgenden Arbeiten untersucht werden. Iod ist im Sediment starken Veränderungen unterlegen, weshalb ein Sediment nicht als Archiv angesehen werden kann. Durch Anreicherung aus dem Meerwasser und Verlagerung in tiefere Schichten aufgrund der Mobilität ist Iod in Sedimenten ständigen Variationen unterlegen.

6.2 Bodenprofil aus Brasilien

Die Analyse des brasilianischen Bodenprofils *Manaus 2* liefert einen kleinen Einblick in die obersten Horizonte bis zu einer Tiefe von 5 cm. Die ^{127}I-Gehalte sind in diesem küstenfernen Gebiet, im Vergleich zu den küstennah entnommenen chilenischen Proben, sehr viel geringer. Dies führt bei gleichen ^{129}I-Gehalten bis zu zwei Größenordnungen höheren Isotopenverhältnissen im brasilianischen Boden.

Das in den Ozeanen gelöste Iod stellt die Hauptquelle des im Boden vorhandenen Iods dar. Das vom Meer emittierte Iod wird durch trockene und nasse Deposition auf das Festland eingetragen. Dabei bedeutet trockene Deposition die Absorption von gasförmigen Iodverbindungen an Pflanzen und Böden und das Absinken von Iod tragenden Partikeln. Bei der nassen Deposition wird Iod durch Regen in den Boden befördert. Hierbei ist die Abnahme des Iodgehaltes im Regenwasser mit zunehmendem Abstand zum Meer und steigender Höhe zu beobachten. Somit sinken die Iodgehalte der Böden in Richtung Landesinnere, da auch die trockene Deposition mit wachsendem Abstand vom Meer zurückgeht [13].

In den Böden kommt es zur Verdünnung des Iods aus dem Fallout mit dem vorhandenen stabilen ^{127}I. Aufgrund der niedrigeren ^{127}I-Gehalte im brasilianischen Boden ist die Verdünnung des Fallout-Iods geringer als in Chile, was zu höheren ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnissen in Brasilien führt.

Die brasilianischen Böden sind mit ^{129}I-Aktivitäten von rund 2,5 µBq / kg und Isotopenverhältnissen um $1{,}5 \times 10^{-9}$ leicht anthropogen beeinflusst. Im Vergleich dazu werden in Hintergrundgebieten der Nordhalbkugel, wie Russland, Verhältnisse von $1{,}7 \times 10^{-8}$ - $4{,}1 \times 10^{-8}$ erhalten [2]. Szidat [7] erhielt als höchste Werte für pränukleare Bodenprofile (0 - 35 cm) aus Russland aus dem Jahr 1939 Isotopenverhältnisse von 8×10^{-11} und ^{129}I-Aktivitäten von 0,9 µBq / kg.

7. Problematiken bei der Analyse und Auswertung

Während der Probenvorbereitung und Analyse ist es zu einigen Vorfällen gekommen, die die Ergebnisse und deren Unsicherheiten maßgeblich beeinflusst haben.

Zum einen trat bei einigen Proben nach der Zugabe des *Woodward-Iods* eine Gelbfärbung auf. Die Fällung von Silberiodid verlief anschließend nicht wie allgemein üblich und die erhaltenen Niederschläge waren sehr fein und hatten nicht, wie erwartet, eine gelbe Farbe. Bei der Messung mittels AMS wurden dann bei diesen Proben im Vergleich zu den anderen Proben sehr geringe ^{127}I-Ströme gemessen. Dies führte zu erhöhten Isotopenverhältnissen mit großen Unsicherheiten. Die normalen ^{127}I-Ströme lagen zwischen 100 und 200 nA, die ^{127}I-Ströme der problematischen Proben lagen unterhalb von 10 nA. Spätere Untersuchungen der Proben zeigten, dass diese sehr viel Chlor enthalten und statt reinem Silberiodid hauptsächlich Silberchlorid mit wenig Silberiodid gefällt wurde.

Zum anderen lagen die gemessenen Isotopenverhältnisse der untersten Schichten und der ^{129}I-Blanks sehr nah an der Erkennungsgrenze (nach DIN 25482-10: 2000-05), die durch die Messwerte der *Woodward-Iod-Blanks* abgeschätzt werden kann. Die daraus mit typischen Werten der ^{127}I-Konzentrationen berechneten Erkennungsgrenze liegt bei etwa $0{,}3 \times 10^{-12}$. Die Messwerte der unteren Schichten liegen mit Werten von $0{,}3 \times 10^{-12} – 0{,}5 \times 10^{-12}$ nur knapp über dieser Erkennungsgrenze, was zu großen Unsicherheiten führt.

8. Zusammenfassung und Ausblick

Natürliches ^{129}I entsteht in der Umwelt durch spontane Spaltung von ^{238}U und Spallationsreaktionen von energiereichen Teilchen der kosmischen Strahlung mit Xenon. Seit Beginn der industriellen Nutzung von Kernenergie kam es durch den Eintrag von anthropogenem ^{129}I zu einem stetigen Anstieg der ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisse in der Umwelt. Vor allem Ableitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen in Europa bedingten eine Erhöhung der ^{129}I-Gehalte speziell auf der Nordhalbkugel.

Von der Südhalbkugel sind nur sehr wenige Untersuchungen vorhanden, da die meisten Emittenten auf der Nordhalbkugel liegen. Somit stellten die Untersuchungen eines Sedimentkernes aus dem Südpazifik und eines Bodenprofils aus Brasilien eine Chance dar, einen Einblick in die Verteilung von anthropogenem ^{129}I auf der Südhalbkugel, weit ab von Emittenten, zu bekommen.

Die Abtrennung des für diese Arbeit relevanten Iods von der organischen Matrix wurde nach der am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie entwickelten Methode der Trockenveraschung unter Sauerstoffüberschuss durchgeführt. Bei dieser Methode erfolgte die Verbrennung, der sich in einem Quarzglasrohr befindenden Probe, mittels eines über dieses Rohr fahrenden Röhrenofens bei 1100 °C. Das dadurch abgetrennte Iod wurde durch Auswaschen der Verbrennungsgase in alkalischer Ammoniumhydrogensulfitlösung absorbiert und anschließend mit Silbernitrat gefällt. Zuvor wurden aliquote Anteile für die Ausbeutebestimmung mittels ^{125}I-Tracer und die ICP-MS-Messung entnommen.

Das erhaltene Silberiodid wurde anschließend mit Silberpulver gemischt und in die AMS-Targets gepresst. Danach wurde am Paul Scherer Institut der ETH Zürich mittels AMS-Messungen das ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnis der Proben bestimmt. Spezielle Prinzipien der Ionisierung, Unterdrückung von Molekülinterferenzen und nuklidspezifische Detektion ermöglichen die Bestimmung des ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisses bis zu Werten von 10^{-13}. Dies ist besonders bei Proben aus Gebieten weit entfernt von Emittenten von Bedeutung.

Aufgrund der speziellen Messtechnik ist am AMS nur die Bestimmung des Isotopenverhältnisses möglich. Daher war zur Ermittlung der ^{129}I-Gehalte aus den Verhältnissen die Messung der ^{127}I-Gehalte notwendig. Diese wurde am ICP-MS-Gerät des Instituts für Anorganische Chemie, Arbeitskreis Analytik, der Leibniz Universität Hannover durchgeführt. Nach einem Tuning des Gerätes erfolgte die Messung der verdünnten aliquoten Teile und einer Standardreihe für die anschließende Kalibration.

Zur Abschätzung des Alters des Sedimentes wurde eine ^{210}Pb-Datierung nach dem *C.I.C.-Modell* (constant initial concentration) durchgeführt. Dafür erfolgte die Bestimmung der spezifischen Aktivitäten der einzelnen Proben und das Auftragen dieser gegen die Tiefe. Aus der exponentiellen Ausgleichskurve des erhaltenen Verlaufs wurde dann die Sedimentationsrate und mit dieser das ungefähre Alter der Schichten bestimmt. Diese Methode lieferte aber nur eine grobe Zuordnung des Alters. Genauere Datierungen mit ^{226}Ra konnten aufgrund der Kürze der für diese Arbeit zur Verfügung stehenden Zeit nicht durchgeführt werden.

Aus den Messwerten der AMS- und ICP-MS-Messungen wurden zuletzt unter Berücksichtigung der Ausbeuten und Verdünnungen die endgültigen Isotopenverhältnisse, ^{127}I- und ^{129}I-Gehalte berechnet. Die so erhaltenen Ergebnisse zeigen einen leichten Eintrag von anthropogenem ^{129}I in das Sediment und den Boden der Südhalbkugel.

Die ^{129}I-Gehalte des Sedimentes liegen zwischen $1{,}1 \times 10^{-11}$ und $3{,}6 \times 10^{-9}$ µg / g (TM). Diese Werte sind immer noch vier Größenordnungen geringer als ^{129}I-Gehalte, die auf der Nordhalbkugel gefunden werden. Die ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisse des Sedimentprofils haben Werte von $3{,}3 \times 10^{-13}$ bis $5{,}1 \times 10^{-11}$. In den tieferen Schichten liegen die Isotopenverhältnisse sogar zum Teil unterhalb der von F*ehn et al*. [8] für pränukleare Proben bestimmten Werte von $1{,}2 \times 10^{-12}$ [8].

Die ^{129}I-Gehalte des brasilianischen Bodens liegen mit Werten um 4×10^{-10} µg / g (TM) gut eine Größenordnung oberhalb der Gehalte, die in pränuklearen Proben gefunden werden. Die ^{129}I / ^{127}I-Isotopenverhältnisse weisen Werte von $1{,}3 \times 10^{-9}$ bis $1{,}8 \times 10^{-9}$ auf. Trotzdem sind diese Verhältnisse des Bodens immer noch eine Größenordnung geringer als die Verhältnisse von Proben aus Hintergrundgebieten der Nordhalbkugel.

In weiterführenden Arbeiten sollten nun weitere Sedimente von der Südhalbkugel analysiert werden, um festzustellen, ob der Wert für pränukleare Isotopenverhältnisse nicht auf $0{,}5 \times 10^{-12}$ gesenkt werden kann. Dies ist besonders empfehlenswert, da schon andere Autoren z. B. *Moran et al.* [.9] für Pazifiksedimente Werte kleiner als $1{,}5 \times 10^{-12}$ bestimmt haben. Zudem sollten nachfolgende Arbeiten Informationen zu den in dieser Arbeit gefundenen Maxima und Verläufe der Isotopenverhältnisse liefern. Außerdem könnten weitere Untersuchungen von Bodenprofilen aus küstenfernen Gebieten der Südhalbkugel nähere Informationen über den Eintrag von anthropogenem ^{129}I in die Biosphäre liefern.

9. Literatur

[1] Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF); http://www.nndc.bnl.gov; Besucht am **25.08.2009**.

[2] A. Schmidt; *^{129}I und stabiles Iod in Umweltproben. Qualitätskontrolle von Analysenmethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie*; Universität Hannover, Dissertation, **1998**.

[3] J. T. Fabrryka-Martin, H. Bentley, D. Elmore, P. L. Airey; *Natural iodine-129 as an environmental tracer*; Geochimica et Cosmochimica Acta 49, Nr. 2, 337–347; **1985**.

[4] R. R. Edwards; *Iodine-129: Its occurence in Nature and its utility as a tracer*; Science 137, 851–853; **1962**.

[5] R. R. Edwards und P. Rey**;** *Terrestrial occurence and distribution of ^{129}I*; Atomic Energy Commission (NYO-3624-3) – Forschungsbericht; **1968**.

[6] T. P. Kohman und R. R. Edwards; *Iodine-129 as a geochemical and ecological tracer*; Carnegie Institute of Technology (NYO-3624-1) – Forschungsbericht; **1966**.

[7] Szidat; *Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien*; Universität Hannover; Dissertation; **2000**.

[8] U. Fehn, G. R. Holdren; *Determination of natural and anthropogenic ^{129}I in marine Sediments*; Geophysical Research Letters 13 (1), 137-139; **1986**.

[9] J. E. Moran, U. Fehn, R. T. D. Teng; *Variations in $^{129}I/^{127}I$ ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component*; Chemical Geology 152, 193-203; **1998**.

[10] 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**.

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

[12] P. J. Magno, T. C. Reavy, J. D. Apitianakis; *^{129}I in the environment around a nuclear fuel reprocessing plant*; U.S. Environmental Protection Agency (ORP/SID-72-5) – Forschungsbericht; **1972**.

[13] R. Michel, A. Daraoui, M. Gorny, D. Jakob, R. Sachse, L. Tosch, H. Nies, I. Goroncy, J. Herrmann, S. P. Nielsen, M. Dawdall, A. L. Rudjord, T. Gäfvert, H.-A. Synal, M. Stocker, V. Alfimov; *Kartierung von Tc-99, I-129 und I-127 im Oberflächenwasser der Nordsee, Vorhaben StSch 4481*; **2008**.

[14] 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*; Universität Hannover; Dissertation; **2005**.

[15] F. Yiou, G. M. Raisbeck, Z. Q. Zhou, L. R. Kilius; *^{129}I from nuclear fuel reprocessing: potential as an oceanographic tracer*; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 92, 436-439 **1994**.

[16] G. M. Raisbeck, F. Yiou, Z. Q. Zhou, L. R. Kilius; *^{129}I from nuclear fuel facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France) - potential as an oceanographic tracer*; Journal of Marine Systems 6; 561-570; **1995**.

[17] D. R. Schink, P. H. Santschi, O. Corapcioglu, P. Sharma, U. Fehn; *^{129}I in Gulf of Mexico waters*; Earth and Planetary Science Letters 135; 131-138; **1995**.

[18] L. R. Kilius, J. C. Rucklidge, C. Soto; *The dispersal ^{129}I from the Columbia River estuary*; Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 92, 393-397; **1994.**

[19] J. Handl, R. Sachse, D. Jakob, R. Michel, H. Evangelista, A. C. Goncalves, A. C. Freitas; *Accumulation of ^{137}Cs in Brazilian soils and its transfer to plants under different climatic conditions*; Journal of Environmental Radioactivity 99, 271-287; **2008**.

[20] L. J. Turner, L. D. Delorme; *Assessment of ^{210}Pb data from Canadian lakes using the CIC and CRS models*; Environmental Geology 28 (2); **1996**.

[21] J. H. Birkhan; *γ-Spektrometrie an Bodenproben von als Grünland genutzten Auenflächen der Zwickauer und Vereinigten Mulde*; Leibniz Universität Hannover; Diplomarbeit; **2009**.

[22] J. Vahlbruch; *Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Norddeutschland*; Universität Hannover; Dissertation; **2004**.

[23] F. von Blankenburg; *Vorlesungsskript: Einführung in die Geochemie SS 08*; Leibniz Universität Hannover; **2008**.

[24] L. Tosch; *Untersuchung von Wasserproben aus der Nordsee auf ^{129}I*; Leibniz Universität Hannover; geplante Dissertation; **2009**.

[25] A. Daraoui; *Migration von ^{129}I in der Umwelt und retrospektive Dosimetrie*; Leibniz Universität Hannover; geplante Dissertation; **2009**.

[26] United Nations. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation; *2000 Report to the General Assembly, Annexe C*; United Nations; **2000**.

[27] S. D. Oktay, P. H. Santschi, J. E. Moran, P. Sharma; *The ^{129}Iodine bomb pulse recorded in Mississippi River Delta sediments: Results from isotopes of I, Pu, Cs, Pb, and C*; Geochimica et Cosmochimica Acta 64, Nr. 6, 989-996; **2000**.

10. Anhang

Verwendete Geräte

Gefriertrocknung:	Christ BETA 1-16
Gamma-Detektor:	Germaniumdetektor JENÖ
Röhrenoffen:	Lenton Furnaces
ICP-MS:	Thermo Elemental X Series ICP-MS
AMS:	Quelle: MC-SNICS von NEC
	Beschleuniger: NEC 0,5 MV Peneltron

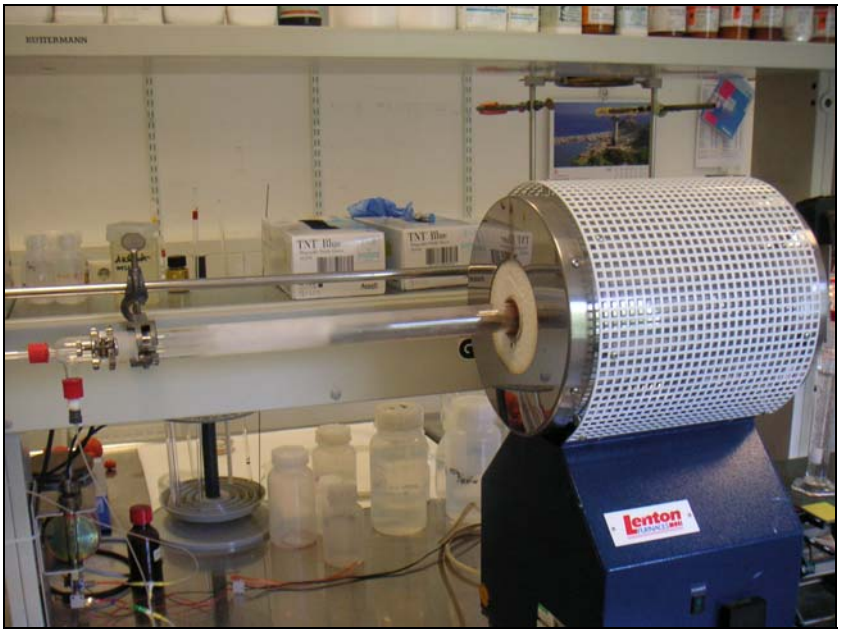

Abb. 36: Trockenveraschungs-Apparatur mit Röhrenoffen und Probebefüllung

Verwendete Chemikalien

Absorptionslösung

50 mL ultrareines Wasser

6 mL 1 M Ammoniumhydrogensulfitlösung

0,4 mL 7 M TMAH

Ausbeutestandard

3,9 mL Absorptionslösung

0,1 mL ^{125}I-Tracer

Woodward-Iod-Lösungen

1. 27,7 mg / g Woodward-Iod (Proben Nr. 37 - 24)
2. 26,6 mg / g Woodward-Iod (Proben Nr. 23 - 7)
3. 27,6 mg / g Woodward-Iod (Proben Nr. 6 u. 5, Bodenprofil)

Fällung

Silbernitrat-Lösung

konz. Salpetersäure

AMS-Proben

99,99 % Titanpulver

99,9 % Silberpulver

Ergebnisse Sedimentprofil

Tabelle 5: ^{127}I-, ^{129}I-Gehalte und Verhältnisse Pazifiksediment

Tiefe cm	^{127}I in µg / g	u_{abs} in µg / g	^{129}I in µg / g $\times 10^{-10}$	u_{abs} in µg / g $\times 10^{-10}$	^{129}I / ^{127}I $\times 10^{-12}$	u_{abs} $\times 10^{-12}$
1	95,4	2,4	19,8	0,6	20,4	0,8
2	77,8	2,1	8,3	0,4	10,5	0,5
3	74,5	2,0	33,3	4,5	44,0	6,1
4	71,2	2,1	7,8	3,0	10,8	4,1
5	60,6	1,6	13,2	2,7	21,4	4,4
6	69,4	1,6	36,0	6,2	51,1	8,9
7	67,9	1,6	15,1	2,6	21,9	3,8
9	67,5	1,8	12,1	2,2	17,7	3,2
10	71,1	1,9	25,6	2,9	35,4	4,2
11	75,2	2,0	10,6	1,1	13,8	1,5
13	69,6	1,7	3,7	0,5	5,2	0,8
14	68,2	1,7	4,0	0,4	5,8	0,6
16	55,3	1,7	3,4	0,2	6,1	0,5
17	54,6	1,3	3,0	0,3	5,4	0,5
18	55,6	1,4	2,5	0,2	4,5	0,4
20	46,8	1,3	2,8	0,2	6,0	0,4
23	50,4	1,3	2,2	0,2	4,4	0,4
26	47,9	1,3	2,2	0,2	4,5	0,3
29	47,3	1,0	1,9	0,2	4,0	0,4
32	45,8	1,3	4,6	1,8	10,0	3,9
35	52,8	1,6	5,1	1,3	9,5	2,4
38	44,8	1,4	2,3	0,6	5,1	1,2
41	44,6	1,5	1,8	0,2	3,9	0,5
44	41,8	0,9	1,4	0,2	3,3	0,4
47	44,5	1,2	1,1	0,2	2,4	0,4
50	55,4	1,4	1,1	0,2	2,0	0,4
50	63,8	1,9	1,5	0,3	2,3	0,5
53	42,7	1,2	0,8	0,2	1,8	0,4
56	40,0	1,0	0,5	0,2	1,1	0,4
59	39,9	0,8	0,5	0,2	1,1	0,4
62	38,4	1,2	0,4	0,2	0,9	0,4
65	39,4	1,2	0,3	0,2	0,8	0,4
68	30,1	0,5	0,1	0,1	0,4	0,5
68	34,1	1,1	0,1	0,2	0,3	0,5
71	35,8	0,9	1,2	0,2	3,3	0,4

Tabelle 6: ^{129}I-Aktivität, ^{129}I -Depositionsdichte und ^{129}I -Inventar Pazifiksediment

Tiefe in cm	^{129}I µBq/kg	u_{abs} in µBq/kg	Depositionsdichte in µBq/m²	u_{abs} in µBq/m²	Inventar in µBq/m²	u_{abs} in µBq/m²
1	12,9	0,4	115,9	3,5	1979,4	82,9
2	5,4	0,2	48,5	2,1	1863,6	82,8
3	21,8	3,0	189,1	25,8	1815,1	82,7
4	5,1	1,9	45,6	17,4	1626,0	78,6
5	8,6	1,8	91,7	18,9	1580,3	76,7
6	23,6	4,0	251,0	43,1	1488,6	74,3
7	9,8	1,7	121,6	20,8	1237,7	60,5
9	7,9	1,4	98,2	17,4	1116,1	56,8
10	16,7	1,9	223,9	25,6	1017,9	54,1
11	6,9	0,7	86,3	9,0	794,0	47,7
13	2,4	0,4	33,5	5,0	707,6	46,8
14	2,6	0,3	34,4	3,5	674,1	46,6
16	2,2	0,2	29,5	2,1	639,6	46,4
17	2,0	0,2	23,5	2,2	610,1	46,4
18	1,6	0,1	21,7	1,7	586,6	46,3
20	1,9	0,1	21,9	1,5	564,9	46,3
23	1,5	0,1	42,4	3,5	543,0	46,3
26	1,4	0,1	41,1	2,8	500,6	46,1
29	1,2	0,1	32,3	3,0	459,5	46,1
32	3,0	1,2	92,4	36,2	427,2	46,0
35	3,3	0,8	92,5	23,1	334,8	28,3
38	1,5	0,4	42,5	10,2	242,2	16,4
41	1,2	0,1	33,0	3,9	199,7	12,9
44	0,9	0,1	27,5	3,4	166,7	12,3
47	0,7	0,1	20,6	3,4	139,2	11,8
50	0,7	0,2	22,1	4,5	118,6	11,3
50	1,0	0,2	28,4	5,6	96,5	10,4
53	0,5	0,1	13,7	3,2	68,1	8,7
56	0,3	0,1	9,2	3,5	54,4	8,1
59	0,3	0,1	8,4	3,2	45,2	7,3
62	0,2	0,1	6,8	3,2	36,8	6,6
65	0,2	0,1	5,8	3,3	30,0	5,7
68	0,1	0,1	2,5	2,6	24,2	4,7
68	0,1	0,1	2,1	3,0	21,8	3,9
71	0,8	0,1	19,7	2,6	19,7	2,6

Ergebnisse Bodenprofil

Tabelle 7: ^{127}I-, ^{129}I-Gehalte und Verhältnisse brasilianisches Bodenprofil

Tiefe in cm	^{127}I in µg / g	u_{abs} in µg / g	^{129}I in µg / g $\times 10^{-10}$	u_{abs} in µg / g $\times 10^{-10}$	^{129}I / ^{127}I $\times 10^{-10}$	u_{abs} $\times 10^{-9}$
0,5	0,3	0,03	3,5	0,1	1,3	0,1
1,5	0,2	0,03	3,6	0,1	1,5	0,2
2,5	0,2	0,03	3,9	0,1	1,8	0,3
4,0	0,3	0,03	4,6	0,2	1,4	0,1

Tabelle 8: ^{129}I-Aktivität, ^{129}I -Depositionsdichte und ^{129}I -Inventar Bodenprofil

Tiefe in cm	^{129}I in µBq/kg	u_{abs} in µBq/kg	Depositionsdichte in µBq/m²	u_{abs} in µBq/m²	Inventar in µBq/m²	u_{abs} in µBq/m²
0,5	2,3	0,1	29,4	1,2	141,3	2,8
1,5	2,3	0,1	27,0	1,0	111,9	2,5
2,5	2,5	0,1	23,6	0,8	84,9	2,3
4,0	3,0	0,1	61,3	2,2	61,3	2,2

Ergebisse ^{210}Pb-Datierung

Mittelwert „supported Pb“= 23,7 ± 9,2 Bq / kg

Tabelle 9: ^{210}Pb-Aktivitäten (blau: „supported Pb“)

Tiefe in cm	a in Bq/kg	u_{abs} in Bq/kg	a in Bq/kg „unsup. Pb“	u_{abs} in Bq/kg „unsup. Pb“
1	315,0	40,4	291,3	41,5
2	309,3	36,9	285,7	38,1
3	302,9	33,9	279,2	35,1
4	262,3	31,2	238,6	32,5
5	232,0	32,5	208,3	33,8
6	188,9	24,3	165,2	26,0
7	129,3	19,6	105,6	21,6
9	123,5	16,6	99,9	19,0
10	96,4	14,9	72,7	17,5
11	87,3	11,6	63,6	14,8
13	73,6	12,9	49,9	15,8
14	56,0	9,3	32,3	13,0
16	36,3	4,5		
17	35,2	8,1		
18	34,2	4,4		
23	31,7	8,4		
26	32,9	4,3		
29	31,0	5,8		
32	25,2	4,1		
35	25,2	3,2		
38	24,6	4,2		
41	24,5	4,6		
44	24,4	4,9		
47	27,0	6,2		

Vergleiche Sedimente

Tabelle 10: Vergleich der Isotopenverhältnisse vom Nordsee- und Pazifiksediment

	Nordsee		Pazifik	
mittlere Tiefe in cm	Verhältnis $\times 10^{-8}$	u_{abs} $\times 10^{-8}$	Verhältnis $\times 10^{-12}$	u_{abs} $\times 10^{-12}$
0,5	67,2	3,1	20,4	0,8
1,5	34,2	1,6	10,5	0,5
2,5	36,8	1,7	44,0	6,1
3,5	39,1	1,8	10,8	4,1
4,5	45,1	2,1	21,4	4,5
5,5	52,2	2,6	51,1	8,9
7,5	55,2	2,6	17,7	3,2
10,5	41,2	1,9	13,8	1,5
13,5	32,0	1,6	5,8	0,6
16,5	13,1	0,7	5,4	0,5
19,5	4,9	0,2	6,0	0,4
22,5	4,8	0,3	4,4	0,4
25,5	2,9	0,2	4,5	0,3
28,5	3,3	0,2	4,0	0,4
37,5	6,0	0,3	5,1	1,2
40,5	3,8	0,2	3,9	0,5
43,5	5,8	0,3	3,4	0,4
46,5	5,5	0,3	2,4	0,4

Tabelle 11: Vergleich der ^{129}I-Gehalte vom Nordsee- und Pazifiksediment

	Nordsee		Pazifik	
mittlere Tiefe in cm	^{129}I-Gehalt in µg / g (TM) $\times 10^{-6}$	u_{abs} in µg / g (TM) $\times 10^{-6}$	^{129}I-Gehalt in µg / g (TM) $\times 10^{-10}$	u_{abs} in µg / g (TM) $\times 10^{-10}$
0,5	18,9	0,8	19,8	0,6
1,5	12,5	0,5	8,3	0,4
2,5	13,1	0,5	33,3	4,6
3,5	16,5	0,7	7,8	3,0
4,5	21,1	0,9	13,2	2,7
5,5	14,2	0,6	36,0	6,2
7,5	8,7	0,4	12,1	2,2
10,5	32,9	1,4	10,6	1,1
13,5	5,1	0,2	4,0	0,4
16,5	3,6	0,2	3,0	0,3
19,5	1,7	0,1	2,8	0,2
22,5	1,9	0,1	2,3	0,2
25,5	0,8	0,04	2,2	0,2
28,5	0,7	0,04	1,9	0,2
37,5	2,8	0,1	2,3	0,6
40,5	2,5	0,1	1,8	0,2
43,5	3,0	0,1	1,4	0,2
46,5	2,0	0,1	1,1	0,2

Tabelle 12: Vergleich der ^{127}I-Gehalte vom Nordsee- und Pazifiksediment

	Nordsee		Pazifik	
mittlere Tiefe in cm	^{127}I-Gehalt in µg / g (TM)	u_{abs} in µg / g (TM)	^{127}I-Gehalt in µg / g (TM)	u_{abs} in µg / g (TM)
0,5	27,8	0,6	95,4	2,4
1,5	36,1	0,7	77,8	2,1
2,5	35,0	0,7	74,5	2,0
3,5	41,6	0,9	71,2	2,1
4,5	46,2	0,9	60,7	1,7
5,5	26,7	0,7	69,4	1,6
7,5	15,6	0,3	67,5	1,8
10,5	78,6	1,4	75,2	2,0
13,5	15,6	0,4	68,2	1,7
16,5	26,9	0,9	54,6	1,3
19,5	34,1	0,6	46,8	1,3
22,5	38,9	0,9	50,4	1,3
25,5	26,1	0,9	47,9	1,3
28,5	21,4	0,9	47,3	1,0
37,5	46,8	1,0	44,8	1,4
40,5	63,6	1,7	44,7	1,5
43,5	51,1	1,2	41,8	0,9
46,5	35,2	0,8	44,5	1,2

Vergleiche der Bodenprofile

Tabelle 13: Vergleich Isotopenverhältnisse der Bodenproben

	Curinanco Bajo 2	Küstenkordilleren	Manaus 2
Tiefe in cm	Verhältnis $\times 10^{-11}$	Verhältnis $\times 10^{-11}$	Verhältnis $\times 10^{-9}$
0,5	1,5 ± 0,1	1,7 ± 0,3	1,3 ± 0,1
1,5	1,5 ± 0,1	2,2 ± 0,1	1,5 ± 0,2
2,5	1,4 ± 0,1	2,0 ± 0,2	1,8 ± 0,3
4	1,2 ± 0,1	1,7 ± 0,3	1,4 ± 0,1

Tabelle 14: Vergleich der ^{127}I- und ^{129}I-Gehalte der Bodenprofile

	Curinanco Bajo 2	Küstenkordilleren	Manaus 2
Tiefe in cm	^{127}I-Gehalt in µg / g (TM)	^{127}I-Gehalt µg / g (TM)	^{127}I-Gehalt in µg / g (TM)
0,5	53,8 ± 2,4	12,9 ± 0,3	0,3 ± 0,03
1,5	62,9 ± 3,5	14,6 ± 0,4	0,2 ± 0,03
2,5	66,6 ± 3,0	13,4 ± 0,4	0,2 ± 0,03
4	71,2 ± 3,2	13,8 ± 0,4	0,3 ± 0,03
Tiefe in cm	^{129}I-Gehalt in µg / g (TM) $\times 10^{-10}$	^{129}I-Gehalt in µg / g (TM) $\times 10^{-10}$	^{129}I-Gehalt in µg / g (TM) $\times 10^{-10}$
0,5	8,1 ± 0,4	2,4 ± 0,2	3,5 ± 0,1
1,5	9,4 ± 0,4	3,2 ± 0,2	3,6 ± 0,1
2,5	9,5 ± 0,4	2,6 ± 0,3	3,9 ± 0,1
4	9,2 ± 0,4	2,9 ± 0,2	4,6 ± 0,2

Tabelle 15: Vergleich ^{129}I-Depositionsdichte der chilenischen und brasilianischen Profile

	Curinanco Bajo 2	Küstenkordilleren	Manaus 2
Tiefe in cm	^{129}I-Depositionsdichte in µBq / m²	^{129}I-Depositionsdichte in µBq / m²	^{129}I-Depositionsdichte in µBq / m²
0,5	44,1 ± 2,1	16,5 ± 1,5	29,4 ± 1,2
1,5	61,7 ± 2,9	27,6 ± 1,3	27,0 ± 1,0
2,5	85,7 ± 3,9	25,1 ± 2,9	23,6 ± 0,8
4	176,0 ± 8,1	50,7 ± 3,4	61,3 ± 2,1

11. Eidesstattliche Versicherung

Hiermit gebe ich die Versicherung ab, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten Werken entnommen sind, sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegen.

Hannover, den 28.09.2009

(Katharina Gückel)