

Abschlussbericht zum Projekt

02 NUK 015D

**Großflächiger Eintrag, Inventare und Transport
von Iod-129 und Iod-127 in Deutschland**

Gefördert durch das
Bundesministerium für Bildung und Forschung

Förderzeitraum:

01.09.2010 – 31.03.2014

Leibniz Universität Hannover:

Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (Prof. Dr. C. Walther)

Wissenschaftliche Mitarbeiter:

Dr. B. Riebe, Dr. A. Daraoui, Dipl.-Chem. M. Schwinger

Die diesem Bericht zu Grunde liegenden Arbeiten wurden im Auftrag des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF), vertreten durch den Projektträger Forschungszentrum Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE), durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt liegt jedoch allein bei den Autoren.

Der Eigentümer behält sich alle Rechte an der weiteren Nutzung oder Vervielfältigung des Berichts vor.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

Berichtsblatt

1. ISBN oder ISSN	2. Berichtsart Abschlussbericht
3a. Titel des Bericht Großflächiger Eintrag, Inventare und Transport von Iod-129 und Iod-127 in Deutschland	
3b. Titel der Publikation	
4a. Autoren des Berichts (Name, Vorname(n)) Riebe, Beate; Daraoui, Abdelouahed; Schwinger, Mareike	5. Abschlussdatum des Vorhabens März 2014
4b. Autoren der Publikation (Name, Vorname(n))	6. Veröffentlichungsdatum
8. Durchführende Institution(en) (Name, Adresse) Leibniz Universität Hannover Institut für Radioökologie und Strahlenschutz Herrenhäuser Str. 2 D – 30419 Hannover	7. Form der Publikation
13. Fördernde Institution (Name, Adresse) Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53107 Bonn	9. Ber.Nr. Durchführende Institution
	10. Förderkennzeichen 02 NUK 015D
	11a. Seitenzahl Bericht 159
	11b. Seitenzahl Publikation
	12. Literaturangaben 181
	14. Tabellen 18
	15. Abbildungen 81
16. Zusätzliche Angaben	
17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum)	
18. Kurzfassung Die Einträge von ¹²⁹ I aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen führen zu einer kontinuierlichen Anreicherung in der Umwelt. Das Ziel dieses Forschungsvorhabens war die bundesweite Bilanzierung von Inventaren, Einträgen und Austrägen von ¹²⁹ I und ¹²⁷ I in verschiedene Umweltkompartimente. Untersucht wurden kontinuierlich über einen Zeitraum von 2 Jahren gesammelte Aerosol-, Niederschlags- und Fließgewässerproben. Zusätzlich erfolgte an 30 Standorten die Entnahme von Bodenproben. Während für ¹²⁷ I kein Zusammenhang von Konzentrationen und Depositionsdichten für Aerosole und Niederschläge mit der Entfernung von der Nordsee zu beobachten ist, wird dieser für ¹²⁹ I durchaus festgestellt. Für die Böden ist eine Tendenz zur Abnahme der Inventare von Norden nach Süden bzw. Westen nach Osten erkennbar, es besteht jedoch ein enger Zusammenhang von Iodgehalt und Bodeneigenschaften. Insgesamt zeigt ein Vergleich mit verschiedenen Daten aus früheren Untersuchungen aktuell keinen Anstieg der Isotopenverhältnisse und Depositionsraten. Die gefundenen Konzentrationen und Isotopenverhältnisse sind derzeit in Hinsicht auf eine erhöhte Schilddrüsensdosis der Bevölkerung unbedenklich.	
19. Schlagwörter ¹²⁹I, ¹²⁹I/¹²⁷I-Isotopenverhältnis, atmosphärische Einträge, ¹²⁹I-Inventare	
20. Verlag	21. Preis

Document Control Sheet

1. ISBN or ISSN	2. Type of Report Final Report	
3a. Report Title Large-scale input, inventories and transport of iodine-129 and iodine-127 in Germany		
3b. Title of Publication		
4a. Author(s) of the Report (Family Name, First Name(s)) Riebe, Beate; Daraoui, Abdelouahed; Schwinger, Mareike	5. End of Project 03/2014	
	6. Publication Date	
4b. Author(s) of the Publication (Family Name, First Name(s))	7. Form of Publication	
	9. Originator's Report No.	
8. Performing Organization(s) (Name, Address) Leibniz Universität Hannover Institut für Radioökologie und Strahlenschutz Herrenhäuser Str. 2 D – 30419 Hannover	10. Reference No. 02 NUK 015D	
	11a. No. of Pages Report 159	
	11b. No. of Pages Publication	
	12. No. of References 181	
13. Sponsoring Agency (Name, Address) Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53107 Bonn	14. No. of Tables 18	
	15. No. of Figures 81	
	16. Supplementary Notes	
17. Presented at (Title, Place, Date)		
18. Abstract Liquid and gaseous releases of ¹²⁹ I from European reprocessing plants result in a continuous accumulation in the environment. Aim of the project was to quantify the inventories and input and discharges of ¹²⁷ I and ¹²⁹ I of different environmental compartments all over Germany. Aerosol, rainwater and river water samples were collected continuously over a period of 2 years. Additionally, soil samples were collected at 30 different sampling sites. For ¹²⁷ I no correlation of concentration or deposition rates and distance of sampling sites from the North Sea was found for aerosol and precipitation samples, whereas the results for ¹²⁹ I showed decreasing values with increasing distance from the coast. Also for ¹²⁹ I inventories of soils a trend to decrease could be observed from the northern to the southern and from the western to the eastern part of the country. However, there is a close relationship between iodine and soil properties. Comparison of results with earlier investigations does not show a current increase of isotopic ratios and deposition rates. Thus, at present ¹²⁹ I concentrations and isotopic ratios do not pose the risk of an increased thyroid dose for the public.		
19. Keywords ¹²⁹I, ¹²⁹I/¹²⁷I isotopic ratio, atmospheric input, ¹²⁹I inventory		
20. Publisher	21. Price	

INHALTSVERZEICHNIS	I/II
1 Einleitung und Übersicht	1
1.1 Aufgabenstellung	1
1.2 Voraussetzungen, Planung und Ablauf	2
1.3 Wissenschaftlicher und technischer Stand	3
1.4 Zusammenarbeit mit anderen Stellen	8
1.5 Literatur zu Kapitel 1	9
2 Auswahl der Probenahmestandorte	16
2.1 Standorte für das Sammeln von Aerosolproben	16
2.2 Standorte für das Sammeln von Niederschlagsproben	16
2.3 Standorte für die Beprobung von Fließgewässern	18
2.4 Standorte für die Entnahme von Bodenproben	18
2.5 Literatur zu Kapitel 2	20
3 Probenahme, -vorbereitung und -messung	21
3.1 Aerosole	21
3.2 Niederschlag	23
3.3 Fließgewässer	25
3.4 Boden	26
3.5 Messverfahren	28
3.5.1 ICP-MS	28
3.5.2 AMS	29
3.5.3 Bodenanalysen	30
3.5.4 Qualitätssicherung und Auswertung	31
3.6 Literatur zu Kapitel 3	32
4 Ergebnisse und Diskussion	34
4.1 Aerosole	34
4.1.1 Konzentration des aerosolgebundenen ^{127}I und ^{129}I	34
4.1.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Aerosolen	39
4.1.1 Depositionsraten von ^{127}I und ^{129}I	42
4.2 Niederschlag	45
4.2.1 Deposition von ^{127}I und ^{129}I	46
4.2.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlägen	57
4.3 Fließgewässer	61
4.3.1 Konzentration von ^{127}I und ^{129}I im Flusswasser	61
4.3.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse	66
4.3.3 Abschätzung der Einträge und Austräge von ^{129}I mit dem Flusswasser	69
4.4 Boden	72
4.4.1 Iodgehalte der untersuchten Böden	73
4.4.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den untersuchten Böden	80
4.4.3 Inventare	83
4.4.4 Zusammenhang von Iodgehalt und Bodeneigenschaften	85

4.5	Literatur zu Kapitel 4	93
5	Schlussfolgerungen	100
5.1	Untersuchte Umweltkompartimente	100
5.2	Dosisrelevanz	105
5.3	Literatur zu Kapitel 5	107
6	Voraussichtlicher Nutzen, Verwertbarkeit der Ergebnisse	109
7	Zusammenfassung	110
8	Tabellenverzeichnis	111
9	Abbildungsverzeichnis	113
	Anhang A - Tabellen	118
	Anhang B - Abbildungen	148
	Anhang C – Aerosolsammlung in Braunschweig	157

1 Einleitung

1.1 Aufgabenstellung

Im Rahmen des Förderkonzeptes "Grundlegende FuE-Arbeiten in der nuklearen Sicherheits- und Entsorgungsforschung zur Förderung des wissenschaftlichen Nachwuchses und zum Kompetenzerhalt" des BMBF wurde das Verbundprojekt „Strahlung und Umwelt: Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen“ durchgeführt. Der vorliegende Bericht bezieht sich auf das Arbeitspaket 1.2, das zum Ziel hatte, den großflächigen Eintrag, die Inventare und den Transport von Iod-129 und Iod-127 in Deutschland zu untersuchen. Geplant war die bundesweite Bilanzierung der vorhandenen Iod-Inventare in der Pedosphäre (Bodenproben) und die Erfassung der atmosphärischen Einträge (Luftfilter, Niederschläge) von Iod-129 und Iod-127. Die Ermittlung von Depositionsraten, Depositionsdichten und des Transportes mit dem Oberflächenwasser sollten zur Klärung der strittigen Frage der Relevanz der atmosphärischen und aquatischen Ableitungspfade für den Eintrag in Deutschland beitragen.

Neben den natürlichen Quellen existieren seit dem Beginn der zivilen und militärischen Nutzung der Kernspaltung verschiedene anthropogene Quellen für Iod-129. Die größten Anteile an anthropogenem Iod-129 in der Umwelt stammen aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Insbesondere Sellafield in Großbritannien nahe der Irischen See und La Hague in Frankreich am Englischen Kanal beeinflussen die Umwelt in Westeuropa maßgeblich. Dadurch ist das natürliche Isotopenverhältnis $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in der Umwelt in massives Ungleichgewicht geraten. Iod-129 leistet bisher keinen relevanten Beitrag zur Strahlenexposition der Bevölkerung in Deutschland, muss jedoch aufgrund der andauernden Emissionen und möglichen Anreicherungen in Umweltkompartimenten im Rahmen der Diskussion über Nachhaltigkeit vor dem Hintergrund der langfristigen Auswirkungen für die Umwelt und ihres generellen Schutzes betrachtet werden.

1.2 Voraussetzungen, Planung und Ablauf

Eine bundesweite Bilanzierung von ^{129}I -Inventaren, -Einträgen und –Austrägen setzt ein hinreichend dichtes Probenahmeraster voraus. Naturgemäß muss in einem zeitlich und personell begrenzten Projekt zwischen Wünschenswertem und Möglichem abgewogen werden.

So wurden für die Erfassung der atmosphärischen Einträge von Iod-129 und Iod-127 vier bzw. zehn Orte für eine kontinuierliche Probenahme von Aerosolen bzw. Niederschlägen ausgewählt, 15 weitere für die Entnahme von Wasser aus den Bundeswasserstraßen, sowie 30 für die Entnahme von Bodenproben.

In der Zeit von Februar 2011 bis Februar 2013 wurden so fortlaufend Proben für die atmosphärischen Einträge von Iod-129 und Iod-127 (Aerosole, Niederschläge) und für die Fließgewässer gesammelt. Mit der dankenswerten Unterstützung verschiedener Einrichtungen (Deutscher Wetterdienst, Bundesanstalt für Gewässerkunde, Physikalisch Technische Bundesanstalt, Bundesamt für Strahlenschutz), die über die entsprechenden Geräte und Routinen verfügen, wurde eine kontinuierliche Probenahme über einen Zeitraum von zwei Jahren möglich.

Für die Erfassung des Inventars der Böden wurden grasbewachsene Flächen ausgewählt, die längere Zeit (Jahrzehnte) nicht umgebrochen worden waren. In der Zeit von April 2011 bis Juli 2013 fanden die Probenahmefahrten statt, in deren Rahmen die Rasenflächen der Messfelder des Deutschen Wetterdienstes, auf denen auch die Niederschläge gesammelt wurden, Bodendauerbeobachtungsflächen der Bundesländer bzw. Flächen in deren direkter Nachbarschaft und weitere Flächen beprobt wurden.

Vorbereitung, Messung und Auswertung des Materials erfolgte unter anderem im Rahmen von 1 Bachelor-, 1 Master- und 1 Doktorarbeit [Moor 2013; Hölzer 2013; Schwinger 2014], die in der Literatur zu Kapitel 1 aufgelistet sind und auf der homepage des IRS eingesehen werden können (<http://www.irs.uni-hannover.de/>).

1.3 Wissenschaftlicher und technischer Stand

In der Umwelt wird Iod-129 natürlicherweise auf zwei Arten gebildet: als kosmogenes Radionuklid über Wechselwirkung der energiereichen Teilchen der kosmische Strahlung mit Xenon in den oberen Schichten der Erdatmosphäre [Michel 1999] und als fissiogenes Radionuklid durch die Spontanspaltung von primordialem Uran-238 mit einer Spaltausbeute von 0,03 % [Sabu 1971]. Das Gesamtinventar an Iod-129 auf der Erde wird auf rund 50.000 kg (326,8 TBq) geschätzt [Fabryka-Martin 1984, 1985; Kocher 1981; Schmidt 1998], wobei der größte Anteil davon jedoch in der Lithosphäre gebunden ist. Das sog. 'freie' Inventar beläuft sich auf etwa 262 kg (1,7 TBq) und wird zwischen Atmosphäre, Hydrosphäre, Pedosphäre und Biosphäre ausgetauscht [Burraglio 2000; Sunny et al. 2014; Whitehead 1984].

Die anthropogene Produktion von Iod-129 begann mit der militärischen und zivilen Nutzung der Kernspaltung. Iod-129 entsteht bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von U-235 und Pu-239 mit Isobarenausbeuten von 0,68 % bzw. 1,6 % [England und Rider 1994]. Durch oberirdische Kernwaffenexplosionen wurde Iod-129 freigesetzt, dessen natürliche freies Inventar von 262 kg damit nach unterschiedlichen Schätzungen um zwischen 43 kg (0,28 TBq) und 150 kg (0,98 TBq) erhöht wurde [Carter und Moghissi 1977; UNSCEAR 1982, Chamberlain 2004, Eisenbud und Gesell 1997 (*Literatur zitiert in:* Michel et al. 2012)]. Die Unsicherheit dieser Schätzung beruht auf Widersprüchen in den Angaben der Gesamtsprengkraft der oberirdischen Kernwaffenexplosionen. Beim Unfall von Tschernobyl wurden nach unterschiedlichen Schätzungen zwischen 1,7 kg (12 GBq) [Schmidt 1998] und 6 kg (40 GBq) [Aldahan et al. 2007] Iod-129 freigesetzt. Für den Unfall von Fukushima wird die freigesetzte Gesamtmenge an Iod-129 auf 1,2 kg geschätzt [Hou et al. 2013].

Die größten Anteile an anthropogenem ^{129}I in der Umwelt stammen jedoch aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Insbesondere Sellafield in Großbritannien nahe der Irischen See und La Hague in Frankreich am Englischen Kanal beeinflussen die Umwelt in Westeuropa maßgeblich, während andere Anlagen entweder nur wenig emittierten (Hanford und West Valley in den USA) oder keine hinreichenden Bilanzierungen vorliegen. Letzteres betrifft u. a. Anlagen in der ehemaligen Sowjetunion.

Die Anlagen in Hanford, Idaho Falls und West Valley emittierten bis 1988 etwa 330 kg ^{129}I [Cecil et al. 2002, zitiert in Snyder et al. 2010; Rao und Fehn 1999], in Marcoule (Südfrankreich; in Betrieb von 1958 – 1997) ca. 200 kg ^{129}I [Hou und Hou 2012], während La Hague und Sellafield bis zum Jahr 2012 rund 6.580 kg ^{129}I als flüssige und

gasförmige Ableitungen in die Umwelt freisetzen (Gray et al., 1995; Michel 2012; AREVA 2013; Sellafield Ltd. (2013)]. Die flüssigen Freisetzungen (ca. 6.310 kg bzw. 41,2 TBq) aus den beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen (WAA) überwiegen bei Weitem ihre gasförmigen Ableitungen (ca. 270 kg bzw. 1,8 TBq).

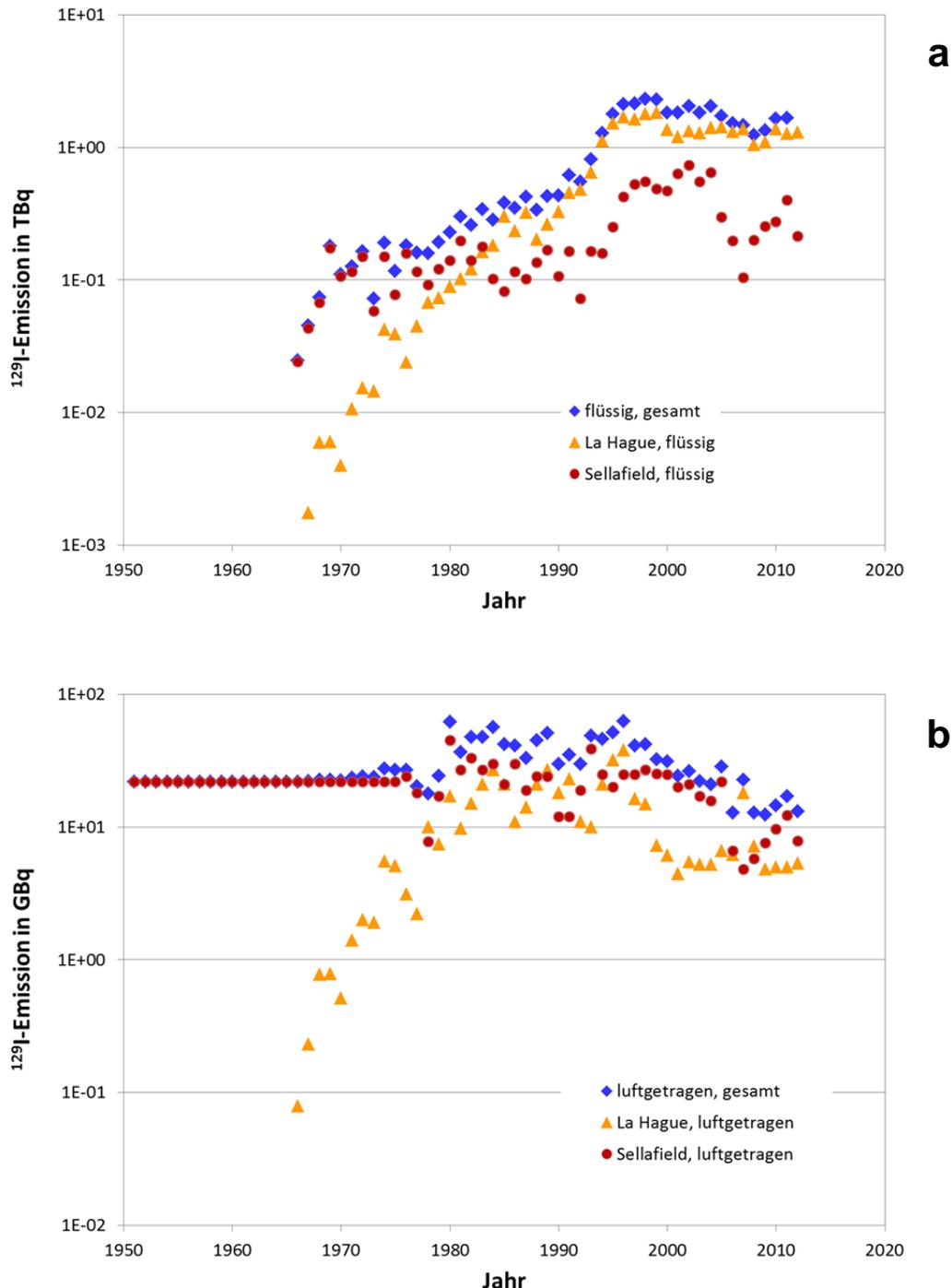


Abb. 1.1: Flüssige (a) und luftgetragene (b) ^{129}I -Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield bis 2012.

Die flüssigen Ableitungen aus Wiederaufarbeitungsanlagen haben dazu geführt, dass sich das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis des Ozeanwassers drastisch verändert hat [Kilius et al. 1994;]. In der Nordsee und im Englischen Kanal lagen bei einer 2005 durchgeführten Probenahmekampagne die dort gefundenen Isotopenverhältnisse teilweise über $10^{-8} - 10^{-6}$ [Michel et al. 2012; Nies et al. 2010; Tosch 2010] und damit bis zu sechs Größenordnungen über dem prä nuklearen Isotopenverhältnis von $1,5 \times 10^{-12}$ [Fehn et al. 1986, 2007; Schink et al. 1995; Moran et al. 1998] und vier Größenordnungen über dem Isotopenverhältnis von durchschnittlich 5×10^{-11} , das fernab der Emittenten infolge des globalen Fallouts erwartet wird [Snyder et al. 2010]. Die Verteilung des ^{129}I mit der Meeresströmung ließ sich von den jeweiligen Quellen entlang der Küsten über die gesamte Nordsee und bis in den Nordostatlantik und den arktischen Ozean verfolgen [Nies et al. 2010].

Snyder et al. (2010) schätzen, dass etwa 2.580 kg ^{129}I im Oberflächenwasser der Ozeane vorhanden sind, mehr als 99% davon in der nördlichen Hemisphäre. In Seewasser liegt Iod als Iodat, Iodid und in flüchtigen gelösten organischen Verbindungen (CH_3I , CH_2I_2 , CH_2ClI , $\text{C}_3\text{H}_7\text{I}$ etc.) vor. Letztere spielen trotz ihrer geringen Konzentration eine wichtige Rolle im globalen geochemischen Iodkreislauf [Carpenter 2003; Hou et al. 2009a]. Der Transfer von Iod aus dem Ozean in die Atmosphäre (und weiter zum Land) findet hauptsächlich über „Iod-Verflüchtigung“ (iodovolatilization) statt, und zwar einerseits durch direkte Emission von elementarem Iod (I_2) [Garland und Curtis 1981; Miyake und Tsunogai 1963; Thompson und Zafiriou 1983], und andererseits über leicht flüchtige Organo-Iodverbindungen (VOI, volatile organic iodine) [McFiggans et al. 2000; Martino et al. 2009], die unter anderem von Phytoplankton auf offener See und Makroalgen (z.B. Laminaria-Arten) im Küstenbereich [Leblanc et al. 2006] emittiert werden. VOI entstehen aber auch durch photochemische Halogenierung aus gelöster organischer Substanz im Seewasser [Méndez-Díaz et al. 2014].

Die in der Atmosphäre befindlichen Iod-Verbindungen werden gasförmig oder an Aerosolpartikel gebunden [Vaattovaara et al. 2006; O'Dowd und de Leeuw 2007] transportiert. Aerosolpartikel haben in der Troposphäre je nach Partikelgröße eine Lebenszeit von wenigen Stunden bis 10 [Jaenicke 1980; Lagzi et al. 2013] bzw. 14 Tagen [Moyers und Duce 1972; Rahn et al. 1976]. Werden sie mit der Luftströmung landeinwärts getragen, gelangen sie als trockene Deposition oder mit Niederschlägen (rainout / washout) als nasse Deposition auf die Erdoberfläche. Für gasförmige Iodverbindungen wurden Aufenthaltszeiten von 10 (anorganisch) bis 18 (organisch) Ta-

gen ermittelt [Rahn et al. 1976]. Die Konzentration an Iodverbindungen in der Atmosphäre variiert mit dem Ort, dem Klima und der Jahreszeit.

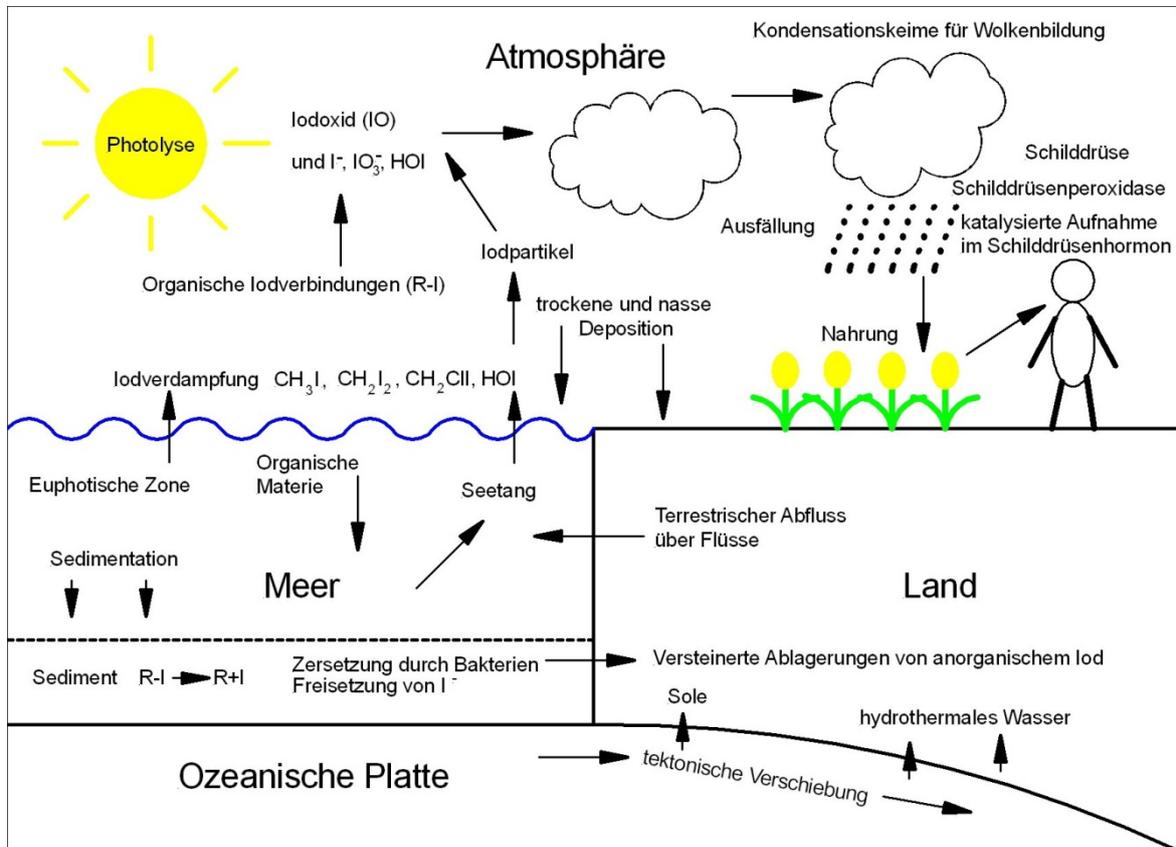


Abb. 1.2: Vereinfachte Darstellung der Quell- und Senkenfunktion der Meere (verändert nach Leblanc (2006)).

Zur Atmosphärenchemie des Iod existiert umfangreiche Literatur [z.B. Saiz-Lopez et al. 2012; Saunders et al. 2010; O'Dowd und Hoffmann 2005; Jimenez et al. 2003; Whitehead 1984], ebenso wie zur Verteilung von aerosolgebundenem ^{129}I [z.B. Jabbar et al. 2011, 2013; Englund 2010; Reithmeier et al. 2010; López-Gutiérrez et al. 2004]. Für Deutschland gibt es jedoch nur kleinräumige Untersuchungen [z.B. Ernst 2003; Wershofen und Aumann 1989].

Die Konzentrationen von Iod in Niederschlägen schwanken zeitlich und räumlich sehr stark in Abhängigkeit vom Gehalt der Luft an gasförmigen und aerosolgebundenen Iodverbindungen, von Regenmenge, Windgeschwindigkeit, Topographie etc. [Whitehead 1984]. Für Europa wurden ^{129}I -Konzentrationen in einem Bereich gefunden, der sich über vier Größenordnungen erstreckt. Die für verschiedene Länder ermittelten Werte reichten von $(6 - 9528) \cdot 10^{-12} \text{ g g}^{-1}$. [Schnabel et al. 2001; Buraglio et al.

2001; Reithmeier et al. 2005; Persson et al. 2007; Hou et al. 2009b; Keogh et al. 2010; Gómez-Guzmán et al. 2012; Lehto et al. 2012]. ^{127}I - Gehalte im Niederschlagswasser schwanken in einem sehr viel kleineren Umfang [Gómez-Guzmán et al. 2012; Lehto et al. 2012]. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für die jeweils untersuchten Zeiträume lagen in Europa im Bereich von 10^{-9} bis 10^{-7} . Langjährige Messreihen von Niederschlägen aus Niedersachsen, die am IRS durchgeführt wurden, ergaben ebenfalls $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von 10^{-7} [Szidat 2000; Klipsch 2005; Michel 2004].

Die Spezies für ^{127}I und ^{129}I im Niederschlag sind unterschiedlich verteilt. Hou et al. (2009b) stellten fest, dass in Niederschlagsproben in Dänemark der größte Anteil des ^{127}I mit ca. 65% vom gesamten enthaltenen Iod als Iodat vorlag. Iodid machte einen wesentlich kleineren Anteil, nämlich $< 30\%$ aus. Für ^{129}I war die Verteilung in etwa umgekehrt: mehr als $2/3$ des gesamten Iod lagen in Form von Iodid vor und nur ein geringer Teil als Iodat.

Iod-129 gelangt hauptsächlich über die Atmosphäre (trockene und nasse Deposition) in den Boden. Im Boden in seiner Funktion als Filter, Speicher und ‚Reaktor‘ finden zahlreiche Austausch- und Umsetzungsprozesse statt. So werden verschiedene Anteile der deponierten Iodisotope akkumuliert, transportiert oder gasförmig an die Atmosphäre wieder abgegeben [z.B. Fuge und Johnson 1986; Muramatsu und Yoshida 1999; Muramatsu et al. 2004; Kaplan 2004; Amachi et al. 2005]. Alle Prozesse sind von der Speziation des Iod und damit von den jeweils herrschenden Redoxverhältnissen, abhängig [z.B. Whitehead 1984; Koch-Steindl und Pröhl 2001; Fox et al. 2010; Luo et al. 2013; Emerson et al. 2014]. Gehalte und Verteilung von Iod im Boden variieren stark in Abhängigkeit vom jeweiligen Bodentyp [Whitehead 1984; Gerzabek et al. 1999; Shetaya et al. 2012]. Die von verschiedenen Autoren [z.B. Aumann und Güner 1999; Hansen et al. 2011; Luo et al. 2013] angegebenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen im Bereich von 10^{-8} bis 10^{-7} . Auch Daraoui (2010, 2012), Ernst (2003), und Szidat (2000) untersuchten im Rahmen ihrer Arbeiten Bodenproben unter anderem aus Bayern und Niedersachsen. Ihre Ergebnisse für die Isotopenverhältnisse lagen ebenfalls bei Werten von 10^{-8} .

1.4 Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Die kontinuierliche und umfangreiche Probengewinnung wurde durch die Mitarbeiter des Deutschen Wetterdienstes (DWD), der Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG), des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) und der Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB) ermöglicht.

Für die Entnahme von Bodenproben wurden darüber hinaus der Zugang zu geeigneten Flächen von den folgenden Einrichtungen ermöglicht: Max-Rubner-Institut (MRI), Helmholtz-Zentrum Geesthacht, Geologische Landesämter von Niedersachsen, Mecklenburg-Vorpommern, Sachsen, Hessen, Thüringen, Bayrisches Landesamt für Umwelt und Landesanstalt für Landwirtschaft, Landesamt für Umwelt, Wasserwirtschaft und Gewerbeaufsicht Rheinland-Pfalz und Thüringer Landesanstalt für Landwirtschaft.

Die Messung der Proben mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) wurden vom Labor für Ionenstrahlphysik (LIP) der ETH Zürich durchgeführt.

Der Arbeitskreis Analytik von Frau Prof. Vogt am Institut für Anorganische Chemie der Leibniz Universität Hannover erschloss uns die Möglichkeit von ICP-MS-Messungen.

Das Institut für Bodenkunde der Leibniz Universität Hannover unterstützte die Untersuchung von bodenkundlichen Parametern (organischer Kohlenstoff, Korngrößenanalyse, Bestimmung von Eisenoxiden in der Anfangsphase des Projekts).

Innerhalb des Kompetenzverbundes bestand eine Zusammenarbeit mit AP 1.3 (Helmholtz-Zentrum München) und AP 1.4 (Universität Bremen).

Literatur zu Kapitel 1:

- Aldahan, A., Alfimov, V., Possnert, G. (2007): The ^{129}I anthropogenic budget: sources and sinks. *Applied Geochemistry* **22**, 606-618.
- Amachi, S., Muramatsu, Y., Akiyama, Y., Miyazaki, K., Yoshiki, S., Hanada, S., Kamagata, Y., Ban-nai, T., Shinoyama, H., Fujii, T. (2005): Isolation of Iodide-Oxidizing Bacteria from Iodide-Rich Natural Gas Brines and Seawaters. *Microbial Ecology* **49**, 547–557.
- AREVA (2013): Cumulative release results report. URL: <http://www.areva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-areva-la-hague-plant.html> (zuletzt aufgerufen: 13.08.2014)
- Aumann, D.C., Güner, D. (1999): Determination of ^{129}I in soils of Germany using radiochemical neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **242** (3), 641-645.
- Buraglio, N. (2000): Accelerator mass spectrometry of ^{129}I and its applications in natural water systems. PhD-thesis, Uppsala University, Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology 570, 60 S.
- Buraglio, N., Aldahan, A., Possnert, G., Vintersved, I. (2001): ^{129}I from the Nuclear Reprocessing Facilities Traced in Precipitation and Runoff in Northern Europe. *Environ. Sci. Technol.* **35**, 1579-1586.
- Carpenter, L.J. (2003): Iodine in the Marine Boundary Layer. *Chemical Reviews* **103**, 4953-4962.
- Carter, M.W., Moghissi, A.A. (1977): Three decades of nuclear testing, *Health Physics* **33** (1), 55-71.
- Cecil, L.D., Hall, L.F., Green, J.R. (2003): Reevaluation of background iodine-129 concentrations in water from the Snake River Plain Aquifer, Idaho, U.S. *Geol. Surv. Water Resour. Invest. Rep.*, 03-4106, 18 pp. [zitiert in Snyder et al. 2010]
- Chamberlain, A. (2004): *Radioactive Aerosols*. Cambridge University Press, 268 S.
- Daraoui, A. (2010): Migration von I-129 und Retrospektive Dosimetrie. Dissertation Universität Hannover, 226 S.
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh10/62787097X.pdf>
- Daraoui, A., Michel, R., Gorny, M., Jakob, D., Sachse, R., Synal, H.-A., Alfimov, V. (2012): Iodine-129, Iodine-127 and Caesium-137 in the environment: soils from Germany and Chile, *J. Environ. Radioact.* **112**, 8-22.
- Eisenbud, M.; Gesell, T. (1997): *Environmental radioactivity : from natural, industrial, and military sources*. 4. Aufl., Academic Press, San Diego, 656 S.
- Emerson, H.P., Xu, C., Ho, Y.F., Zhang, S., Schwehr, K.A., Lilley, M., Kaplan, D.I., Santschi, P.H., Powell, B.A. (2014): Geochemical controls of iodine uptake and transport in Savannah River Site subsurface sediments. *Applied Geochemistry* **45**, 105–113.

- England, T. R., Rider, B. F. (1994): Evaluation and Compilation of Fission Product Yields. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-94-3106, 173 S.
- Englund, E., Aldahan, A., Hou, X.L., Possnert, G., Söderström, C. (2010): Iodine (^{129}I and ^{127}I) in aerosols from northern Europe. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **268**, 1139–1141.
- Ernst, T. (2003): Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport. Dissertation Universität Hannover, 359 S. <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/37628126X.pdf>
- Fabryka-Martin, J.T. (1984): Natural iodine-129 as ground-water tracer. PhD-thesis, University of Arizona, 161 S.
- Fabryka-Martin, J. T., Bentley, H., Elmore, D., Airey, P.L. (1985): Natural iodine-129 as an environmental tracer. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **49**, 337-347.
- Fehn, U., Holdren, G., Elmore, D., Brunelle, T., Teng, R., Kubik, P. (1986): Determination of natural and anthropogenic ^{129}I in marine sediments. *Geophysical Research Letters* **13**, 137–9.
- Fehn, U., Moran, J.E., Snyder, G.T., Muramatsu, Y. (2007): The initial $^{129}\text{I}/\text{I}$ ratio and the presence of 'old' iodine in continental margins. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **259**, 496–502.
- Fox, P.M., Kent, D.B., Davis, J.A. (2010): Redox Transformations and Transport of Cesium and Iodine (-1, 0, +5) in Oxidizing and Reducing Zones of a Sand and Gravel Aquifer. *Environ. Sci. Technol.* **44**, 1940–1946.
- Fuge, R., Johnson, C.C. (1986): The geochemistry of iodine – a review. *Environmental Geochemistry and Health* **8** (2), 31-54.
- Garland, J.A., Curtis, H. (1981): Emission of Iodine From the Sea Surface in the Presence of Ozone. *Journal of Geophysical Research* **86** (C4), 3183-3186.
- Gerzabek, M.H., Muramatsu, Y., Strebl, F., Yoshida, S. (1999): Iodine and bromine contents of some Austrian soils and relations to soil characteristics. *J. Plant Nutr. Soil Sci.* **162**, 415-419.
- Gómez-Guzmán, J.M., Enamorado-Báez, S.M., Pinto-Gómez, A.R., Abril-Hernández, J.M., López-Gutiérrez, J.M., García-León, M. (2012): Anthropogenic ^{129}I concentration and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio in rainwater from Seville (Spain) in the period 2005-2008 as affected by airborne releases from Sellafield and La Hague facilities. *Atmospheric Environment* **56**, 26-32.
- Gray, J., Jones, S., Smith, A. (1995): Discharges to the environment from the Sellafield Site 1951–1992. *J. Radio. Prot.* **15**(2), 99-131.
- Hansen, V., Roos, P., Aldahan, A., Hou, X.L., Possnert, G. (2011): Partition of iodine (^{129}I and ^{127}I) isotopes in soils and marine sediments. *Journal of Environmental Radioactivity* **102**, 1096-1104.

- Hölzer, A. (2013): Simultane Quantifizierung von Iodid und Iodat in Flüssig- und Bodenproben mittels IC-ICP-OES. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 103 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=2013](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=2013)
- Hou, X., Hansen, V., Aldahan, A., Possnert, G., Lind, O. C., Lujanene, G. (2009a), A review on speciation of iodine-¹²⁹ in the environmental and biological samples. *Analytica Chimica Acta* **632**, 181–196.
- Hou, X.L., Aldahan, A., Nielsen, S., Possnert, G., (2009b): Time Series of ¹²⁹I and ¹²⁷I Speciation in Precipitation from Denmark. *Environ. Sci. Technol.* **43**, 6522–6528.
- Hou, X., Hou, Y. (2012): Analysis of ¹²⁹I and its Application as Environmental Tracer. *J. Anal. Sci. Tech.* **3** (2), 135-153.
- Hou, X., Povinec, P.P., Zhang, L., Shi, K., Biddulph, D., Chang, C.C., Fan, Y., Golser, R., Hou, Y., Jeřkovský, M., Jull, A.J.T., Liu, Q., Luo, M., Steier, P., Zhou, W. (2013): Iodine-129 in Seawater Offshore Fukushima: Distribution, Inorganic Speciation, Sources, and Budget. *Environ. Sci. Technol.* **47**, 3091–3098.
- Jabbar, T., Steier, P., Wallner, G., Kandler, N., Katzberger, C. (2011): AMS analysis of iodine-129 in aerosols from Austria. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **269**, 3183–3187.
- Jabbar, T., Wallner, G., Steier, P. (2013): A review on ¹²⁹I analysis in air. *J. Environ. Radioact.* **126**, 45-54.
- Jaenicke, R. (1980): Atmospheric aerosols and global climate. *Journal of Aerosol Science* **11**, 577- 588.
- Jimenez, J.L., Bahreini, R., Cocker III, D.R., Zhuang, H., Varutbangkul, V., Flagan, R.C., Seinfeld, J.H., O'Dowd, C.D., Hoffmann, T. (2003): New particle formation from photooxidation of diiodomethane (CH₂I₂). *J. Geophys. Res.* **108** (D10), 4318, doi:10.1029/2002JD002452
- Kaplan, D.I. (2004): Influence of surface charge of an Fe-oxide and an organic matter dominated soil on iodide and pertechnetate sorption. *Radiochim. Acta* **91**, 173–178.
- Keogh, S.M., Aldahan, A., Possnert, León Vintrol, G.L., Mitchell, P.I., Smith, K.J., McGinnity, P. (2010): Anthropogenic ¹²⁹I in precipitation and surface waters in Ireland. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **268**, 1232–1235.
- Kilius, L.R., Rucklidge, J.C., Soto C. (1994): The dispersal of ¹²⁹I from the Columbia River estuary. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **92**, 393-397.
- Klipsch, K. (2005): Bestimmung von ¹²⁹I und ¹²⁷I in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des ¹²⁹I auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen. Dissertation, Universität Hannover, 181 S., <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh05/490045065.pdf>

- Kocher, D.C (1981): A dynamic model of the global iodine cycle and estimation of the dose to the world population from releases of iodine-129. *Environment International* **5**, 15-31.
- Koch-Steindl, H., Pröhl, G. (2001): Considerations on the behaviour of long-lived radionuclides in the soil. *Radiat. Environ. Biophys.* **40**, 93-104.
- Lagzi, I., Mézáros, R., Gelybó, G., Leelössy, Á. (2013): Atmospheric Chemistry. Eötvös Loránd University, e-book. Verfügbar unter: <http://elte.prompt.hu/elkeszultananyagok> (zuletzt aufgerufen am 25.07.2014)
- Leblanc, C., Colina, C., Cossea, A., Delagea, L., La Barrea, S., Morinb, P., Fiévetc, B., Voiseuxc, C., Ambroised, Y., Verhaeghed, E., Amouroux, D., Donarde, O., Tessiere, E., Potina, P. (2006): Iodine transfers in the coastal marine environment: the key role of brown algae and of their vanadium-dependent haloperoxidases. *Biochimie* **88**, 1773–1785.
- Lehto, J., Rätty, T., Hou, X.L., Paatero, J., Aldahan, A., Possnert, G., Flinkman, J., Kankaanpää, H. (2012): Speciation of ^{129}I in sea, lake and rain waters. *Science of the Total Environment* **419**, 60–67.
- López-Gutiérrez, J.M., Santos, F.J., García-León, M., Schnabel, Ch., Synal, H.-A., Ernst, Th., Szidat, S. (2004): Levels and temporal variability of ^{129}I concentrations and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ isotopic ratios in atmospheric samples from southern Spain. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **223–224**, 495–500.
- Luo, M., Hou, X.L., Zhou, W., He, C., Chen, N., Liu, Q., Zhang, L. (2013): Speciation and migration of ^{129}I in soil profiles. *Journal of Environmental Radioactivity* **118**, 30-39.
- Martino, M., Mills, G.P., Woeltjen, J., Liss, P.S. (2009): A new source of volatile organoiodine compounds in surface seawater. *Geochemical Research Letters* **36**, 5 S.
- McFiggans, G., Plane, J.M.C., Allen, B.J., Carpenter, L.J. (2000): A modeling study of iodine chemistry in the marine boundary layer. *Journal of Geophysical Research* **105** (D11), 14371-1438.
- Méndez-Díaz, J.D., Shimabuku, K.K., Ma, J., Enumah, Z.O., Pignatello, J.J., Mitch, W.A., Dodd, M.C. (2014): Sunlight-Driven Photochemical Halogenation of Dissolved Organic Matter in Seawater: A Natural Abiotic Source of Organobromine and Organoiodine. *Environ. Sci. Technol.* **48**, 7418–7427.
- Michel, R. (1999): Long-Lived Radionuclides as Tracers in Terrestrial and Extraterrestrial Matter. *Radiochimica Acta* **87**, (1-2), 47–73.
- Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D.; Vahlbruch, J., Synal, H.-A.; Schnabel, C. (2004): Ableitungen von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129. Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4285, BMU, 228 S.

- Michel, R.; Daraoui, A.; Gorny, M.; Jakob, D.; Sachse, R.; Tosch, L.; Nies, H.; Goroncy, I.; Herrmann, J.; Synal, H.-A.; Stocker, M.; Alfimov, V. (2012): Iodine-129 and iodine-127 in European seawaters and in precipitation from Northern Germany. *Science of the Total Environment* **419**, 151–169.
- Miyake, Y., Tsunogai, S. (1963): Evaporation of Iodine from the Ocean. *Journal of Geophysical Research* **68**, 13, 3989–3993.
- Moor, A. (2013): Ein Methodenvergleich zur ^{129}I Bestimmung in Aerosolfiltern. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, 47 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=2013](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=2013)
- Moran, J.E., Fehn, U., Teng, R.T.D. (1998): Variations in $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component. *Chemical Geology* **152**, 193–203.
- Moyers, J.L., Duce, R.A. (1972): Gaseous and Particulate Iodine in the Marine Atmosphere. *Journal of Geophysical Research* **77** (27), 52
- Muramatsu, Y., Yoshida, S. (1999): Effects of Microorganisms on the Fate of Iodine in the Soil Environment. *Geomicrobiology Journal* **16**, 85–93.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S., Fehn, U., Amachi, S., Ohmomo, Y. (2004): Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment. *Journal of Environmental Radioactivity* **74**, 221–232.
- Nies, H.; Goroncy, I.; Herrmann, J.; Michel, R.; Daraoui, A.; Gorny, M.; Jakob, D.; Sachse, R.; Tosch, L. (2010): Kartierung von Tc-99, I-129 und I-127 im Oberflächenwasser der Nordsee. Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4481, Bundesamt für Strahlenschutz, 204 S. www.bsh.de/de/Meeresdaten/Beobachtungen/Radioaktivitaet/StSch4481Endbericht280709.pdf
- O'Dowd, C.D., Hoffmann, T. (2005): Coastal new particle formation: A review of the current state-of-the-art. *Environ. Chem.* **2**, 245–255.
- O'Dowd, C.D., de Leeuw, G. (2007): Marine aerosol production: a review of the current knowledge. *Phil. Trans. R. Soc. A.*, **365**, 1753–1774.
- Persson, S., Aldahan, A., Possnert, G., Alfimov, V., Hou, X. (2007): ^{129}I Variability in precipitation over Europe. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **259**, 508–512.
- Rahn, K.A., Borys, R.D., Duce, R.A. (1976): Tropospheric Halogen Gases: Inorganic and Organic Components. *Science* **192**, 549–550.
- Reithmeier, H., Lazarev, V., Kubo, F., Rühm, W., Nolte, E. (2005): ^{129}I in precipitation using a new TOF system for AMS measurements. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **239**, 273–280.
- Reithmeier, H., Lazarev, V., Rühm, W., Nolte, E. (2010): Anthropogenic ^{129}I in the atmosphere: Overview over major sources, transport processes and deposition pattern. *Science of the Total Environment* **408**, 5052–5064.

- Rao, U., Fehn, U. (1999): Sources and Reservoirs of Anthropogenic Iodine-129 in Western New York. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63** (13/14), 1927-1938.
- Sabu, D.D. (1971): On mass-yield of xenon and krypton isotopes in the spontaneous fission of uranium. *J. Inorg. Nucl. Chem.* **33**, 1509-1513.
- Saiz-Lopez, A., Plane, J.M.C., Baker, A.R., Carpenter, L.J., von Glasow, R., Gómez Martín, J.C., McFiggans, G., Saunders, R.W. (2012): Atmospheric Chemistry of Iodine. *Chem. Rev.* **112**, 1773–1804.
- Saunders, R.W. Kumar, R., Gómez Martín, J.C., Mahajan, A.S., Murray, B.J., Plane, J.M.C. (2010): Studies of the Formation and Growth of Aerosol from Molecular Iodine Precursor. *Z. Phys. Chem.* **224**, 1095–1117.
- Schink, D.R., Santschi, P.H., Corapcioglu, O., Sharma, P., Fehn, U. (1995): ^{129}I in Gulf of Mexico waters. *Earth and Planetary Science Letters* **135**, 131-138.
- Schmidt, A. (1998): ^{129}I und stabiles Iod in Umweltproben. Qualitätskontrolle von Analysenmethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie. Dissertation Leibniz Universität Hannover, 229 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=1998](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=1998)
- Schnabel, C., Lopez-Gutierrez, J. M., Szidat, S., Sprenger, M., Wernli, H., Beer, J., Synal, H.-A. (2001): On the origin of ^{129}I in rain water near Zürich. *Radiochim. Acta* **89**, 815–822.
- Schwinger, M. (2014): Deutschlandweite Untersuchung der ^{129}I - und ^{127}I -Inventare und ihres Isotopenverhältnisses in verschiedenen Umweltkompartimenten. Dissertation Leibniz Universität Hannover, 159 S.
- Sellafield Ltd. (2013), Annual discharge & monitoring reports, 1999-2012. <http://sustainability.sellafieldsites.com/environment/environment-page/annual-discharge-monitoring-reports/> (zuletzt aufgerufen: 13.08.2014)
- Shetaya, W.H., Young, S.D., Watts, M.J., Ander, E.L., Bailey, E.H. (2012): Iodine dynamics in soils. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **77**, 457–473.
- Snyder, G., Aldahan, A., Possnert, G. (2010): Global distribution and long-term fate of anthropogenic ^{129}I in marine and surface water reservoirs. *Geochem. Geophys. Geosyst.* **11** (4), 19 S.
- Sunny, F., Nair, R.N., Chopra, M., Puranik, V.D. (2014): Global environmental transfer of ^{129}I . *Annals of Nuclear Energy* **65**, 320–324.
- Szidat, S. (2000): Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien. Dissertation Universität Hannover, 218 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=2000](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=2000)
- Thompson, A.M., Zafiriou, O.C. (1983): Air-Sea Fluxes of Transient Atmospheric Species. *Journal of Geophysical Research* **88**, (C11), 6696-6708.

- Tosch, L. (2010): Kontamination von Nord- und Ostsee mit langlebigem Iod-129 und anderen anthropogenen Radionukliden. Dissertation Leibniz Universität Hannover, 280 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=2010](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=2010)
- UNSCEAR 1982: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly of the United Nations.
- Vaattovaara, P., Huttunen, P.E., Yoon, Y.J., Joutsensaari, J., Lehtinen, K.E.J., O'Dowd, C.D., A. Laaksonen, A. (2006): The composition of nucleation and Aitken modes particles during coastal nucleation events: evidence for marine secondary organic contribution. *Atmos. Chem. Phys.* **6**, 4601-4616.
- Wershofen, H., Aumann, D.C. (1989): Iodine-129 in the Environment of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant: VII. Concentrations and Chemical Forms of ¹²⁹I and ¹²⁷I in the Atmosphere. *J. Environ. Radioactivity* **10**, 141-156.
- Whitehead, D. C. (1984): The distribution and transformation of iodine in the environment. *Environment International* **10**, 321-339.

2 Auswahl der Probenahmestandorte

Da das Ziel des Vorhabens eine Bundesweite Bilanzierung vorhandener Iodinventare (Boden), bzw. die Untersuchung der atmosphärischer Einträge (Aerosole, Niederschläge) und der Transport von ^{129}I und ^{127}I mit dem Oberflächenwasser war, musste für die Probenahme jeweils ein hinreichend dichtes Raster gewählt werden. Die kontinuierlichen Probenahmeprozesse wurden von unterschiedlichen Einrichtungen (s.u.) unterstützt, so dass sich hieraus zum Teil bereits eine Festlegung auf eine bestimmte Anzahl an Probenahmestellen oder bestimmte Standorte ergab.

2.1 Standorte für das Sammeln von Aerosolproben

Zur Erfassung des Eintrags von ^{129}I über den Luftpfad wurden vier Stationen des integrierten Mess- und Informationssystems zur Überwachung der Umweltradioaktivität (kurz IMIS) ausgewählt, das vom Bundesamt für Strahlenschutz betrieben wird. Das IMIS wurde auf Grundlage des Strahlenschutzvorsorgegesetzes [StrVG 1986/2008] als Folge des Reaktorunfalls von Chernobyl 1986 eingerichtet, und überwacht kontinuierlich die Umweltradioaktivität in allen Umweltbereichen. Die von uns gewählten Standorte sind im europäischen 'sparse network' (s. Abb. 2.1) zusammengefasst und gehören zu unterschiedlichen Einrichtungen: Braunschweig / 'North' (PTB), Potsdam / 'East' (DWD), Offenbach / 'Central' (DWD), Freiburg-Schauinsland / 'South' (BfS) [JRC; Wershofen und Arnold 2005]. Als Ergänzung wurden Proben von der Radioaktivitätsmessstation in Hannover-Langenhagen gesammelt und ausgewertet (vergl. Kap. 4.1).

2.2 Standorte für das Sammeln von Niederschlagsproben

Das Sammeln der Niederschlagsproben wurde von zehn der 48 Radioaktivitätsmessstellen des Deutschen Wetterdienstes übernommen: Norderney, Essen-Bredeney, Schleswig, Hannover-Langenhagen, Potsdam, Görlitz, Offenbach, Lahr, Nürnberg und München-Oberschleißheim (s. Abb. 2.2).

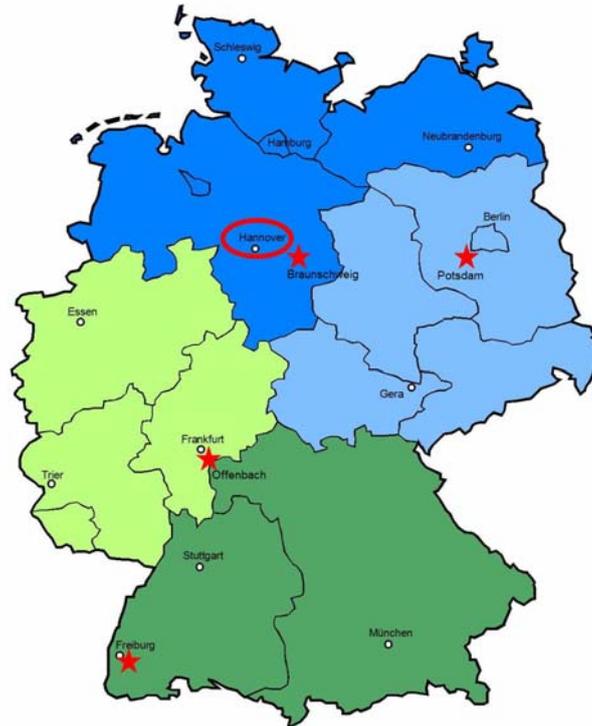


Abb. 2.1: Standorte des europäischen 'sparse network' (rote Sterne) in Deutschland, an denen Aerosolproben für die ^{129}I -Analyse gesammelt wurden. Die ovale Markierung bezeichnet den DWD-Standort Hannover-Langenhagen.



Abb. 2.2: Standorte der Radioaktivitätsmessstationen des DWD, an denen Niederschlagsproben für die ^{129}I -Analyse gesammelt wurden.

2.3 Standorte für die Beprobung von Fließgewässern

Das Strahlenschutzvorsorgegesetz sieht weiterhin vor, dass die deutschen Wasserstraßen in Bezug auf radioaktive Stoffe großräumig überwacht werden. Diese Aufgabe wird von der Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG) ausgefüllt. Von den 40 Messstationen, die das BfG kontinuierlich betreibt, wurden 15 Stationen für die Probenahme zur ^{129}I -Analyse ausgewählt. Da nur der Austrag von ^{129}I über die großen Flüsse betrachtet werden sollte, wurde bei der Auswahl der Standorte der Tidenbereich ausgespart, um eine Beeinflussung der Ergebnisse durch Vermischung mit Seewasser zu vermeiden.

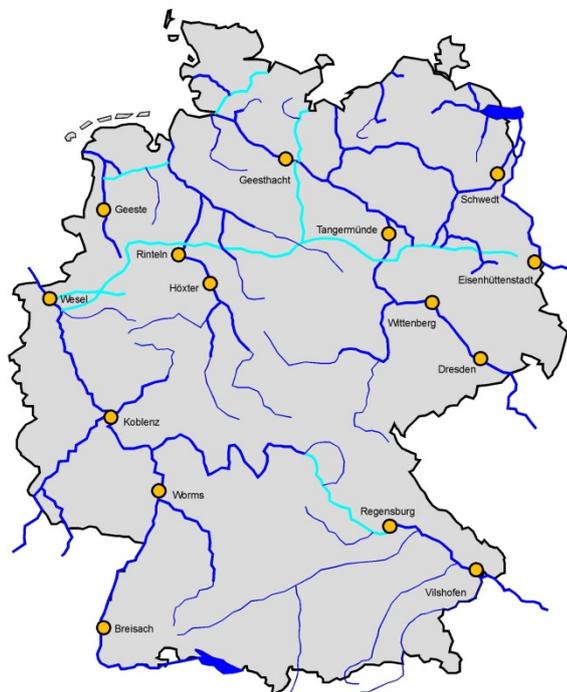


Abb. 2.3: Standorte Messstationen der BfG, an denen Proben für die ^{129}I -Analyse aus den Bundeswasserstraßen entnommen wurden.

2.4 Standorte für die Entnahme von Bodenproben

Für die Entnahme von Bodenproben sollten etwa 30 Standorte (s. Abb. 2.4) identifiziert werden. Wichtigstes Auswahlkriterium bei der Suche war, dass es sich um Grünlandflächen handeln sollte, die für einen Zeitraum von mehreren Jahren, im Idealfall mehreren Jahrzehnten, nicht umgebrochen worden sind. Zunächst fiel die Wahl auf die Rasenflächen der Messfelder des DWD, auf denen auch die Niederschlags- und z.T. Aerosol-Proben gesammelt wurden (s. Abschnitt 2.2), sowie einige zusätzliche

Messfelder (Angermünde-Kerkow, Aachen, Trier, Stötten, Fürstenzell). Hier handelt es sich um Rasenflächen, die keinerlei Bodenbearbeitung erfahren. Drei der Flächen erwiesen sich jedoch im Nachhinein als ungeeignet (Offenbach, Oberschleißheim, Aachen). Darüber hinaus wurden Grünlandflächen aus dem Bodendauerbeobachtungsprogramm der geologischen Landesämter [UBA, 2012] für besonders geeignet erachtet (Nordenham, Biendorf, Neu-Boltenhagen, Ankershagen, Gohre, Bad Arolsen, Lehmühle, Oberweißbach, Breungeshain). Die Bayrische Landesanstalt für Landwirtschaft stellte ebenfalls zwei Flächen zur Verfügung (Puch, Kempten).

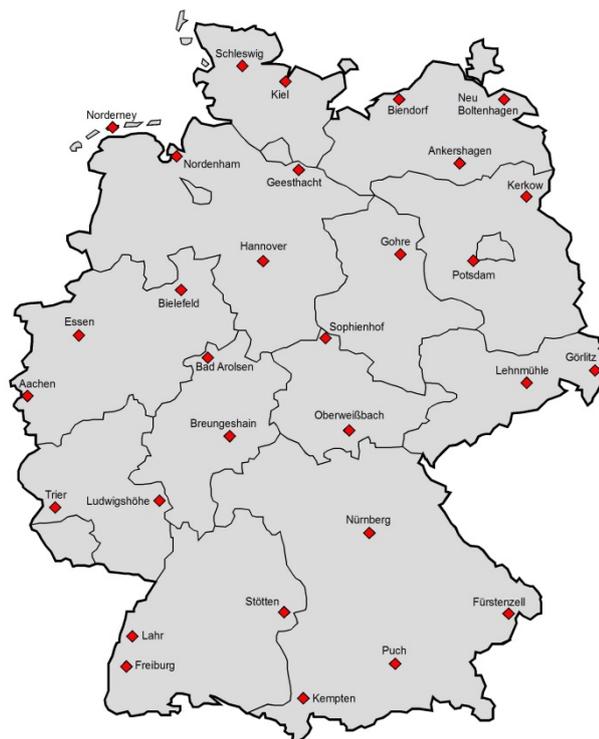


Abb. 2.4: Standorte für die Entnahme von Bodenproben zur ^{129}I -Analyse.

Da jedoch nicht in allen Bundesländern geeignete Dauerbeobachtungsflächen (Grünland, skelettarm) zur Verfügung standen, musste in einigen Fällen auf andere Parzellen zurückgegriffen werden: in Schleswig-Holstein wurde eine Fläche des Max-Rubner-Instituts in das Probenahmeprogramm aufgenommen, weiterhin eine Rasenflächen in einem öffentlichen Park der Gemeinde Ludwigshöhe (Landesamt für Umwelt, Wasserwirtschaft und Gewerbeaufsicht Rheinland-Pfalz), eine Rasenfläche in einem Privatgarten in Bielefeld, eine Wiese neben der Versuchsstation des BfS auf dem Schauinsland, sowie eine Versuchsfläche der Thüringer Landesanstalt für Landwirtschaft in Sophienhof.

Zusätzliche Angaben zu den einzelnen Flächen finden sich in Tabelle A.1 in Anhang A. Auf Angabe der genauen Koordinaten einiger Flächen wurde aus Datenschutzgründen verzichtet. Hier sind die Koordinaten der nächstgelegenen Ortschaft angegeben.

2.5 Literatur zu Kapitel 2

JRC: Environmental Radioactivity in the European Community. European Commission, Directorate General Joint Research Centre, Institute for Environment and Sustainability, Ispra. 15 S.

StrVG (1986, 2008): Gesetz zum vorsorgenden Schutz der Bevölkerung gegen Strahlenbelastung (Strahlenschutzvorsorgegesetz - StrVG), Strahlenschutzvorsorgegesetz vom 19. Dezember 1986 (BGBl. I S. 2610), das zuletzt durch Artikel 1 des Gesetzes vom 8. April 2008 (BGBl. I S. 686) geändert worden ist

UBA (2012): Bodendaten in Deutschland – Übersicht über die wichtigsten Mess- und Erhebungsaktivitäten für Böden. Umweltbundesamt - Fachgebiet II 2.7, Dessau-Roßlau, 135 S.

Wershofen, H., Arnold, D. (2005): Radionuclides in Ground-level Air in Braunschweig – Report of the PTB Trace Survey Station from 1998 to 2003. Report PTB-Ra-45. 70 S.

3 Probenahme, -vorbereitung und -messung

3.1 Aerosole

Gewinnung von Aerosolproben

Neben der kontinuierlichen, z.T. vollautomatischen Überwachung der Luft auf natürliche und der künstliche Radioaktivität, so z.B. auf gasförmiges und aerosolgebundenes ^{131}I , wird von den beteiligten Radioaktivitätsmessstationen in Deutschland auch eine Spurenanalyse durchgeführt. Spurenmessungen am Luftstaub sind ein Bestandteil des integrierten Mess- und Informationssystems IMIS. Hierzu werden vom BfS, dem DWD und der PTB Luftstaubsammler an 43 Probenentnahmeorten betrieben. An vier Stationen sind außerdem sogenannte high-volume aerosol sampler (Abb. 3.1a) im Einsatz [Aures et al. 2007]. Die Stationen (Schauinsland bei Freiburg/BfS, Braunschweig/PTB, Potsdam/DWD, Offenbach/DWD) sind in Abbildung 2.1 dargestellt.

Im Rahmen dieses Projekts wurden Glasfaserfilter von 5 cm Durchmesser, die als Vorfilter für die Adsorberpatronen der Iodsammler [Aures et al. 2007] (Prinzip beschrieben in [Heckel 2008]) (Abb. 3.1) dienen, untersucht.

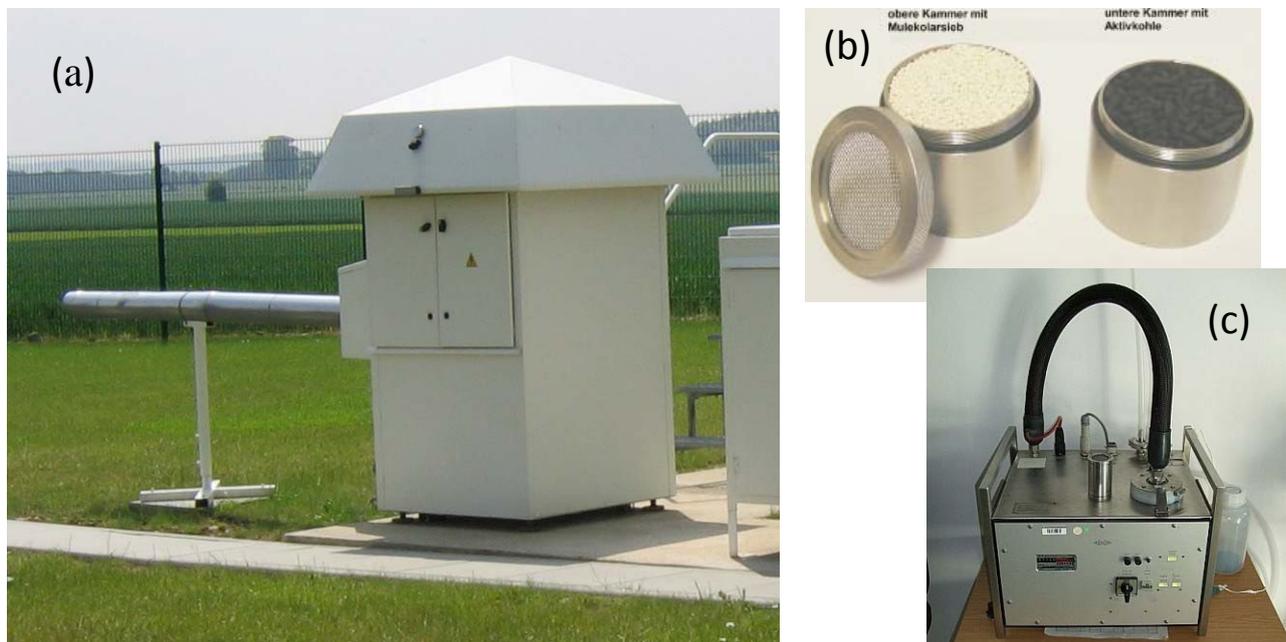


Abb. 3.1: (a) High-Volume-Sampler an der Radioaktivitätsmessstelle des DWD in Aachen; (b, c) Iod-Sammler zur Erfassung von gasförmigem Iod mit Adsorberpatrone, gefüllt mit Adsorbergranulat und Aktivkohle.

Auf den Vorfiltern wird aerosolpartikelgebundenes Iod mit einem Rückhaltegrad von ca. 99% abgeschieden, während die Adsorberpatronen gasförmiges organisch gebundenes und elementares Iod zurückhalten. Die Filter wurden im Zeitraum von März 2011 bis Februar 2013 von den Stationen in Offenbach, Potsdam, Freiburg, und zusätzlich von der DWD-Messstation in Hannover-Langenhagen zur Verfügung gestellt. Die Filter werden mit einem Luftdurchsatz von 2,3 bis 2,6 m³/h besaugt. Wechsel finden, nach dem Grad der Verschmutzung, einmal pro Tag bis einmal pro Woche statt. Für die ¹²⁹I-Analysen wurden in der Regel jeweils die Filter eines Monats zusammengefasst.

Für den Standort Braunschweig wurden aliquote Teile der Filter aus dem high-volume sampler (Typ ASS 500) analysiert. Dieser ist mit 54,5 x 54,5 cm großen Polypropylen-Filtern bestückt, die mit einem Durchsatz von durchschnittlich 800 m³ Luft pro Stunde für einen Zeitraum von einer Woche besaugt werden.

Vorbereitung der Aerosolproben

Für die Vorbereitung der Aerosolfilter wurde eine alkalische Suspensionsmethode verwendet, die bei Szidat (2000) näher beschrieben ist und für das vorliegende Projekt leicht abgewandelt wurde. Im Wesentlichen besteht sie darin, die besaugten Filter in natronlaugehaltiger Lösung zu kochen, die Lösung anschließend anzusäuern, das Iodid zu oxidieren und das entstandene elementare Iod mit Chloroform zu extrahieren. Schließlich wird in dem Extrakt das Iod mit Silbernitrat gefällt und mit Silberpulver in einen Targethalter gepresst. Die Einzelheiten des Verfahrens sind in Abb. B.1 im Anhang B dargestellt. Ein Aliquot der Probe für die Bestimmung des ¹²⁷I-Gehaltes über ICP-MS-Messung wird im Unterschied zu der von Szidat (2000) beschriebenen Methode vor der Chloroform-Extraktion entnommen. Dadurch kann die Ausbeute bei der Extraktion auf >90% verbessert und anschließend kann bereits Trägeriod zugesetzt werden.

Bei der Vorbereitung der Proben für die AMS-Messung muss wegen der geringen Iodkonzentrationen ein ¹²⁹I-ärmerer Iodträger, das sog. Woodward-Iod, zugegeben werden. Woodward-Iod wird aus Sole aus großen Tiefen gewonnen, deren Alter auf 300 Millionen Jahre geschätzt wird und deren ¹²⁹I/¹²⁷I-Verhältnis bei $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{14}$ liegt [Boaretto et al. 1994].

Für einen Teil der Proben (DWD Langenhagen) wurde zum Vergleich zusätzlich eine trockene Veraschung analog zur Vorbereitung von Bodenproben durchgeführt (siehe dort), allerdings mit dem Unterschied, dass die zerkleinerten Filter in einem Porzellschiffchen in das Verbrennungsrohr (Quarz) geschoben wurden. Die Ergebnisse sind in der Bachelorarbeit von Andreas Moor (2013) dargestellt.

3.2 Niederschlag

Gewinnung von Niederschlagsproben

Ziel der dafür zuständigen Messstationen des Deutschen Wetterdienstes ist die quantitative Erfassung der mit dem Niederschlag abgelagerten Radionuklide. Hierfür wird die nasse Deposition, also durch rain-out oder wash-out aus der Atmosphäre ausgebrachte Radionuklide, gesammelt und im Routinebetrieb zu monatlichen Proben zusammengefasst.

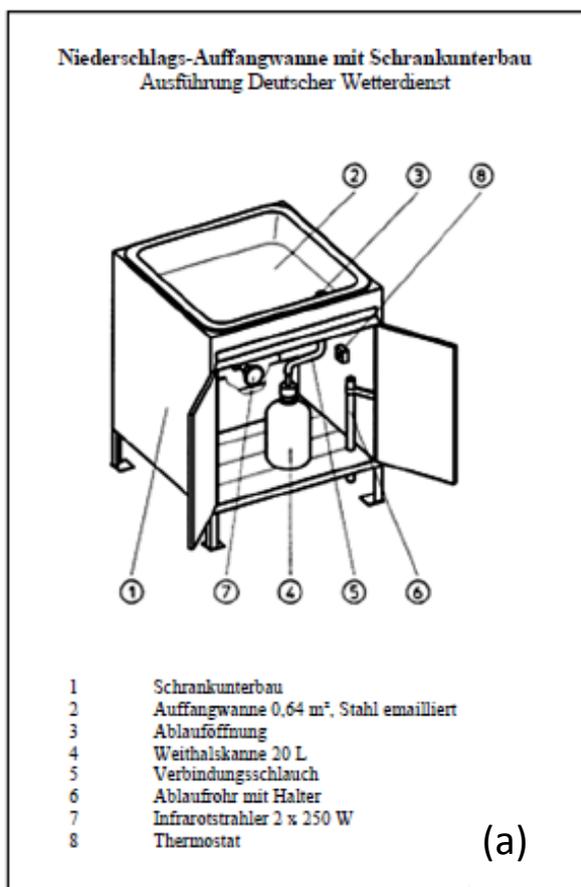


Abb. 3.2: (a) Schematische Darstellung der Niederschlagssammler an den Radioaktivitätsmessstellen des DWD [FS, 2010]; (b, c) Sammler an der Messstelle in Hannover-Langenhagen.

In den Niederschlagssammlern, die aus einer beheizbaren Wanne aus emailliertem Edelstahl von ca. 0,64 m² Fläche bestehen (Abb. 3.2), wird der Niederschlag in einem Behälter aufgefangen, der täglich geleert und dessen Inhalt eingengt und zu Monatsproben zusammengefasst wird.

Für das von uns bearbeitete Projekt wurde zusätzlich die trockene Deposition, d.h. Aerosolpartikel, die als Schwebstaub abgelagert werden, gesammelt, indem eine der Wannern an niederschlagsfreien Tagen mit einer vorher festgelegten Menge an deionisiertem Wasser gespült wurde. Das Spülen wurde von den einzelnen Stationen etwas unterschiedlich gehandhabt: 7 der 10 Stationen verwendeten 500 mL, 2 spülten mit je 1000 mL, eine Station variierte die Menge bei jeder Spülung. Für die Berechnung der ¹²⁹I-Konzentration im Niederschlag muss dieses Volumen abgezogen werden. Somit sind sowohl der Beitrag der nassen, wie auch der trockene Deposition im Ergebnis enthalten und können nicht voneinander getrennt betrachtet werden. Die tatsächliche Niederschlagshöhe wird mit einem separaten Sammelbehälter bestimmt.

Über einen Zeitraum von zwei Jahren (März 2011 bis Februar 2013) wurden für die Iod-Analyse von den täglich eingesammelten Niederschlagsmengen jeweils 5 % als aliquote Teile abgetrennt und in 2 L-Polyethylenflaschen zu Monatsproben zusammengefasst. Ein Datenerfassungsblatt befindet sich als Beispiel im Anhang B (Abb. B.3). Die Proben wurden bis zur Abholung bzw. bis zum Versand kühl und dunkel (Kühlschrank) aufbewahrt. Bei längerer Lagerung bis zur Probenvorbereitung wurden ca. 20 mL pro Liter Probenvolumen an 0,5 M NaOH zur Stabilisierung zugegeben.

Vorbereitung der Niederschlagsproben

Für die ICP-MS-Messung der Niederschlagsproben wurde jeweils ein 10 mL Aliquot von der Gesamtprobe abgetrennt und durch einen Filter von 0,45 µm Porendurchmesser gegeben. Zur Vorbereitung der Proben für die AMS-Messung wurde das enthaltene Iod nach Zugabe von 3 mg des Trägers zunächst vollständig zu Iodat umgesetzt, anschließend zu Iodid reduziert und dann auf ein mit Nitrat konditioniertes Austauscherharz (DOWEX® 1x8) gegeben. Nach der Elution wurde das Iod als Silberiodid ausgefällt. Einzelheiten des Verfahrens sind in Abb. B.2 in Anhang B dargestellt.

3.3 Fließgewässer

Entnahme von Wasserproben

Im Zeitraum von Januar 2011 bis März 2013 wurden von 15 der insgesamt 40 Radioaktivitäts-Warnstellen der Bundesanstalt für Gewässerkunde (s. Abb. 2.3), an denen mit Hilfe von automatischen Probennehmern kontinuierlich Wasserproben gesammelt werden (Abb. 3.3), aliquote Anteile von je 1 L pro Monat abgetrennt und in Polyethylenflaschen gefüllt. Da die Proben bis zum Transport für einen gewissen Zeitraum gelagert werden mussten, wurden nach dem Abfüllen in jede Flasche 20 mL 0,5 M NaOH zur Stabilisierung zugegeben. Für die Analyse wurden in der Regel jeweils drei Monatsproben zu Quartalsproben zusammengefasst.



Abb. 3.3: Automatische Fließgewässer-Probenahme (Radioaktivitätsmessstation der BfG in Rockenau/Neckar) [Dersch 2006].

Vorbereitung der Wasserproben

Die Flusswasserproben wurden in gleicher Weise für die Messungen vorbereitet wie die Niederschlagsproben (vergl. Abschnitt 3.2.2).

3.4 Boden

Entnahme von Bodenproben

Bodenproben wurden aus 5 verschiedenen Tiefen entnommen: 0-5, 5-10, 10-20, 20-30 und 30-50 cm. Dafür kamen drei Edelstahl-Borhrstöcke unterschiedlichen Durch-



Abb. 3.4: Verwendete Bohrstöcke.



Abb. 3.5: Mit dem Bohrstock entnommene ‚Bohrkerne‘.



Abb. 3.6: Entnahme von Stechzylinderproben.

messers und verschiedener Längen zum Einsatz. Der Bohrer für die Proben aus 0-5 bzw. 5-10 cm hatte einen Durchmesser von 45 mm. Die Proben aus 10-20 und aus 20-30 cm wurden mit einem 35-mm-Bohrer entnommen, die Proben aus 30-50 cm Tiefe mit einem 20-mm-Bohrer.

An jedem der Standorte wurden auf einer Fläche von ca. 100 m² zwischen 8 und 15 Bohrungen je Tiefe vorgenommen und zu Mischproben vereinigt, um ausreichend große Probenmengen (> 1 kg) zu erhalten, die für die beschränkte Flächengröße als repräsentativ betrachtet werden kann. Für jede der untersuchten Flächen wurden zusätzlich Stechzylinderproben zur Bestimmung der Lagerungsdichte des Bodens entnommen [DIN EN ISO 11272 1998 bzw. 2014].

Vorbereitung der Bodenproben

Das Probenmaterial wurde zunächst von Hand grob zerkleinert und in sauberen Aluminiumschalen ausgebreitet. Um Iodverluste zu vermeiden, erfolgte die Trocknung bis zum Erreichen der Gewichtskonstanz bei Raumtemperatur im Dunkeln. Die Ermittlung des für die Korrektur der Einwaage nötigen Restwassergehaltes des Bodens wurde durch Trocknung bei 105 °C nach DIN 18121-1 (1998) an drei Teilproben direkt vor der Analyse bestimmt. Die lufttrockenen Proben wurden gemörsert und durch ein Sieb mit einer Maschenweite von 2 mm gegeben.

Für die Iod-Extraktion wurden 15 bzw. 20 g lufttrockener Boden zusammen mit ¹²⁵I als Ausbeute-Tracer in ein Quarzrohr gefüllt und unter Sauerstoffüberschuss und Auswaschung der Verbrennungsgase in alkalischer Hydrogensulfitlösung trocken verascht. Die Einwaage, sowie die Zugabe des Trägeriods wurde dem jeweils zu erwartenden Iod-Gehalt angepasst (s. Tabelle A.2 im Anhang A).

Aus der Absorptionslösung wurde vor Zugabe des Trägeriods (Woodward-Iod) eine Teilprobe für die ICP-MS-Messung entnommen. Aus der verbleibenden Lösung wurde das Iod unter Zugabe von Silbernitrat als Silberiodid ausgefällt. Einzelheiten des Verfahrens finden sich in den Arbeiten von Schmidt (1998), Ernst (2003), Klipsch (2005) und Daraoui (2010).

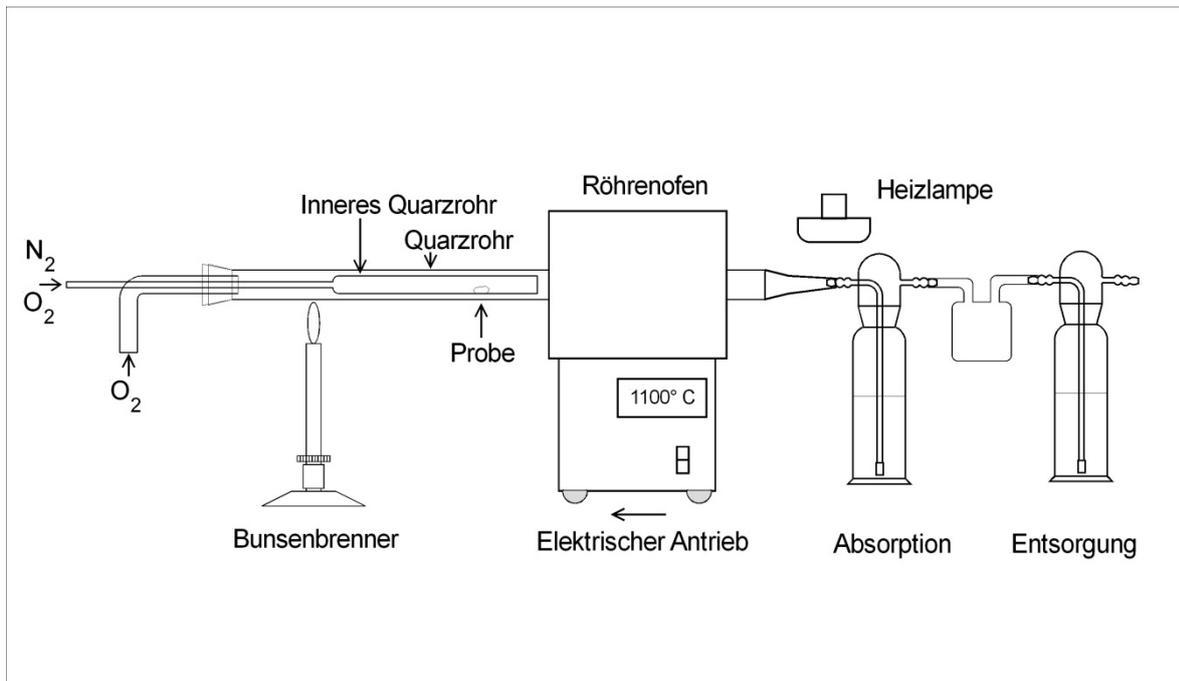


Abb. 3.7: Schematischer Aufbau der Iod-Extraktionsapparatur für Boden- und Filterproben.

3.5 Messverfahren

3.5.1 ICP-MS

Die ICP-MS Messungen wurden am Institut für Anorganische Chemie (Leibniz Universität Hannover / Arbeitsgruppe Analytische Chemie) mit einem 'Thermo X7' (Quadrupol ICP-MS) der Firma Thermo Fisher Scientific durchgeführt.

Zur Quantifizierung dient eine Iodid-Kalibrationsreihe im Bereich 0,2 bis 7,5 ppb. Die Proben werden vor der Messung anhand von Erfahrungswerten mit Reinstwasser so weit verdünnt, dass sie im Kalibrationsbereich liegen. Bei Abweichung muss mit angepasster Verdünnung wiederholt werden. Der Verdünnungsfaktor für die in diesem Projekt gemessenen Proben lag für Wasser bei 1:2, für die Aerosolfilter zwischen 1:4 und 1:10, und für Bodenproben zwischen 1:200 und 1:1000.

Neben ^{127}I werden bei jeder Messung die Werte für ^{129}Xe und ^{132}Xe als interne Standards aufgenommen. Bei der Auswertung wird das Verhältnis von ^{127}I zu ^{129}Xe berücksichtigt. Einzelheiten zum Messverfahren können bei Szidat (2000) und Ernst (2003) nachgelesen werden.

3.5.2 AMS

Für die Messung am Beschleunigermassenspektrometer (AMS) wurden die getrockneten Silberiodid-Proben in der Regel im Verhältnis 1:4 mit Silberpulver gemischt und anschließend in Probenhalter aus Titan gepresst. Die Vorbereitung der Proben erfolgte am IRS, die Messung selbst am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich mit dem Beschleunigermassenspektrometer-System 'Tandy' (Abb. 3.8).

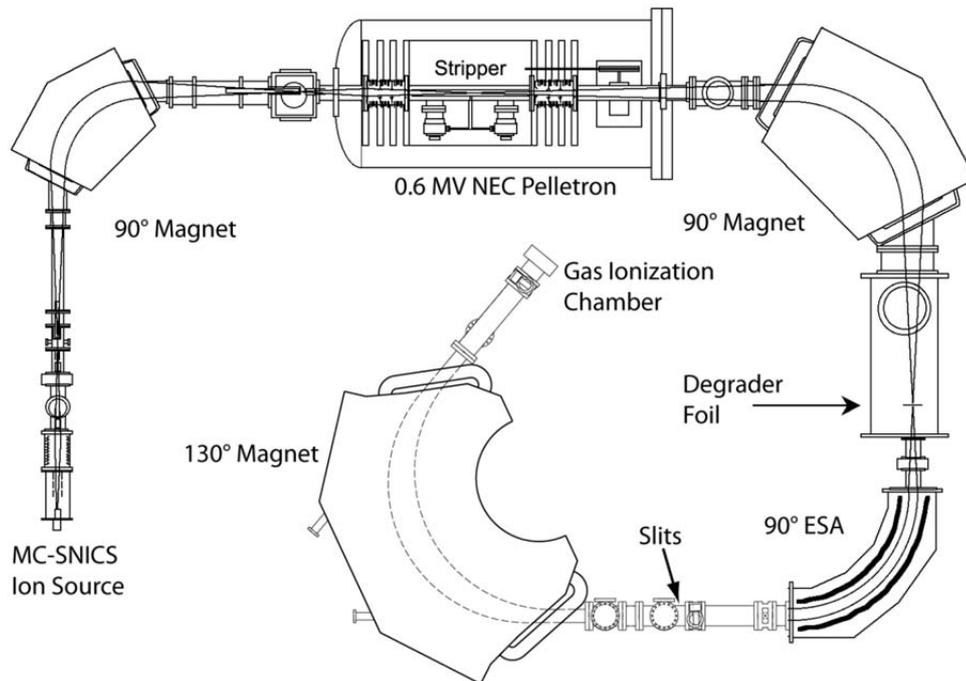


Abb. 3.8: AMS 'Tandy' am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich (<http://www.ams.ethz.ch/instruments/tandy>).

Aus dem gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis, der Trägerzugabe, dem über ICP-MS-Messung ermittelten Gehalt an ^{127}I und der Probeneinwaage lassen sich der ^{129}I -Gehalt und das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis der ursprünglichen Probe berechnen.

3.5.3 Bodenanalysen

Zur Charakterisierung der untersuchten Standorte wurden einige bodenkundliche Parameter untersucht. Neben Bestimmung von pH-Wert und Korngrößenverteilung wurden die Gehalte an Oxiden und organischem Kohlenstoff untersucht. Von einer Profilsprache bei der Probenahme und von weitergehenden Laboruntersuchungen wurde abgesehen, da dies zum einen nicht tolerierbare Veränderungen an den beprobten Flächen verursacht und zum anderen den vorgesehenen Zeitrahmen gesprengt hätte. Die Ergebnisse der bodenkundlichen Untersuchungen finden sich in Tab. A.10 im Anhang A.

pH-Wert und Gehalt an organischem Kohlenstoff: Die Bestimmung des pH-Wertes erfolgte nach DIN EN 15933 (2012) in 0,01 M CaCl_2 -Lösung. Bei Böden, deren pH-Wert oberhalb von pH 6,9 lag, wurde zusätzlich eine Analyse des Carbonatgehaltes [DIN EN ISO 10693 1995 bzw. 2014] vorgenommen. Die Kohlenstoff-Analyse wurde mit einem CNS-Analysator 'Vario EL Cube' der Firma elementar durchgeführt, bei dem die Bodenproben im Sauerstoffstrom verascht werden. Als Ergebnis erhält man den Gesamtkohlenstoffgehalt, der nach Abzug des in den Carbonaten enthaltenen Kohlenstoffs den Gehalt an organischem Kohlenstoff ergibt.

Eisen-, Aluminium-, Mangan(hydr)oxide: Die dithionitlöslichen bzw. oxalatlöslichen Anteile der in den Böden enthaltenen Eisen-, Aluminium-, Mangan(hydr)oxide wurden nach einer internen Arbeitsvorschrift (Inst. f. Bodenkunde, Leibniz Universität Hannover) in Anlehnung an DIN EN ISO 12782-2 (2012) bzw. DIN EN ISO 12782-3 (2012) extrahiert und mittels ICP-OES ('iCAP 600', Thermo Scientific) gemessen.

Korngrößenverteilung: Die Korngrößenverteilung der Böden wurde nach Zerstörung von organischer Substanz und Entfernung von löslichen Salzen, Carbonaten und Oxiden mittels Nasssiebung und Sedimentation nach DIN ISO 11277 (2002) bestimmt.

3.5.4 Qualitätssicherung und Auswertung

Als Maßnahme zur Qualitätssicherung der ^{129}I -Analysen für Bodenproben wurde in regelmäßigen Abständen Referenzmaterial (IAEA Soil-375) analysiert. Die Ergebnisse dieser Überprüfung sind in der Dissertation von Schwinger (2014) dargestellt.

Auswertung der durchgeführten Messungen basiert auf den Vorgaben des ISO 'Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement' (GUM) [DIN V ENV 13005 1999] und der DIN ISO 11929 (2011) für die Bestimmung der Meßunsicherheiten und der charakteristischen Grenzen. Die Vorgehensweise ist in den Arbeiten von Daraoui (2010) und Tosch (2010) ausführlich beschrieben.

3.6 Literatur zu Kapitel 3

- Aures, R., Bieringer, J., Frenzel, E., Neu, A., Steinkopff, Th., Völkle, H., Wershofen, H. (2007): Repräsentative Aerosolsammlung zur Erfassung radioaktiver Immissionen. Fachverband Strahlenschutz, Loseblattsammlung FS-78-15-AKU, Blatt 3.4.7, 27 S.
- Boaretto, E., Berkovits, D., Delmas, R., Johnson, R.R., Kaufman, A., Magaritz, M., Paul, M., Pourchet, M. (1994): Measurements of anthropogenic radionuclides in environmental samples; Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B92, 350-356.
- Daraoui, A. (2010): Migration von Iod-129 und Retrospektive Dosimetrie. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 211 S., <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh10/62787097X.pdf>
- Dersch, G. (2006): Die Überwachung der Bundeswasserstraßen auf radioaktive Stoffe - Historie, Konzept und Ergebnisse. 15. Chemisches Kolloquium der BfG am 27. September 2006 in Koblenz, Vortrag.
- DIN EN ISO 11272 (2014): Bodenbeschaffenheit – Bestimmung der Trockenrohdichte (ISO 11272:1998). Deutsche Fassung, Juni 2014.
- DIN 18121-1 (1998): Baugrund, Untersuchung von Bodenproben – Wassergehalt - Teil 1: Bestimmung durch Ofentrocknung. Fassung April 1998.
- DIN EN 15933 (2012): Schlamm, behandelter Bioabfall und Boden – Bestimmung des pH-Werts. Deutsche Fassung, November 2012.
- DIN EN ISO 10693 (2014): Bodenbeschaffenheit – Bestimmung des Carbonatgehaltes – Volumetrisches Verfahren (ISO 10693:1995). Deutsche Fassung, Juni 2014.
- DIN EN ISO 12782-2 (2012): Bodenbeschaffenheit – Parameter zur geochemischen Modellierung der Elution und Speziation von Bestandteilen in Böden und Materialien – Teil 2: Extraktion von kristallinen Eisenoxiden und -hydroxiden mittels Dithionit. Fassung September 2012.
- DIN EN ISO 12782-3 (2012): Bodenbeschaffenheit – Parameter zur geochemischen Modellierung der Elution und Speziation von Bestandteilen in Böden und Materialien – Teil 3: Extraktion von Aluminiumoxiden und -hydroxiden mittels. Fassung September 2012.
- DIN ISO 11277 (2002): Bodenbeschaffenheit - Bestimmung der Partikelgrößenverteilung in Mineralböden - Verfahren mittels Siebung und Sedimentation. Fassung August 2002.
- DIN ISO 11929 (2011): Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung Grundlagen und Anwendungen (ISO 11929:2010). Fassung Januar 2011.

- DIN V ENV 13005 (1999): Leitfaden zur Angabe der Unsicherheit beim Messen. Deutsche Fassung (ENV 13005), Juni 1999
- Ernst, T. (2003): Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse. Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport. Dissertation, Universität Hannover, 356 S., <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/37628126X.pdf>
- FS (2010): Fachverband Strahlenschutz, Überwachung der Radioaktivität des Niederschlags, Loseblattsammlung FS-78-15-AKU, Blatt LB 3.1.6, 9 S.
- Heckel, A. (2008): Verfahren zur Bestimmung der mittleren Aktivitätskonzentration von Iod-129 in der Fortluft kerntechnischer Anlagen. J-I-131-ALUFT-01. Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen.
- Klipsch, K. (2005): Bestimmung von ^{129}I und ^{127}I in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des ^{129}I auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen. Dissertation, Universität Hannover, 181 S., <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh05/490045065.pdf>
- Moor, A. (2013): Ein Methodenvergleich zur ^{129}I Bestimmung in Aerosolfiltern. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, 48 S.; [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=2013](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=2013)
- Schmidt, A. (1998): ^{129}I und stabiles Iod in Umweltproben. Qualitätskontrolle von Analysenmethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie. Dissertation Leibniz Universität Hannover, 229 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=1998](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=1998)
- Schwinger (2014): Deutschlandweite Untersuchung der ^{129}I - und ^{127}I -Inventare und ihres Isotopenverhältnisses in verschiedenen Umweltkompartimenten. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 158 S.
- Szidat, S. (2000): I-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien. Dissertation, Universität Hannover, 218 S., <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e002/32217211X.pdf>
- Tosch, L. (2010): Kontamination von Nord- und Ostsee mit langlebigem Iod-129 und anderen anthropogenen Radionukliden. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 269 S. <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh10/637954564.pdf>

4 Ergebnisse und Diskussion

Die folgenden Ergebnisse geben eine Übersicht über Eintrag, Austrag und Inventaren an ^{127}I und ^{129}I und die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für den Zeitraum von 2011 bis 2013. Einzelwerte zu den verschiedenen Umweltkompartimenten sind im Anhang festgehalten.

Die Aerosol- und Niederschlagsproben wurden im Zeitraum von Februar/März 2011 bis Februar 2013 gesammelt und zu Monatsproben zusammengefasst, der Sammelzeitraum für die Proben aus den Fließgewässern reichte von Januar 2011 bis März 2013. Diese Proben wurden Quartalsweise ausgewertet. Abweichend davon erstreckte sich die Bodenprobenahme über die gesamte Laufzeit des Projektes.

4.1 Aerosole

4.1.1 Konzentration des aerosolgebundenen ^{127}I und ^{129}I

Ursprünglich war vorgesehen, den Eintrag von aerosolpartikel-gebundenem Iod über den Luftpfad anhand von Filterproben der deutschen IMIS-Messstationen des ‚sparse network‘ zu untersuchen. Da jedoch unterschiedliches Filtermaterial von den Messstationen zur Verfügung gestellt wurde, werden hier die Ergebnisse der Aerosolfilter aus dem ca. 60 km entfernten Hannover-Langenhagen (DWD), die aus der Bachelorarbeit von Moor (2013) stammen, mit denen der Stationen Offenbach (DWD), Potsdam (DWD) und Schauinsland (BfS) verglichen. Die Messwerte für die einzelnen Stationen sind in Tab. A.5 dokumentiert. Die Ergebnisse für den Standort Braunschweig werden im Abschnitt C im Anhang gesondert behandelt.

Die für die ^{127}I -Konzentration gemessenen Werte lagen alle bis auf zwei Einzelwerte im Bereich von $(0,5 - 9,5) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ (Abb. 4.1-4.4). Für die Messstationen in Langenhagen und Potsdam wurden je eine Messung (Juli 2012 bzw. Februar 2013) von der Auswertung ausgeschlossen, die aus ungeklärter Ursache um einen Faktor 100 bzw. 10 darüber lagen und für die keine Wiederholung möglich war. Die Messwerte für die Polypropylenfilter aus Braunschweig fielen insgesamt etwas niedriger aus als die der übrigen Stationen ($(0,4-1,9) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$). Im Mittel über den betrachteten Zeitraum lagen die ^{127}I -Konzentrationen bei $(1,9 \pm 0,6) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ (Offenbach), $(2,2 \pm 0,4) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ (Langenhagen), $(3,0 \pm 1,0) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ (Freiburg), $(3,7 \pm 0,8) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ (Potsdam) und $(0,9 \pm 0,2) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ (Braunschweig).

Wershofen und Aumann (1989) fanden 1986 an einem Standort in Bonn in der Aerosolfraction $(2,0 \pm 1,9) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ ^{127}I . Michel et al. (2004) geben für eine im April 2002 durchgeführte Messung mit einem Berner Impaktor auf der Nordseeinsel Föhr eine Konzentration für die an Partikel $> 0,1 \mu\text{m}$ gebundene ^{127}I -Fraktion von $(1,9 \pm 0,4) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ an.

Englund et al. (2010) untersuchten ^{129}I und ^{127}I in Aerosolen in Nord- und Südschweden und fand ^{127}I -Konzentrationen von $(0,08 - 0,53) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ bzw. $(0,34 - 2,31) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$. Für Wien im Jahr 2001 lagen die entsprechenden Werte im Bereich von $(0,5-1,4) (\pm 0,01) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ [Jabbar et al. 2011]. Für die letztgenannten Untersuchungen wurden Glasfaserfilter verwendet.

Ein Zusammenhang zwischen den in diesem Projekt gemessenen ^{127}I -Konzentration in den Aerosolen und der Entfernung der Messstationen von der Nordsee ist nicht zu erkennen. Das meiste Iod in der Atmosphäre wird von der Oberfläche der Ozeane, hauptsächlich in Form von organischen Verbindungen als Methyljodid (CH_3I) und Diiodmethan (CH_2I_2), freigesetzt, in geringerem Maße auch als elementares Iod (I_2). Vogt et al. (1999) geben an, dass auf diese Weise 1-2 Tg (also 1-2 Mt) pro Jahr in die Atmosphäre gelangen, Miyake und Tsunogai (1963) gehen davon aus, dass zusätzlich $0,4 \text{ Tg a}^{-1}$ als elementares Iod (I_2) abgegeben werden. Saiz-Lopez und Plane (2004) schätzen die jährliche Freisetzung von CH_3I and CH_2I_2 in die Atmosphäre auf $2-4 \text{ Tg a}^{-1}$.

Allerdings kann es zu lokaler Beeinflussung des Iodgehalts von Aerosolen durch Verbrennung von fossilen Brennstoffen wie Kohle und Erdöl kommen. Deren Iodgehalt wird mit durchschnittlich 4 ppm bzw. 1 ppm angegeben [Chameides und Davis 1980; CIEB 1956; Vogt 1999]. Die Gehalte einzelner Vorkommen können jedoch erheblich höher liegen [Wang et al. 2005]. So wurde z.B. in englischem Ölschiefer eine Menge von 72 ppm Iod gefunden [Cosgrove 1970]. Für deutsche Kohle geben Wang et al. (2005) einen Konzentrationsbereich von 0,85 – 11,7 ppm an. Chameides und Davis (1980) schätzen die jährliche Iod-Freisetzung aus fossilen Brennstoffen auf rund $0,02 \text{ Tg a}^{-1}$ ($0,02 \text{ Mt a}^{-1}$), Wu et al. (2014) beziehen sich auf eine Angabe der Agency for Toxic Substances and Disease Registry [ATSDR 2004] von nur 500 t für 2001. Sie sind der Ansicht, dass die Einträge in die Atmosphäre durch Verbrennung von Kohle erheblich unterschätzt werden und geben allein für China eine jährliche Iod-Emission von rund 4.870 t (2009) an.

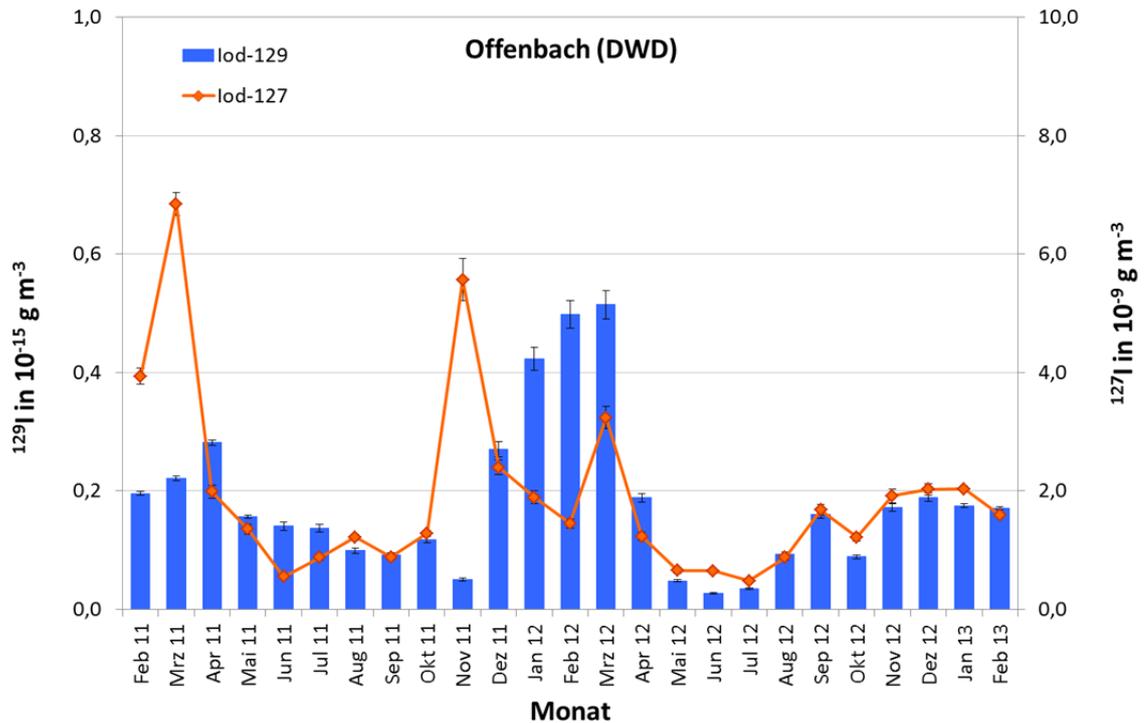


Abb. 4.1: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der DWD-Messtation in Offenbach (02/2011 – 02/2013).

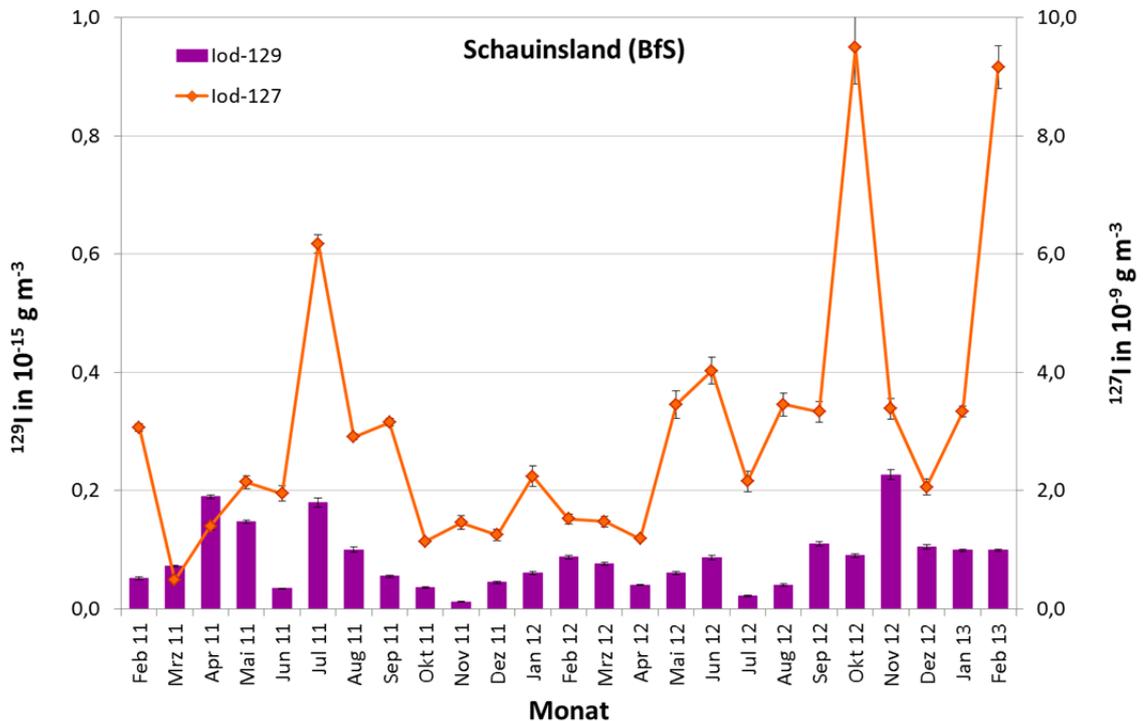


Abb. 4.2: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der BfS-Messtation auf dem Schauinsland (02/2011 – 02/2013).

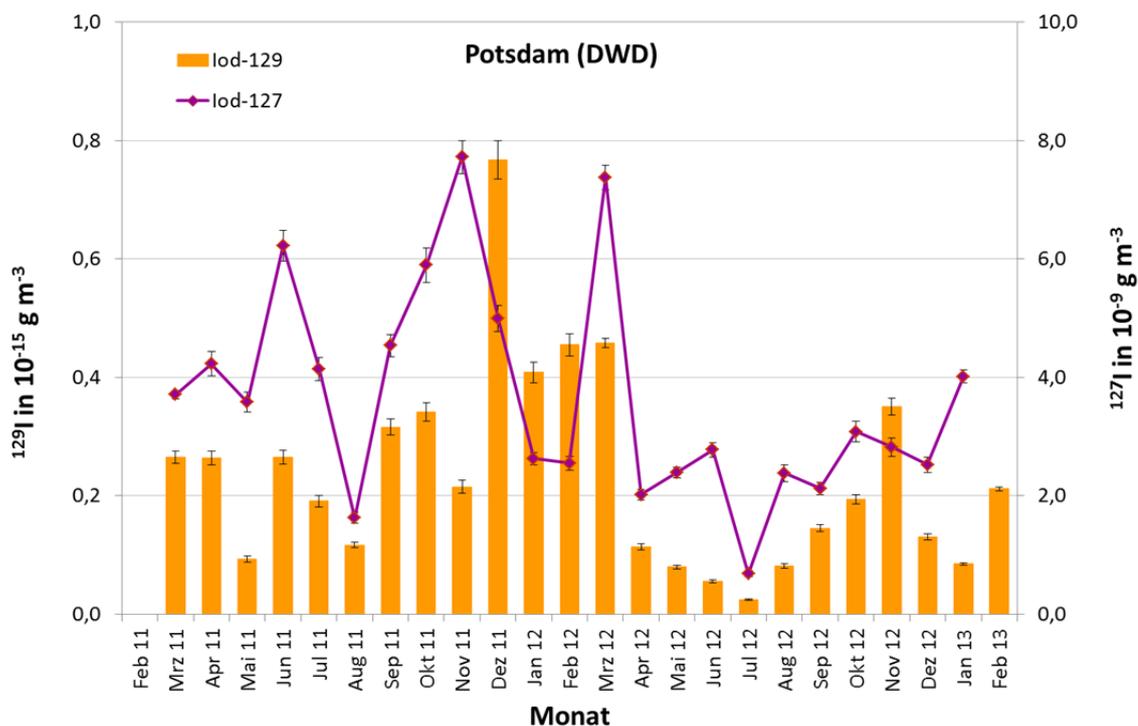


Abb. 4.3: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der DWD-Messtation in Potsdam (03/2011 – 02/2013).

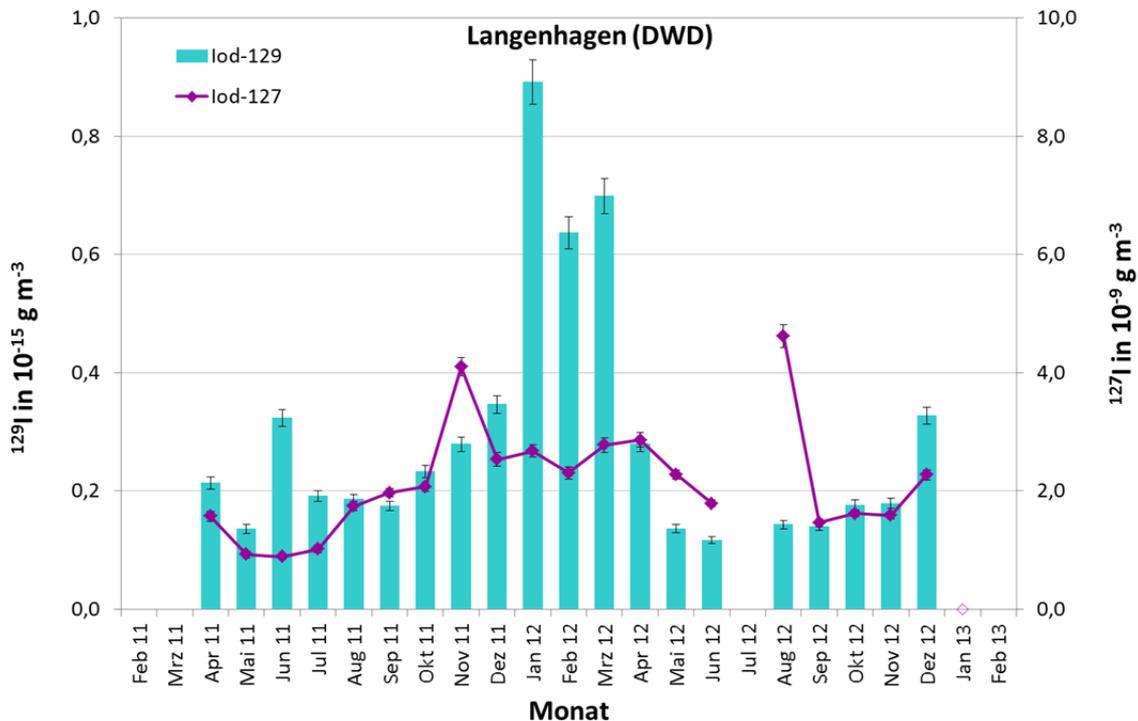


Abb. 4.4: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der DWD-Messtation in Langenhagen (04/2011 – 12/2012).

Nimmt man als Grundlage die vom BMWI veröffentlichten Tabellen zum Energiegewinn und Energieverbrauch (Tabellen 4 und 6) [BMWI 2014], so berechnet sich der Primär- und Endenergieverbrauch für Deutschland für die Jahre 2011 und 2012 auf insgesamt 3.760 bzw. 3.802 PJ für Steinkohle und Braunkohle als Energieträger. Dies entspricht bei einem mittleren Energiegehalt von Stein- und Braunkohle von 8 kWh kg⁻¹ und 5,6 kWh kg⁻¹ [Heinloth 2003; Herrmann und Weber 2011] Mengen von 73,0 Mio t Stein- und 82,3 Mio t Braunkohle für das Jahr 2011 bzw. 71,8 Mio t Stein- und 86,2 Mio t Braunkohle für das Jahr 2012. Aus diesen Werten ergibt sich bei einem durchschnittlichen Iodgehalt von 4 ppm (s.o.) eine jährliche Freisetzung von 621 bzw. 632 t Iod pro Jahr. Im Vergleich dazu würde die Nordsee mit einer Fläche von 750.000 km² [OSPAR 2000] 4.160 bis 8.320 t a⁻¹ an Iod emittieren, vorausgesetzt, die Freisetzung aus den Weltmeeren erfolgt gleichmäßig über die gesamte Fläche verteilt mit einer Rate von 2-4 Mt a⁻¹ (s.o.). Insgesamt ist die Iod-Freisetzung aus anthropogenen Quellen wesentlich kleiner als aus natürlichen Quellen, jedoch nicht vernachlässigbar. Ein zusätzlicher Beitrag an ¹²⁹I aus fossilen Brennstoffen ist wegen des hohen Alters der Kohle (Steinkohle 285-345 Mio Jahre; Braunkohle 2-65 Mio Jahre) eher nicht zu erwarten. Abgesehen von zusätzlichen Einträgen wird die Menge an Iod in der Atmosphäre von der Konzentration an Aerosolen, den orographischen Gegebenheiten und der Herkunft der Luftmassen beeinflusst [Schaap et al. 2008; Gilfedder et al. 2007; Englund et al. 2010].

Die Konzentrationen des aerosolgebundenen ¹²⁹I zeigten im Vergleich denen des stabilen Iods eine erheblich größere Schwankungsbreite (Abb. 4.1-4.4). Die gemessenen Werte erstreckten sich über einen Bereich von (0,01 - 0,89) · 10⁻¹⁵ g m⁻³, also über fast 2 Größenordnungen. Die von uns für Braunschweig bestimmten ¹²⁹I-Konzentrationen lagen mit (0,14 - 0,62) · 10⁻¹⁵ g m⁻³ ebenfalls in diesem Bereich. Damit ähneln die Ergebnisse insgesamt denen von Englund (2010) aus Südschweden, die bei (0,01 - 0,87) · 10⁻¹⁵ g m⁻³ lagen. Wershofen und Aumann (1989) fanden für Bonn in der Aerosolfraktion (0,6 ± 0,1) · 10⁻¹⁵ g m⁻³ ¹²⁹I.

Die über den betrachteten Zeitraum gemittelten Werte ergaben für die Station Schauinsland (0,09 ± 0,02) · 10⁻¹⁵ g m⁻³, für Offenbach (0,18 ± 0,05) · 10⁻¹⁵ g m⁻³, für Potsdam (0,23 ± 0,06) · 10⁻¹⁵ g m⁻³ und für Langenhagen (0,29 ± 0,07) · 10⁻¹⁵ g m⁻³. Hier lässt sich eine leichte Tendenz in der Abnahme der Konzentrationen mit zunehmender Entfernung von der Nordsee erkennen.

Diesen Einfluss zeigt auch ein Vergleich eines direkt an der Nordsee gelegenen Standortes (Föhr) mit einem sehr meeresfernen, im Binnenland gelegenen Ort (Wien). Bei der auf Föhr durchgeführten Untersuchung wurde eine ^{129}I -Konzentration von $(1,65 \pm 0,2) \cdot 10^{-15} \text{ g m}^{-3}$ gemessen [Michel et al. 2004]. Für Wien lagen die Konzentration des aerosolgebundenen ^{129}I in einem Bereich von $(0,01 - 0,2) \cdot 10^{-15} \text{ g m}^{-3}$ [Jabbar et al. 2011].

Abbildungen 4.1 bis 4.4 zeigen, dass die Schwankungen der Konzentrationen von ^{127}I und ^{129}I in den Aerosolen zum Teil gegenläufig sein können, was darauf hinweist, dass die beiden Iodisotope aus unterschiedlichen Quellen stammen können (vergl. Abschnitt 4.1.2).

4.1.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Aerosolen

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für die untersuchten Proben schwankten in einem Bereich von $(8,0 \pm 0,8) \cdot 10^{-9}$ und $(6,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-7}$, wobei die Werte für Braunschweig infolge ihrer niedrigen ^{127}I -Gehalte im oberen Bereich angesiedelt waren, nämlich bei $(1,2 - 6,8) \cdot 10^{-7}$, gefolgt von Langenhagen mit Werten von $(0,3 - 3,6) \cdot 10^{-7}$ und Offenbach mit $(0,09 - 3,4) \cdot 10^{-7}$. Die Isotopenverhältnisse von den Stationen Potsdam und Schauinsland fielen am niedrigsten aus. Sie lagen bei $(0,08 - 1,8) \cdot 10^{-7}$ bzw. $(0,08 - 1,5) \cdot 10^{-7}$ (Abb. 4.5 – 4.8).

Michel et al. (2004) fanden bei ihrer Aerosolmessung auf der Insel Föhr Isotopenverhältnisse von $(8,4 \pm 1,8) \cdot 10^{-7}$. Für Schweden geben Englund et al. (2010) Werte von $(0,05 - 14,7) \cdot 10^{-9}$ und $(0,06 - 4,4) \cdot 10^{-9}$ für Süd- bzw. Nordschweden an. Diese Angaben umfassen in etwa den Bereich, in dem auch die in diesem Projekt gemessenen Ergebnisse liegen.

Etwas niedrigere Isotopenverhältnisse wurden von Jabbar et al. (2011) für Wien für das Jahr 2001 bestimmt. Diese lagen in einem Bereich von $(0,8 - 25,1) \cdot 10^{-8}$. Für Südspanien (Sevilla) wurden von Santos et al. (2005) für das Jahr 2001 weit niedrigere Isotopenverhältnisse von $(1,8 - 37,8) \cdot 10^{-9}$ festgestellt, was infolge der großen Entfernung von den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen zu erwarten ist. Die Schwankungsbreite der monatlich bestimmten Werte in allen genannten Messungen erklärt sich aus den ebenfalls schwankenden Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen. Jabbar et al. (2011) fanden für ^{127}I eine geringe, für ^{129}I jedoch eine hohe Schwankungsbreite in der Höhe der gemessenen Konzentrationen und schließen da-

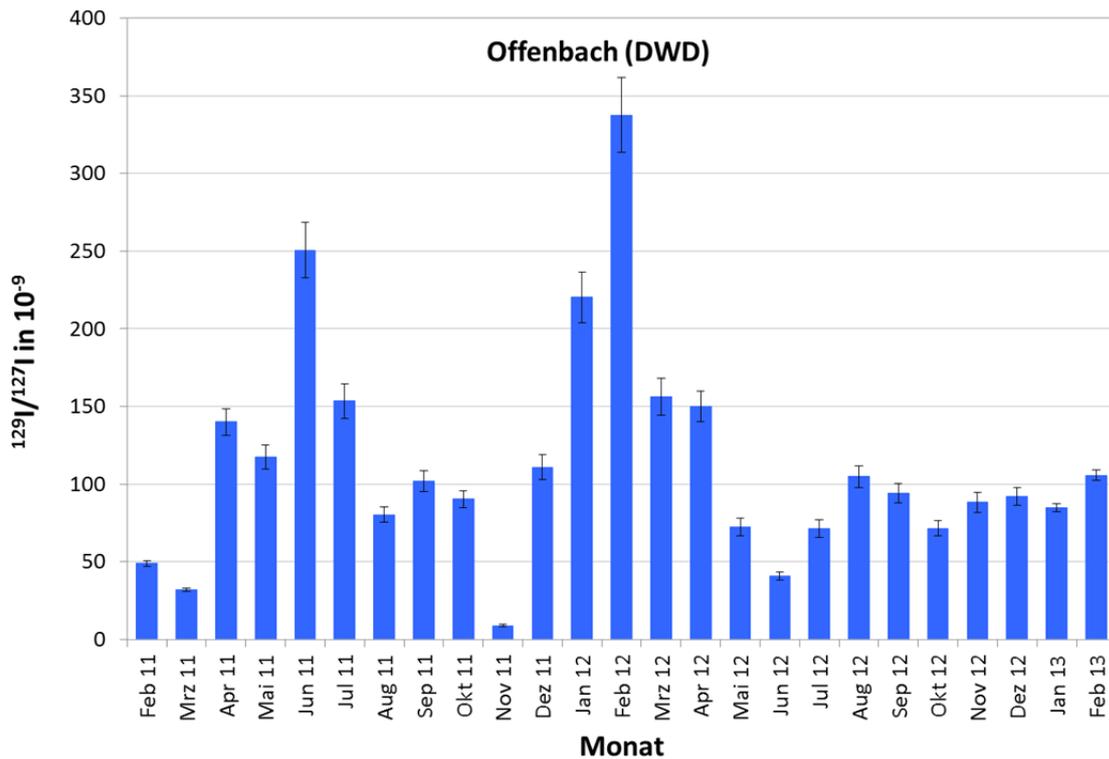


Abb. 4.5: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messstation in Offenbach (02/2011 – 02/2013).

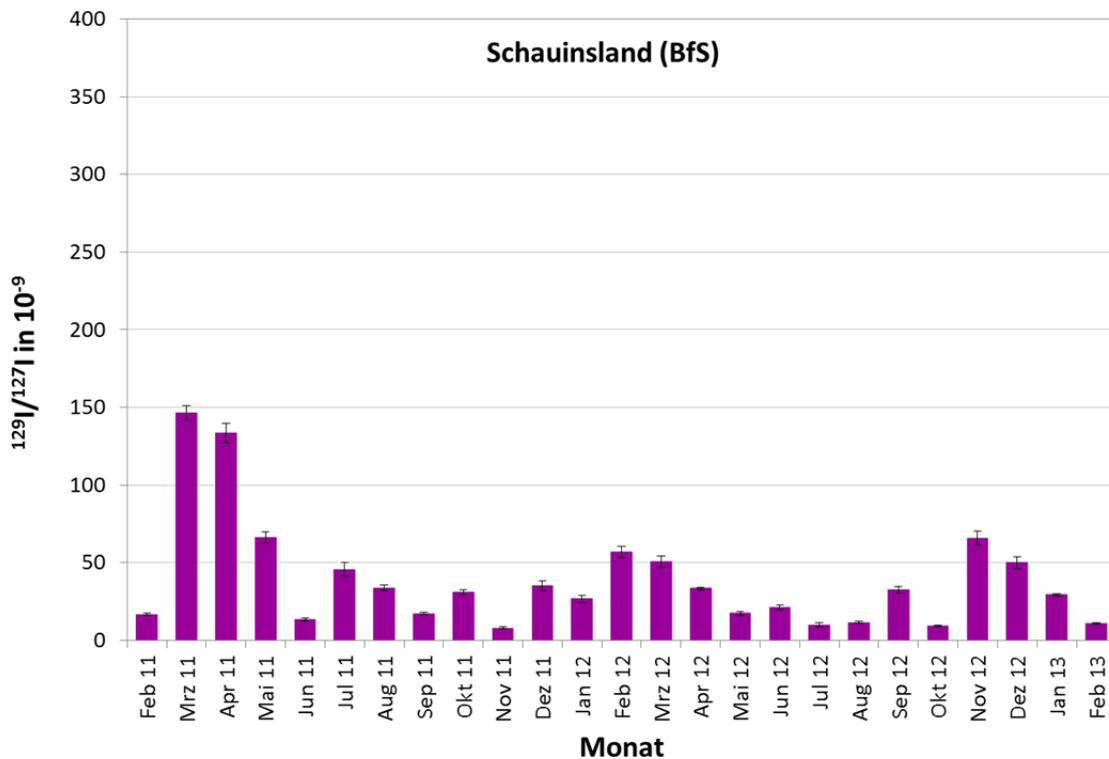


Abb. 4.6: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messstation auf dem Schausland (02/2011 – 02/2013).

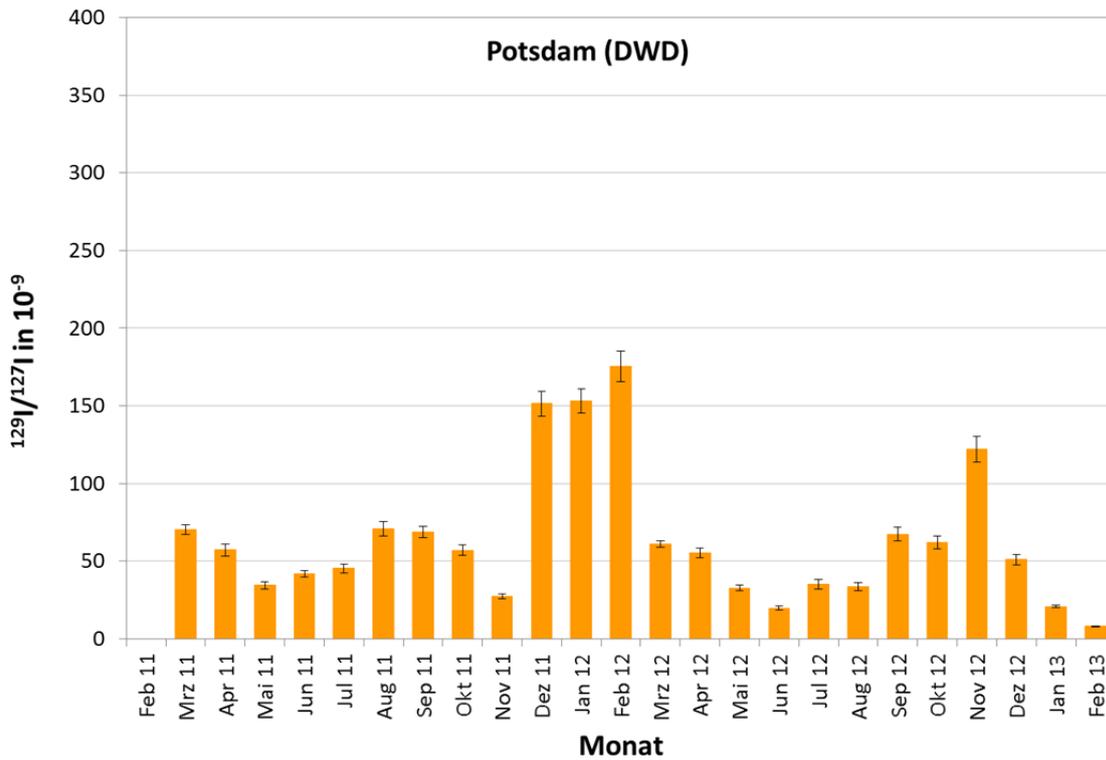


Abb. 4.7: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messtation in Potsdam (03/2011 – 02/2013).

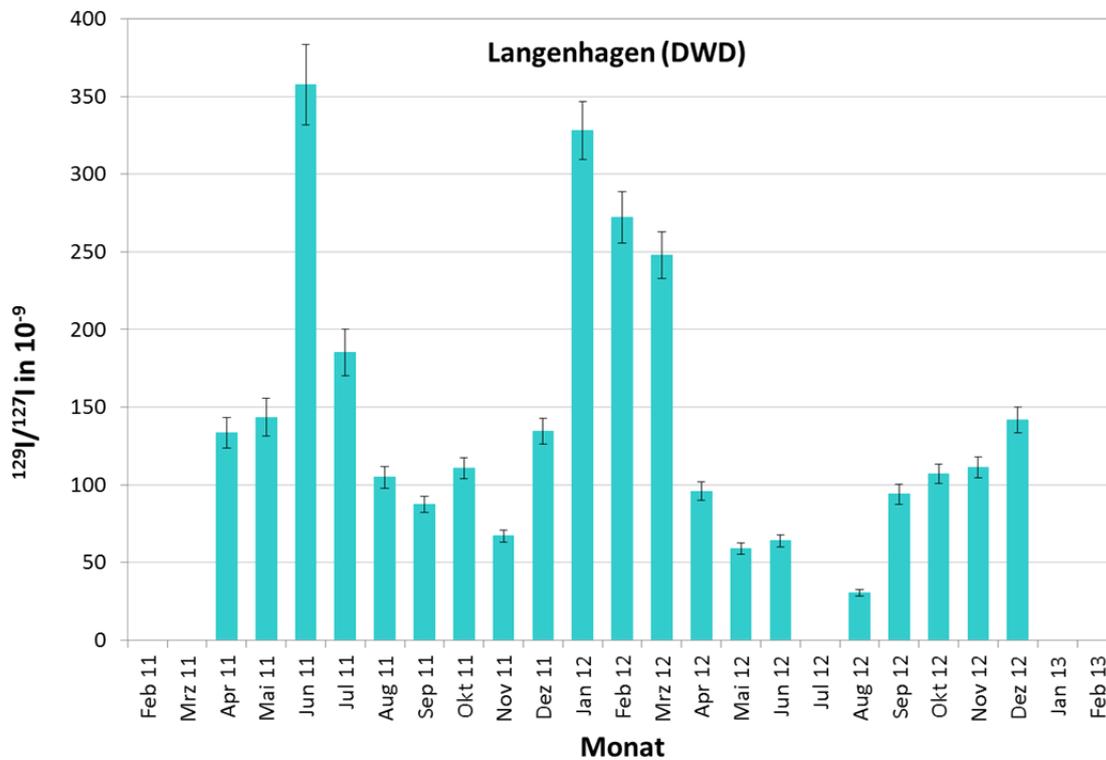


Abb. 4.8: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messtation in Langenhagen (04/2011 – 12/2012).

raus, dass die Quelle für das stabile Iod in den untersuchten Aerosolen im sea spray zu suchen ist, während die Schwankung in den ^{129}I -Konzentrationen eine gute Übereinstimmung mit den gasförmigen Emissionen aus Sellafield zeigte.

Santos et al. (2005) fanden keine derartige Beziehung zwischen gasförmigen Emissionen und gefundenen ^{129}I -Konzentrationen. Allerdings spielen bei der Verteilung des aus der Wiederaufarbeitung stammenden ^{129}I auch meteorologische Bedingungen (Windverteilung, Niederschlag etc.), Staubkonzentration der Luft, jahreszeitliche und lokale Einflüsse eine Rolle [Whitehead 1984; Gäbler und Heumann 1993; Noguchi 1988].

4.1.3 Depositionsraten von ^{127}I und ^{129}I

Für die Berechnung von Depositionsraten werden Informationen über die Depositionsgeschwindigkeit der Aerosole benötigt. Da diese nicht zur Verfügung standen, mussten sie entsprechend abgeschätzt werden. Als Grundlage hierfür wurde die bei Englund et al. (2010) beschriebene Vorgehensweise genutzt. Sie gehen von einem Bereich für die Depositionsgeschwindigkeit v_D für luftgetragene Partikel von 0,001 bis 0,02 m s^{-1} aus. So berechnen sie die jährliche trockene Deposition von Iod für das Jahr t , $F_d(t)$, unter Verwendung der durchschnittlichen jährlichen Konzentrationen von ^{127}I bzw. ^{129}I $C(t)$ nach Gleichung (1):

$$F_d(t) = C(t) \times v_D \times tr \quad [\text{ng cm}^{-2} \text{ a}^{-1}] \quad (1)$$

mit $tr = 3155,76$ für die Umrechnung von $\text{m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ zu $\text{cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

Für eine Berechnung von monatlichen Depositionsraten oder Verwendung anderer Bezugsgrößen muss tr entsprechend angepasst werden.

Mit Hilfe dieser Gleichung lassen sich minimale und maximale jährliche Depositionsraten berechnen (Tab.A.3 und A.4). Abbildung 4.9 zeigt die geschätzten mittleren jährlichen Depositionsraten für aerosolgetragenes ^{127}I und ^{129}I für den untersuchten Zeitraum. Die jährliche Depositionsrate von ^{127}I liegt in Offenbach bei $657 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$, in Hannover bei $716 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$, in Freiburg bei $1033 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ und in Potsdam bei $1161 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$. Die räumliche Verteilung dieser Werte wurde wie schon oben beschrieben durch lokale und meteorologische Bedingungen erklärt.

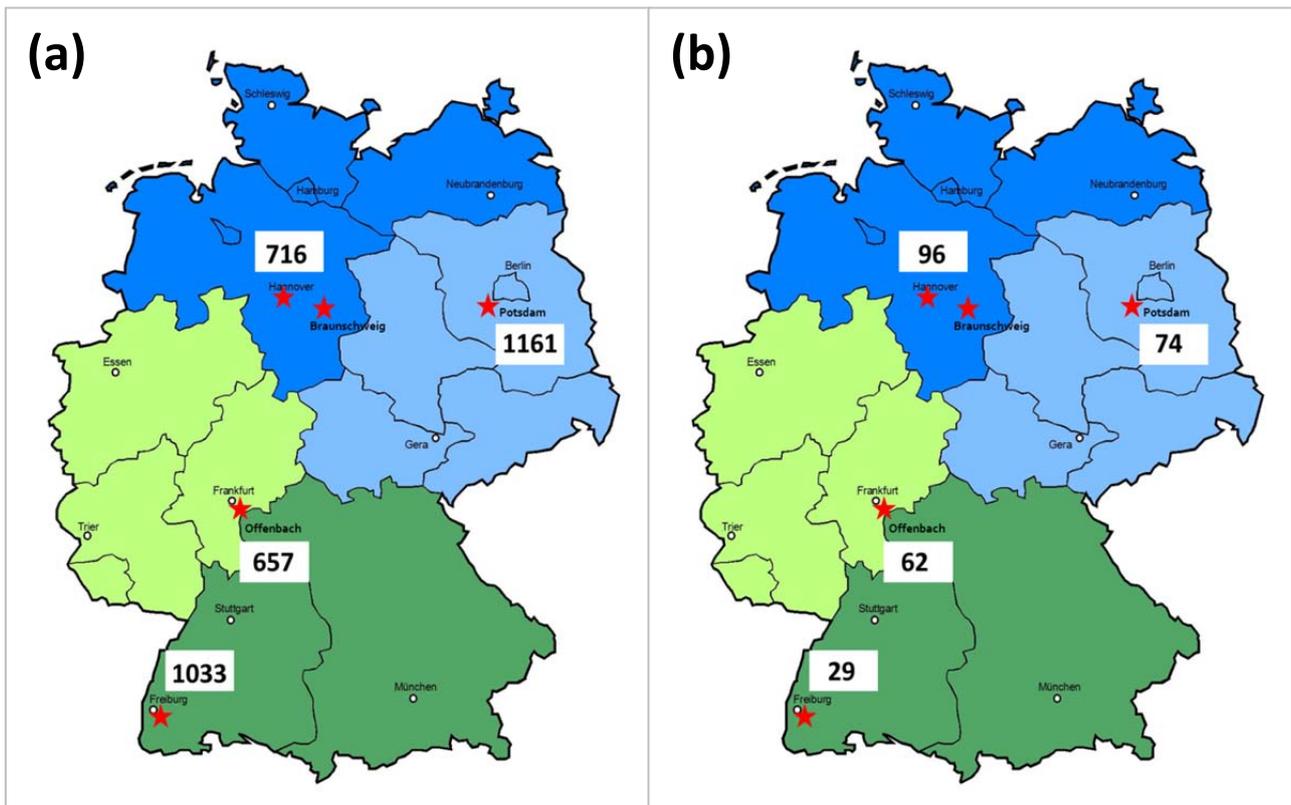


Abb. 4.9: Geschätzte mittlere jährliche Depositionsraten (aerosolgetragen) von ^{127}I (a) in $10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ und ^{129}I (b) in $10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

Es kann kein deutlicher Einfluss der Entfernung zur Nordsee auf die Ergebnisse der Aerosolfilter für ^{127}I festgestellt werden.

Im Gegensatz zu ^{127}I gibt es für ^{129}I eine gute Korrelation zwischen Depositionsrate und die Entfernung den Stationen zur Nordsee. Die ^{129}I -Depositionsrate ist im Norden mit $96 \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ (Hannover) am höchsten. In Potsdam ($74 \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$) sind die Werte etwas höher als in Offenbach ($62 \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$). Die niedrigsten Werte finden sich erwartungsgemäß auf dem Schauinsland ($29 \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$). Diese Ergebnisse sind in der gleichen Größenordnung wie die in Schweden durch Englund et al. (2010) gemessenen. Sie fanden für luftgetragenes ^{127}I und ^{129}I in Südschweden jährliche Depositionsraten von $(30 - 650) \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bzw. $(7 - 141) \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$. In Nordschweden lagen die Werte für die beiden Isotope etwas niedriger, nämlich bei $(6 - 110) \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bzw. $(2 - 34) \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

Für ^{129}I ist als Hauptquelle die durch die Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen kontaminierte Nordsee anzusehen [Englund et al. 2010, Jabbar et al. 2011, Michel et

al. 2012]. Das ^{127}I in der Luft stammt zwar ebenfalls aus der Nordsee, wird aber durch einen zusätzlichen Beitrag aus lokalen Quellen (Verbrennung fossiler Brennstoffe, Resuspension von Bodenpartikeln) beeinflusst.

4.2 Niederschlag

Die in der Zeit von März 2011 bis Februar 2013 gesammelten Niederschlagsproben beinhalten die gesamte atmosphärische Deposition an ^{127}I und ^{129}I , und zwar sowohl die gesamte nasse als auch die trockene Deposition, soweit sie von den Sammelvorrichtungen aufgenommen wurde. Für die Darstellung der Ergebnisse wurde die für die Erfassung der Trockendeposition verwendete Spülwassermenge berechnet und von der Gesamtprobe abgezogen, so dass die Konzentration der Niederschläge beide Fraktionen beinhaltet. Eine vollständige Übersicht über die Ergebnisse ist im Anhang A in Tab. A.6 gegeben. Die für die Konzentrationen von ^{127}I und ^{129}I ermittelten Messwerte variieren sehr stark in Abhängigkeit von den jeweiligen Bedingungen (Regenmenge, Windrichtung, Jahreszeit etc.) und können für einzelne Monate stark vom monatlichen Mittelwert abweichen. Für ^{127}I ist eine gewisse Beziehung zwischen der monatlichen Regenmenge und der Iod-Konzentration zu erkennen, während dies für ^{129}I nicht im gleichen Maße der Fall ist (Abb. 4.10).

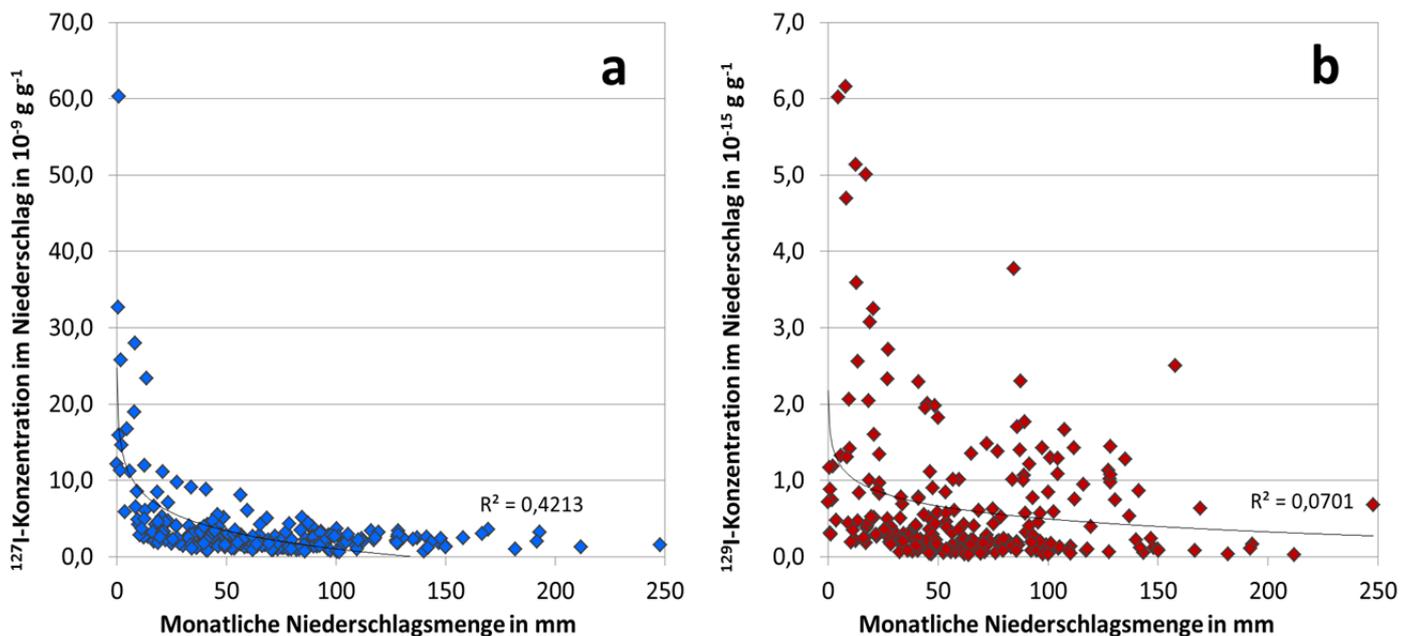


Abb. 4.10: Konzentration von ^{127}I (a) und ^{129}I (b) im Niederschlag in Abhängigkeit von der monatlichen Niederschlagsmenge.

In Monaten mit geringen Niederschlagsmengen bzw. geringer Anzahl an Tagen mit Niederschlag (z.B. November 2011) fielen die gemessenen Iod-Konzentrationen für stabiles Iod für die meisten Stationen wesentlich höher aus als der monatliche Mittelwert, in Monaten mit hoher Anzahl an Tagen mit Niederschlag, besonders aber in sol-

chen mit großen Niederschlagsmengen (z.B. Dezember 2011, Juli 2012), niedriger (Abb. 4.11 und 4.12).

4.2.1 Deposition von ^{127}I und ^{129}I

Da die Beiträge von trockener und nasser Deposition nicht unterschieden werden können, werden im Folgenden nicht die gemessenen Konzentrationen dargestellt, sondern die Depositionsdichte der atmosphärischen Einträge von ^{127}I und ^{129}I für die einzelnen Stationen. Die Höhe der Konzentrationen und der Depositionsdichten sind häufig gegenläufig. In den Abbildungen 4.11 und 4.12 ist dies am Beispiel der Messstation Potsdam dargestellt. Die Regenmenge für den Monat November 2011 lag bei insgesamt 2 mm. Die Konzentration an ^{127}I (Abb. 4.11) war mit $25,8 \cdot 10^{-9} \text{ g g}^{-1}$ außergewöhnlich hoch, während die deponierte Iodmenge mit $46,4 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2}$ vergleichsweise niedrig ausfiel. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die über den Niederschlag eingetragene Iodmenge wesentlich größer ist als der Anteil, der trocken deponiert wird.

Englund et al. (2010) fanden für zwei Standorte in Schweden, dass die trockene gegenüber der nassen Deposition von Iod nur eine untergeordnete Rolle spielte. Sie schätzen den Anteil des trocken deponierten Iod (^{127}I und ^{129}I) auf min. 1-2 %, und max. 1/4 für Südschweden bzw. max. 1/3 für Nordschweden, gehen aber davon aus, dass die jeweiligen Beiträge tatsächlich wesentlich niedriger liegen als den Obergrenzen entspricht, da sich das Iod ausschließlich an Partikel $> 1 \mu\text{m}$ binden müsste, um diese zu erreichen. Da dieser Fall als äußerst unwahrscheinlich angesehen werden muss, liegt der Beitrag der trockenen Deposition an der insgesamt deponierten Iodmenge eher niedriger.

Das Gesagte trifft auf freistehende Niederschlagssammler zu, die auch in diesem Projekt genutzt wurden. Klipsch (2005) stellte bei einem Vergleich fest, dass die Werte für die jährliche Deposition für Bestandsniederschlag (Traufbereich von Bäumen) um den Faktor 3,5 bis 4 höher lagen als die für Freilandregen, was zeigt, dass Vegetation in der Lage ist, partikelgebundenes Iod sehr effizient aus der Luft herauszufiltern. Dies wird dann vom Niederschlag abgewaschen und in den Boden eingetragen. Bei einer Extrapolation der Iod-Deposition aus Messwerten von Freilandregen auf bewaldete Flächen kann dies ggf. zu einer Unterschätzung der Werte führen.

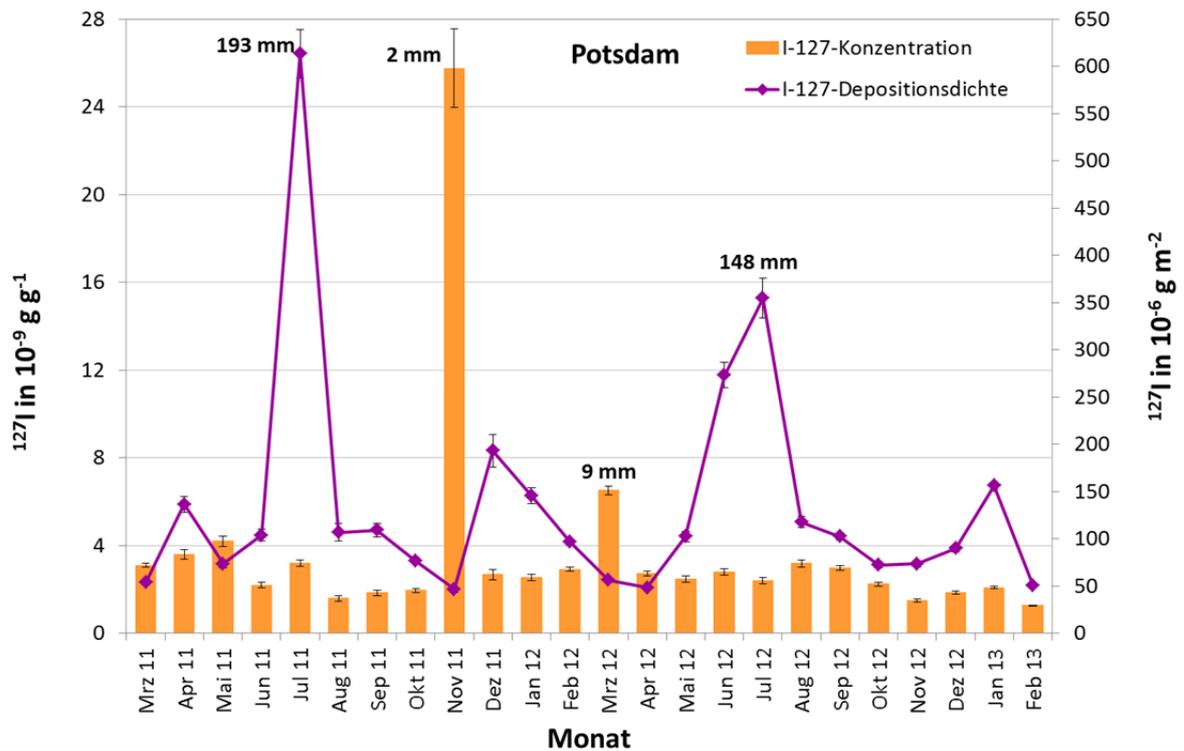


Abb. 4.11: Monatliche ^{127}I -Konzentration und ^{127}I -Deposition mit dem Niederschlag in Potsdam (monatliche Niederschlagsmengen für einige Monate in mm).

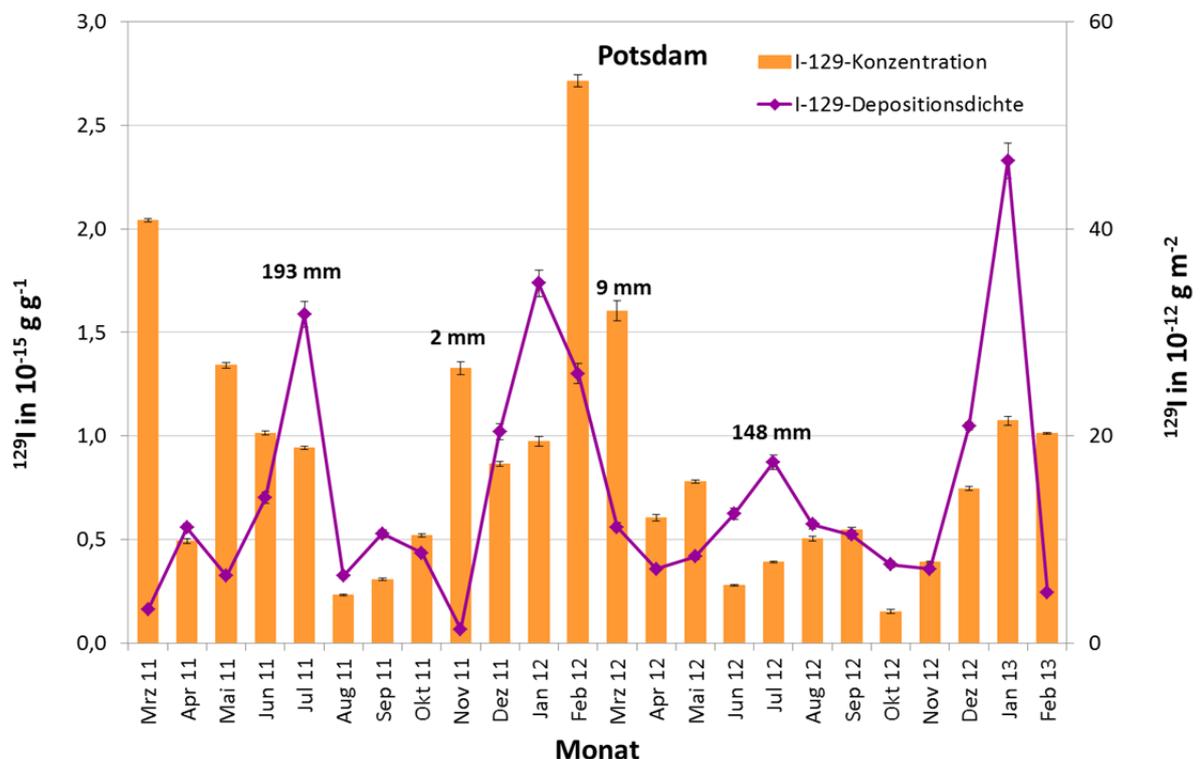


Abb. 4.12: Monatsliche ^{129}I -Konzentration und ^{129}I -Deposition mit dem Niederschlag in Potsdam (monatliche Niederschlagsmengen für einige Monate in mm).

Die Abbildungen 4.13 bis 4.16 zeigen die monatlichen atmosphärischen ^{127}I -Deposition für die Messstationen. Diese wurden analog zu der Einteilung im 'sparse network' für die Luftüberwachung in vier Sektoren eingeteilt (Nord, West, Ost, Süd). Für alle Stationen deutet sich eine Tendenz für einen Jahresgang an, mit höheren Werten in den niederschlagsreichen Spätsommermonaten und einem kleineren Maximum im Winter. Zwischen eingetragener ^{127}I -Menge und der Niederschlagshöhe besteht eine engere Beziehung ($R^2 = 0,45$) als für ^{129}I ($R^2 = 0,15$). Die größten Mengen an ^{127}I , nämlich $(75 - 434)$ bzw. $(41 - 607) \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2}$ wurden monatlich, wie zu erwarten war, in unmittelbarer Nähe der Nordseeküste (Norderney bzw. Schleswig) eingetragen. Bei diesen beiden Messstationen macht sich der unmittelbaren Einfluss des 'sea spray' bemerkbar. Allerdings lagen auch die Werte für Essen mit $(65 - 459) \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2}$ vergleichsweise hoch. Hier fiel die Gesamtdeposition über den betrachteten Zeitraum sogar etwas höher aus als für Norderney. Die Ursache hierfür muss vermutlich in der Lage der Messstation im Ruhrgebiet gesucht werden, das dicht besiedelt ist und einen hohen Besatz mit Industriebetrieben aufweist, deren Verbrauch an Energie aus fossilen Brennstoffen trotz des Niedergangs der Stahlindustrie im Bundesvergleich hoch ist [EnergieDaten NRW 2012]. Auf die Freisetzung von Iod aus fossilen Brennstoffen wurde bereits in Abschnitt 4.1.1 hingewiesen.

Für die übrigen Messstationen lagen die monatlichen Einträge für stabiles Iod im Durchschnitt (ca. $116 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2}$) unter denen der oben genannten drei Stationen (ca. $240 \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2}$), wobei auch hier vereinzelt hohe Werte beobachtet wurden (z.B.: Potsdam, Görlitz, Oberschleißheim im Juli 2011; Nürnberg im Februar 2012 und Februar 2013).

Die Einträge von ^{129}I aus der Atmosphäre, die in Abb. 4.17 – 4.20 dargestellt sind, zeigen eine erhebliche Variationsbreite. Daher ist die Skalierung der Diagramme unterschiedlich. Für die Stationen im nördlichen und westlichen Sektor umfasst die Ordinate einen Bereich, der um einen Faktor 4 größer ist als der für die Diagramme des östlichen und südlichen Sektors. Die ^{129}I -Einträge lagen mit $(27 - 395)$ bzw. $(14 - 172) \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2}$ für Norderney und Schleswig am höchsten. Auch für die Station in Essen wurden mit $(8 - 138) \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2}$ relativ hohe monatliche Depositionsraten bestimmt.

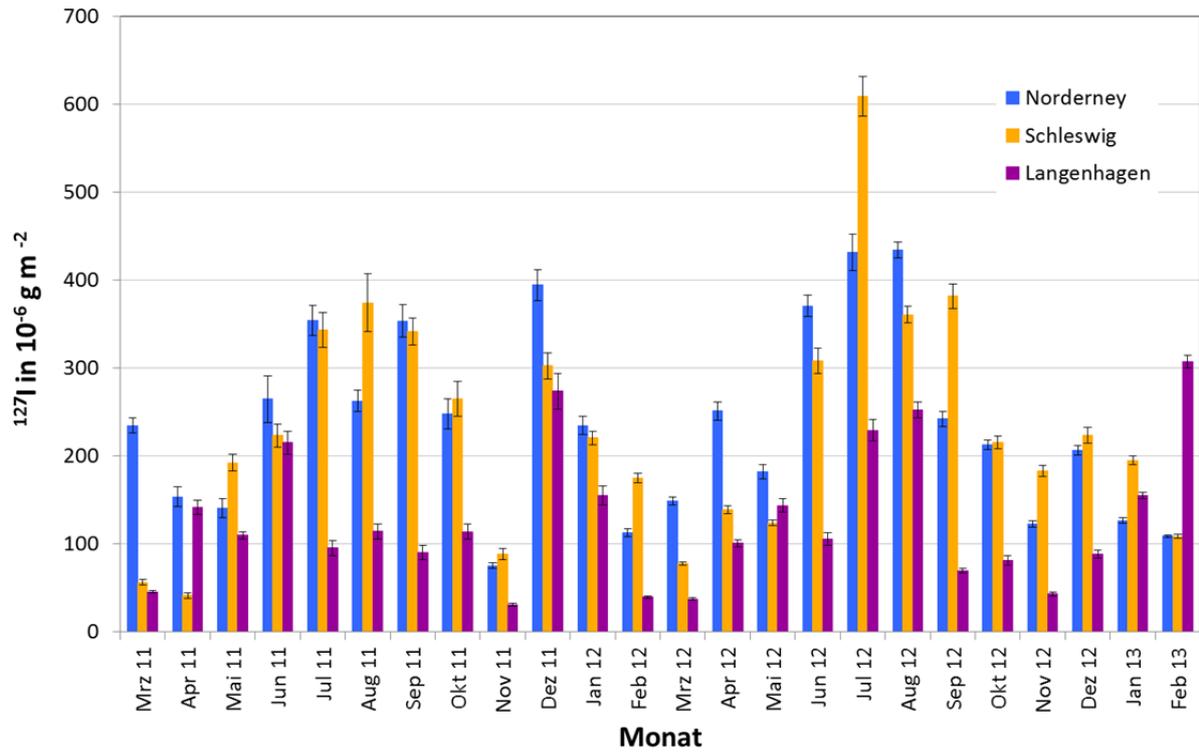


Abb. 4.13: Trockene und nasse Deposition von ^{127}I im Niederschlag an DWD-Stationen Norderney, Schleswig und Langenhagen (Nord).

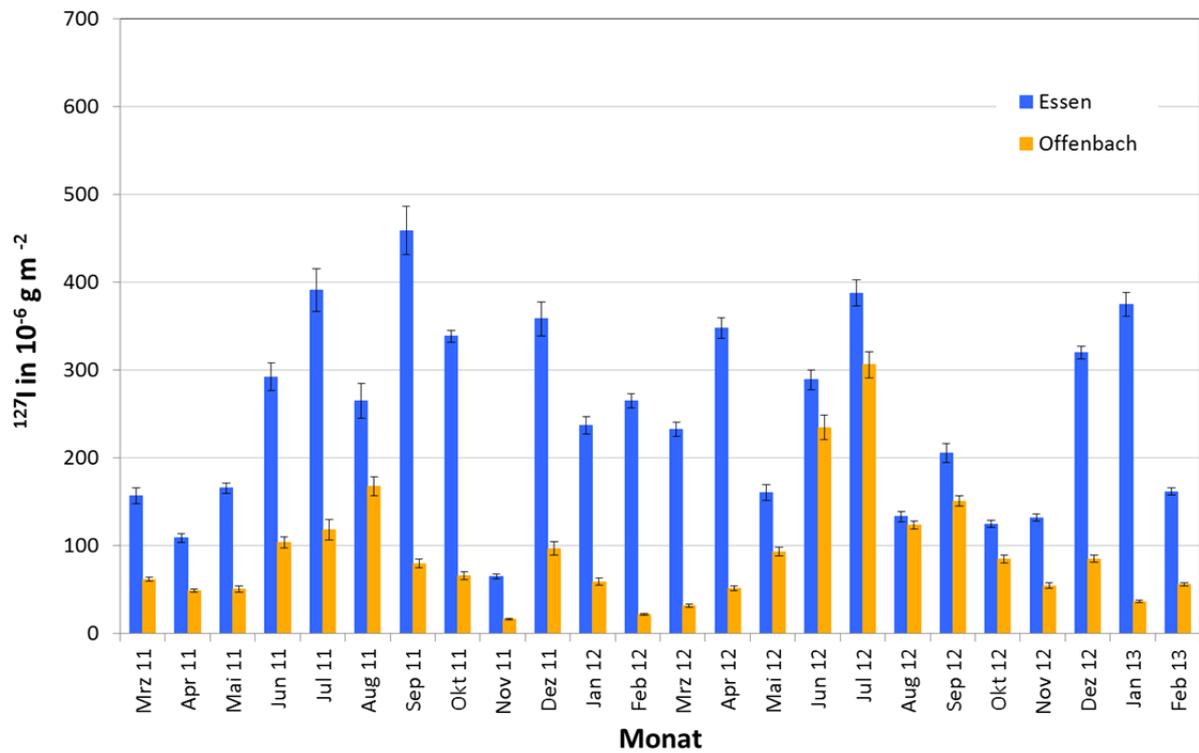


Abb. 4.14: Trockene und nasse Deposition von ^{127}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Essen und Offenbach (West).

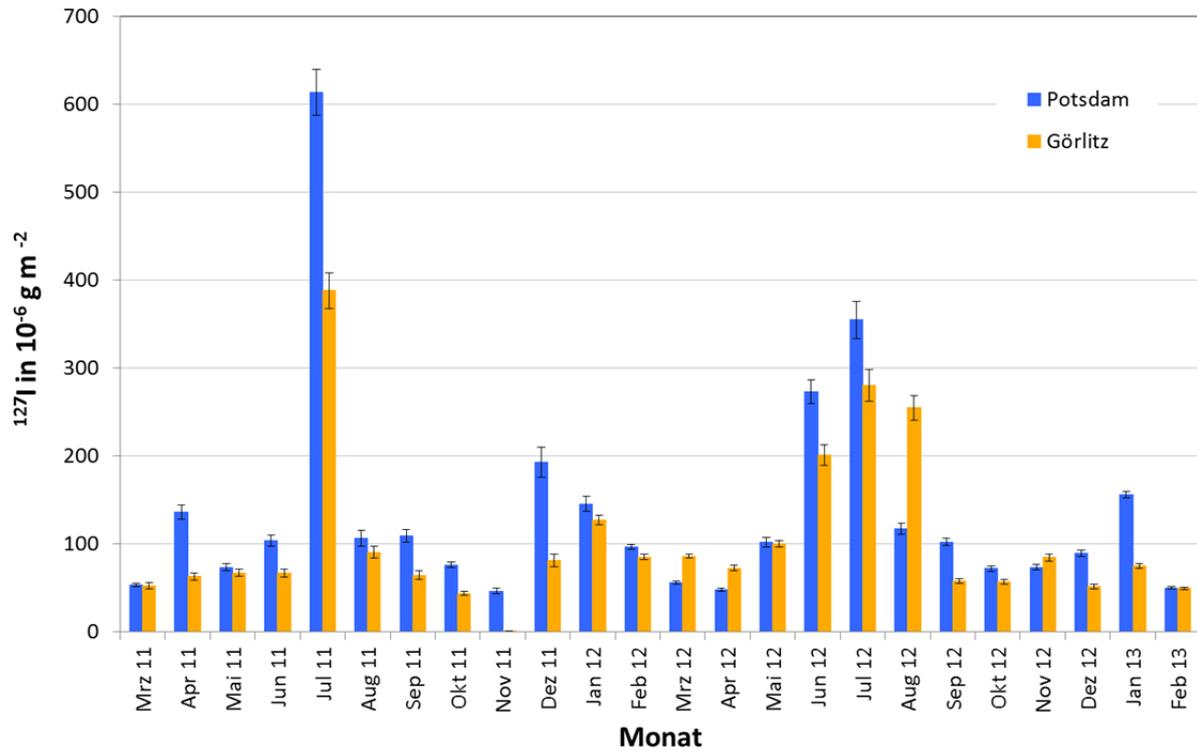


Abb. 4.15: Trockene und nasse Deposition von ¹²⁷I im Niederschlag an den DWD-Stationen Potsdam und Görlitz (Ost).

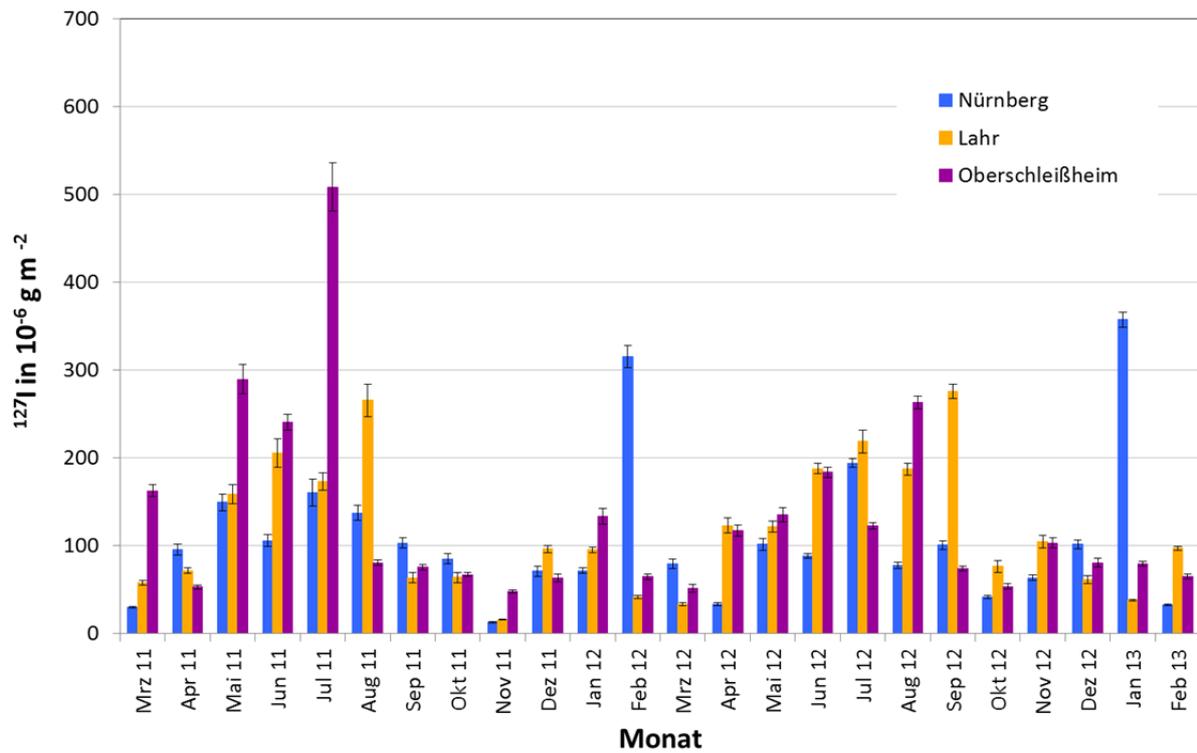


Abb. 4.16: Trockene und nasse Deposition von ¹²⁷I im Niederschlag an den DWD-Stationen Nürnberg, Lahr und Oberschleißheim (Süd).

Die Gesamtdepositionsraten der übrigen Messstationen zeigen ein klares Gefälle von Nordwest nach Südost (vergl. Abb. 4.21).

Die Ergebnisse für die Station in Offenbach müssen mit einer gewissen Einschränkung beurteilt werden, da hier die tägliche Erfassung der nassen und trockenen Deposition nicht lückenlos durchgeführt wurde, so dass die für die Depositionsraten berechneten Werte vermutlich etwas unter den tatsächlichen liegen.

Während die jährlichen Depositionsraten für ^{127}I abgesehen von den Standorten Nordey und Schleswig, die an der Nordseeküste bzw. in 40 km Entfernung davon liegen, keinen Zusammenhang mit der Entfernung zur Küste zu erkennen lassen (Abb. 4.22 (a)), ist dies für die Deposition von ^{129}I sehr wohl der Fall (Abb. 4.22 (b)). Der Einfluss von 'sea spray' nimmt mit zunehmender Entfernung von der Küste drastisch ab. Fuge (2013) gibt für eine Untersuchung an Regenwasser in Wales an, dass der Gehalt an stabilem Iod in einer Entfernung von 12 km von der Küste dreimal so hoch lag wie an einem Ort, der 84 km vom Meer entfernt war. Für ^{127}I kann angenommen werden, dass für Orte, die nicht in unmittelbarer Umgebung der Nordsee liegen, lokale Einflüsse eine große Rolle für die atmosphärischen Einträge spielen, während die Ergebnisse für ^{129}I die Annahme stützen, dass die Nordsee als Hauptquelle anzusehen ist [Hou et al. 2009, Englund et al. 2010; Michel et al. 2012].

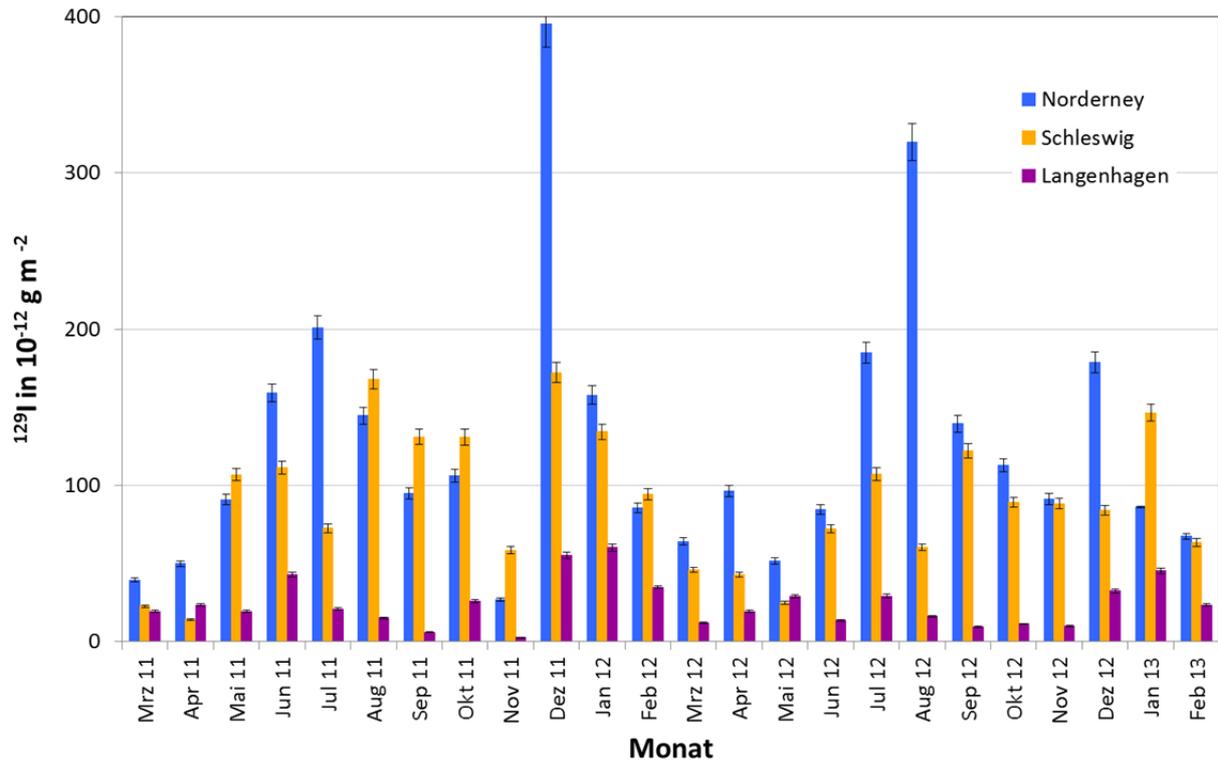


Abb. 4.17: Trockene und nasse Deposition von ^{129}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Norderney, Schleswig und Langenhagen (Nord).

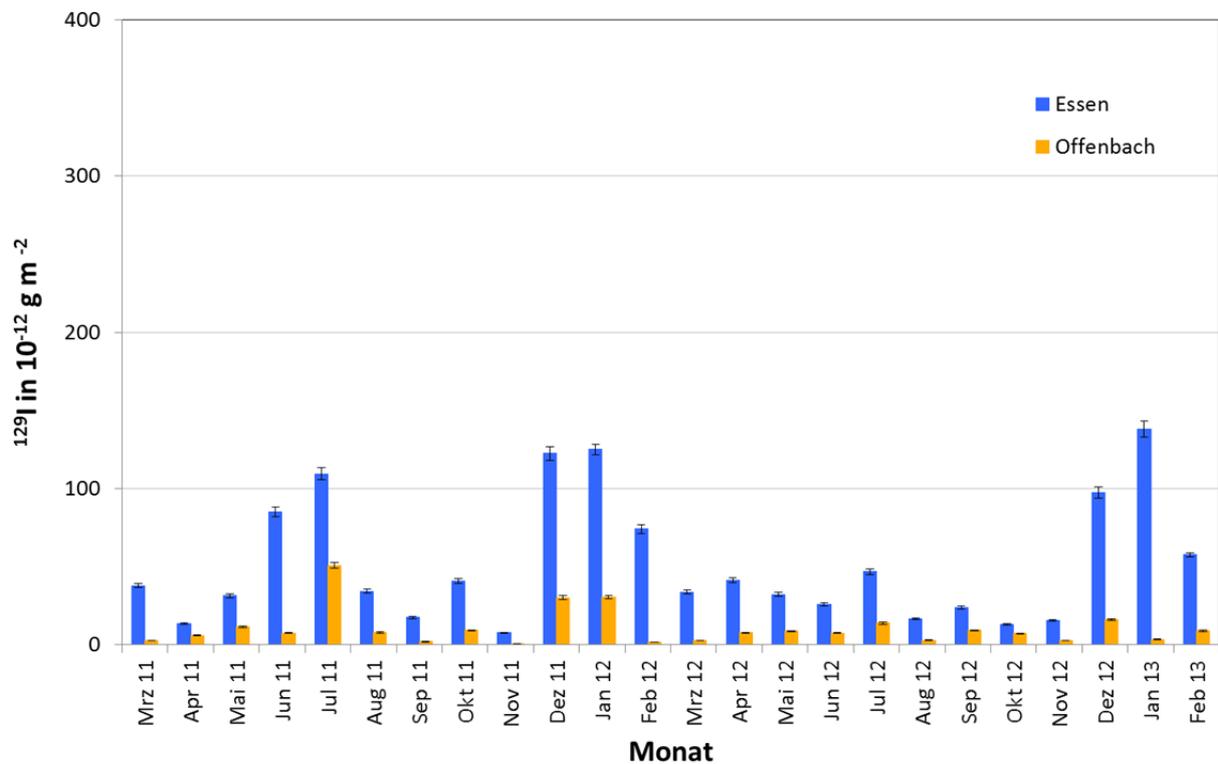


Abb. 4.18: Trockene und nasse Deposition von ^{129}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Essen und Offenbach (West).

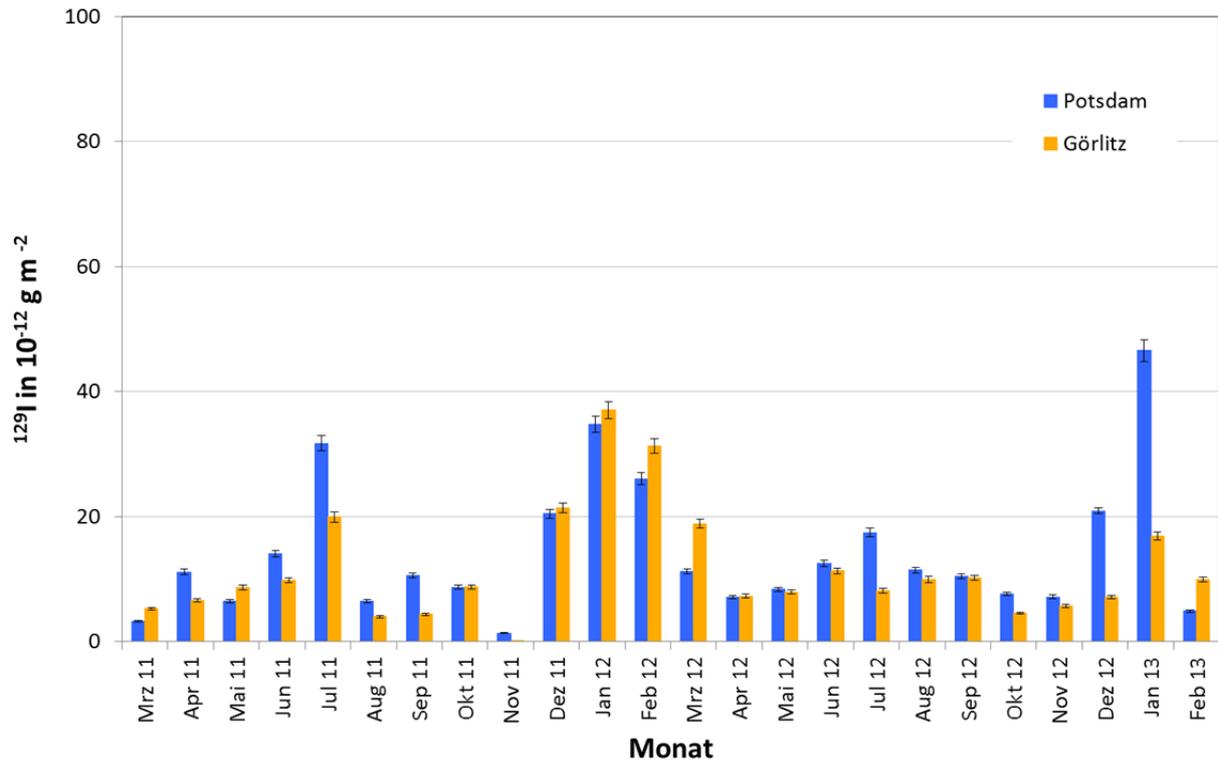


Abb. 4.19: Trockene und nasse Deposition von ¹²⁹I im Niederschlag an den DWD-Stationen Potsdam und Görlitz (Ost).

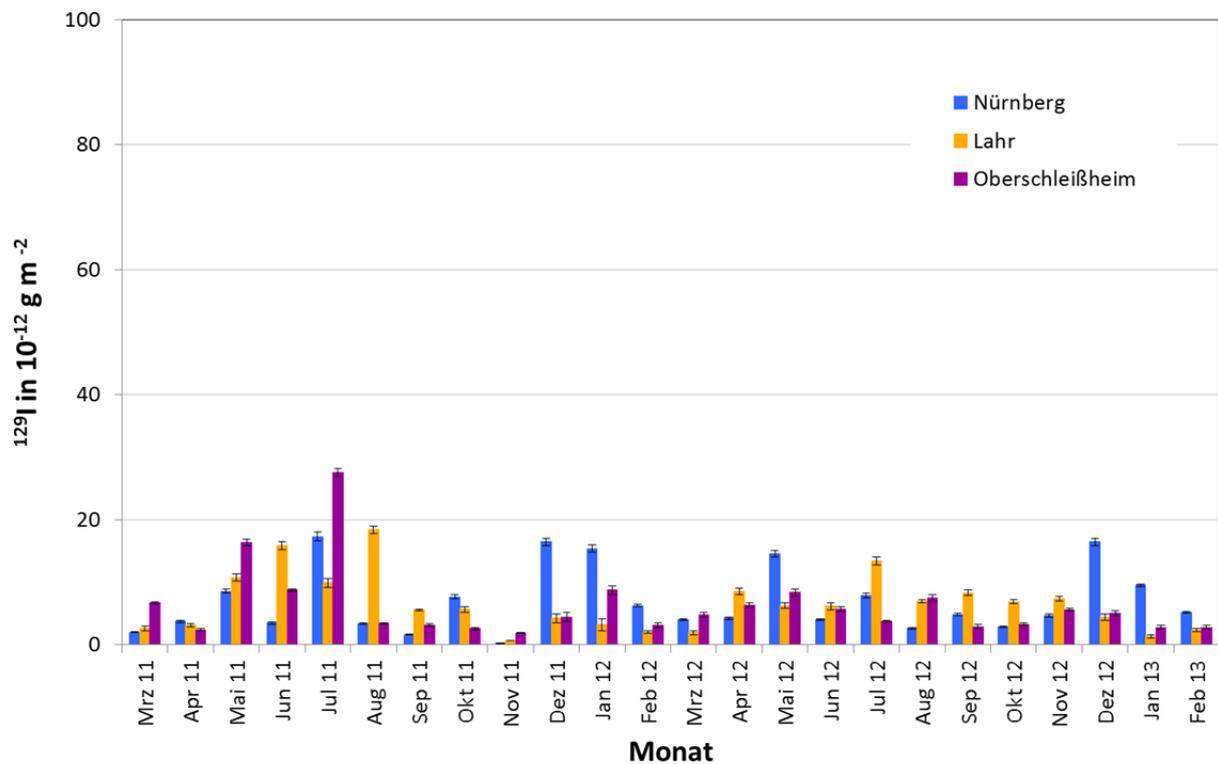


Abb. 4.20: Trockene und nasse Deposition von ¹²⁹I im Niederschlag an den DWD-Stationen Nürnberg, Lahr und Oberschleißheim (Süd).

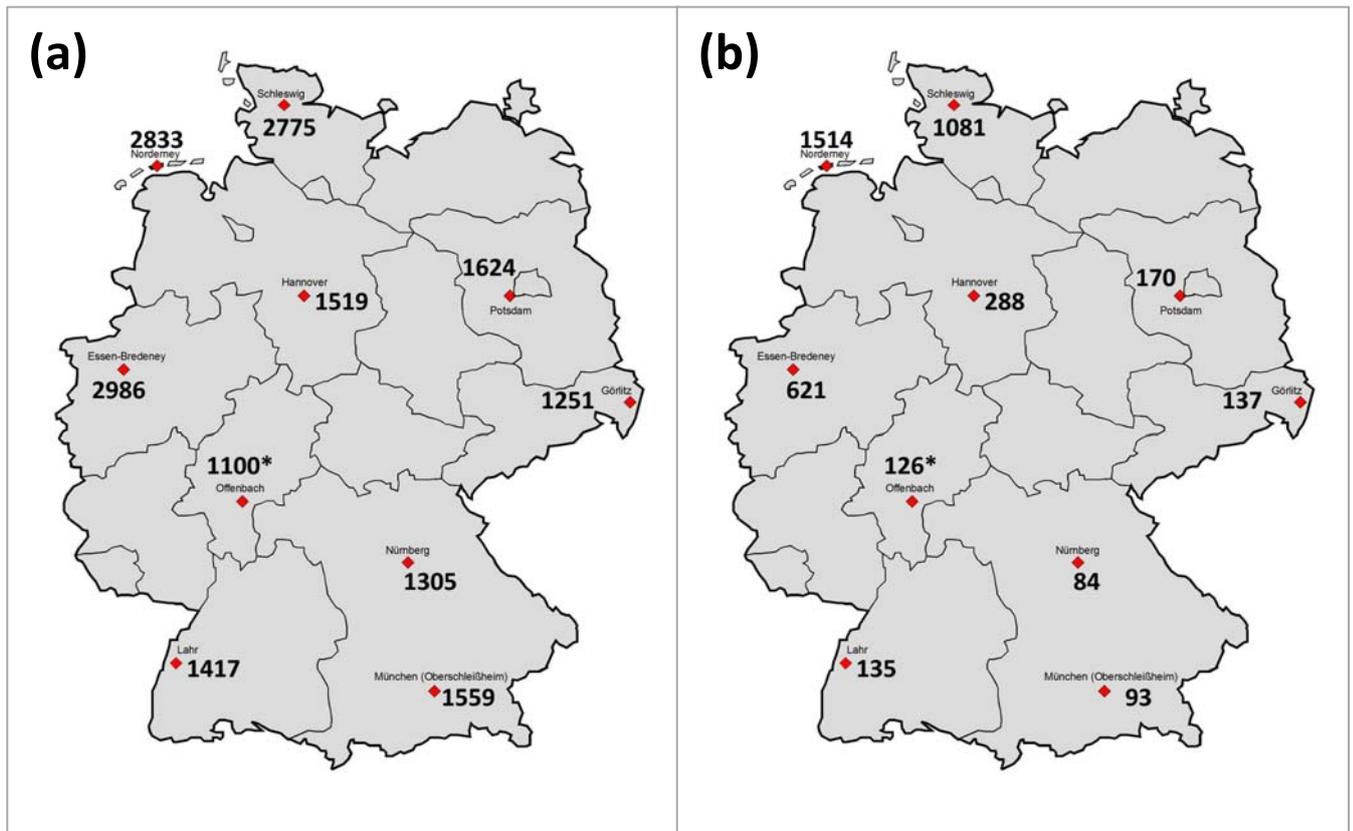


Abb. 4.21: Jährliche Depositionsraten (trockene und nasse Deposition) von ^{127}I (a) in $10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ und ^{129}I (b) in $10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ mit dem Niederschlag (mit * gekennzeichnete Werte vermutlich leicht unterschätzt, da Aufzeichnungen nicht ganz vollständig).

Langjährige Untersuchungen von Niederschlagswasser an drei Niedersächsischen Standorten [Michel et al. 2004] zeigten ähnliche Depositionsraten wie die hier ermittelten. Für Norderney lagen die jährlichen Depositionsraten als geometrische Mittelwerte im Zeitraum von 01/1997 bis 01/2002 für ^{127}I und ^{129}I bei $2400 \cdot 1,3^{\pm 1} \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bzw. $1800 \cdot 1,3^{\pm 1} \text{ pg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$. Für Buer-Ostwalde, der etwa so weit von der Nordsee entfernt ist wie Langenhagen (180 km), wurden für ^{127}I und ^{129}I von 01/1997 bis 03/2001 Werte von $1200 \cdot 1,4^{\pm 1} \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bzw. $570 \cdot 1,6^{\pm 1} \text{ pg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ ermittelt, für Seesen/Harz (Entfernung zur Nordsee vergleichbar mit Essen/230 km) $1200 \cdot 1,4^{\pm 1} \text{ ng m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bzw. $400 \cdot 1,6^{\pm 1} \text{ pg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

Während die Ergebnisse für Norderney und Buer-Ostwalde in etwa mit den hier ermittelten übereinstimmen, ergibt sich beim Vergleich von Seesen und Essen einer erheblicher Unterschied, besonders für den Eintrag von ^{127}I . Der Grund dafür liegt vermutlich in Essens Lage in einem Ballungsraum (vergl. Abschnitt. 4.1.1).

Für Roskilde (Dänemark) wurden von Hou et al. (2009) für den Zeitraum von 2001 bis 2006 jährliche Depositionsraten für ^{127}I und ^{129}I mit dem Niederschlag von $(610 - 1310) \cdot 10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bzw. $(189 - 353) \cdot 10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ bestimmt. Der große Unterschied zwischen den Depositionsraten der beiden meeresnahen Standorten Norderney und Roskilde kann nicht allein aus dem Unterschied in den $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen (vergl. Abschnitt 4.2.2) erklärt werden. Wahrscheinlicher ist z.B. eine Beeinflussung durch den Unterschied in der Gesamtniederschlagsmenge (Norderney 2011/2012: durchschnittl. ca. 835 mm; Schleswig 2011/2012: durchschnittl. ca. 1005 mm; Roskilde: Jahresdurchschnitt ca. 500-600 mm).

Tab. 4.1 zeigt eine Übersicht über jährliche Depositionsraten von ^{129}I , die von unterschiedlichen Autoren ermittelt wurden im Vergleich zu einigen Standorten aus dieser Arbeit.

Tab. 4.1: Übersicht über die von verschiedenen Autoren in Deutschland und der Schweiz ermittelten jährlichen Depositionsraten von ^{129}I .

Ort	Material	Quelle	Jahr	Entfernung Nordsee (km)	^{129}I in $10^{-12} \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$
Mappenberg, D	Regen + Aerosol	[1]	1988-1989	560	566 - 1010
(5 Standorte), D	Niederschlag	[2]	1994-1995	0,1 - 640	780 -1683
Dübendorf, CH	Niederschlag	[3]	1994-1997	590	352 - 811
Norderney, D	Niederschlag	[4]	1997-2002	0,1	1224 - 3091
Norderney, D	Niederschlag	[5]	2011-2012	0,1	1476 - 1551
Buer-Ostenwalde, D	Niederschlag	[4]	1997-2001	180	230 - 1163
Siemen, D	Niederschlag	[4]	1997-2001	180	184 - 964
Langenhagen, D	Niederschlag	[5]	2011-2012	170	251 - 325
Seesen, D	Niederschlag	[4]	1997-2000	230	184 - 1117
Essen, D	Niederschlag	[5]	2011-2012	210	542 - 699
Roskilde, DK	Niederschlag	[6]	2001-2006		189 - 353

[1] Bachhuber&Bunzl (1992)

[2] Krupp & Aumann (1999)

[3] Schnabel et al. (2001)

[4] Michel et al. (2004)

[5] diese Arbeit

[6] Hou et al. 2009

Die Beziehung zwischen den in diesem Projekt bestimmten jährlichen Depositionsraten für ^{127}I und der Entfernung der Messstationen von der Nordseeküste ($R^2 = 0,59$) ist weniger eng als dies für ^{129}I der Fall ist ($R^2 = 0,88$) (vergl. Abb. 4.22). Auch diese Ergebnisse zeigen, dass die Hauptquelle für die ^{129}I -Einträge aus der Atmosphäre in der Nordsee zu suchen ist. Bei der Deposition von ^{127}I trifft dies nur auf sehr küstennahe Standorte zu. Bei allen übrigen spielen lokale Quellen anscheinend eine große Rolle. Ließe man in Abb. 4.22 a die beiden direkt von 'sea spray' beeinflussten Orte (Norderney und Schleswig) und Essen (Ballungsgebiet) außer Acht, würde sich praktisch kein Zusammenhang mit der Entfernung zur Nordsee ($R^2 = 0,05$) ergeben.

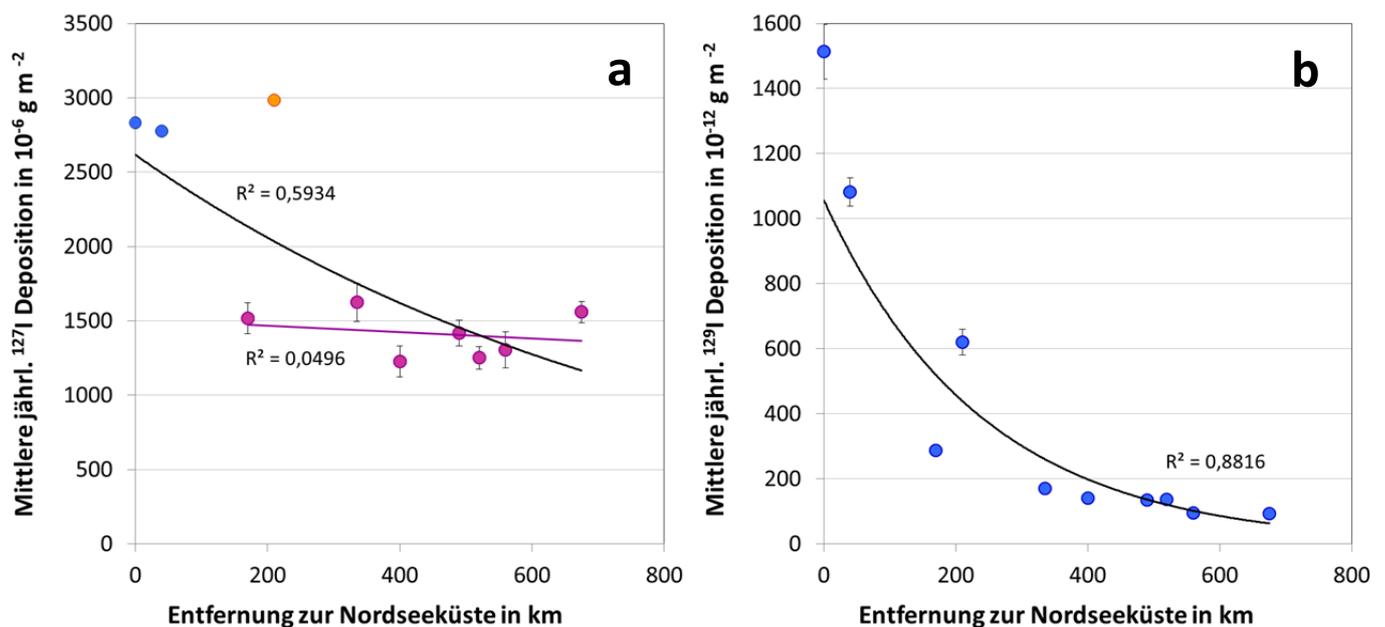


Abb. 4.22: Jährliche Depositionsraten (trockene und nasse Deposition) von ^{127}I (a) und ^{129}I (b) mit dem Niederschlag in Abhängigkeit der Messstationen von der Nordseeküste.

Ein weiterer deutlicher Hinweis liegt auch im Verhältnis von ^{127}I - und ^{129}I -Deposition. Dieses wird mit der Entfernung von der Nordsee größer (Abb. 4.23) und steigt von 1,9 (Norderney) auf 16,8 (Oberschleißheim). Gleichzeitig wird die Beziehung der monatlichen ^{127}I - und ^{129}I -Deposition zueinander schwächer: sie nimmt von $R^2 = 0,49$ (Norderney) auf $R^2 = 0,06$ (Nürnberg), bzw. $R^2 = 0,07$ (Görlitz, Oberschleißheim) ab.

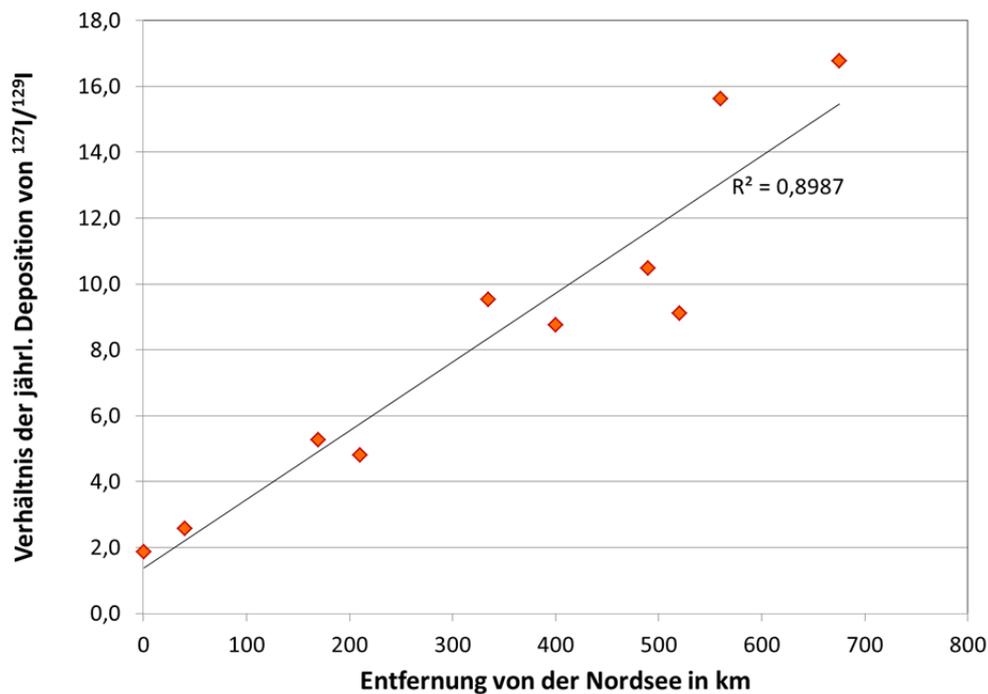


Abb. 4.23: Verhältnis von jährlicher ^{127}I - und ^{129}I -Deposition mit dem Niederschlag in Abhängigkeit von der Entfernung des Probenahmestandortes von der Nordsee.

4.2.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlägen

Die in den Niederschlagsproben gefundenen Werte für die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse lagen alle im Bereich von 10^{-8} bis 10^{-6} , genauer $(1,4 \pm 0,1) \cdot 10^{-8}$ (Oberschleißheim) und $(9,9 \pm 0,6) \cdot 10^{-7}$ (Norderney). Dabei ist ein deutliches Gefälle von Norden nach Süden erkennbar, während das in West-Ost-Richtung höchstens andeutungsweise zu erkennen ist (vergl. Abb 4.24 – 4.27). Die größten Isotopenverhältnisse im monatlich analysierten Niederschlag lagen für die westlichen DWD-Stationen Offenbach und Essen bei $(50,9 \pm 4,1)$ bzw. $(52,0 \pm 2,6) \cdot 10^{-8}$, für die östlichen DWD-Stationen Potsdam und Görlitz bei $(29,4 \pm 1,3)$ bzw. $(36,2 \pm 1,8) \cdot 10^{-8}$.

Ein Vergleich mit $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen, die 15 bis 10 Jahre vor dieser Untersuchung in den Jahren von 1997 bis 2002 bestimmt wurden [Michel 2004], zeigt sehr ähnliche Ergebnisse für die vergleichbaren Messorte. So wurden für Norderney in der Periode von 1997-2002 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Bereich von $4,6$ bis $11,8 \cdot 10^{-7}$ gefunden, während sie in dieser Arbeit im Bereich von $1,7$ bis $9,9 \cdot 10^{-7}$ lagen.

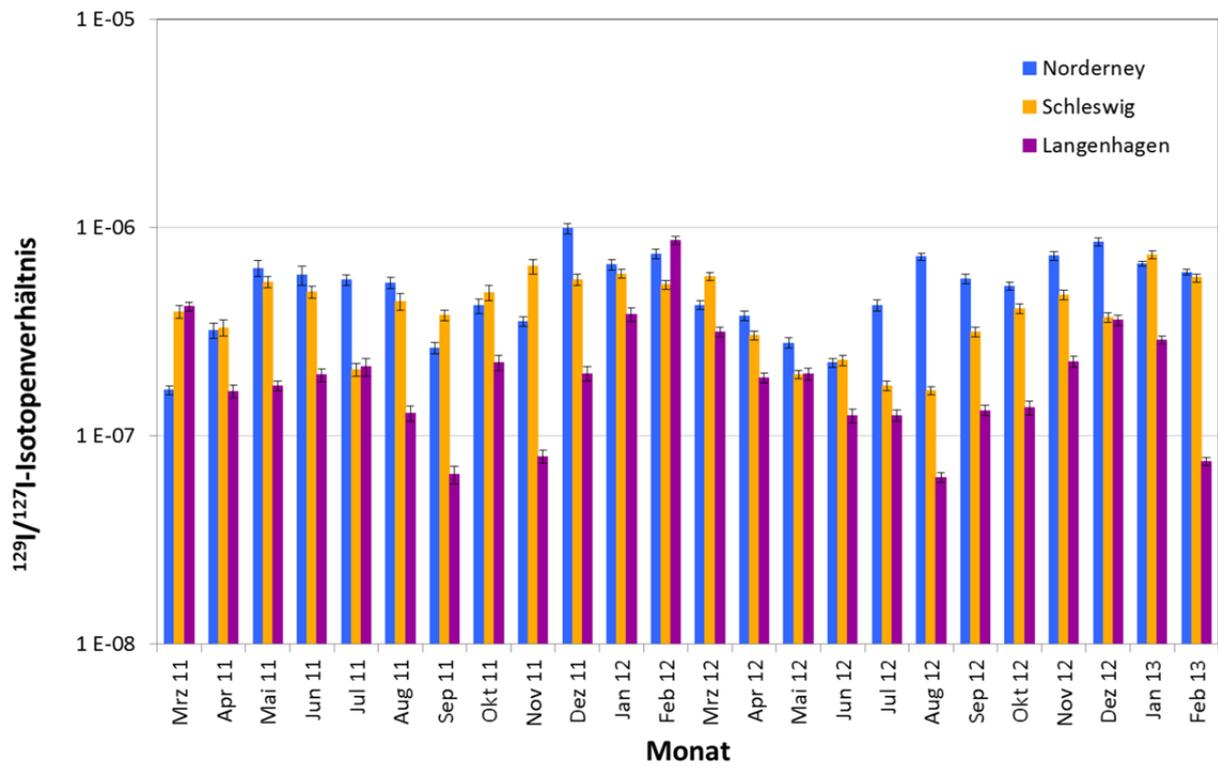


Abb. 4.24: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Norderney, Schleswig und Langenhagen (Nord).

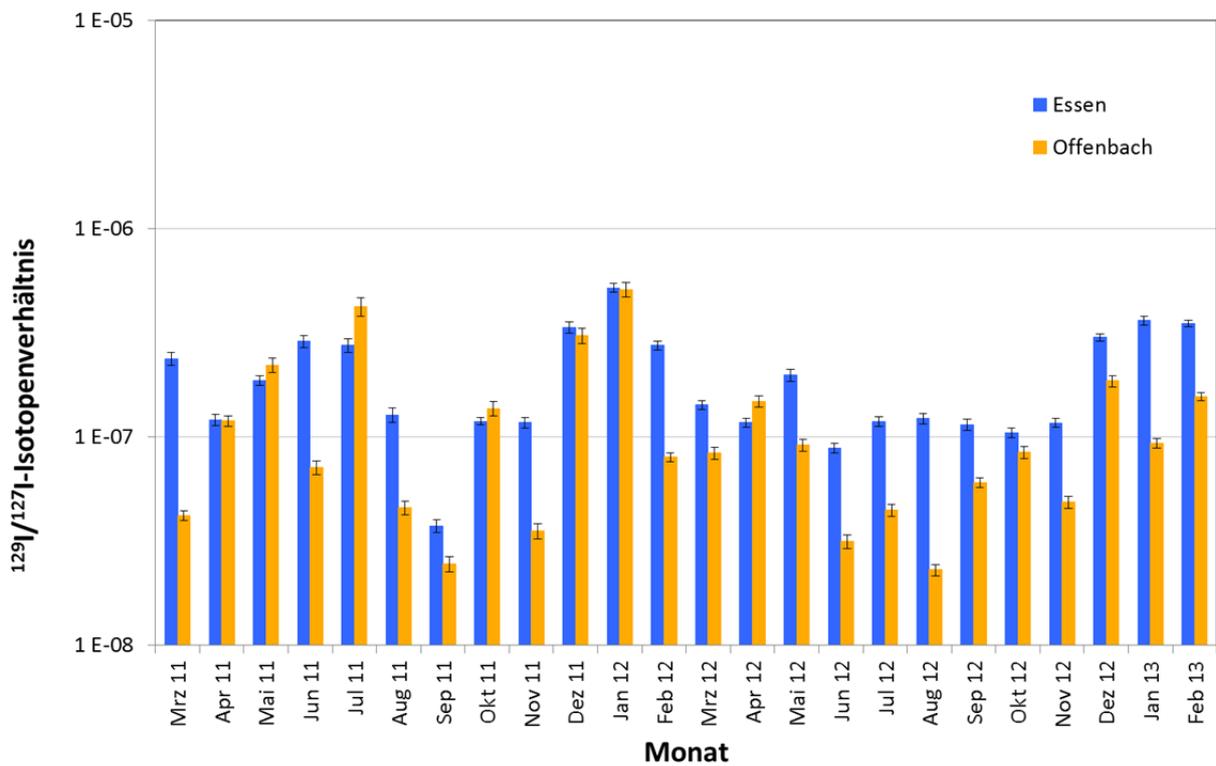


Abb. 4.25: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Essen und Potsdam (West).

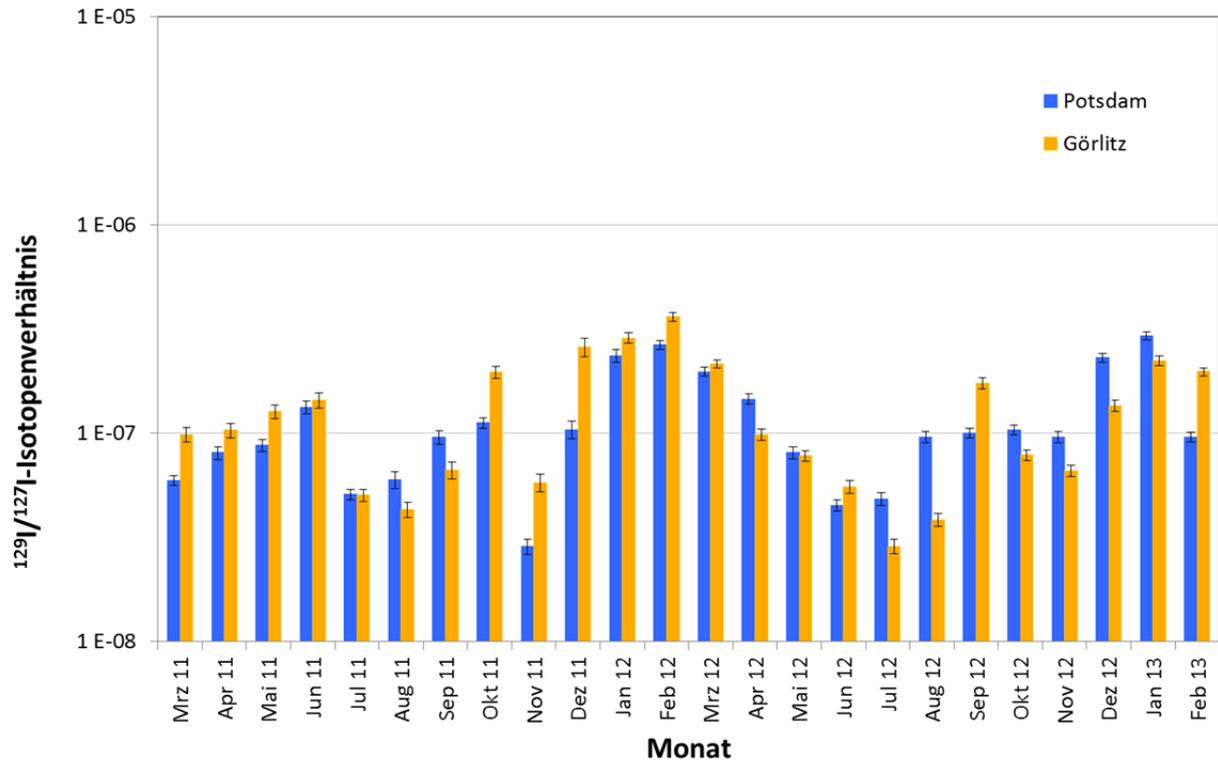


Abb. 4.26: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Potsdam und Görlitz (Ost).

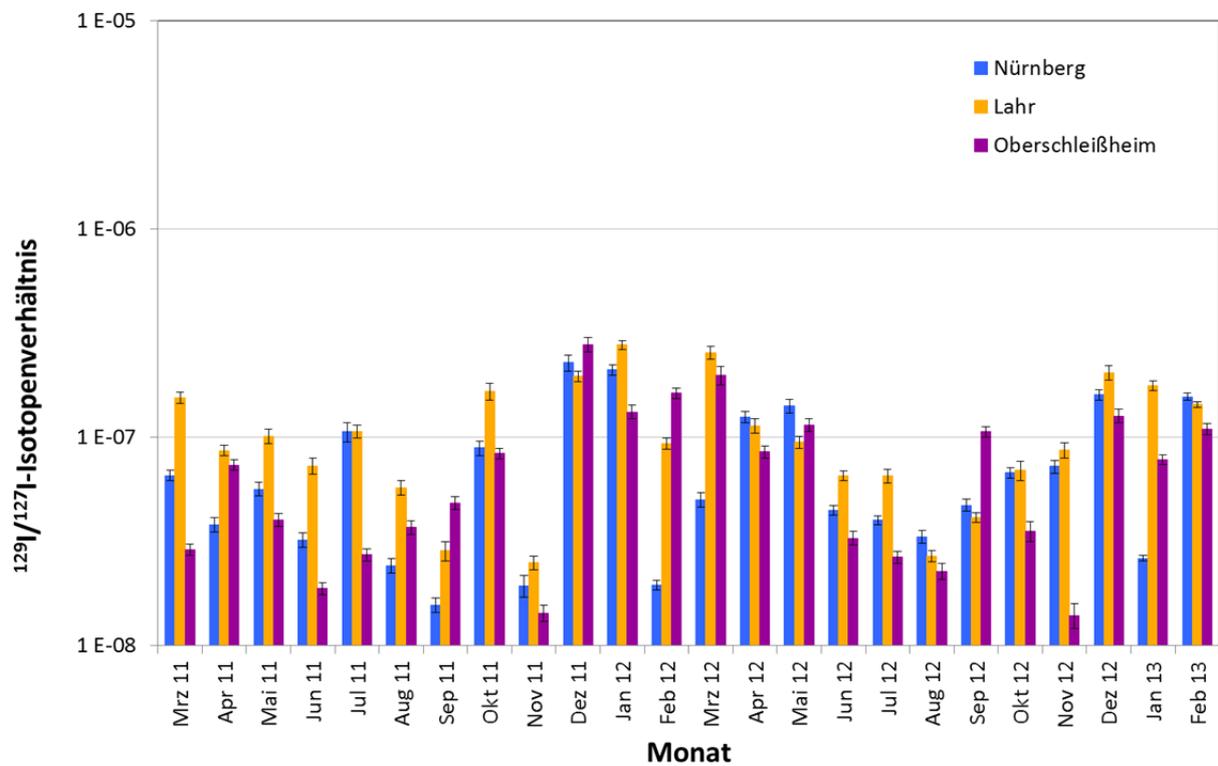


Abb. 4.27: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Nürnberg, Lahr und Oberschleißheim (Süd).

Für den Standort Buer-Ostenwalde (ca. 100 km westlich von Langenhagen, in gleicher Entfernung zur Nordsee gelegen) lagen die Isotopenverhältnisse im Zeitraum 1997-2001 bei $1,8 \cdot 10^{-7}$ bis $10,9 \cdot 10^{-7}$, für Langenhagen für die hier untersuchte Periode im Bereich von $0,6 \cdot 10^{-7}$ bis $8,6 \cdot 10^{-7}$.

Hou et al. (2009) fanden für Niederschlagsproben für Roskilde (Dänemark) den Zeitraum von 2001 bis 2006 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von $0,5 \cdot 10^{-7}$ bis $7,7 \cdot 10^{-7}$, die vergleichbar sind mit den in diesem Projekt gefundenen Werten für die 3 nördlichen DWD-Stationen ($0,6 \cdot 10^{-7}$ bis $9,9 \cdot 10^{-7}$). Für Nordschweden (2000-2005) geben Aldahan et al. (2009) einen Bereich von $0,6 \cdot 10^{-7}$ bis $18 \cdot 10^{-7}$ an.

Im Wasser des Englischen Kanals, der Irischen See und der Nordsee vor der deutschen Küste lagen die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Jahren von 2005-2006 mit Werten von $4 \cdot 10^{-9}$ und $3 \cdot 10^{-6}$ zum Teil um einige Größenordnungen über denen der Niederschläge. Das spricht dafür, dass das Iod in den Niederschlägen, das nicht direkt von sea spray beeinflusst ist, nicht nur aus der küstennahen Nordsee stammt, sondern auch von Meeresbereichen mit niedrigeren $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen [Michel et al. 2012]. Ebenso wahrscheinlich ist, dass das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Niederschlag durch zusätzliches ^{127}I aus anthropogenen Quellen verdünnt wird.

4.3 Fließgewässer

4.3.1 Konzentration von ^{127}I und ^{129}I im Flusswasser

Die Proben für die Fließgewässer wurden monatlich gesammelt, aber - anders als die der Aerosole und Niederschläge - vierteljährlich zusammengefasst und sind im Folgenden als Quartalsproben dargestellt. Abb. 4.28 zeigt die für ^{127}I gemessenen Konzentrationen der Quartale I/2011 bis I/2013, die den gesamten Zeitraum von Januar 2011 bis März 2013 umfassen. Die Werte zeigen eine geringe Schwankungsbreite, was sicher durch die Zusammenfassung von jeweils drei Monatsproben noch verstärkt wurde. Die gemessenen Quartalswerte lagen alle im Bereich von $(2,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ (Breisach/Rhein) und $(22,8 \pm 0,7) \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ (Eisenhüttenstadt/Oder).

Die höchsten Durchschnittswerte über den gesamten Zeitraum von zwei Jahren wurden mit $13,3 \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ (Eisenhüttenstadt) bzw. $11,6 \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ (Schwedt) für die Oder und mit $11,1 \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ (Geeste) für die Ems gefunden. Die übrigen Flüsse wiesen niedrigere Werte auf, die zwischen $8,5 \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ und $2,9 \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ lagen (Tab. 4.2). Für den Rhein ist ein Ansteigen der Iodkonzentrationen in Fließrichtung zu erkennen: Breisach < Worms < Koblenz < Wesel.

Die gemessenen Werte entsprechen dem Gehalt von $\leq 20 \cdot 10^{-6} \text{ g L}^{-1}$ an stabilem Iod, der für Fließgewässer zu erwarten ist [Moran et al. 2002]. Whitehead (1984) gibt für Großbritannien an, dass für Flüsse außerhalb von Ballungsräumen Iodkonzentrationen von $< 3 \cdot 10^{-6} \text{ g L}^{-1}$ zu erwarten sind, dass die Werte in der Nähe großer Städte bis auf $15\text{-}20 \cdot 10^{-6} \text{ g L}^{-1}$ steigen können. Daraoui (2010) gibt in seiner Arbeit ^{127}I -Konzentrationen von $7 \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ für Niedersächsische Oberflächenwässern an.

Iod in Flüssen hat unterschiedliche Quellen. Die beiden wichtigsten sind der atmosphärische Eintrag von Iod, das aus den Ozeanen stammt, und die Böden, aus denen das Iod durch Verwitterung freigesetzt wird [Moran et al. 2002]. So fanden Zhang et al. (2011) in Flusswasser in Zentralchina, das aus einem Gebirgsfluss mit steinigem Flussbett stammte, Iod-Konzentrationen von $(0,8 - 1,2) \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$, während Proben aus sedimentführenden Flüssen aus einer dicht bevölkerten Ebene ^{127}I in der Größenordnung von $(4,3 - 17,6) \cdot 10^{-6} \text{ g kg}^{-1}$ enthielten.

Weniger bedeutende Quellen sind die Freisetzung von gasförmigem Iod durch Pflanzen (volatilization) bzw. durch deren Zersetzung, und Iod aus aufsteigenden Tiefenwässern [Moran et al. 2002].

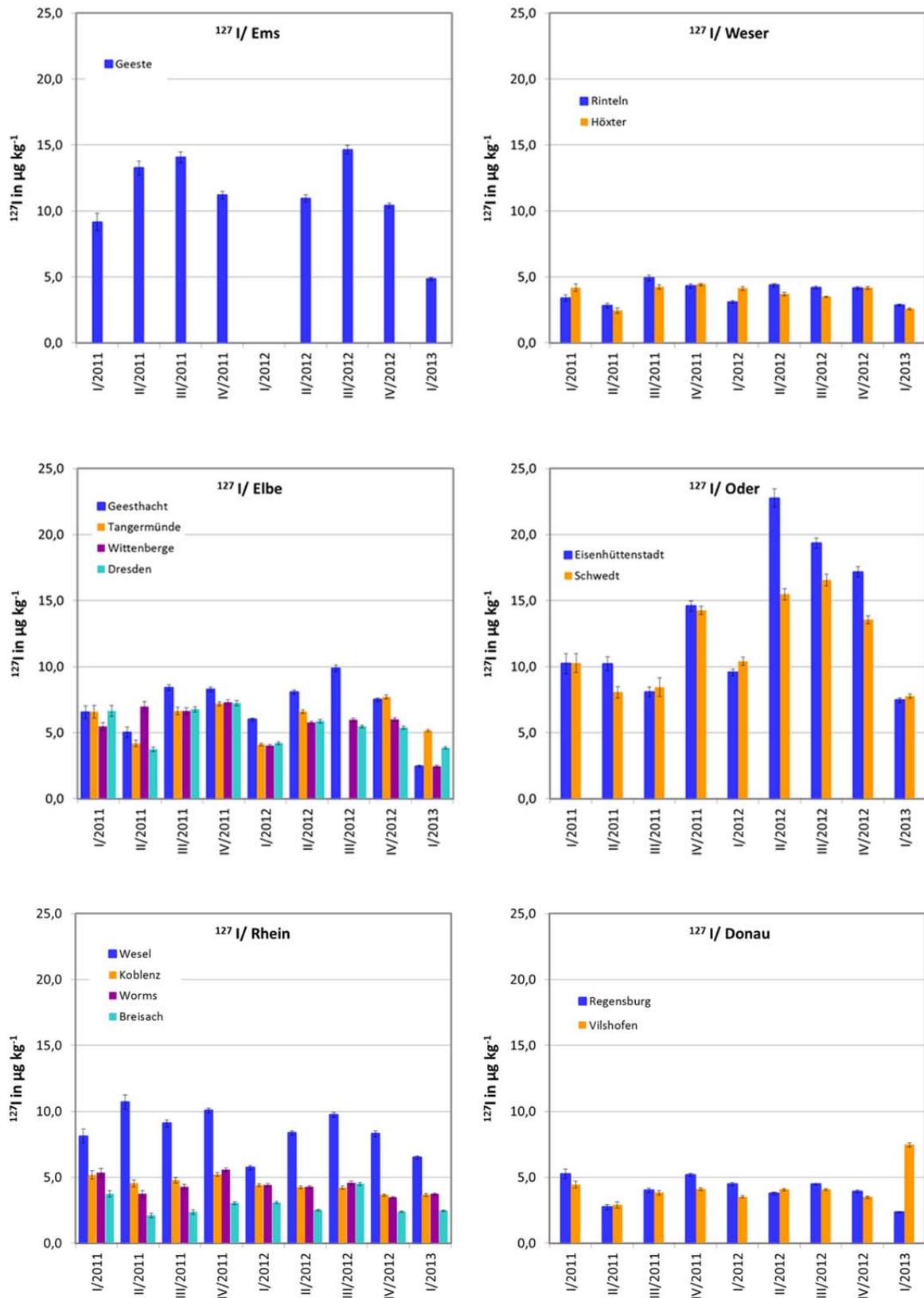


Abb. 4.28: ^{127}I -Konzentrationen im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).

Die Schwankungsbreite der ^{129}I -Konzentrationen fiel größer aus als die der ^{127}I -Konzentrationen, was durch das Auftreten einzelner stark erhöhter Werte noch verstärkt wurde (Abb. 4.29). Insgesamt lagen die Messwerte in einem Bereich von $(18,6 \pm 2,3) \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ (Regensburg/Donau) und $(810 \pm 29,8) \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ (Geesthacht/Elbe). Tab. 4.2 fasst die mittleren gefundenen Werte für die ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen, sowie die resultierenden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zusammen. Ein Überblick über alle Einzelmesswerte befindet sich in Tab. A.7 im Anhang A.

Für die Ems wurden, wie auch für ^{127}I , durchgehend hohe Konzentrationen an ^{129}I im Flusswasser gefunden. Sie lagen im Durchschnitt bei $231 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$, ohne den Extremwert von $640 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ im 4. Quartal 2012 bei durchschnittlich $173 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$. Für die Stationen an der Oder (Schwedt, Eisenhüttenstadt), deren Wasser ebenfalls Mengen an ^{127}I in der gleichen Größenordnung enthielt wie die Ems, wurden dagegen keine außergewöhnlich hohen ^{129}I -Konzentrationen festgestellt. Sie lagen im Durchschnitt um einen Faktor 3 bzw. 2 niedriger als der von Geeste.

Tab. 4.2: Mittlere ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für die untersuchten Flusswasserproben.

Messtation	^{127}I [10^{-6} g/kg]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/kg]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
Eisenhüttenstadt (Oder)	13,3	1,4	76,9	10,1	0,7 E-8	0,1 E-8
Schwedt (Oder)	11,6	1,4	80,6	10,4	0,8 E-8	0,2 E-8
Geesthacht (Elbe)	6,9	0,8	184,7	33,0	2,6 E-8	0,5 E-8
Tangermünde (Elbe)	6,0	0,7	58,8	8,1	1,0 E-8	0,2 E-8
Wittenberge (Elbe)	5,6	0,6	60,3	8,3	1,2 E-8	0,2 E-8
Dresden (Elbe)	5,5	0,6	64,6	10,6	1,2 E-8	0,2 E-8
Rinteln (Weser)	3,8	0,5	62,0	8,9	1,7 E-8	0,3 E-8
Höxter (Weser)	3,7	0,5	112,7	22,6	2,9 E-8	0,7 E-8
Geeste (Ems)	11,1	1,1	231,1	33,9	2,2 E-8	0,3 E-8
Wesel (Rhein)	8,5	0,9	140,4	22,5	1,6 E-8	0,3 E-8
Koblenz (Rhein)	4,4	0,5	61,4	9,5	1,4 E-8	0,3 E-8
Worms (Rhein)	4,4	0,5	63,2	10,0	1,4 E-8	0,3 E-8
Breisach (Rhein)	2,9	0,4	49,0	7,1	1,8 E-8	0,4 E-8
Regensburg (Donau)	4,0	0,5	30,0	5,4	0,8 E-8	0,2 E-8
Vilshofen (Donau)	4,2	0,5	36,8	5,7	0,9 E-8	0,2 E-8

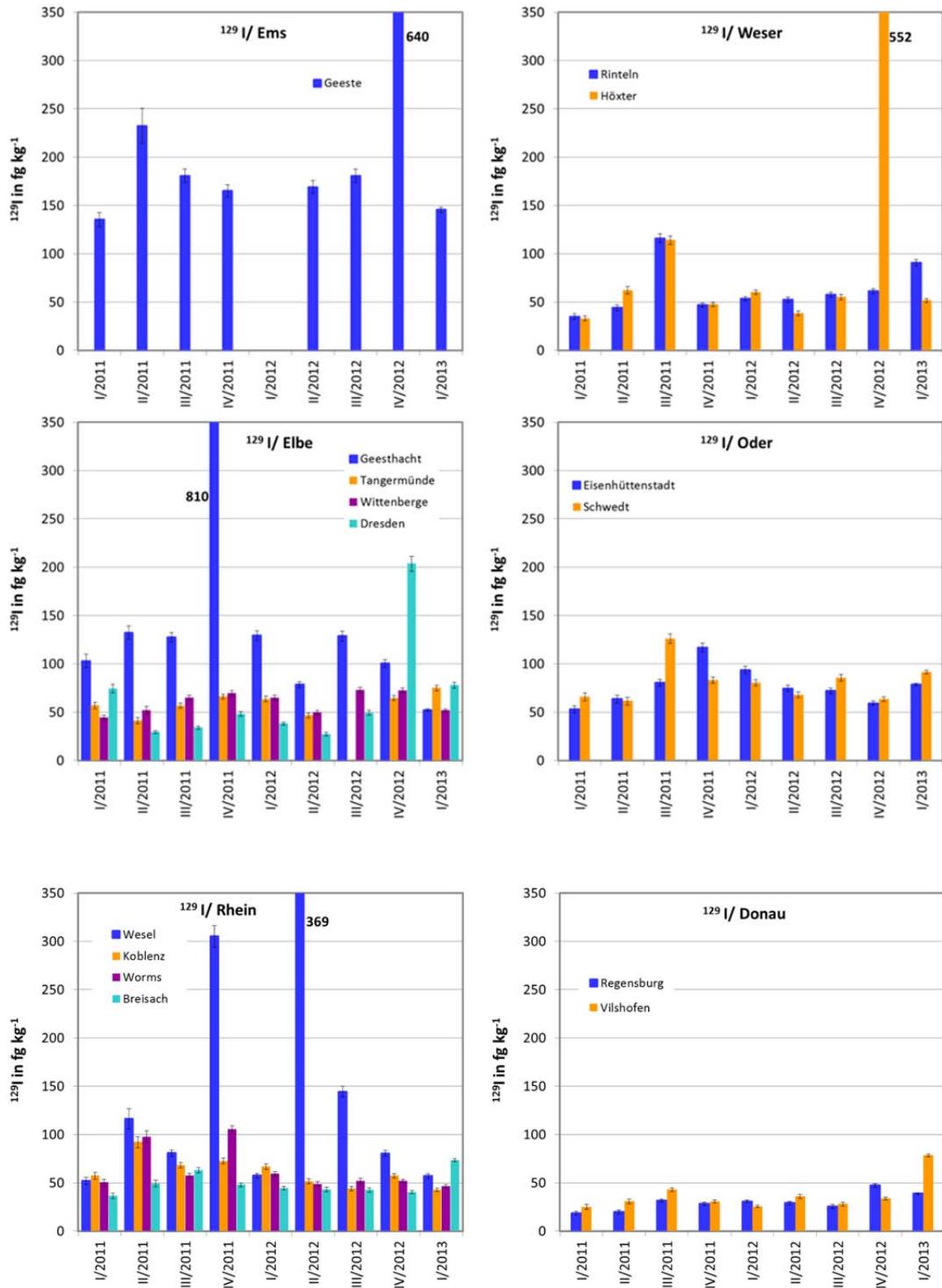


Abb. 4.29: ^{129}I -Konzentrationen im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).

Außer für Geeste wurden die höchsten Durchschnittswerte für die Unterläufe von Elbe (Geesthacht) und Rhein (Wesel) gemessen. Sie lagen bei $184 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ und $140 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$, bzw. bei $107 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ und $84,1 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$, wenn die Extremwerte nicht mitbetrachtet werden. Die insgesamt niedrigsten ^{129}I -Konzentrationen wurden für die Donau (Regensburg, Vilshofen) und für den Oberlauf des Rheins (Breisach) gefunden. Sie lagen im Mittel über den gesamten betrachteten Zeitraum bei $30,0 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$, $36,8 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ und $49,0 \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$.

Die durchschnittlichen ^{129}I -Konzentrationen der in diesem Projekt analysierten Proben lagen alle im Bereich der Messwerte, die Kekli et al. (2003) und Aldahan et al. (2006) für Flüsse in Skandinavien und in den Baltischen Staaten angeben (vergl. Abb. 4.30). Für Flüsse in Finnland und in Nordschweden fanden sie Konzentrationen für ^{129}I von $(20 - 94) \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$, für Südschweden Werte im Bereich von $(80 - 296) \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$, und für die Baltischen Staaten von $(46 - 116) \cdot 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$.

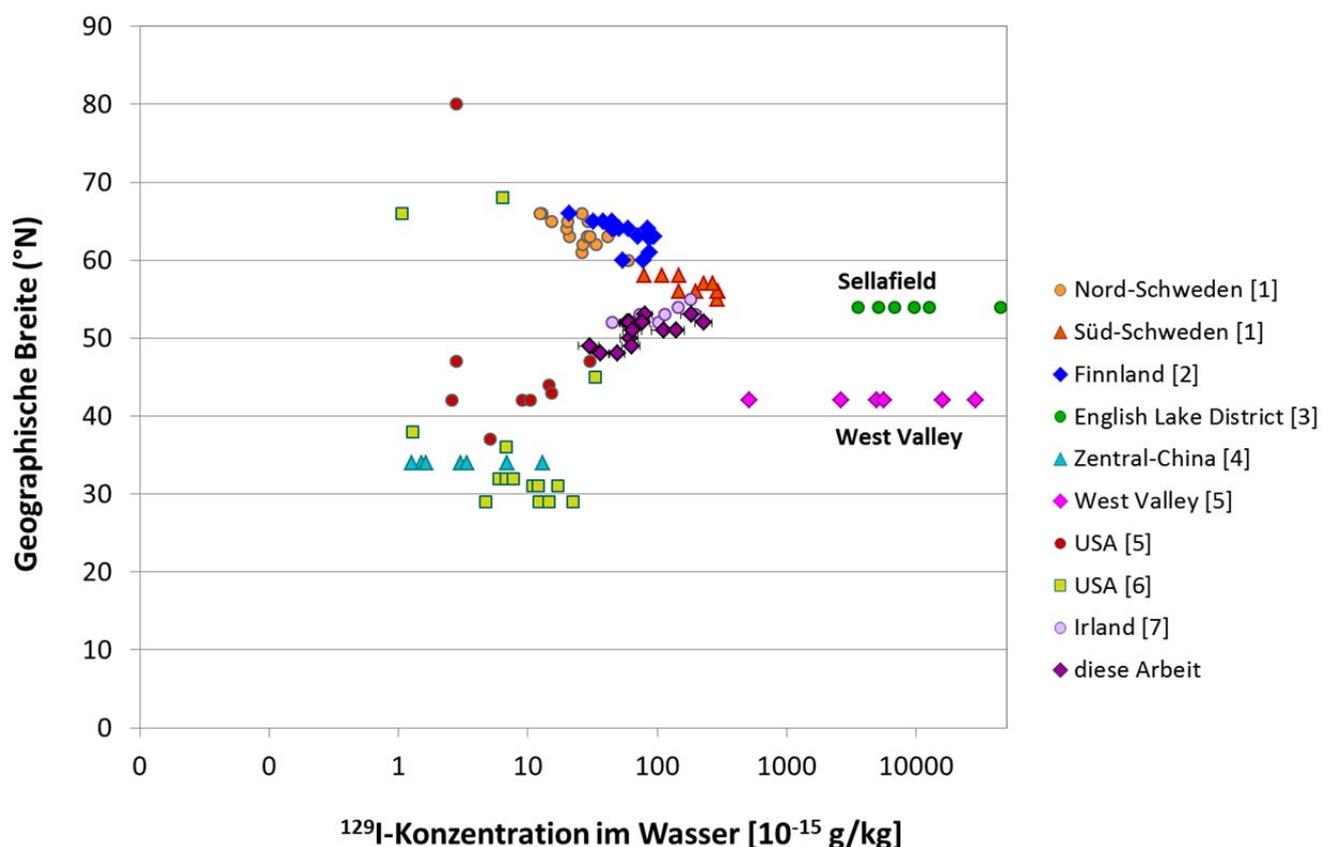


Abb. 4.30: ^{129}I -Konzentration im Wasser von Flüssen der nördlichen Hemisphäre in Abhängigkeit von der geographischen Lage ([1] Kekli et al. 2003; [2] Aldahan et al. 2006; [3] Atarashi-Andoh et al. 2007; [4] Zhang et al. 2011; [5] Rao und Fehn 1999; [6] Moran et al. 2002; [7] Keogh et al 2010).

Dabei stellten Aldahan et al. (2006) eine enge Beziehung ($R^2 = -0,76$) der gemessenen Konzentrationen mit der Entfernung von einer virtuellen Punktquelle (57° nördl. Breite) vor der südnorwegischen Küste in der Nordsee fest, einem Bereich, in dem sie eine Mischung der Signale aus Sellafield und La Hague erwarten. Dabei nehmen die Autoren an, dass der Eintrag in die untersuchten Flüsse eher über ^{129}I -angereichertes Nordseewasser via Niederschlag erfolgt als über gasförmige Emissionen, da die Beziehung zwischen ^{129}I und Chlorid in den betreffenden Flüssen ($R^2 = 0,83$) sehr eng ist.

Moran et al. (1999) gehen davon aus, dass ein Teil des von den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen freigesetzten ^{129}I über die Atmosphäre weltweit verbreitet wird und dazu beiträgt, dass die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse über einen Bereich hinaus angehoben werden, die sich mit dem Fallout aus den Kernwaffenversuchen der 1950er und 1960er Jahre erklären lässt.

In Abb. 4.30 zeigt sich in den mittleren Breiten der nördlichen Hemisphäre ein deutliches Maximum für die ^{129}I -Konzentration im Flusswasser. Nach Norden und nach Süden nimmt die Konzentration jeweils kontinuierlich ab. Dies wurde auch von Snyder und Fehn (2004) festgestellt, die zudem ein weiteres, kleineres Maximum in den mittleren Breiten der Südhalbkugel fanden. Sie nehmen an, dass es sich nicht um einen präferentiellen Transport von ^{129}I dorthin handelt, sondern dass lokalen Umweltbedingungen in tropischen Regionen (erhöhte marine Primärproduktion, starke Auswaschung der Böden) zu einer Verringerung der ^{129}I -Konzentrationen in Fließgewässern im Bereich des Äquators führt.

Die Abb. 4.30 lässt weiterhin erkennen, dass die Flüsse in der direkten Umgebung von Sellafield (Entfernung der Probenahmepunkte max. 20 km) und auch in der Umgebung der 1972 außer Betrieb gestellten Wiederaufarbeitungsanlage West Valley (Entfernung der Probenahmepunkte max. 25 km) erhebliche Mengen an ^{129}I im Wasser aufweisen, die mehrere Größenordnungen über denen der übrigen untersuchten Flüsse liegen.

4.3.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse

Die aus den Messwerten errechneten Einzelwerte für die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der untersuchten Fließgewässer lagen zwischen $(0,32 \pm 0,02) \cdot 10^{-8}$ (Eisenhüttenstadt/Oder) und $(13 \pm 0,6) \cdot 10^{-8}$ (Höxter/Weser). Die Mittelwerte für den betrachteten

Zeitraum fielen in den Bereich von $(0,7 \pm 0,1) \cdot 10^{-8}$ und $(2,9 \pm 0,7) \cdot 10^{-8}$ (Abb. 4.31 und Tab. 4.2). Damit lagen die Isotopenverhältnisse im Wasser deutscher Flüsse in der gleichen Größenordnung, die Snyder und Fehn (2004) für die Themse ($1,9 \cdot 10^{-8}$) angeben. Die von ihnen genannten Werte für Flüsse auf anderen Kontinenten als Europa lagen bei 10^{-9} bis 10^{-11} (Japan, Mongolei, Indien, Botswana, Australien, Mittelamerika). Dagegen wurden für Flüsse in der direkten Umgebung von noch in Betrieb befindlichen bzw. bereits nicht mehr betriebenen Wiederaufarbeitungsanlagen (Sellafield, West Valley) Isotopenverhältnisse von $(1,6 - 8,3) \cdot 10^{-6}$ bzw. $2 \cdot 10^{-7} - 7,2 \cdot 10^{-5}$ ermittelt [Atarashi-Andoh et al. 2007; Rao & Fehn 1999]. Im Vergleich dazu sind die von Aldahan et al. (2006) bestimmten Isotopenverhältnisse für nordschwedische und südschwedische Flüsse mit $(1,9 - 6,7) \cdot 10^{-12}$ bzw. $(1,6 - 3,2) \cdot 10^{-11}$ wesentlich niedriger als die der deutschen Flüsse, obwohl die ^{129}I -Konzentrationen vergleichbar waren.

An diesem Beispiel zeigt sich, dass die Isotopenverhältnisse im Flusswasser entscheidend durch die Konzentration an ^{127}I mit beeinflusst werden. Auch Zhang et al. (2011) weisen darauf hin, dass neben den ^{129}I -Konzentrationen andere Faktoren für die Isotopenverhältnisse eine Rolle spielten. Sie fanden in 4 Flüssen mit klarem Wasser, die ihren Ursprung im Gebirge hatten und außerhalb menschlicher Einflüsse lagen, mit $(1,3 - 3,0) 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$ geringere ^{129}I -Konzentrationen als in 2 sedimentführenden Flüssen in der dicht besiedelten Ebene ($(3,4 - 13,0) 10^{-15} \text{ g kg}^{-1}$), jedoch höhere Isotopenverhältnisse. Sie führten dies auf eine zusätzliche Erhöhung der ^{127}I -Konzentration durch Auswaschung aus den Böden und Einleitung von Industrieabwässern zurück.

Auch Oktay et al. (2001) berichten, dass Evapotranspiration und Auswaschung von Iod aus Böden Einfluss auf die Konzentration von ^{129}I und ^{127}I , sowie auf das Isotopenverhältnis nehmen. Sie fanden für das Einzugsgebiet des Mississippi, der > 40% der Landoberfläche der USA entwässert, dass eine negative Korrelation zwischen der Abflussrate und dem Isotopenverhältnis ($R^2 = -0,67$) bestand. Durch Evapotranspiration kam es zu Erhöhung der ^{129}I -Konzentrationen, so dass diese gleich hoch oder höher als die des Regenwassers im Einzugsgebiet ausfielen.

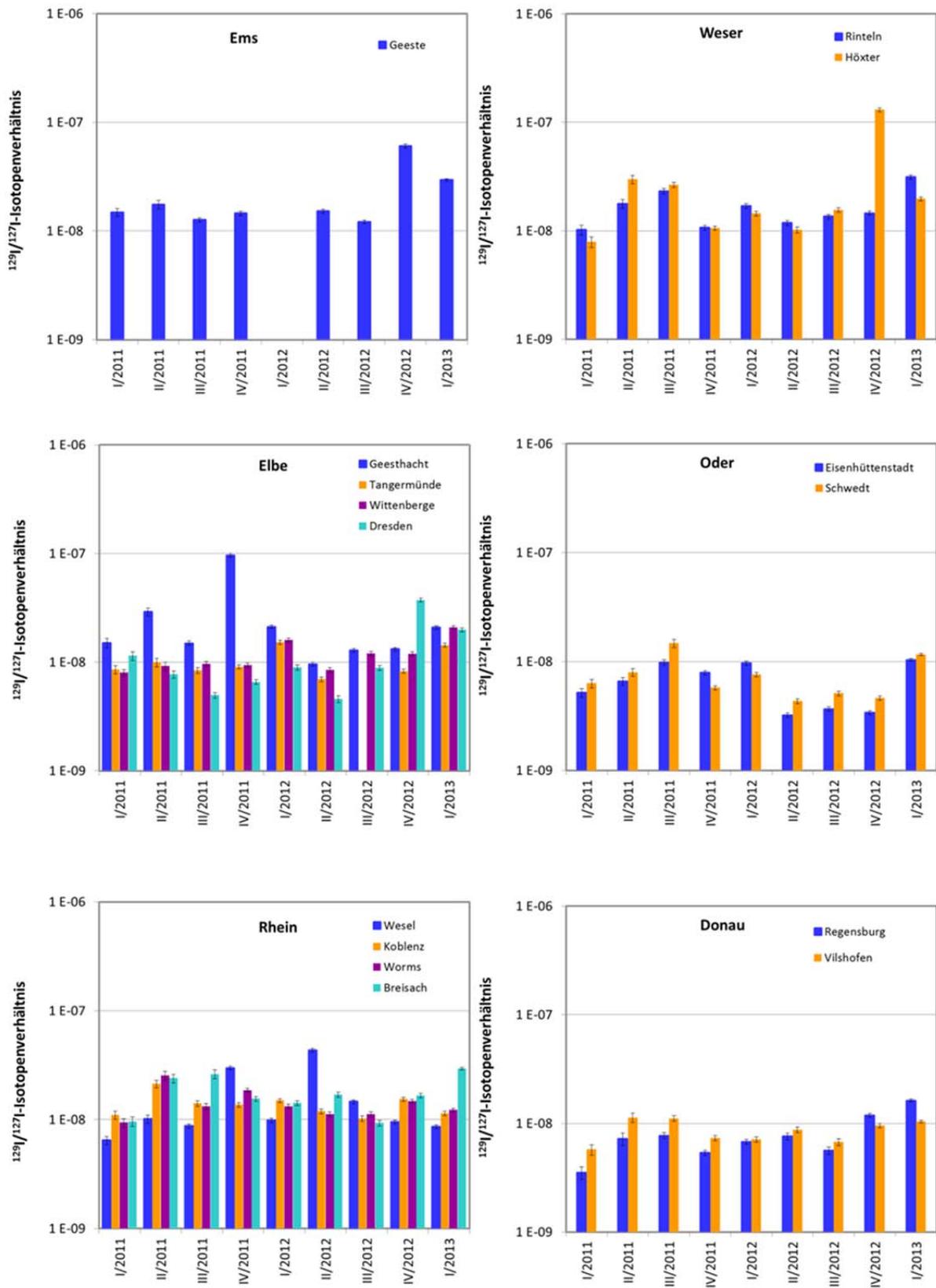


Abb. 4.31: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).

Erhöhte Niederschläge führten dagegen zu Erosion und Auswaschung von zusätzlichem ^{127}I , wodurch das Isotopenverhältnis kleiner wurde.

Aus diesem Grund sollten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse lediglich als Hinweis auf einen anthropogenen Einfluss betrachtet werden. Einen besseren Eindruck von dem tatsächlichen Einfluss geben Depositions- und Flussraten.

4.3.3 Abschätzung der Einträge und Austräge von ^{129}I mit dem Flusswasser

Im Folgenden wird versucht, abzuschätzen, wieviel ^{127}I und ^{129}I über die Fließgewässer jährlich ein- und wieder ausgetragen wird. Dazu wurden die monatlichen bzw. jährlichen Flussraten (WSV 2014) mit den entsprechenden Durchschnittskonzentrationen verrechnet. Die Berechnung ist nicht ganz vollständig, weil einige kleinere Flächen ausgespart werden mussten, da keine Daten vorlagen. Dies betrifft die Einzugsgebiete der Eider, der Schlei/Trave, der Warnow/Peene und der Maas, sowie die unmittelbaren Küstengebiete der Nord- und Ostsee. Diese Flächen machen zusammen jedoch lediglich 8,7 % der gesamten Landesfläche aus (vergl. Tab. 4.3; Abb. B.10).

Tab. 4.3: Länge und Größe der Einzugsgebiete der untersuchten Fließgewässer.

	Länge in D in km	Einzugsgebiet in D in km ²	Anteil vom Bundesgebiet (%)
Ems	371	15.008	4,2
Elbe	726	97.175	27,2
Weser	422	46.306	13,0
Oder	179	5.587	1,6
Rhein	870	106.000	29,7
Donau	647	56.184	15,7
<i>Summe</i>			91,3

Für Rhein, Elbe und Oder, deren Quellen nicht in Deutschland liegen und die bereits einen mehr oder weniger langen Weg durch Nachbarstaaten zurückgelegt haben, bevor sie die Grenze erreichen, wurde aus dem mittleren Abfluss der ersten Messstation hinter der Grenze über den betrachteten Zeitraum (Breisach, Dresden, Eisenhüt-

tenstadt) und der mittleren Iod-Konzentration ein Wert für den Eintrag berechnet. Für alle betrachteten Flüsse wurden die Austräge entsprechend über den Abfluss in die Nord- oder Ostsee (Ems, Weser, Elbe, Oder) bzw. über die deutsche Grenze (Rhein, Donau) und der mittleren Iod-Konzentration an der jeweils letzten Messstation vor dem Tidenbereich bzw. der Grenze berechnet. Die Differenz zwischen Eintrag und Austrag ergibt eine Abschätzung für den Austrag von ^{127}I und ^{129}I aus dem Einzugsgebiet der untersuchten Fließgewässer. Tabelle 4.3 gibt einen Überblick über diese Werte, Einzelwerte sind in Tabelle A.8 im Anhang Teil A aufgeführt.

Tab. 4.4: Abschätzung der mittleren jährliche Einträge und Austräge von ^{127}I und ^{129}I durch Fließgewässer anhand der mittleren jährlichen Abflüsse (MQ) und der durchschnittlichen ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen des Wassers.

	Zufluss MQ in [m ³ /a]	mittlere Konz. ^{127}I in [g/kg]	^{127}I Eintrag in [kg/a]	Abfluss MQ in [m ³ /a]	mittlere Konz. ^{127}I in [g/kg]	^{127}I Austrag in [kg/a]	^{127}I Netto- Austrag [kg/a]
Ems	0	0	0	3,94 E+9	1,11 E-5	43.756	43.756
Elbe	1,09 E+10	5,50 E-6	59.840	2,72 E+10	6,90 E-6	187.352	127.513
Weser	0	0	0	1,02 E+10	3,80 E-6	38.947	38.947
Oder	9,30 E+9	1,33 E-5	123.731	1,81 E+10	1,16 E-5	209.979	86.248
Rhein	3,82 E+10	2,90 E-6	110.843	7,16 E+10	8,50 E-6	608.487	497.644
Donau	0	0	0	4,42 E+10	4,20 E-6	185.432	185.432
Summe							979.540

	Zufluss MQ in [m ³ /a]	mittlere Konz. ^{129}I in [g/kg]	^{129}I Eintrag in [g/a]	Abfluss MQ in [m ³ /a]	mittlere Konz. ^{129}I in [g/kg]	^{129}I Austrag in [g/a]	^{129}I Netto- Austrag [g/a]
Ems	0	0	0	3,94 E+9	2,31 E-13	0,91	0,91
Elbe	1,09 E+10	6,46 E-14	0,70	2,72 E+10	1,85 E-13	5,02	4,31
Weser	0	0	0	1,02 E+10	6,20 E-14	0,64	0,64
Oder	9,30 E+9	7,69 E-14	0,72	1,81 E+10	8,06 E-14	1,46	0,74
Rhein	3,82 E+10	4,90 E-14	1,87	7,16 E+10	1,40 E-13	10,05	8,18
Donau	0	0	0	4,42 E+10	3,68 E-14	1,62	1,62
Summe							16,40

Die Abschätzung für den Austrag von ^{129}I aus dem Einzugsgebiet der untersuchten Flüsse, das 326.260 km² umfasst, ergab für den betrachteten Zeitraum eine jährliche Gesamtmenge von 16,4 g. Dies entspricht etwa der Menge, die Oktay et al. (2001) für die Jahre 1996-1998 als jährlich aus dem Einzugsgebiet des Mississippi ausgetragene Menge an ^{129}I (15,0 g) fand, das mit 2.981.076 km² fast zehnmal so groß ist, in dem es jedoch keinen direkten Einfluss durch Wiederaufarbeitungsanlagen gibt. In der Größenordnung ähnelt die über Fließgewässer ausgetragene Menge an ^{129}I mehr

derjenigen, die von Cochran et al. (2000) für den Ob aus Analyseergebnissen aus den Jahren 1994-1995 errechnet wurden. Dieser transportierte aus seinem 2.972.497 km² großen Einzugsgebiet rund 246 g ¹²⁹I in Richtung Kara-See, worin sich deutlich der Einfluss der oberirdischen Ableitungen der kerntechnischen Anlagen Mayak und Tomsk zeigten.

Für den Yenisei in der direkten Nachbarschaft des Ob mit einem annähernd gleich großen Einzugsgebiet von 2.580.000 km² ergab die Berechnung des jährlichen Austrags auf der Basis von 1993 analysierten Proben einen ¹²⁹I-Austrag in die Kara-See von lediglich rund 43 g [Beasley et al. 1997]. Mit Krasnoyarsk-26 existiert zwar ebenfalls eine kerntechnische Anlage (Herstellung von waffenfähigem Plutonium) im Einzugsgebiet, die hochradioaktiven Abfälle wurden hier jedoch in einer Tiefe von 200 bis 500 m untergebracht [Beasley et al 1997].

Beim einem Vergleich muss beachtet werden, dass es sich bei Wasseranalysen, anders als bei der Untersuchung von Sedimenten und Böden, um Momentaufnahmen handelt.

4.4 Boden

Die Ergebnisse zu den untersuchten Bodenproben werden der besseren Übersichtlichkeit wegen nach ihrer geographischen Lage in Gruppen unterteilt vorgestellt. Abb. 4.32 zeigt die Zuordnung der Proben zu den geographischen Einheiten. Sie entspricht der Einteilung, die auch für die Luft-Messstationen des IMIS-Netzes gewählt wurde (s. Abb. 2.1). Zusätzlich zu den Gehalten an ^{127}I und ^{129}I , sowie dem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis werden Depositionsdichten angegeben, die aus den Iod-Konzentrationen und der Lagerungsdichte des Bodens berechnet wurden. Alle Angaben gelten für den Oberboden (0 – 50 cm). Einzelwerte sind in den Tabellen A.9 und A.10 im Anhang A zusammengestellt.

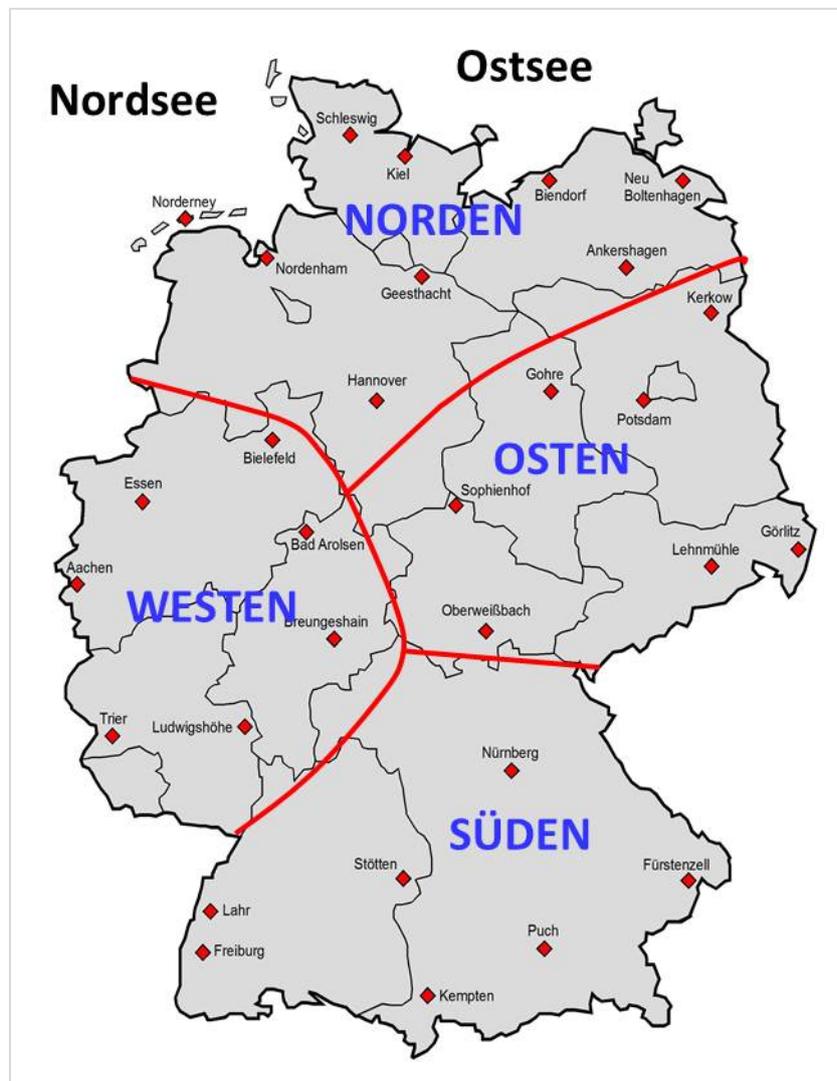


Abb. 4.32: Einteilung der Probenahmestandorte für Bodenproben in Sektoren.

4.4.1 Iodgehalte der untersuchten Böden

In den meisten der untersuchten Böden wurden Konzentrationen für ^{127}I im Bereich von ca. $(1 - 10) \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ gefunden, die in der Mehrzahl der Profile gleichmäßig mit der Tiefe verteilt waren (Abb. 4.33 – Abb. 4.36). Auffällige Ausnahmen sind die Standorte Norderney und Nordenham. Diese Böden liegen direkt an der Küste und unterliegen damit dem unmittelbaren Einfluss der Nordsee. Norderney weist zugleich den höchsten ($17,7 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$) und den niedrigsten ($0,37 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$) gemessenen Wert für ^{127}I auf. Auch die Profile von Stötten und Nürnberg zeigen Abweichungen von der gleichmäßigen Verteilung des stabilen Iods im Profil. Die möglichen Gründe werden bei der Betrachtung der Bodeneigenschaften diskutiert. Auf das Fehlen einer Beziehung zwischen dem Iodgehalt von Böden und der Entfernung zum Meer, wie sie bei den untersuchten Böden beobachtet wurde, weist auch Johnson (2003) hin (Abb. 4.37).

Die Gehalte an stabilem Iod im Ausgangsmaterial der Bodenbildung sind vergleichsweise gering. Fuge und Johnson (1986) geben für magmatische Gesteine einen durchschnittlichen Gehalt von $0,24 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ an. 80 % der von ihnen betrachteten Sedimentgesteine lagen im Bereich von $(0 - 4) \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$, wobei die Gehalte einiger Sedimente wesentlich höher liegen können: rezente Sedimente ($(5 - 200) \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$) > Carbonate ($2,7 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$) und Schiefer ($2,3 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$) > Sandstein ($0,8 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$). Für metamorphe Gesteine gibt das Chilean Iodine Educational Bureau (CIEB 1956) einen Bereich von $(0,06 - 16,5) \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ an. Die Iodgehalte von Böden liegen in der Regel über denen ihrer Ausgangsgesteine. Johnson (2003) schätzt den mittleren Iodgehalt der Ausgangsgesteine auf $0,25 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ und den Gehalt der dazugehörigen Böden um einen Faktor 10 höher. Whitehead (1979, 1984) gibt für verschiedene Oberbodenproben ($n = 132$) aus Großbritannien einen Mittelwert von $9,2 \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ bei einer Spannweite von $(0,5 - 98,2) \cdot 10^{-6} \text{ g g}^{-1}$ an, wobei die höchsten Werte in Böden angetroffen wurden, die reich an organischer Substanz waren. Die Gesteine leisten also im Vergleich zur Atmosphäre einen vergleichsweise geringen Beitrag zum Iodgehalt (^{127}I) von Böden. Diese sind in unterschiedlicher Weise in der Lage, Iod zu akkumulieren.

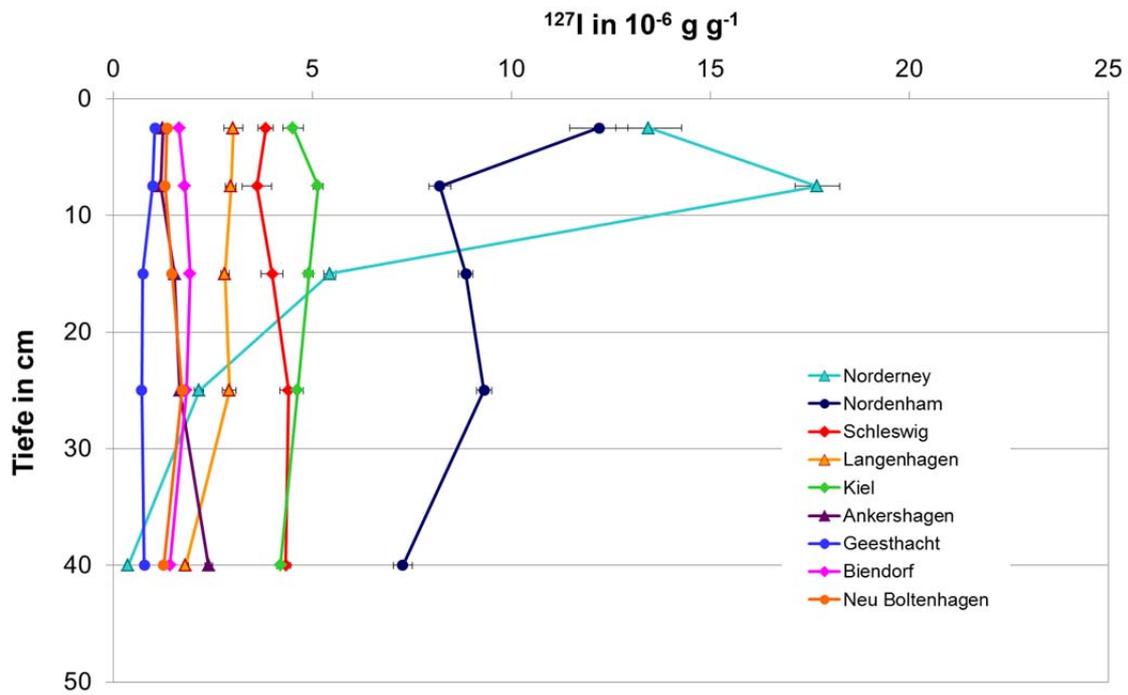


Abb. 4.33: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Norden).

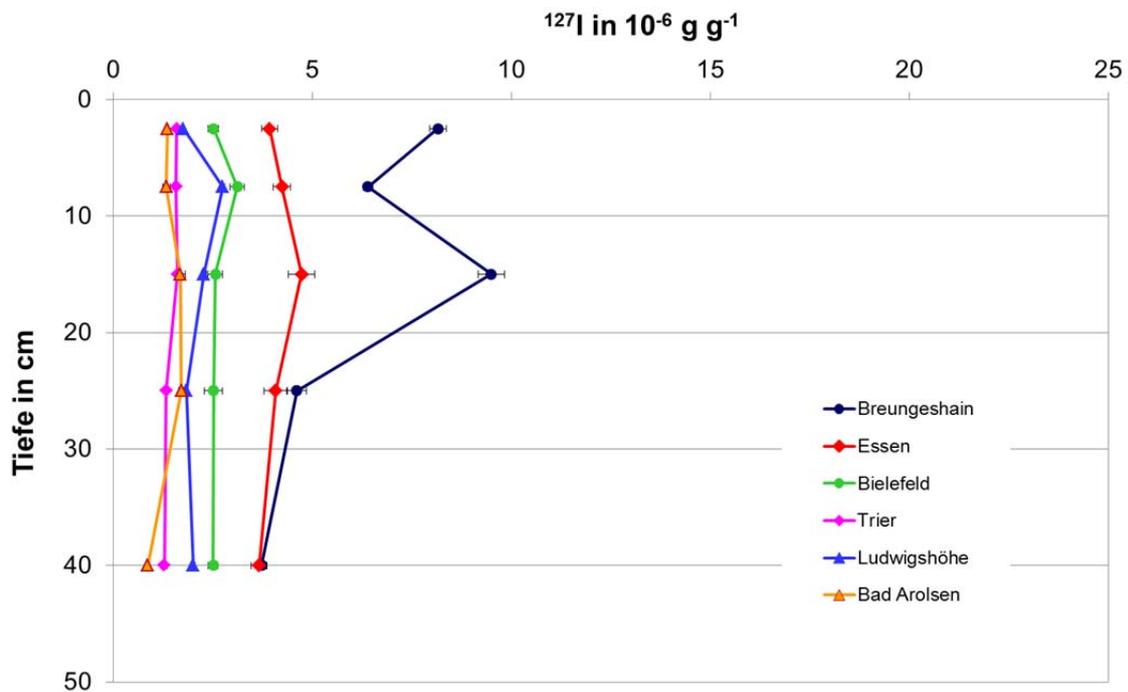


Abb. 4.34: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Westen).

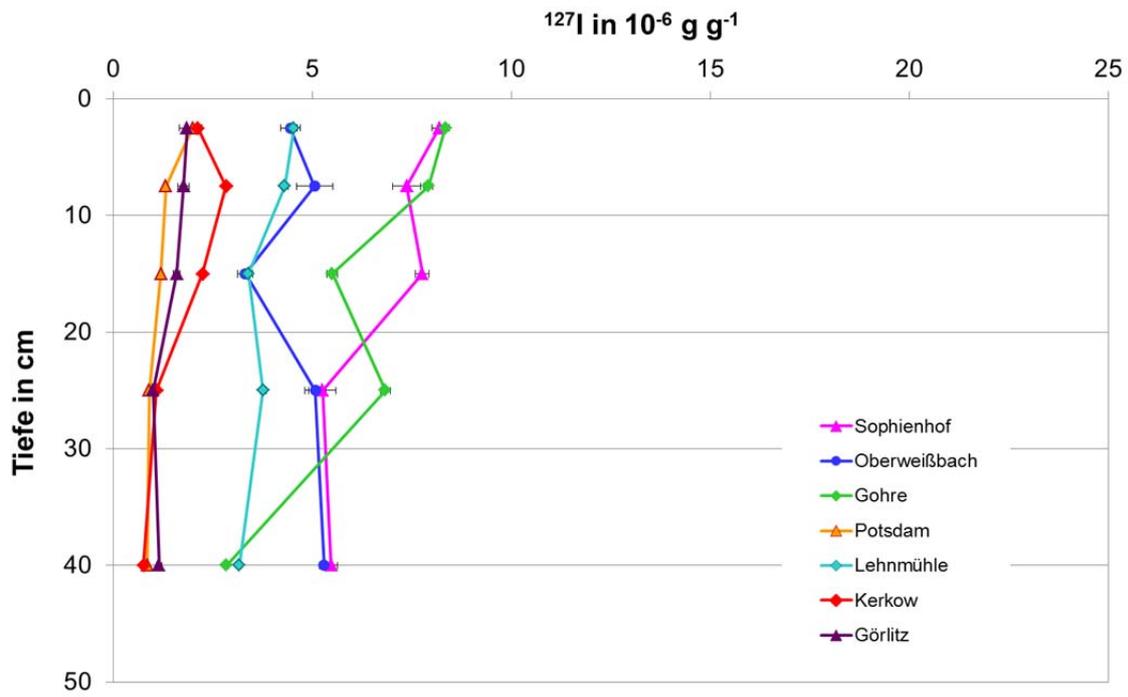


Abb. 4.35: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Osten).

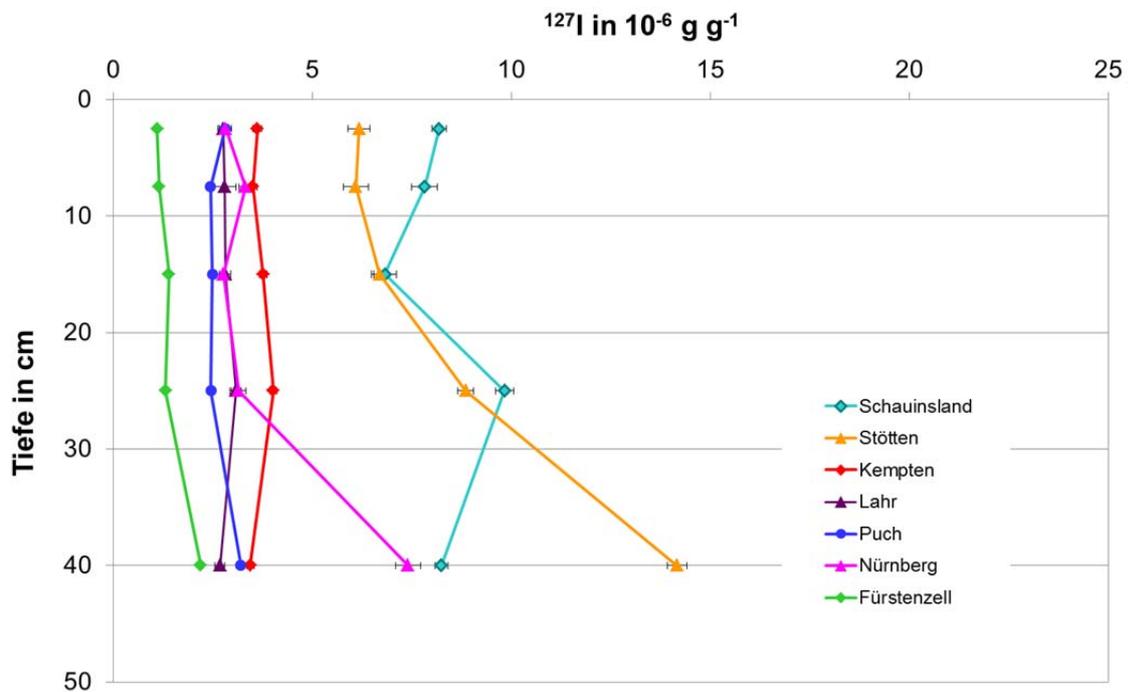


Abb. 4.36: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Süden).

Für das ^{129}I wurden Konzentrationen in einem Bereich von $(2 - 650) \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ gemessen. Auch hier fanden sich die höchsten Konzentrationen auf Norderney und in Nordenham, die jeweils in der obersten Bodenschicht (0-5 cm) bei 650 bzw. $630 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ lagen. Der niedrigste Wert wurde in der untersten Bodenschicht (30 – 50 cm) in Angermünde-Kerkow nahe der polnischen Grenze gefunden.

Die Abbildungen 4.38 bis 4.41 zeigen die Verteilung der ^{129}I -Konzentrationen mit der Tiefe für alle untersuchten Böden. Im Vergleich zum ^{127}I zeigt die Verteilung innerhalb des Profils einen völlig anderen Charakter. Sie nimmt mit zunehmender Tiefe exponentiell ab. Vom gesamten, bis in 50 cm Bodentiefe gefundenen ^{129}I befanden sich 57% (Bad Arolsen) bis 92% (Norderney), im Mittel 78%, in den oberen 20 cm. In den Oberböden lagen die Konzentrationen im Bereich von $23,4 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ (Potsdam) bis $650 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ (Norderney), in der Schicht von 20-30 cm Tiefe reichten die Werte von $2,1 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ (Kerkow) bis $110,5 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ (Lahr). Im untersten Abschnitt (30-50 cm) waren die Konzentrationen durchgehend am niedrigsten. Zwar ist zu erwarten, dass sich geringe Mengen an ^{129}I auch noch unterhalb von 50 cm Bodentiefe finden lassen, aus dem Verlauf der Konzentration mit der Tiefe ist aber zu vermuten, dass es sich, anders als beim ^{127}I angenommen werden muss (Yuita und Kihou 2005), um vernachlässigbar kleine Mengen handeln sollte.

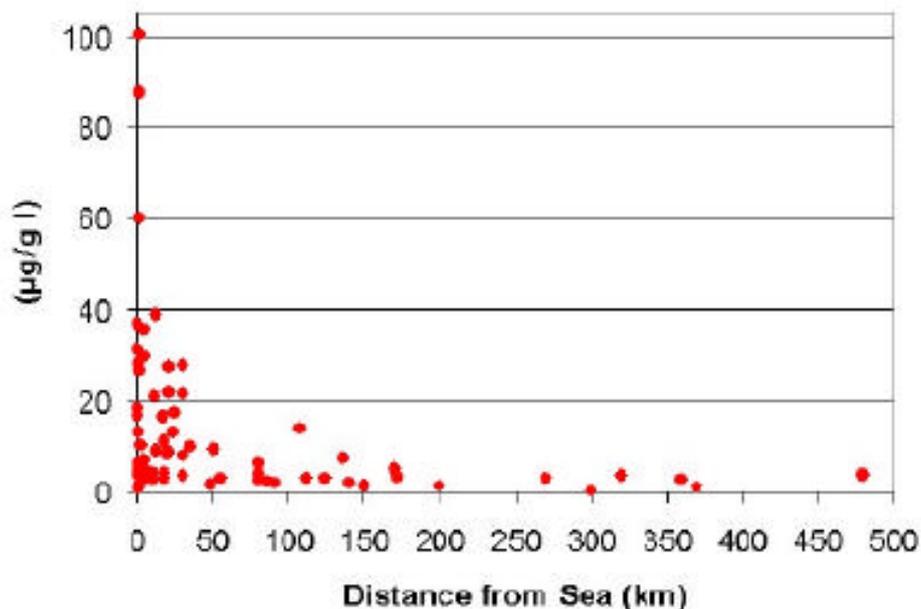


Abb. 4.37: Beziehung zwischen dem Iodgehalt von Böden und deren Entfernung vom Meer (aus: [Johnson 2003]).

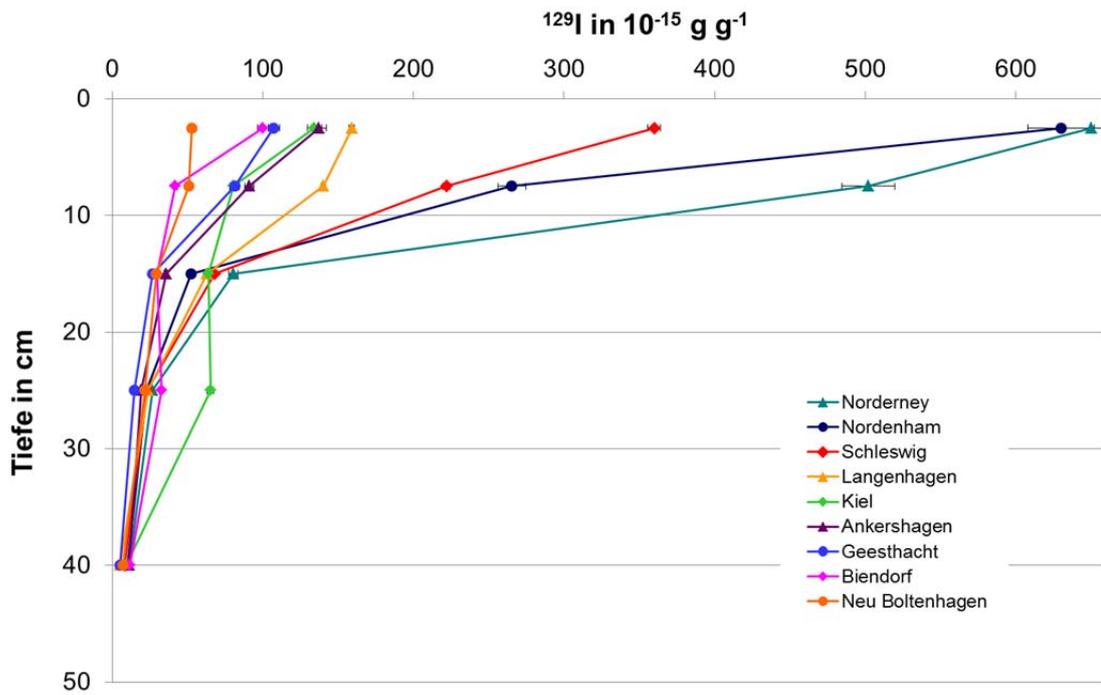


Abb. 4.38: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Norden).

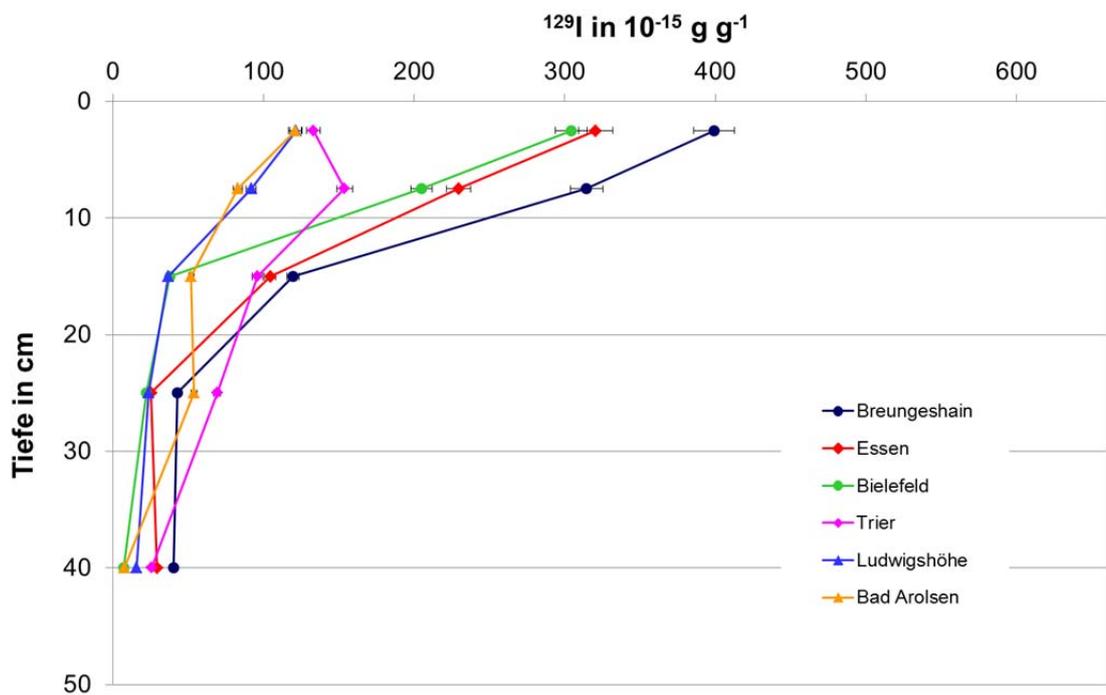


Abb. 4.39: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Westen).

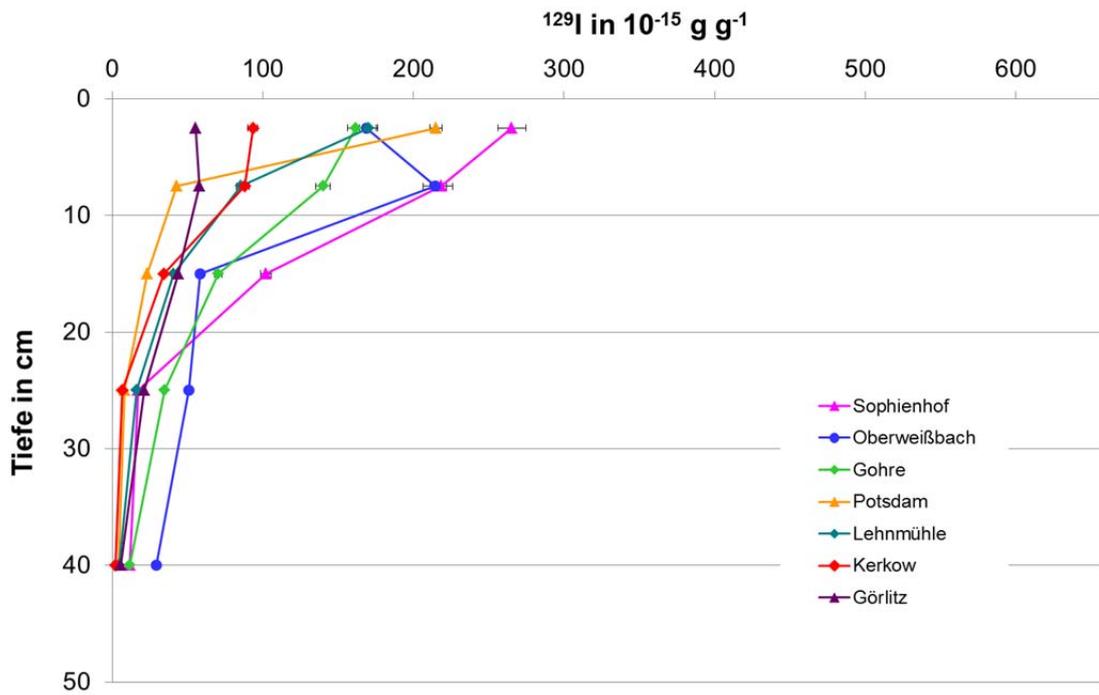


Abb. 4.40: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Osten).

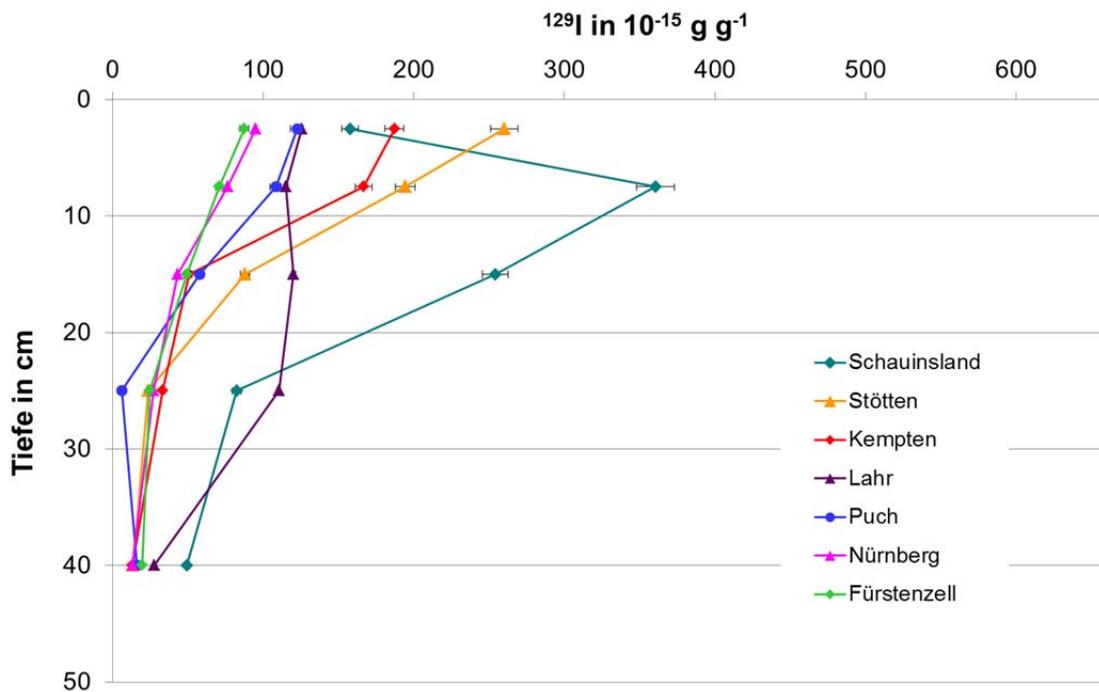


Abb. 4.41: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Süden).

Ernst et al. (2003) beschreiben 7 Bodenprofile aus Niedersachsen, die bis in Tiefen von max. 250 cm untersucht wurden. Im Mittel befanden sich 97 % des ^{129}I in den oberen 50 bzw. 60 cm des Profils. Unterhalb von 100 cm Tiefe wurden nur noch 0,8 bis 1,9 % von der Gesamtmenge angetroffen. Die Konzentrationen, die unterhalb einer Tiefe von 50 cm gefunden wurden, lagen im Bereich von $0,11 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bis max. $3,9 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$, und damit in der Größenordnung, die in den hier untersuchten Profilen in der Schicht 30-50 cm erreicht wurden, bzw. darunter. Abb 4.42 zeigt einen Vergleich der von Ernst et al. (2003) untersuchten Proben mit den Ergebnissen der Bodenproben von der DWD-Messstation Langenhagen. Die ^{129}I -Konzentrationen sind jeweils für die mittlere Tiefe der untersuchten Horizonte und Schichten aufgetragen (z.B. bei 225 cm für die Schicht 200-250 cm).

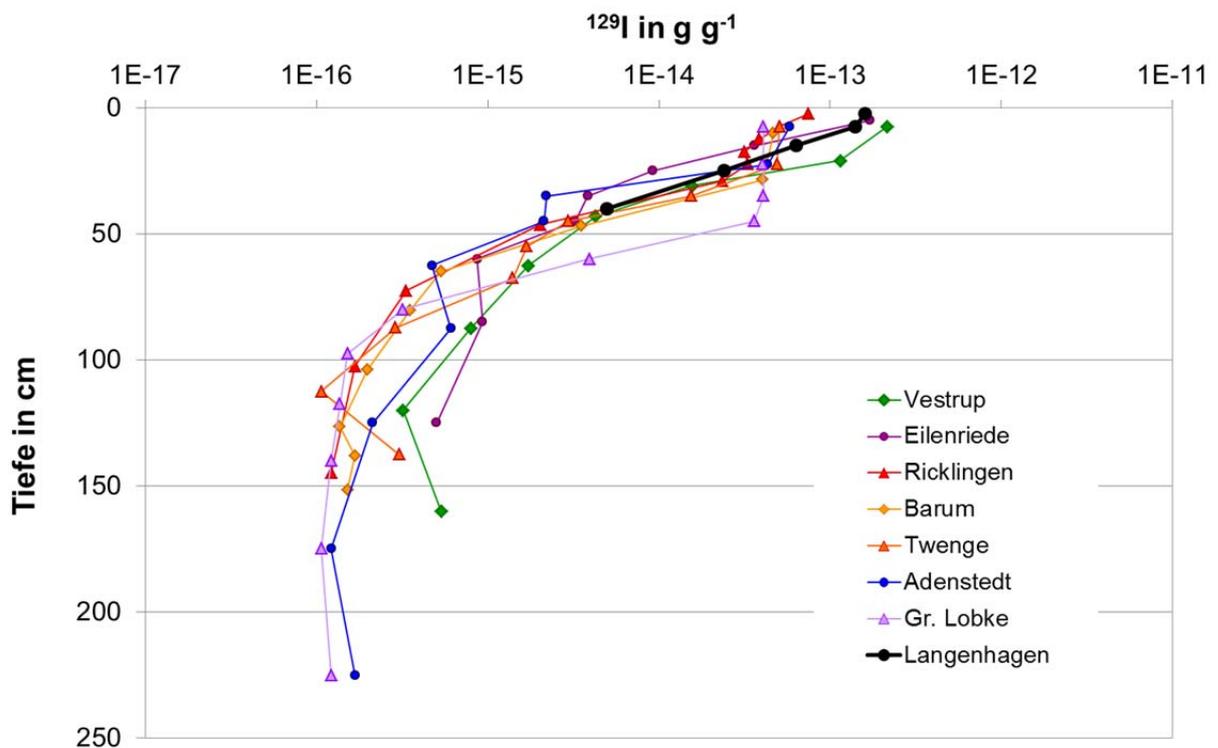


Abb. 4.42: ^{129}I -Konzentrationen in niedersächsischen Böden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 250 cm (Daten aus [Ernst et al. 2003]) und in den Proben der DWD-Messstation Langenhagen (diese Arbeit).

Die Gehalte der untersuchten Oberböden sind vergleichbar mit Werten, die Hou et al. (2003) für 2 Böden in Schweden (0-20 cm) fanden. Diese hatten ^{129}I -Konzentrationen von $45 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bzw. $390 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$. Hansen et al. (2011) bestimmten für einen dänischen Oberboden (0-10 cm) einen Wert von $180 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$. Die ^{129}I -

Konzentrationen, die Muramatsu et al. (2008) für die oberste Bodenschicht (0-20 cm) von Ackerböden und überfluteten Reisfeldern außerhalb des Einflusses kerntechnischer Anlagen bestimmten, lagen etwa eine Größenordnung niedriger, nämlich im Bereich von $2,2 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bis $61 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$. Die für Waldböden ermittelten Ergebnisse aus der gleichen Untersuchung zeigten jedoch ähnliche Werte wie die für die zuvor genannten Böden aus Schweden und Dänemark ($33 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bis $690 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$). Für Lössböden in Nordwestchina werden von Luo et al. (2013) ^{129}I -Konzentrationen für die oberste Schicht (0-20 cm) angegeben, wie sie in den untersuchten niedersächsischen Böden unterhalb von 50 cm Tiefe vorkommen ($0,7 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bis $9,1 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$). Für die Tiefen bis 60 bzw. 90 cm fanden Luo et al. (2013) Werte bis $< 0,01 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ ($3,6 \cdot 10^{-18} \text{ g g}^{-1}$). Konzentrationen in der gleichen Größenordnung zeigen auch Böden auf der Südhalbkugel. So fand Daraoui (2010) für ein bis in 80 cm reichendes Bodenprofil aus Chile ^{129}I -Konzentrationen von $0,94 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bis $0,02 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ (vergl. Abb. B.4 im Anhang B). In stark kontaminierten Oberböden können die Konzentrationen an ^{129}I im Vergleich dazu wesentlich höher ausfallen. In Proben aus dem Jahr 2001 aus der direkten Umgebung von Chernobyl (Zone I) fanden sich im Oberboden Konzentrationen von $290 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ bis $7500 \cdot 10^{-15} \text{ g g}^{-1}$ [Sahoo et al. 2009]. Für alle betrachteten Profile kann eine exponentielle Abnahme der ^{129}I -Konzentration mit der Tiefe festgestellt werden.

4.4.2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den untersuchten Böden

Für die berechneten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse ist ebenfalls eine starke Abnahme mit der Tiefe festzustellen. Dies ist auch zu erwarten, da sie in der Hauptsache durch die ^{129}I -Konzentration bestimmt. Für die hier untersuchten Böden überdecken die Werte einen Bereich von $9,6 \cdot 10^{-10}$ (Stötten; 30-50 cm) bis $1,2 \cdot 10^{-7}$ (Bielefeld; 0-5 cm). Für die oberste Bodenschicht von 0-5 cm lagen die Isotopenverhältnisse bei $1,2 \cdot 10^{-8}$ bis $1,2 \cdot 10^{-7}$, für die unterste Bodenschicht (30-50 cm) bei $9,6 \cdot 10^{-10}$ bis $2,9 \cdot 10^{-8}$ (Abb. 4.43 – 4.46). Einige Orte weisen sehr hohe Isotopenverhältnisse auf, die durch sehr niedrige ^{127}I -Konzentrationen verursacht werden (z.B. Potsdam). Auch der auffällig hohe Wert in 30-50 cm für Norderney lässt sich auf diese Weise erklären.

Aumann und Güner (1999) fanden für 5 Standorte in Deutschland Isotopenverhältnisse in Bodenprofilen bis 60 cm Tiefe, die zwischen 10^{-9} und 10^{-7} lagen.

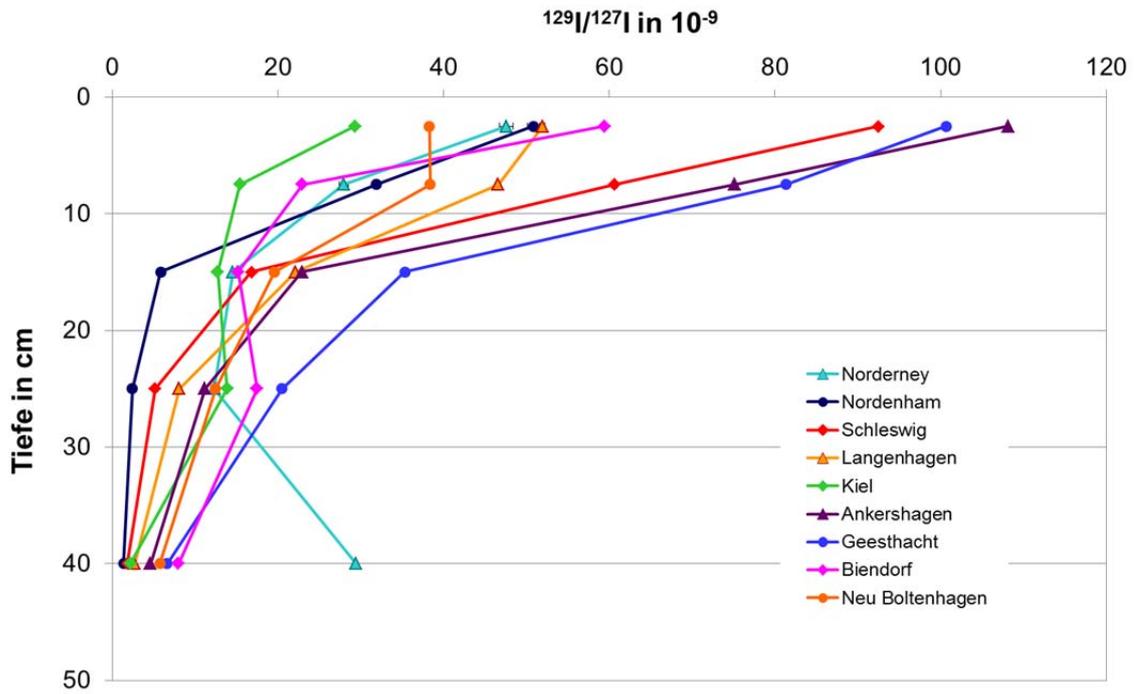


Abb. 4.43: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Norden).

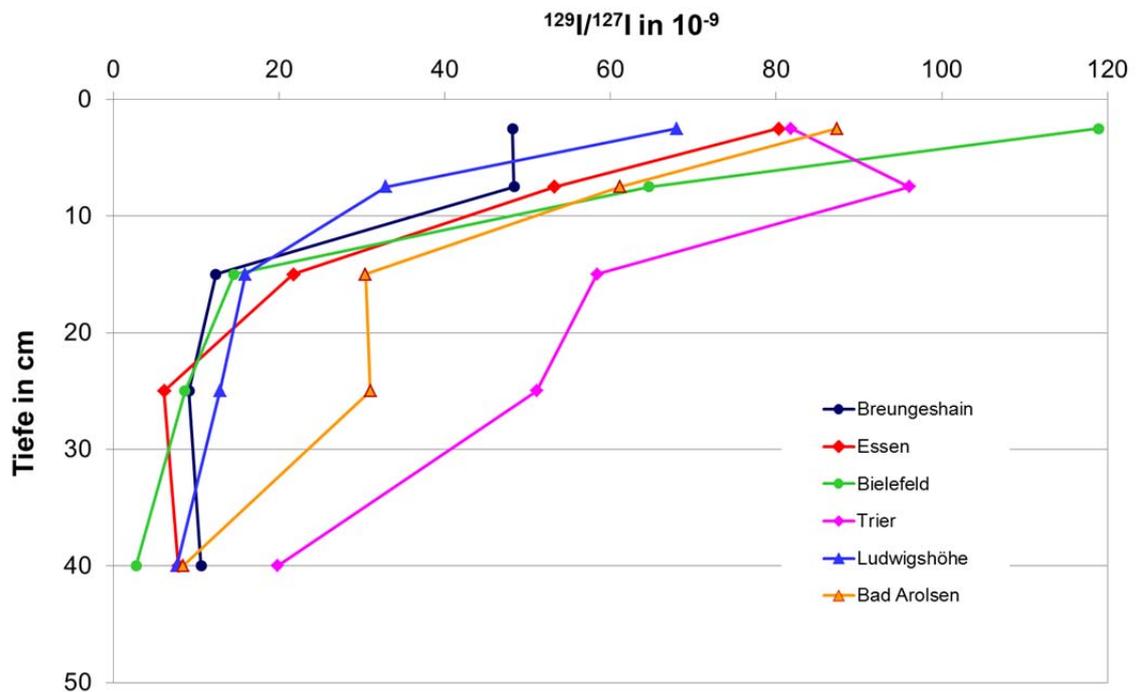


Abb. 4.44: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Westen).

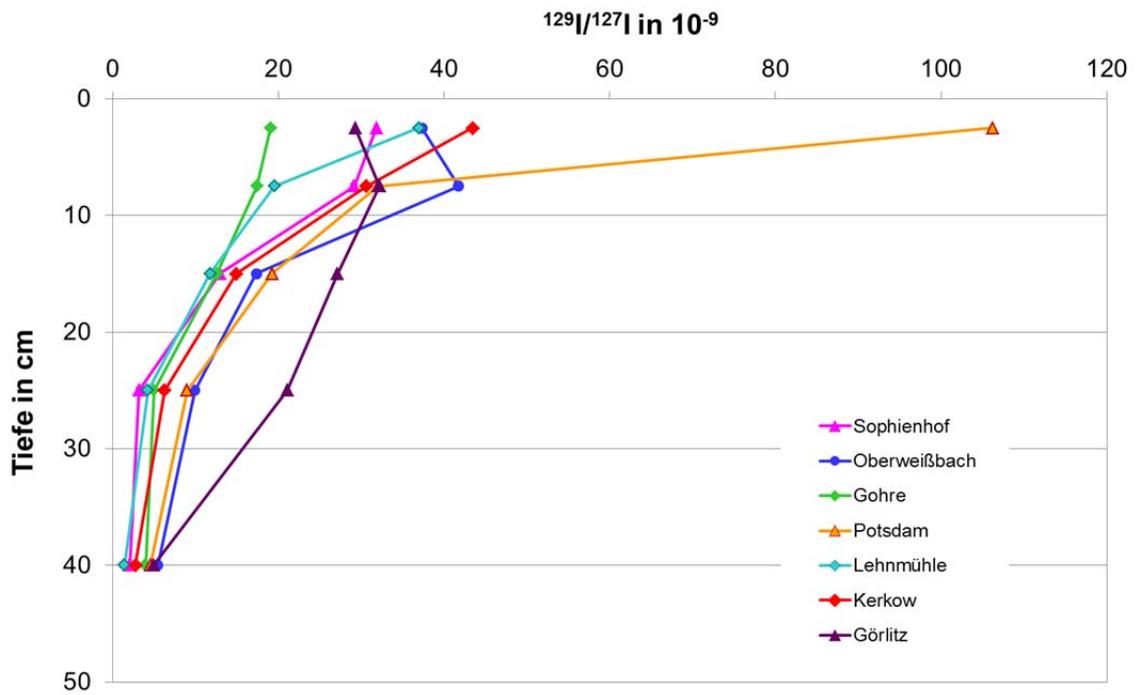


Abb. 4.45: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Osten).

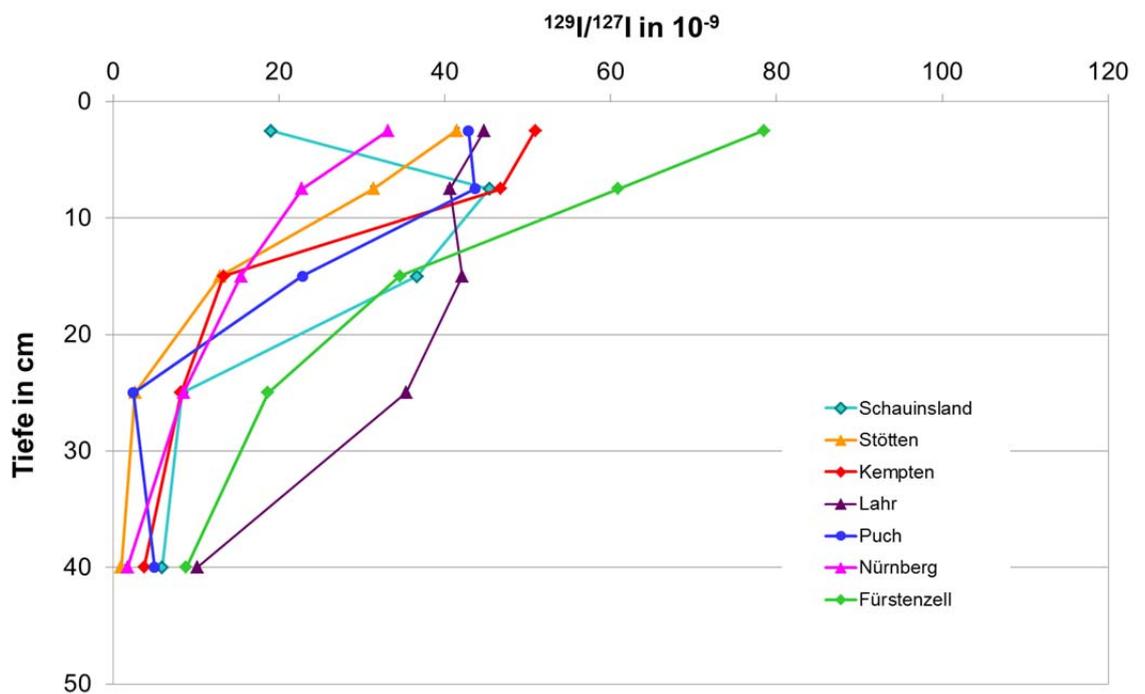


Abb. 4.46: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Süden).

4.4.3 Inventare

Um das vorhandene Iodinventar in den oberen 50 cm der Böden für eine Fläche von einem Quadratmeter zu bestimmen, wurden die gefundenen Iodkonzentrationen mit den Lagerungsdichten (g cm^{-3}) der jeweiligen Bodenschichten und deren Schichtdicke (cm) verrechnet. Abbildung 4.47 zeigt die Inventare von ^{127}I in g m^{-2} und ^{129}I in 10^{-9}g m^{-2} .

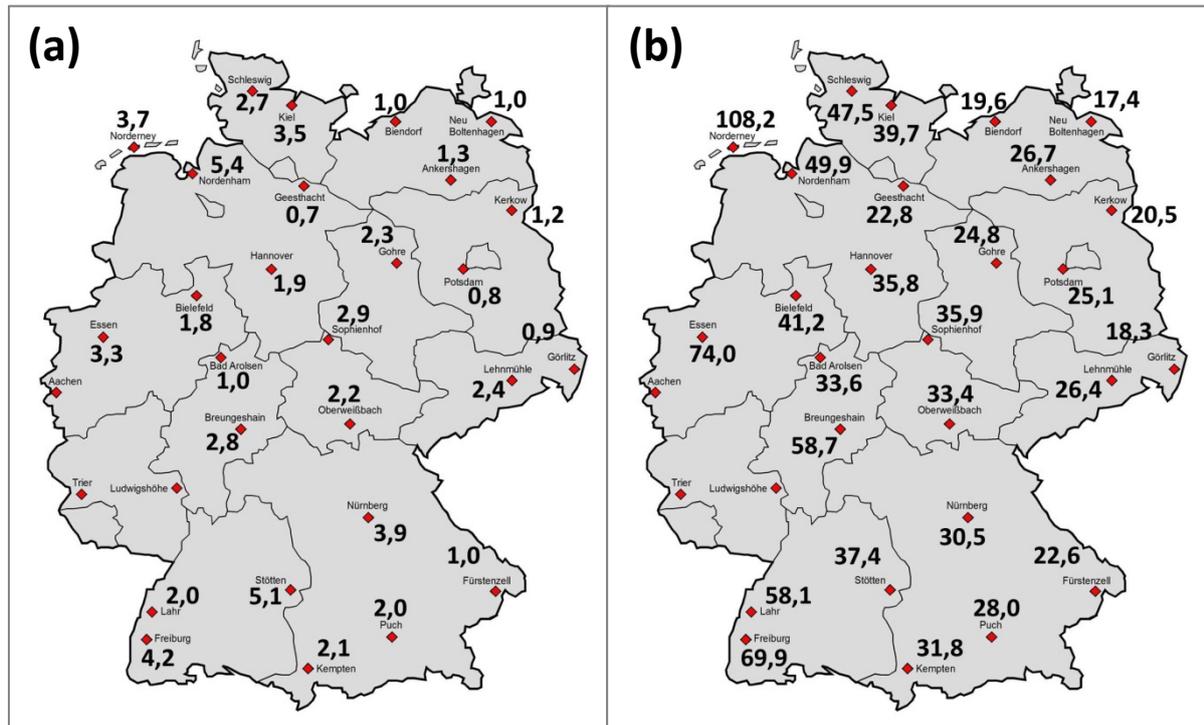


Abb. 4.47: Inventare der untersuchten Böden an ^{127}I (a) in g m^{-2} und ^{129}I in 10^{-9}g m^{-2} (b) bis in eine Tiefe von 0,5 m.

Einige der zunächst ausgewählten Standorte für die Bodenprobenahme erwiesen sich im Nachhinein als ungeeignet. In Oberschleißheim war der Oberboden zu geringmächtig für eine Probenahme bis 50 cm Tiefe. Dieser Standort wurde in der Folge durch eine Fläche nahe Fürstentfeldbruck (Puch) ersetzt. Die DWD-Messstation in Aachen war im Laufe des Projekts verlegt worden, so dass die zu untersuchende Rasenfläche auf einem 2 Jahre zuvor aufgeschütteten Substrat befand. Diese Fläche sollte durch die an der DWD-Station in Trier ersetzt werden, die allerdings auf dem Petrisberg liegt. Dort konnten trotz des steinigen Bodens zwar Proben gewonnen werden, um die Konzentration der Iod-Isotope zu bestimmen, eine Entnahme von Stechzylindern war aber nicht möglich. Daher konnte hier das Inventar nicht berech-

net werden. Das gleiche trifft auf die Fläche in Ludwigshöhe zu, so dass für den ganzen westlichen Bereich des Landes nur Essen als Messpunkt zur Verfügung steht.

Die Werte für die ^{127}I -Inventare zeigen geringe Schwankungen und liegen alle im Bereich von 0,7 bzw. 0,8 g m^{-2} (Geesthacht bzw. Potsdam) und 5,4 g m^{-2} (Nordenham). Damit liegen die Orte mit dem niedrigsten und höchsten Inventar nur ca. 120 km voneinander entfernt.

Für das berechnete Inventar der Böden an ^{129}I bewegen sich die Ergebnisse in einem Bereich von $(17,4 - 108,2) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$ (Neu-Boltenhagen/Ostsee, Norderney/ Nordsee). Insgesamt ist eine Tendenz zur Abnahme der Werte von Westen nach Osten zu erkennen, weniger von Norden nach Süden. Die Inventare von Lahr und Schauinsland (beide Schwarzwald) liegen sogar geringfügig über denen von Schleswig und Nordenham, die neben Norderney die geringste Entfernung zur Nordsee aufweisen. Aumann und Güner (1999) fanden in ihrer Untersuchung eine ähnliche Verteilung. Sie bestimmten für 5 Standorte die Iod-Inventare und erhielten für Westerland auf Sylt einen Wert von rund $290 \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$ bis 50 cm Tiefe, für Deuselbach (28 km östlich von Trier) $161 \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$ und für den Schauinsland $166 \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$. Für die Flächen Waldhof (80 km nordöstlich von Hannover-Langenhagen) und Brotjacklriegel (ca. 35 km nördlich von Fürstzell) wurden 153 bzw. nur $74 \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$ bestimmt. Alle diese Werte liegen um einen Faktor von etwa 3 bis 6 höher als die in diesem Projekt berechneten Werte für vergleichbare Orte.

Als mögliche Ursache kommt die Verwendung unterschiedlicher Messverfahren in Frage. Die Ergebnisse von Aumann und Güner (1999) wurden mittels Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) bestimmt, die das übliche Verfahren darstellte, bevor zur Bestimmung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse die Beschleunigermassenspektrometrie etabliert wurde. Die von ihnen für die jeweiligen Bodenschichten ermittelten ^{129}I -Konzentrationen liegen, besonders in Tiefen $> 10 \text{ cm}$, deutlich über den in diesem Projekt gemessenen, zum Teil bis zu 2 Größenordnungen. Auch die Abnahme der Konzentrationen mit zunehmender Tiefe fallen wesentlich geringer aus.

Wenige Autoren haben sich mit dem direkten Vergleich der beiden Methoden auseinandergesetzt. Suzuki et al. (2007) fanden bei einer parallelen Untersuchung von Bodenproben mit beiden Messverfahren eine gute Übereinstimmung der Messergebnisse. Es gibt allerdings auch Hinweise darauf, dass der Nachweis von ^{129}I über NAA durch ^{127}I gestört werden kann, da beide Isotope über Neutroneneinfang ^{130}I bilden können [Schmidt et al. 1998; Hou et al. 2012]. Da es zwischen den Daten von

Aumann und Güner (1999) und denen aus diesem Projekt aber keine systematische Abweichung gibt und die Tiefenverläufe sich unterscheiden, ist es eher unwahrscheinlich, dass der Grund für die große Differenz in den Inventaren in der Verwendung unterschiedlicher Messverfahren zu suchen ist.

Als weiterer wesentlicher Einflussfaktor bei der Berechnung der Inventare macht sich die Lagerungsdichte bemerkbar. Würde man zum Beispiel im Fall von Trier und Ludwigshöhe, für die keine Lagerungsdichte bestimmt werden konnte, einen Wert zwischen 1 und $1,6 \text{ g cm}^{-3}$ für die Lagerungsdichte annehmen, würde das Inventar bei vorliegender Konzentration für ^{129}I zwischen $36,0$ und $57,6 \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$ (Trier) bzw. zwischen $19,9$ und $31,8 \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-2}$ (Ludwigshöhe) liegen. Diese Spanne kann die o.g. Differenz ebenfalls nicht erklären.

4.4.4 Zusammenhang von Iodgehalt und Bodeneigenschaften

Der Boden ist ein sehr komplexes Mehrphasensystem, das als Filter-, Speicher- oder Puffersystem für eingetragene Stoffe fungiert. Migrationsprozesse sind sehr eng mit dem überwiegend aus Niederschlägen stammenden Bodenwasser verknüpft, das von unterschiedlichen Bindungskräften beeinflusst wird. In Deutschland entfallen unter den gegebenen Klimaverhältnissen durchschnittlich 22 % der aus Niederschlägen anfallenden Wassermengen auf den Oberflächenabfluss, ca. 62 % gehen über Evapotranspiration wieder an die Atmosphäre verloren und nur rund 16 % kommen als Sickerwasser im Grundwasser an [BGR 2014].

Welche Mengen des Niederschlagswassers in den Boden infiltrieren und mit welchen Geschwindigkeiten hängt von der Niederschlagsintensität und von den Bodeneigenschaften (Wasseraufnahmekapazität, Durchlässigkeit) ab, die wiederum von verschiedenen physikalischen Bodenparametern (Porenvolumen, Porengrößenverteilung, Lagerungsdichte) bestimmt werden.

Korngrößenverteilung: Für alle untersuchten Böden wurde die Korngrößenverteilung für die Feinbodenfraktion ($< 2\text{mm}$) bestimmt. Sie hat keinen direkten Einfluss auf die Sorption und Verlagerung von Iod, wirkt aber indirekt über den Zusammenhang mit Lagerungsdichte, Porenvolumen und Gefüge darauf ein. Die drei letztgenannten Eigenschaften sind außerdem von Bodenentwicklung und Bewirtschaftung abhängig. Die Korngrößenverteilung und der Entwicklungszustand des Bodens bestimmen sein Wasserregime. So weisen Sandböden normalerweise einen hohen Anteil an schnell

dränenden Grobporen auf, schluffreiche Böden haben einen hohen Anteil an Mittelporen und sind damit in der Lage, große Mengen an pflanzenverfügbarem Wasser zu speichern. Tonböden mit einem aus vielen, oft nicht miteinander verbundenen Feinporen bestehendem Porensystem zeigen meist eine geringe Wasserleitfähigkeit. Allerdings bilden sie bei entsprechendem Mineralbestand (quellfähige Tonminerale) bei Austrocknung Schrumpfrisse aus, die schnell dränende sekundäre Grobporen darstellen (preferential flow) und die mit Material von der Bodenoberfläche verfüllt werden können. Erhebliche Schrumpfrissbildung wurden für die untersuchten Böden in Kempton und Stötten festgestellt, wo die Probenahme in einem trockenen Sommermonat stattfand.

Die Korngrößenverteilung kann außerdem die Lagerungsdichte beeinflussen. Der hohe Ungleichförmigkeitsgrad von Lehmen ermöglicht eine sehr dichte Packung der Bodenpartikel (kleinere Partikel füllen die Lücken zwischen größeren Partikeln) und kann zu hohen Lagerungsdichten von bis zu 2 g cm^{-3} führen [Blume et al.].

Bei 4 der im Projekt untersuchten Böden (Norderney, Bielefeld, Potsdam, Biendorf) handelt es sich um mehr oder weniger reine Sandböden (90-99 % Sand). Auch Neuboltenhagen weist ein Maximum in der Sandfraktion (ca. 85%) bei sehr geringem Tonanteil von < 5% auf. Bei allen übrigen Böden überwiegen die feineren Kornfraktionen, bei der Mehrzahl entfallen 10-60 % der mineralischen Bestandteile auf die Tonfraktion.

Tonminerale: Der Begriff 'Ton' ist vielschichtig. Zum einen beschreibt er eine Korngrößenfraktion, nämlich die Tonfraktion, die aus mineralischen Bodenpartikeln mit einem Äquivalentdurchmesser von < $2 \mu\text{m}$ besteht. Außerdem ist Ton die Bezeichnung für ein Sediment, also ein Gemisch aus verschiedenen Komponenten (z.B. Unterkreideton), und schließlich werden auch die verschiedenen Tonminerale unter diesem Begriff zusammengefasst.

Tonminerale weisen sehr große spezifische Oberflächen auf. Diese können zwischen 5 und $500 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ liegen, während die spezifische Oberfläche der Sandfraktion weniger als $0,1 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ beträgt [Blume et al. 2010]. Darüber hinaus tragen Tonminerale infolge isomorphen Ersatzes von höherwertigen durch niederwertige Kationen in den Tetraeder- oder Oktaederschichten eine negative Oberflächenladung. Dies bewirkt eine hohe Kationenaustauschkapazität. Die Anionenaustauschkapazität ist sehr gering und auf die Kanten der Silicatschichten begrenzt.

Für Kaolinit, Montmorillonit und Vermiculit wurde praktisch keine eine bzw. nur sehr geringe Sorptionsfähigkeit für Iod festgestellt [Söderlund et al. 2011 und Literatur darin]. Illit dagegen besitzt eine gewisse Fähigkeit, Iod zu sorbieren. Kaplan et al. (2000) zeigten, dass dieses Tonmineral in der Lage war, in Batchexperimenten abhängig vom pH-Wert größere Mengen an ^{125}I als Iodid zu binden. Die entsprechenden K_d -Werte lagen in einem Bereich von 22 bis 46 mL g^{-1} bei pH-Werten von 9,4 bis 3,6. Allerdings konnte das Iodid durch Zugabe von Konkurrenzionen (F^- , Cl^- , Br^- , $^{127}\text{I}^-$) zum größten Teil wieder desorbiert werden. Daraus schließen die Autoren, dass das I^- hauptsächlich reversibel über Physisorption (outer sphere complexation) an pH-abhängige Kanten-Sorptionsplätze des Illits gebunden wird. Couture und Seitz (1983) gaben einen Hinweis darauf, dass die Bindung von Iod als Iodat effizienter ist als in Form von Iodid. Aber insgesamt spielen Tonminerale im Boden für die Iodsorption eine sehr untergeordnete Rolle.

pH-Wert/Redoxpotential: Der wichtigste Faktor, der die Speziation und das Verhalten von Iod im Boden bestimmt, ist das Redoxpotential [Koch-Steindl und Pröhl 2001], das eng verknüpft ist mit dem pH-Wert. In gut durchlüfteten terrestrischen Böden sind die Redoxpotentiale am höchsten (bis + 800 mV), in anaeroben Böden bei neutraler bis alkalischer Bodenreaktion können sie negative Werte annehmen (bis -350 mV). Das Redoxpotential hängt von verschiedenen Faktoren wie Bodentyp, Wasserregime und mikrobieller Aktivität ab und kann im Jahresverlauf stark schwanken, besonders bei grund- und stauwasserbeeinflussten Böden [Blume et al. 2010] (Abb. 4.48). Abgesehen davon spielen der Gehalt an organischer Substanz und das Vorhandensein von Oxiden für das Verhalten von Iod im Boden eine wichtige Rolle. Die für die untersuchten Böden bestimmten pH-Werte liegen alle im Bereich von stark sauer (pH 4,0 - 4,9) bis schwach alkalisch (pH 7,1 - 8,0). Es gibt jedoch nur zwei Böden die über die gesamte Tiefe alkalische Reaktion zeigen (Ludwigshöhe, Gohre). Aluminium- und Eisenoxide im Boden sind im sauren pH-Bereich positiv geladen und können unter diesen Bedingungen Anionen adsorbieren [Blume et al. 2010]

Die meisten der untersuchten Böden bieten demnach Bindungsplätze für Iod, das in gut durchlüfteten Böden bei den genannten Bedingungen in anionischer Form vorliegen sollte, und zwar zum überwiegenden Anteil als Iodid (Abb. 4.48 und 4.49).

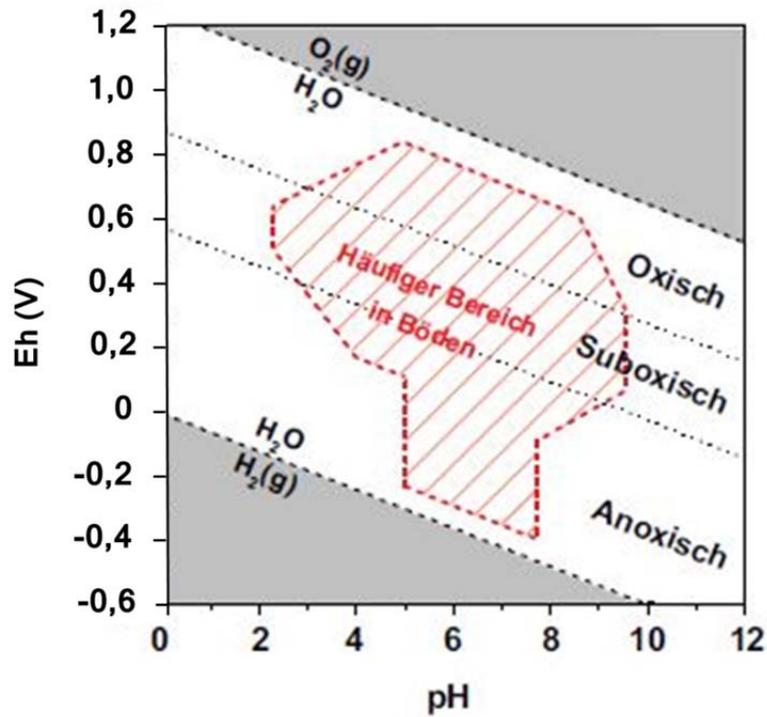


Abb. 4.48: Theoretisch möglicher Eh-pH-Bereich in wässrigen Systemen (weißes Feld) und häufiger Eh-pH-Bereich in Böden (rotes Feld) [verändert nach Blume et al. 2010].

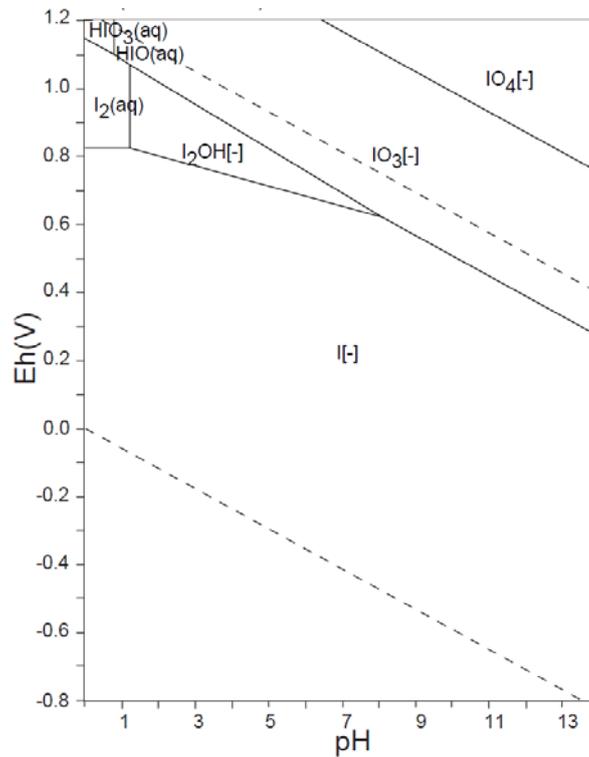


Abb. 4.49: Stabilitätsdiagramm für Iod im System I-O-H. $\Sigma I = 10^{-10}$; 298,15 K; 10^5 Pa. [aus: Takeno 2005].

Organische Substanz: Der Gehalt an organischer Substanz nimmt in der Regel mit der Tiefe ab. In den untersuchten Bodenproben wurden Gehalte zwischen 2,2 - 19,9 % in den oberen 5 cm und 0,2 - 3,9 % in 30 - 50 cm Tiefe gefunden. Eine Ausnahme bildete der Boden aus Gohre, bei dem es sich um einen anmoorigen sandigen Lehmboden (anmoorig = Gehalt an organischer Substanz zwischen 15 - 30 %) handelt. Abgesehen von der Schicht in 20-30 cm Tiefe mit 11,8 % lagen die Gehalte an organischer Substanz im ganzen Profil über 20 % (20,1 – 22,3 %).

Iod wird bekanntermaßen über einen weiten pH-Bereich an organische Substanz gebunden [Whitehead 1974; Fuge und Johnson 1986; Muramatsu et al. 1990]. Es kann dabei an Feststoffe gebunden sein oder als iodorganische Verbindung, fixiert an die Humin- und Fulvosäuren, in gelöster Form vorliegen [Sheppard und Thibault 1992].

Untersuchungen mit verschiedenen spektroskopischen Methoden (XAS, XANES, EXAFS) an natürlicher iorganischer Substanz aus unterschiedlichen geologischen Umgebungen haben gezeigt, dass das meiste Iod kovalent gebunden war, und zwar an unterschiedliche Molekülreste, und dass aromatisch gebundenes Iod vorherrschte. Eine wesentliche Rolle bei der Iodfixierung an aromatischen Verbindungen scheinen dabei Enzyme von Boden-Mikroorganismen zu spielen [Behrens 1986; Christiansen und Carlsen 1991; Schlegel et al. 2006].

Den organophilen Charakter von Iod zeigt auch Abbildung 4.50. Sie gibt die Konzentration von ^{129}I in den untersuchten Böden in Abhängigkeit von deren Gehalt an organischer Substanz wieder. Zwei Standorte wurden aus dem Gesamtzusammenhang herausgelöst: Norderney weist wegen seiner Nordseenähe extrem hohe ^{129}I -Konzentrationen im Oberboden auf und hat gleichzeitig sehr geringe Gehalte an organischer Substanz. Die Beziehung zwischen den beiden Parametern ist auffallend eng ($R^2 = 0,99$). Gohre bildet ebenfalls einen Sonderfall. Die Iodkonzentrationen, bzw. die Verteilung des Iods im Profil ähnelt durchaus der der anderen Böden, nur die Menge und Verteilung der organischen Substanz weicht stark von diesen ab. Wäre davon auszugehen, dass Iod aus der Atmosphäre sehr schnell gebunden wird, müsste man für den Boden in Gohre allerdings erwarten, dass das meiste Iod bereits in den oberen Zentimetern gefunden wird. Das ist jedoch nicht der Fall. Die in den oberen 20 cm des Profils gefundene Menge an ^{129}I war mit 79,6 % des gesamten im Profil befindlichen ^{129}I nicht außergewöhnlich hoch. Für alle untersuchten Böden war die geringste ^{129}I -Menge in den oberen 20 cm 57,4 %, die höchste 92,3 %, im Mittel lag sie bei 78,5 % von der Gesamtmenge.

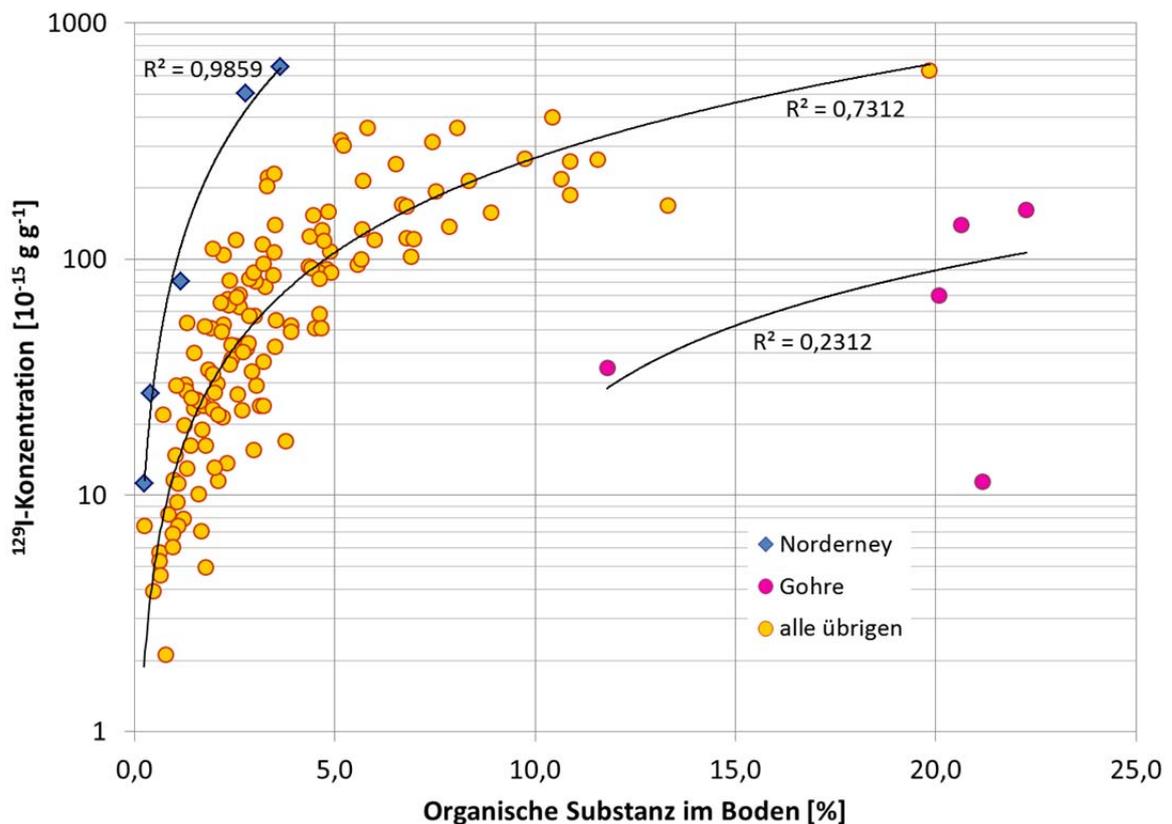


Abb. 4.50: Konzentration von ^{129}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an organischer Substanz.

Für ^{127}I lässt sich keine enge Beziehung zwischen seiner Konzentration und dem Gehalt an organischer Substanz herstellen (vergl. Abb. B.5 im Anhang B). Es ist, abgesehen von wenigen Ausnahmen, relativ gleichmäßig im Profil verteilt (Abb.4.33 – 4.36). Lediglich für den Standort Norderney zeigt sich eine enge Korrelation. Hier macht sich analog zum ^{129}I die Lage in der Nordsee und damit besonders hohe Einträge von Iod über 'sea spray' bemerkbar, und zusätzlich die Tatsache, dass es sich bei dem Boden um eine Dünensand-Aufschüttung handelt, auf die vermutlich humoser Boden (sog. 'Mutterboden') für die Ansaat von Rasen aufgetragen wurde. Infolge der sehr geringen Gehalte an organischer Substanz sowie ebenfalls sehr geringer Mengen an Eisen- und Aluminiumoxiden (s.u.) besteht die Möglichkeit, dass ein Teil des eingetragenen Iods bereits in größere Tiefen als 50 cm verlagert worden ist. Andererseits würde - grob geschätzt - die Zeit, die nötig wäre, um das bis in 50 cm vorhandene ^{129}I -Inventar (Abb. 4.47) aus dem Eintrag von ^{129}I mit dem Niederschlag aufzubauen, rund 70 Jahre betragen, wenn man eine gleichbleibende jährliche Menge zu

Grunde legte, wie sie für die Jahre 2011 und 2012 ermittelt wurde (Abb. 4.21). Tatsächlich sollten die Inventare der Böden aus den in letzten 60 Jahren (seit Beginn des 'nuklearen Zeitalters') anthropogen eingetragenen ^{129}I -Mengen stammen.

Dennoch fand Ernst (2003) in seiner Arbeit ^{129}I in Profiltiefen bis 250 cm, wenn auch in geringen Mengen. Dieses könnte, falls es nicht in Form von Iodid transportiert wurde [Schwehr et al. 2009], aus durch Zersetzung der organischen Substanz wieder freigesetztem Iod stammen oder an gelöste organische Substanz gebunden verlagert worden sein [Schlegel et al. 2006; Kaplan et al. 2014]. Die potentielle Mobilität von Iod ist größer als die anderer Radionuklide (Qiao 2012).

Oxide: Neben organischer Substanz bieten pedogene Oxide (hier: Oxide und Hydroxide von Aluminium, Eisen und Mangan) pH-abhängige Sorptionsplätze für Ionen. Für die untersuchten Böden wurden sowohl eine Extraktion mit oxalsaurem NH_4 -Oxalat (o), wie auch mit Dithionit-Citrat (d) durchgeführt. Mit der Oxalatlösung wird für die Eisenoxide der schlecht kristallisierte Ferrhydrit erfasst, die Differenz aus den Extraktionen von Fe_d und Fe_o geben den Gehalt an gut kristallisierten Fe-Oxiden wie Goethit, Hämatit und Lepidokrokit wieder. Al_d bzw. Mn_d liegen meist in ähnlicher Größenordnung vor wie Al_o und Mn_o . In Tabelle A.10 (Anhang A) sind daher nur die Ergebnisse aus der Dithionit-Extraktion aufgeführt.

Die Mn_d -Gehalte der untersuchten Böden lagen im Bereich von $0,01 \text{ g kg}^{-1}$ bis $2,2 \text{ g kg}^{-1}$. Für die Rückhaltung von Iod im Boden spielen Manganoxide keine Rolle, da ihr Ladungsnulldpunkt (point of zero charge) sehr niedrig liegt und sie deshalb bei niedrigen pH-Werten bereits stark negative Oberflächenladung aufweisen. Aus diesem Grund können sie Kobalt und Blei [McKenzie 1981], sowie verschiedene natürliche Radionuklide (^{234}Th , ^{228}Th , ^{228}Ra , ^{226}Ra) binden [Post 1999]. Außerdem ist das Manganoxid Birnessit ($\delta\text{-MnO}_2$) in der Lage, Se(IV) zu Se(VI), Cr(III) zu Cr(VI) und As(III) zu As(V) zu oxidieren. Gallard et al. (2009) gehen weiterhin davon aus, dass Birnessit im Kontakt mit iodhaltigem Wasser im pH-Bereich von 5-7 Iodid zu elementarem Iod oxidiert, das sich an natürliche organische Substanz bindet.

Der Gehalt der untersuchten Böden an Eisen- und Aluminium(hydr)oxiden war mit der Tiefe relativ gleichmäßig verteilt. Die Werte für Fe_d lag zwischen $0,2 \text{ g kg}^{-1}$ (Norderney, 30-50 cm) und $35,8 \text{ g kg}^{-1}$ (Breungeshain, 0-5 cm). Die Beziehung zwischen Eisenoxiden und ^{127}I war schwach ($R^2 = 0,24$), für Fe_d und ^{129}I nicht erkennbar ($R^2 = 0,07$; vergl. Abb. B.6 und B.7 im Anhang B). Die beiden direkt an der Nordsee gele-

genen Böden wurden für diese Betrachtung wegen ihrer sehr hohen Iod-Gehalte bereits ausgeklammert.

Bei der Untersuchung von 26 Boden- und Sedimentproben aus den USA fanden Hu und Moran (2009) ebenfalls eine sehr viel engere Beziehung von stabilem Iod und organischer Substanz ($R^2 = 0,93$) als zu Fe_d ($R^2 = 0,35$). Darüber hinaus gaben sie an, dass der weitaus größte Teil des Iods in organischer Form vorlag (ca. 90%), während der anorganische Anteil je nach Boden unterschiedliche Mengen an Iodid und Iodat beinhalten. Nagata und Fukushi (2010) zeigten anhand eines ETL (extended triple-layer) Modells, dass Iodid nur bei sehr geringer Ionenstärke in der Lösung, wie sie unter natürlichen Bedingungen nicht vorkommt und bei pH-Werten < 5 an Eisenoxide gebunden wird. Für die Iodatsorption spielt die Ionenstärke eine untergeordnete Rolle. Die Autoren führen dies auf die Tatsache zurück, dass Iodat als 'inner-sphere'-Komplex zweizählig (bidentat) an die Oberflächen gebunden wird. Couture und Seitz (1983) zeigten in Batchversuchen, dass Iod als Iodat wesentlich besser von Hämatit sorbiert wurde als in Form von Iodid.

Die Al_d -Gehalte der Böden lagen zwischen $0,03 \text{ g kg}^{-1}$ (Norderney, 30-50 cm) und $5,5 \text{ g kg}^{-1}$ (Breungeshain, 10-20 cm). Hier ließ sich eine Korrelation zwischen dem Gehalt des Bodens an Aluminium(hydr)oxiden und der gemessenen ^{127}I -Konzentration erkennen ($R^2 = 0,47$). Die Beziehung zwischen Al_d und ^{129}I -Konzentration war jedoch vernachlässigbar ($R^2 = 0,11$; vergl. Abb. B.8 und B.9 im Anhang B). Auch Hu und Moran (2009) berechneten für Iod und Al_d eine bessere Korrelation ($R^2 = 0,69$) als für Iod und Fe_d . Whitehead (1974) stellte für die von ihm durchgeführten Versuche fest, dass die Sorption von Iod an Eisenoxiden größer war als die an Aluminiumoxiden.

Aus den widersprüchlichen Ergebnissen in der Literatur und den in diesem Projekt gewonnenen Resultaten lässt sich erkennen, dass es nicht möglich ist, das Bindungsvermögen der Böden für Iod, und in der Folge die Migration von Iod im Profil an einem einzelnen Parameter festzumachen. Vielmehr ergibt sich beides aus dem Zusammenspiel verschiedener Parameter, die wegen der großen Heterogenität von Böden kleinräumig variieren können.

4.5 Literatur zu Kapitel 4

- Aldahan, A., Persson, S., Possnert, G., Hou, X.L. (2009): Distribution of ^{127}I and ^{129}I in precipitation at high European latitudes. *Geophys. Res. Lett.* **36**, L11805.
- Aldahan, A., Kekli, A., Possnert, G. (2006): Distribution and sources of ^{129}I in rivers of the Baltic region. *Journal of Environmental Radioactivity* **88**, 49-73.
- Atarashi-Andoh, M., Schnabel, C., Cook, G., MacKenzie, A.B., Dougans, A., Ellam, R.M., Freeman, S., Maden, C., Olive, V., Synal, H.-A., Xu, S. (2007): $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in surface waters of the English Lake District. *Applied Geochemistry* **22**, 628–636.
- ATSDR (2004): Toxicological Profile for Iodine. U.S. Department of Health and Human Services, Agency for Toxic Substances and Disease Registry, Atlanta, Georgia, 580 S. <http://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp.asp?id=479&tid=85>
- Aumann, D.C., Güner, D. (1999): Determination of ^{129}I in soils of Germany using radiochemical neutron activation analysis. *J. Radioanal. Nucl. Chemistry*, **242** (3), 641-645.
- Bachhuber, H., Bunzl, K. (1992): Background Levels of Atmospheric Deposition to Ground and Temporal Variation of ^{129}I , ^{127}I , ^{137}Cs and ^7Be in a Rural Area of Germany. *J. Environ. Radioactivity* **16**, 77-89.
- Beasley, T.M., Cooper, L.W., Grebmeier, J.M., Kilius, L.R., Synal, H.-A. (1997): ^{36}Cl and ^{129}I in the Yenisei, Kolyma, and Mackenzie Rivers. *Environ. Sci. Technol.* **31**, 1834-1836.
- Behrens, H. (1986): Influence of microbial activity on migration of radioiodine in geosmedia. In: The effects of natural organic compounds and microorganisms on radionuclide transport. Proceedings of an NEA workshop, Paris 12 June 1985.
- BGR (2014): Schematische Darstellung des Wasserkreislaufs mit Zahlen der mittleren Wasserbilanz für Deutschland von 1961 – 1990. URL: http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Wasser/Bilder/Was_wasser_startseite_was_serkreis_g.html (zuletzt aufgerufen: 13.08.2014)
- Blume, H.-P., Brümmer, G.W., Horn, R., Kandeler, E., Kögel-Knabner, I., Kretschmar, R., Stahr, K., Wilke, B.-M. (2010): Lehrbuch der Bodenkunde. Spektrum Akademischer Verlag Heidelberg 16. Aufl., 569 S.
- BMWI (2014): Energiegewinn und Energieverbrauch (Tabellen 4 und 6, Stand: 13.5.2014). <http://www.bmwi.de/DE/Themen/Energie/Energiedaten-und-analysen/Energiedaten/energiegewinnung-energieverbrauch.html>
- Chameides, W.L., Davis, D.D. (1980): Iodine: Its Possible Role in Tropospheric Photochemistry. *J. Geophys. Res.* **85**, 7383-7398.
- Christiansen, J.V., Carlsen, L. (1991): Enzymatically controlled iodination reactions in the terrestrial environment, *Radiochim. Acta* **52/53**, 327-333.

- CIEB - Chilean Iodine Educational Bureau London (1956): Geochemistry of Iodine. Iodine in Rocks, Minerals and Soils. Annotated Bibliography 1825-1954, 150 S.
- Cochran, J.K., Moran, S.B., Fisher, N.S., Beasley, T.M., Kelley, J.M. (2000): Sources and transport of anthropogenic radionuclides in the Ob River system, Siberia. *Earth and Planetary Science Letters* **179**, 125-137.
- Cosgrove, M.E. (1970): Iodine in the bituminous Kimmeridge Shales of the Dorset Coast, England. *Geochim. Cosmochim. Acta* **34**, 830-838.
- Couture, R.A., Seitz, M.G. (1983): Sorption of anions of iodine by iron oxides and kaolinite. *Nuclear and Chemical Waste Management* **4**, 301-306.
- Daraoui, A. (2010): Migration von I-129 und Retrospektive Dosimetrie. Dissertation Universität Hannover, 226 S.
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh10/62787097X.pdf>
- EnergieDaten NRW 2012 (2012), Broschüre, herausgegeben vom Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen, 16 S
www.umwelt.nrw.de/ministerium/pdf/energiedaten_nrw_2012_web.pdf
- Englund, E., Aldahan, A., Hou, X.L., Possnert, G., Söderström, C. (2010): Iodine (^{129}I and ^{127}I) in aerosols from northern Europe. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **268**, 1139–1141.
- Ernst, T. (2003): Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport. Dissertation Universität Hannover, 359 S.
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/37628126X.pdf>
- Ernst, T., Szidat, S., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Schnabel, C., Synal, H.-A., Santos Arevalo, F.J., Benne, I., Boess, J., Gehrt, E., Capelle, A., Schneider, J., Schäfer, W., Böttcher, J. (2003): Migration of iodine-129 and iodine-127 in soils. *Kerntechnik* **68** (4), 155-167.
- Fuge, R., Johnson, C.C. (1986): The geochemistry of iodine – a review. *Environmental Geochemistry and Health* **8** (2), 31-54.
- Fuge, R. (2013): Soils and Iodine Deficiency. In: Selinus, O., (ed.): Essentials of Medical Geology. Revised Edition, Springer Verlag, p. 417-433.
- Gäbler, H.-E., Heumann, K.G. (1993): Determination of atmospheric iodine species using a system of specifically prepared filters and IDMS. *Fresenius J. Anal. Chem* **345**, 53–59.
- Gallard, H., Allard, S., Nicolau, R., von Gunten, U., Croué, J.P. (2009): Formation of Iodinated Organic Compounds by Oxidation of Iodide-Containing Waters with Manganese Dioxide.

- Gilfedder, B.S., Petri, M., Biester, H. (2007): Iodine and bromine speciation in snow and the effect of orographically induced precipitation. *Atmos. Chem. Phys.* **7**, 2661–2669.
- Hansen, V., Roos, P., Aldahan, A., Hou, X., Possnert, G. (2011): Partition of iodine (^{129}I and ^{127}I) isotopes in soils and marine sediments. *J. Environ. Radioactivity* **102**, 1096-1104.
- Heinloth, K. (2003) Die Energiefrage – Bedarf und Potentiale, Nutzung, Risiken und Kosten. Friedrich Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft, 2. Aufl., 597 S.
- Herrmann, M., Weber, J. (2011): Öfen und Kamine. Beuth Verlag GmbH, Berlin, 7. Aufl., 304 S.
- Hou, X.L., Fogh, C.L., Kucera, J., Andersson, K.G., Dahlgaard, H., Nielsen, S.P. (2003): Iodine-129 and Caesium-137 in Chernobyl contaminated soil and their chemical fractionation. *Science of the Total Environment* **308**, 97–109.
- Hou, X.L., Aldahan, A., Nielsen, S., Possnert, G., (2009): Time Series of ^{129}I and ^{127}I Speciation in Precipitation from Denmark. *Environ. Sci. Technol.* **43**, 6522–6528.
- Hou, X., Hou, Y. (2012): Analysis of ^{129}I and its Application as Environmental Tracer. *J. Anal. Sci. Tech.* **3** (2), 135-153.
- Hu, Q., Moran, J.E. (2009): Geochemical Cycling of Iodine Species in Soils. In: V.R. Preedy, G.N. Burrow, R.E. Watson (Eds.), *Comprehensive Handbook of Iodine*. Academic Press, Elsevier Inc., S. 93-105.
- Jabbar, T., Steier, P., Wallner, G., Kandler, N., Katzlberger, C. (2011): AMS analysis of iodine-129 in aerosols from Austria. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **269**, 3183–3187.
- Johnson, C.C. (2003): The geochemistry of iodine and its application to environmental strategies for reducing the risks from iodine deficiency disorders. Commissioned Report, CR/03/057N., 54 pp.
- Kaplan, D.I., Serne, R.J., Parker, K.E., Kutnyakov, I.V. (2000): Iodide Sorption to Subsurface Sediments and Illitic Minerals. *Environ. Sci. Technol.* **34**, 399-405.
- Kaplan, D.I., Zhang, S., Roberts, K.A., Schwehr, K.A., Xu, C., Creeley, D., Ho, Y.-F., Li, H.-P., Yeager, C.M., Santschi, P.H. (2014): Radioiodine concentrated in a wetland. *J. Environ. Radioact.* **131**, 57-61.
- Kekli, A., Aldahan, A., Meili, M., Possnert, G., Buraglio, N., Stepanauskas, R. (2003): ^{129}I in Swedish rivers: distribution and sources. *Science of the Total Environment* **309**, 161–172.
- Keogh, S.M., Aldahan, A., Possnert, León Vintrol, G.L., Mitchell, P.I., Smith, K.J., McGinnity, P. (2010): Anthropogenic ^{129}I in precipitation and surface waters in Ireland. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **268**, 1232–1235.

- Klipsch, K. (2005): Bestimmung von ^{129}I und ^{127}I in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des ^{129}I auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen. Dissertation, Universität Hannover, 181 S., <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh05/490045065.pdf>
- Koch-Steindl, H., Pröhl, G. (2001): Considerations on the behaviour of long-lived radionuclides in the soil. *Radiat. Environ. Biophys.* **40**, 93-104.
- Krupp, G., Aumann, D.C. (1999): Iodine-129 in rainfall over Germany. *J. Environ. Radioactivity* **46**, 287-299.
- Luo, M., Hou, X.L., Zhou, W., He, C., Chen, N., Liu, Q., Zhang, L. (2013): Speciation and migration of ^{129}I in soil profiles. *Journal of Environmental Radioactivity* **118**, 30-39.
- McKenzie, R.M. (1981): The Surface Charge on Manganese Dioxides. *Aust. J. Soil Res.* **19**, 41-50.
- Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D.; Vahlbruch, J., Synal, H.-A.; Schnabel, C. (2004): Ableitungen von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129. Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4285, BMU, 228 S.
- Michel, R.; Daraoui, A.; Gorny, M.; Jakob, D.; Sachse, R.; Tosch, L.; Nies, H.; Goroncy, I.; Herrmann, J.; Synal, H.-A.; Stocker, M.; Alfimov, V. (2012): Iodine-129 and iodine-127 in European seawaters and in precipitation from Northern Germany. *Science of the Total Environment* **419**, 151–169.
- Miyake, Y., Tsunogai, S. (1963): Evaporation of Iodine from the Ocean. *Journal of Geophysical Research* **68** (13), 3989- 3993.
- Moor, A. (2013): Ein Methodenvergleich zur ^{129}I Bestimmung in Aerosolfiltern. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover), 47 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=2013](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=2013)
- Moran, J.E., Oktay, S.D., Santschi, P.H. (2002): Sources of iodine and iodine-129 in rivers. *Water Resources Research* **38** (8), 1149.
- Moran, J.E., Oktay, S.D., Santschi, P.H., Schink, D. (1999): Atmospheric Dispersal of ^{129}I from Nuclear Fuel Reprocessing Facilities. *Environ. Sci. Technol.* **33**, 2536-2542.
- Muramatsu, Y., Uchida, S., Sriyotha, P., Sriyotha, K. (1990): Some considerations on the sorption and desorption phenomena of iodide and iodate on soil. *Water, Air, and Soil Pollution* **49**, 125-138.
- Muramatsua, Y., Takadaa, Y., Matsuzaki, H., Yoshida, S. (2008): AMS analysis of ^{129}I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities. *Quaternary Geochronology* **3**, 291–297.

- Nagata, T., Fukushi, K. (2010): Prediction of iodate adsorption and surface speciation on oxides by surface complexation modeling. *Geochim. Cosmochim. Acta* **74**, 6000–6013.
- Noguchi, H., Murata, M. (1988): Physicochemical Speciation of Airborne ^{131}I in Japan from Chernobyl. *J. Environ. Radioactivity* **7**, 65–74.
- Oktay, S.D., Santschi, P.H., Moran, J.E., Sharma, P. (2001): ^{129}I and ^{127}I Transport in the Mississippi River. *Environ. Sci. Technol.* **35**, 4470–4476.
- OSPAR (2000): Quality Status Report 2000, Region II – Greater North Sea. OSPAR Commission for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic, London, 149 pp.
- Post, J.E. (1999): Manganese oxide minerals: Crystal structures and economic and environmental significance. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **96**, 3447–3454.
- Qiao, J., Hansen, V., Hou, X.L., Aldahan, A., Possnert, G. (2012): Speciation analysis of ^{129}I , ^{137}Cs , ^{232}Th , ^{238}U , ^{239}Pu and ^{240}Pu in environmental soil and sediment. *Applied Radiation and Isotopes* **70**, 1698–1708.
- Rao, U., Fehn, U. (1999): Sources and Reservoirs of Anthropogenic Iodine-129 in Western New York. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63** (13/14), 1927–1938.
- Sahoo, S.K., Muramatsu, Y., Yoshida, S., Matsusaki, H., Rühm, W. (2009): Determination of ^{129}I and ^{127}I Concentration in Soil Samples from the Chernobyl 30-km Zone by AMS and ICP-MS. *J. Radiat. Res.*, **50**, 325–332.
- Saiz-Lopez, A., Plane, J.M.C. (2004): Recent applications of Differential Optical Absorption Spectroscopy: Halogen chemistry in the lower troposphere. *J. Phys. IV France* **121**, 223–238.
- Santos, F.J., López-Gutiérrez, J.M., García-León, M., Suter, M., Synal, H.-A. (2005): Determination of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in aerosol samples in Seville (Spain). *Journal of Environmental Radioactivity* **84**, 103–109.
- Schaap, M., Timmermans, R.M.A., Koelemeijer, R.B.A., de Leeuw, G., Builtjes, P.J.H. (2008): Evaluation of MODIS aerosol optical thickness over Europe using sun photometer observations. *Atmospheric Environment* **42**, 2187–2197.
- Schlegel, M.L., Reiller, P., Mercier-Bion, F., Barré, N., Moulin, V. (2006): Molecular environment of iodine in naturally iodinated humic substances: Insight from X-ray absorption spectroscopy. *Geochim. Cosmochim. Acta* **70**, 5536–5551.
- Schmidt, A., Schnabel, C., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H.-A., Lopez, J.M., Suter, M. (1998): On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography. *Science of the Total Environment* **223**, 131–156.
- Schnabel, C., Lopez-Gutierrez, J. M., Szidat, S., Sprenger, M., Wernli, H., Beer, J., Synal, H.-A. (2001): On the origin of ^{129}I in rain water near Zürich. *Radiochim. Acta* **89**, 815–822.

- Schwehr, K.A., Santschi, P.H., Kaplan, D.I., Yeager, C.M., Brinkmeyer, R. (2009): Organo-Iodine Formation in Soils and Aquifer Sediments at Ambient Concentrations. *Environ. Sci. Technol.* **43**, 7258–7264.
- Sheppard, M.I., Thibault, D.H. (1992): Chemical behaviour of iodine in organic and mineral soils. *Applied Geochemistry* **7**, 265-272.
- Snyder, G., Fehn, U. (2004): Global distribution of ^{129}I in rivers and lakes: implications for iodine cycling in surface reservoirs. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **223–224**, 579–586.
- Söderlund, M., Lusa, M., Lehto, J., Hakanen, M., Vaaramaa, K., Lahdenperä, A.-M. (2011): Sorption of Iodine, Chlorine, Technetium and Cesium in Soil. Working Report 2011-04, Posiva Oy, Olkiluoto, Finland, 130 S.
- Suzuki, T.; Banba, S.; Kitamura, T.; Kabuto, S.; Isogai, K.; Amano, H. (2007): Determination of ^{129}I in environmental samples by AMS and NAA using an anion exchange resin disk. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **259** (1), 370–373.
- Takeno, N. (2005): Atlas of Eh-pH diagrams. Intercomparison of thermodynamic databases. Geological Survey of Japan Open File Report No.419, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 287 S.
- Vogt, R. (1999): Iodine Compounds in the Atmosphere. In: The Handbook of Environmental Chemistry Vol. 4 Part E: Reactive Halogen Compounds in the Atmosphere (ed. by P. Fabian and O.N. Singh), Springer Verlag, Berlin, S. 113-128.
- Vogt, R., Sander, R., von Glasow, R., Crutzen, P.J. (1999): Iodine Chemistry and its Role in Halogen Activation and Ozone Loss in the Marine Boundary Layer: A Model Study. *Journal of Atmospheric Chemistry* **32**, 375–395.
- Wang, B., Jackson, J.C., Palmer, C., Zheng, B., Finkelman, R.B. (2005): Evaluation on determination of iodine in coal by energy dispersive X-ray fluorescence. *Geochemical Journal* **39**, 391-394.
- Wershofen, H., Aumann, D.C. (1989): Iodine-129 in the Environment of a Nuclear Fuel Reprocessing Plant: VII. Concentrations and Chemical Forms of ^{129}I and ^{127}I in the Atmosphere. *J. Environ. Radioactivity* **10**, 141-156.
- Whitehead, D.C. (1974): The Sorption of Iodide by Soil Components. *J. Sci. Food Agric.* **25**, 73-79.
- Whitehead, D.C. (1979): Iodine in the U.K. environment with particular reference to agriculture. *J. Appl. Ecol.* **16**, 269-279.
- Whitehead, D. C. (1984): The distribution and transformation of iodine in the environment. *Environment International* **10**, 321-339.
- Wu, D., Du, J., Deng, H., Wang, W., Xiao, H., Li, P. (2014): Estimation of atmospheric iodine emission from coal combustion. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* **11**, 357–366.

- WSV (2014): Wasser- und Schifffahrtsverwaltung des Bundes, bereitgestellt durch die Bundesanstalt für Gewässerkunde (BfG): Abflussdaten 2011 - 2013, Email (17.6.14).
- Yuita, K., Kihou, N. (2005): Behaviour of iodine in a forest plot, an upland field, and a paddy field in the upland area of Tsukaba, Japan: Vertical distribution of iodine in soil horizons and layers to a depth of 50 m. *Soil Sci. Plant Nutr.* **51** (4), 455-467.
- Zhang, L., Zhou, W., Hou, X.L., Chen, N., Liu, Q., He, C., Fan, Y., Luo, M., Wang, Z., Fu, Y. (2011): Level and source of ^{129}I of environmental samples in Xi'an region, China. *Science of the Total Environment* **409**, 3780–3788.

5 Schlussfolgerungen

5.1. Untersuchte Umweltkompartimente

Die Einträge von ^{129}I aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen führen zu einer kontinuierlichen Anreicherung in allen Umweltkompartimenten. Bisher lagen hierzu nur kleinräumige Untersuchungen zu einzelnen Kompartimenten vor. Die in diesem Projekt durchgeführten großflächig angelegten Analysen erlauben nun einen Blick auf die Gesamtsituation in Deutschland. Über einen Zeitraum von zwei Jahren wurde umfangreiches Probenmaterial gesammelt, das es ermöglicht, sich ein Bild von den atmosphärischen Einträgen zu machen.

In allen untersuchten Bereichen der Umwelt in Deutschland ist eine erhebliche Erhöhung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegenüber dem prä nuklearen Isotopenverhältnis von $1,5 \cdot 10^{-12}$ [Fehn et al. 1986, 2007; Schink et al. 1995; Moran et al. 1998] zu verzeichnen.

Die Einträge von ^{127}I und ^{129}I aus der Atmosphäre wurden aus den Ergebnissen von Niederschlags- und Luftstaub-Sammlung errechnet. Enthalten sind also die nasse und trockene Deposition, die mit üblicherweise verwendeten Sammeleinrichtungen erfasst werden, sowie das partikelgebundene Iod aus der Luft. Nicht gebundene gasförmige Verbindungen, wie sie von den Iodsammlern des IMIS-Messnetzes zurück gehalten werden, wurden hier nicht berücksichtigt. Der partikelgebundene Anteil des Iods macht maximal 20 - 30 % der Iodkonzentration in der Luft aus [Wershofen und Aumann 1989; Michel et al. 2005]. Wie groß der Anteil des gasförmigen Iods an der Deposition ist, ist nicht bekannt.

Abb. 5.1 zeigt die mittlere jährliche Deposition der untersuchten Iodisotope für die drei Messstationen, an denen sowohl Niederschläge als auch Aerosole gesammelt wurden. Für die Station Schauinsland (Schau.) wurden zum Vergleich die Niederschläge aus Lahr ergänzt, das etwa 45 km (Luftlinie) entfernt liegt.

Für den Eintrag von ^{129}I aus der Atmosphäre lieferten die Niederschläge erwartungsgemäß einen deutlich höheren Beitrag als die von uns erfasste Aerosolfraktion [vergl. Englund et al. 2010; López-Gutiérrez 2001]. Der Grund dafür liegt in der effektiven Auswaschung von Iod aus der Luft durch Regen und Schnee. Während Methyljodid kaum ausgewaschen wird, werden sowohl partikelgebundenes als auch gasförmiges elementares Iod leicht deponiert.

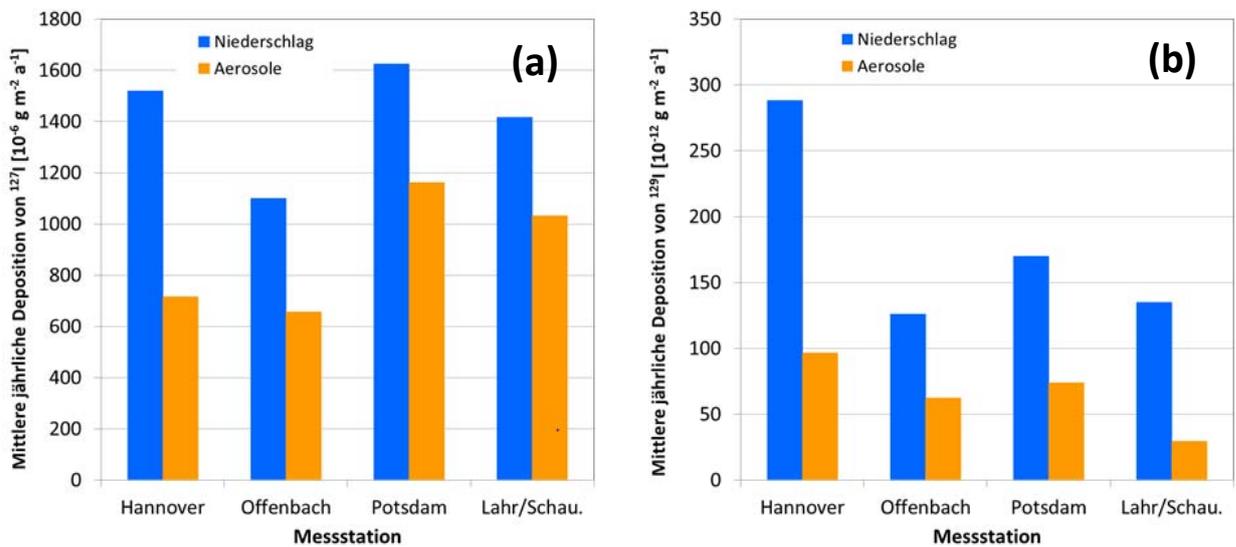


Abb. 5.1: Mittlere jährliche Depositionsraten von ^{127}I (a) und ^{129}I (b) in Niederschlägen und Aerosolen für die Messstationen Langenhagen, Offenbach, Potsdam und Lahr/Schauinsland.

Die Deposition anderer gasförmigen Verbindungen hängt von deren Reaktivität ab. Im Vergleich dazu wird die trockene Deposition von der Partikelgröße (Gravitation), von molekularer Diffusion, von der Windgeschwindigkeit und Turbulenzen beeinflusst. Ihr Ausmaß wird davon bestimmt, in welchen Bindungsformen das Iod vorliegt. Auch Art und Dichte der Vegetation spielen eine Rolle [Whitehead 1984].

Wenn man für die in diesem Projekt ermittelten Ergebnisse für ^{129}I den Anteil der Luftstaubsammlung mit der trockenen Deposition gleichsetzt und unberücksichtigt lässt, dass ein geringer Teil der trockenen Deposition auch mit den Niederschlägen erfasst wird, berechnet sich der Beitrag der trockenen Deposition als Anteil an der Gesamtdeposition auf rund 27% (Tab. 5.1). Für ^{127}I liegt der Anteil der trockenen an der Gesamtdeposition etwas höher, nämlich bei rund 38%. Dieser Wert stimmt genau mit der Schätzung von Whitehead (1984) überein, der die Beiträge an stabilem Iod zur nassen und trockenen Deposition für stabiles Iod mit 16 bzw. $9,6 \text{ g ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ angibt. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen in den Niederschlägen im Durchschnitt höher als in den Luftfilterproben (Abb. 5.2 und Abb. 5.3).

Im Vergleich zu Daten, die von anderen Autoren 10 bis 15 Jahre früher an vergleichbaren Orten gemessen wurden, zeigt sich für die in diesem Projekt berechneten ^{129}I -

Depositionen mit dem Niederschlag eine leichte Tendenz zur Abnahme (Tab A.11 im Anhang A).

Tab. 5.1: Mittlere jährliche Deposition von ^{129}I durch Niederschläge und Aerosole für die Messstationen Langenhagen, Offenbach, Potsdam und Lahr/Schauinsland (Schau.).

	Niederschlag	Aerosole	gesamt
Ort	$[10^{-12} \text{ g/m}^2 \cdot \text{a}]$	$[10^{-12} \text{ g/m}^2 \cdot \text{a}]$	$[10^{-12} \text{ g/m}^2 \cdot \text{a}]$
Hannover	288	96	384
Offenbach	126	62	188
Potsdam	170	74	244
Lahr/Schau.	135	29	164

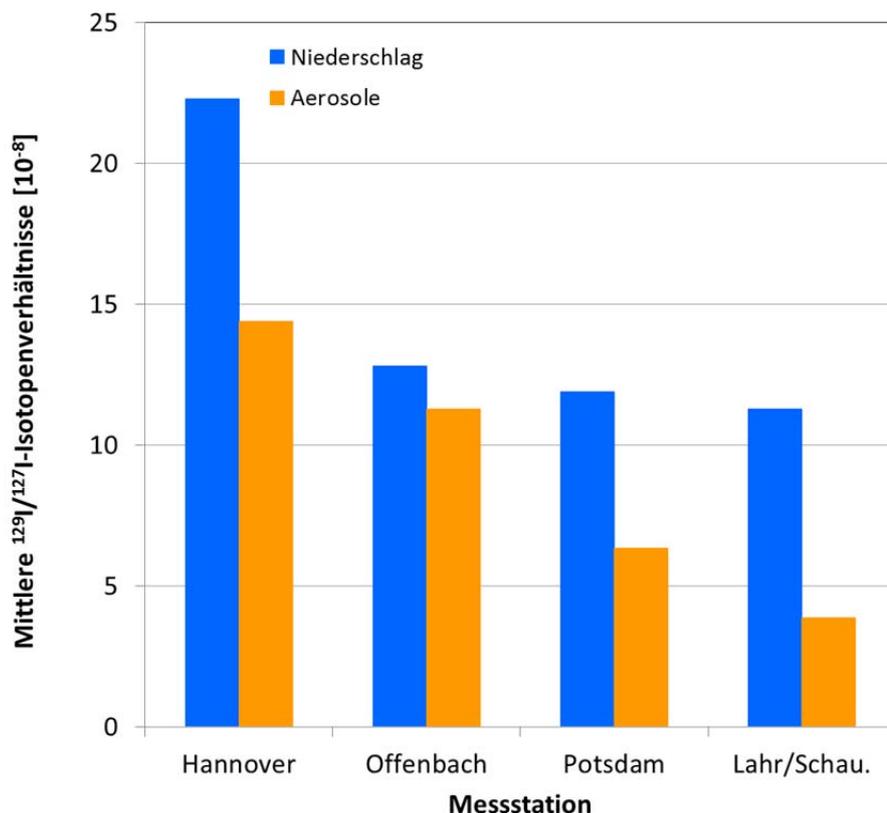


Abb. 5.2: Mittlere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlägen und Aerosolen für die Messstationen Langenhagen, Offenbach, Potsdam und Lahr/Schauinsland.

Auch die mittleren Isotopenverhältnisse im Niederschlag weisen diese Tendenz auf. Dies könnte auf den leichten Rückgang der gasförmigen Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen gegenüber den 1990er Jahren zurückzuführen sein (vergl. Abb. 1.1).

Ein Vergleich der aktuellen Werte für die ^{129}I -Inventare der Böden mit denen von Ernst Ende der 1990er Jahre beprobten [Ernst 2003] zeigen gute Übereinstimmung, so dass davon ausgegangen werden kann, dass sich das ^{129}I -Inventar in den Böden in den letzten 15 Jahren kaum verändert hat. Auch die Isotopenverhältnisse in den oberen Bodenschichten liegen im selben Bereich wie die der in den 1990ern in Deutschland genommenen Proben.

Aus Tabelle 5.2 und Abbildung 5.3 ist deutlich zu erkennen, dass über die Zufuhr von ^{129}I über die Niederschläge eine Akkumulation im Boden stattfindet. Die Bodeninventare erreichen das bis zu 450fache der jährlichen Deposition mit dem Niederschlag, während die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden unter denen des Niederschlags liegen. Letzteres resultiert aus 'Verdünnung' des ^{129}I mit dem stabilen Iod im Boden.

Tab. 5.2: Mittlere jährliche Deposition von ^{127}I und ^{129}I durch Niederschläge und Inventare der Böden an denselben Standorten. Die mit * gekennzeichneten Orte wurden für die Bodenprobenahme durch Breungeshain und Puch ersetzt.

	Niederschlag	Boden	Niederschlag	Boden
	^{127}I [10^{-3} g/m ²]	^{127}I [10^{-3} g/m ²]	^{129}I [10^{-9} g/m ²]	^{129}I [10^{-9} g/m ²]
Norderney	2,83	3716	1,51	108,24
Schleswig	2,77	2650	1,08	47,51
Langenhagen	1,52	1906	0,29	35,83
Essen	2,99	3279	0,62	74,01
Potsdam	1,62	824	0,17	25,14
Görlitz	1,25	947	0,14	18,34
Offenbach*	1,10	2826	0,13	58,72
Nürnberg	1,31	3962	0,08	30,52
Lahr	1,42	2031	0,14	58,06
Oberschleißheim*	1,56	1999	0,09	28,05

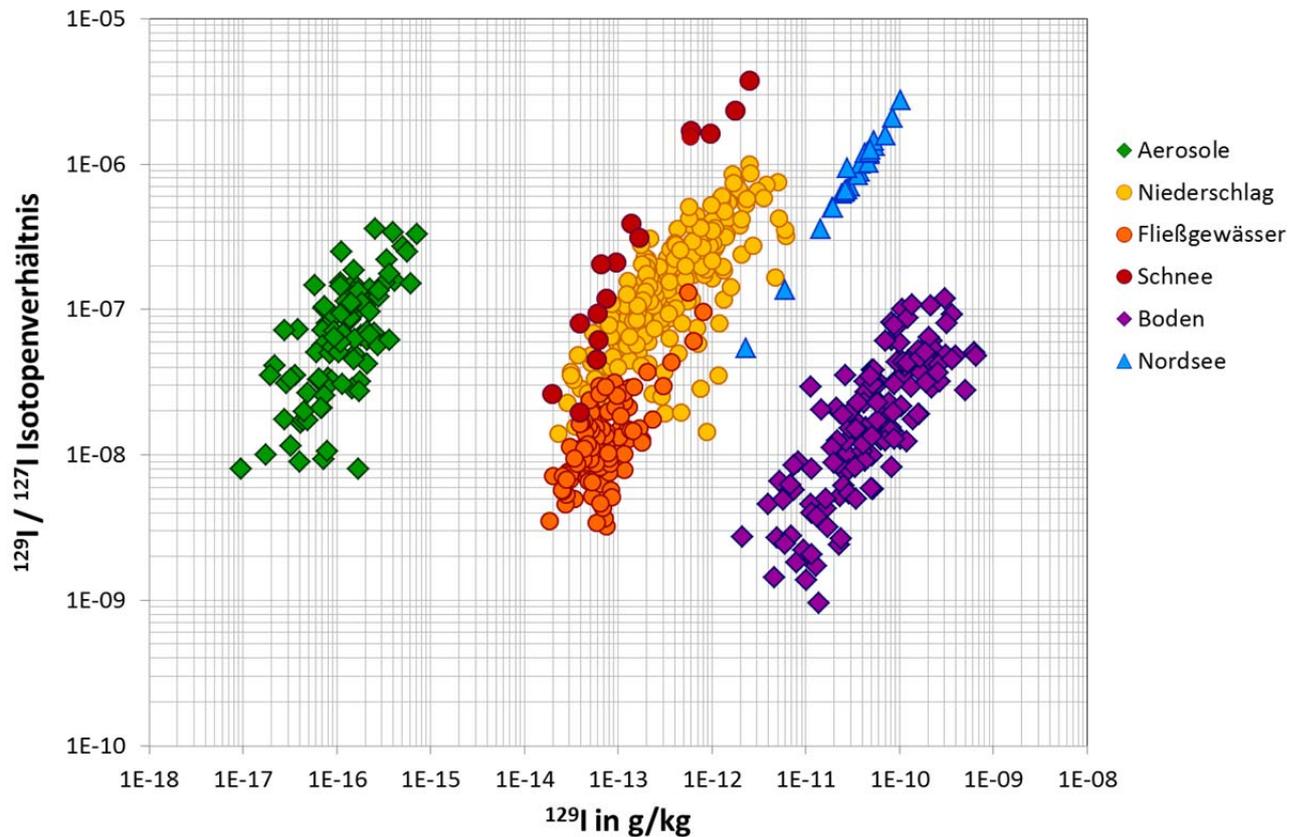


Abb. 5.3: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Verhältnis zur ^{129}I -Konzentration im Probenmaterial (Ergebnisse für Nordseeproben aus [Daraoui et al. 2012]).

Daran, dass die Isotopenverhältnisse insbesondere in den unteren Bodenschichten deutlich niedriger sind als in den Einträgen zeigt sich, dass ^{129}I hauptsächlich in den oberen Bodenschichten festgehalten wird. Die Migration in tiefere Schichten erfolgt nur langsam. Ernst (2003) fand bis in eine Tiefe von 250 cm Isotopenverhältnisse, die über denen von prä nuklearen Proben lagen, jedoch befand sich im Durchschnitt nur 1 % des gesamten im Profil gefundenen ^{129}I unterhalb einer Tiefe von 100 cm. Die unterschiedliche Verteilung von ^{127}I und ^{129}I muss auch auf die unterschiedlichen Verweilzeiten zurückgeführt werden. Während das stabile Iod seit dem Auftauen der Böden nach Ende der letzten Eiszeit vor mehr als 10.000 Jahren Zeit hatte, thermodynamisch günstige Sorptionsplätze im Boden zu besetzen, blieben dem anthropogen eingetragenen ^{129}I nur 60 Jahre Zeit, und es ist zu vermuten, dass es vornehmlich reversibel gebunden ist und zwar weiterhin in den Böden akkumuliert wird, jedoch in Zukunft unter ungünstigen Bedingungen auch in größeren Mengen in Grundwasserleiter gelangen kann.

5.2 Dosisrelevanz

Mit Hinsicht auf Emissionen in die Umwelt und die daraus resultierende potentielle Strahlenexposition ist ^{129}I bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente eines der kritischen Radionuklide, und es wird auch bei der Modellierung der Endlagerung radioaktiver Abfälle in geologischen Formationen wegen seiner hohen Mobilität als eines der dosisrelevantesten Radionuklide für die Langzeitbetrachtungen einbezogen (Michel et al. 2004; NEA, 1999).

Wegen seiner langen Halbwertszeit lässt ^{129}I relevante Strahlenexpositionen nur bei extremen Umweltkontaminationen in der nächsten Umgebung von Emittenten zu. Daher wurde es bislang hauptsächlich als Tracer für Umweltprozesse [z.B. Edmonds et al. 1998; Fabryka-Martin et al. 1987; Yiou et al. 1994; Snyder et al. 2003] genutzt, bzw. nach dem Reaktorunfall von Chernobyl für die retrospektive Dosimetrie des kurzlebigen ^{131}I [Schmidt, 1998; Michel et al. 2005; Daraoui 2010].

Iod ist ein sehr biophiles Element, das vom menschlichen Körper leicht aufgenommen wird. In der Nahrung und im Trinkwasser liegt es überwiegend in anorganischer Form vor und wird so sehr schnell und zu fast 100 % im Gastrointestinaltrakt resorbiert [Grimminger 2005]. Daher ist die Schilddrüse in Bezug auf eine potenzielle Dosis durch Iodisotope (^{131}I , ^{129}I) das relevante Organ für Dosisbetrachtungen.

Nach § 47 der Strahlenschutzverordnung [StrSchV 2001] muss für die Schilddrüsenedosis ein Wert von 0,9 mSv pro Jahr unterschritten werden. Schmidt et al. (1998) berechneten die durch ^{129}I verursachte Strahlenexposition unter Verwendung der Daten der ICRP (1981) zum ICRP-Referenzmenschen. Für den Gehalt des Menschen an Iod und die Iod-Aufnahme, und für einen Dosiskoeffizienten für ein einjähriges Kind von $2,2 \cdot 10^{-7} \text{ Sv Bq}^{-1}$ berechneten sie, dass ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $6,4 \cdot 10^{-4}$ im Gesamtiod des Körpers eine effektive Jahresdosis von 0,3 mSv verursachen würde. Werden die Dosiskoeffizienten der EURATOM Grundnorm (CEC 1996) und eine mittlere tägliche Iod-Aufnahme von $0,12 \text{ mg d}^{-1}$ angenommen, würde der Grenzwert für die Schilddrüse von $0,9 \text{ mSv a}^{-1}$ für die verschiedenen Altersklassen (3 Mo, 1a, 5a, 10a, 15a, Erwachsener [StrSchV 2001]) bei $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von $8,5 \cdot 10^{-4}$, $7,3 \cdot 10^{-4}$, $9,2 \cdot 10^{-4}$, $8,3 \cdot 10^{-4}$, $1,1 \cdot 10^{-3}$, bzw. $1,5 \cdot 10^{-3}$ erreicht werden. Die Ergebnisse der Abschätzung finden sich in Michel et al. (2004) und in der Übersichtstabelle (Tab. A.12) im Anhang A.

Werte in dieser Größenordnung wurden bisher nur von Frechou et al. (2002) für Rinderschilddrüsen aus der direkten Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage La Hague berichtet. Die Werte für die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse lagen für 1999 geschlachtete Tiere zwischen $(0,9 \pm 0,1) \cdot 10^{-6}$ und $(2,5 \pm 0,1) \cdot 10^{-4}$.

Die gegenwärtig in Deutschland vorkommenden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind mit Hinsicht auf eine Gefährdung der Bevölkerung durch erhöhte Schilddrüsendosen nicht als bedenklich anzusehen. Das Vorkommen von ^{129}I in der Umwelt als Resultat von menschlichen Aktivitäten ist während der letzten 60 Jahre dramatisch verändert worden. Und auch wenn es momentan außer in der direkten Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlagen radiologisch nicht relevant ist, sollten Veränderungen in der Zukunft weiterhin sorgfältig beobachtet werden, z.B. mit Hinsicht auf den Eintrag in Grundwasserleiter.

5.3 Literatur zu Kapitel 5

- CEC (1996): Council Directive 96/29/EURATOM: laying down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation. Official Journal of the European Communities L159, Brussels, Belgium, EC.
- Daraoui, A. (2010): Migration von I-129 und Retrospektive Dosimetrie. Dissertation Universität Hannover, 226 S.
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh10/62787097X.pdf>
- Edmonds, H.N., Smith, J.N., Livingston, H.D., Kilius, L.R., Edmond, J.M. (1998): ^{129}I in archived seawater samples. *Deep-Sea Research I* **45**, 1111-1125.
- Englund, E., Aldahan, A., Hou, X.L., Possnert, G., Söderström, C. (2010): Iodine (^{129}I and ^{127}I) in aerosols from northern Europe. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **268**, 1139–1141.
- Ernst, T. (2003): Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport. Dissertation Universität Hannover, 359 S.
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/37628126X.pdf>
- Fabryka-Martin, J., Davis, S.N., Elmore, D. (1987): Applications of ^{129}I and ^{36}Cl in hydrology. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **29**, 361-371
- Fehn, U., Holdren, G., Elmore, D., Brunelle, T., Teng, R., Kubik, P. (1986): Determination of natural and anthropogenic ^{129}I in marine sediments. *Geophysical Research Letters* **13**, 137–9.
- Fehn, U., Moran, J.E., Snyder, G.T., Muramatsu, Y. (2007): The initial $^{129}\text{I}/\text{I}$ ratio and the presence of 'old' iodine in continental margins. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **259**, 496–502.
- Fréchou, C., Calmet, D., Bertho, X., Gaudry, A. (2002): $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio measurements in bovine thyroids from the North Cotentin area (France). *Science of the Total Environment* **293**, 59–67.
- Grimminger, S.P. (2005): Zum Iodbedarf und zur Iodversorgung der Haus- und Nutztiere und des Menschen. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, 146 S.
- ICRP (1981): Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Report No. 23. Pergamon Press, Oxford (1st print 1971).
- López-Gutiérrez, J.M., García-León, M., Schnabel, C., Suter, M., Synal, H.-A., Szidat, S. (2001): *Journal of Environmental Radioactivity* **55**, 269–282.
- Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D.; Vahlbruch, J., Synal, H.-A.; Schnabel, C. (2004): Ableitungen von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129. Abschlussbericht zum Vorhaben StSch 4285, BMU, 228 S.

- Michel, R., Handl, J., Ernst, T., Botsch, W., Szidat, S., Schmidt, A., Jakob, D., Beltz, D., Romantschuk, L.D., Synal, H.-A., Schnabel, C., López-Gutiérrez, J.M. (2005): 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**, 35– 55.
- Moran, J.E., Fehn, U., Teng, R.T.D. (1998): Variations in $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component. *Chemical Geology* **152**, 193–203.
- NEA (1999): Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation. Status and Assessment Report, OECD, 325 S.
- Schink, D.R., Santschi, P.H., Corapcioglu, O., Sharma, P., Fehn, U. (1995): ^{129}I in Gulf of Mexico waters. *Earth and Planetary Science Letters* **135**, 131-138.
- Schmidt, A. (1998): ^{129}I und stabiles Iod in Umweltproben. Qualitätskontrolle von Analysenmethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie. Dissertation Leibniz Universität Hannover, 229 S. [http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1\[year\]=1998](http://www.irs.uni-hannover.de/3.html?&no_cache=1&tx_tkpublikationen_pi1[year]=1998)
- Schmidt, A, Schnabel, C., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H.-A., Lopez, J.M., Suter, M.(1998): On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography. *Science of the Total Environment* **223**, 131-156.
- StrSchV (2001): Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen. Strahlenschutzverordnung vom 20. Juli 2001, 169 S.
- Snyder, G.T., Riese, W.C., Franks, S., Fehn, U., Pelzmann, W.L., Gorody, A.W., Moran, J.E. (2003): Origin and history of waters associated with coalbed methane: ^{129}I , ^{36}Cl , and stable isotope results from the Fruitland Formation, CO and NM. *Geochim. Cosmochim. Acta* **67** (23), 4529–4544.
- Wershofen, H., Aumann, D. (1989): Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VII. Concentration and chemical forms of ^{129}I and ^{127}I in the atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity* **10**, 141-156.
- Whitehead, D. C. (1984): The distribution and transformation of iodine in the environment. *Environment International* **10**, 321-339.
- Yiou, F., Raisbeck, G.M., Zhou, Q., Kilius, L.R. (1994): ^{129}I from nuclear fuel reprocessing; potential as an oceanographic tracer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B 92**, 436-439.

6 Voraussichtlicher Nutzen, Verwertbarkeit der Ergebnisse

Der Eintrag von ^{129}I in verschiedene Umweltkompartimente war in Deutschland bisher nur kleinräumig und in Ansätzen quantifiziert. Das in diesem Projekt großflächig erhobene Datenmaterial erlaubt eine Übersicht über jährlichen Einträge von ^{129}I aus der Atmosphäre in Oberflächengewässer und Böden und schafft damit eine Grundlage für die Beobachtung des langfristigen Anstiegs der ^{129}I -Gehalte und der Veränderung von $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen in der Umwelt in Deutschland. Die gewonnenen Erkenntnisse können von Anwendergruppen im Bereich Radioökologie und Strahlenschutz weiterverwendet werden und zur Weiterentwicklung von Konzepten zum Schutz von Wasser, Luft und Boden beitragen.

Ein weiterer wesentlicher Nutzen des Projekts wurde in der Förderung des wissenschaftlichen Nachwuchses und im Kompetenzerhalt gesehen. Diese Aufgabe ist mit der Erstellung von 1 Bachelor-, 1 Master-, 1 Doktorarbeit, sowie der wissenschaftlichen Weiterentwicklung eines bereits promovierten Mitarbeiters erfolgreich erfüllt worden.

7 Zusammenfassung

Die Einträge von ^{129}I aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen führen zu einer kontinuierlichen Anreicherung in der Umwelt. Das Ziel dieses Forschungsvorhabens war die bundesweite Bilanzierung von Inventaren, Einträgen und Austrägen von ^{129}I und ^{127}I in verschiedene Umweltkompartimente.

Untersucht wurden kontinuierlich über einen Zeitraum von 2 Jahren gesammelte Aerosol-, Niederschlags- und Fließgewässerproben. Zusätzlich erfolgte an 30 Standorten die Entnahme von Bodenproben. Vorbereitung, Messung und Auswertung des Materials erfolgte unter anderem im Rahmen von 1 Bachelor-, 1 Master- und 1 Doktorarbeit.

Während für ^{127}I kein Zusammenhang von Konzentrationen und Depositionsdichten für Aerosole und Niederschläge mit der Entfernung von der Nordsee zu beobachten ist, wird dieser für ^{129}I durchaus festgestellt. Im Vergleich zu Daten, die von anderen Autoren 10 bis 15 Jahre früher an vergleichbaren Orten gemessen wurden, zeigt sich für die in diesem Projekt berechneten ^{129}I -Depositionen mit dem Niederschlag eine leichte Tendenz zur Abnahme.

Die durchschnittlichen ^{129}I -Konzentrationen der in diesem Projekt analysierten Flusswasserproben lagen alle im Bereich der Messwerte, die für Flüsse in diesem Bereich der Nordhalbkugel angegeben werden.

Für die Böden ist eine Tendenz zur Abnahme der Inventare von Westen nach Osten erkennbar, es besteht jedoch ein mehr oder weniger enger Zusammenhang von Iodgehalt und verschiedenen Bodeneigenschaften. Insgesamt zeigt ein Vergleich mit verschiedenen Daten aus früheren Untersuchungen aktuell keinen maßgeblichen Anstieg der Isotopenverhältnisse und Depositionsraten. In den meisten Böden nimmt der Gehalt an ^{129}I exponentiell mit der Tiefe ab. Der größte Anteil (ca. 80 %) bis zur Gesamttiefe von 50 cm befand sich in den oberen 20 cm.

Die gegenwärtig in Deutschland vorkommenden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind mit Hinsicht auf eine Gefährdung der Bevölkerung durch erhöhte Schilddrüsendosen nicht als bedenklich anzusehen. Auch wenn ^{129}I momentan außer in der direkten Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlagen radiologisch nicht relevant ist, sollten Veränderungen in der Zukunft weiterhin sorgfältig beobachtet werden, z.B. mit Hinsicht auf den Eintrag in Grundwasserleiter.

8 Tabellenverzeichnis

- Tab. 4.1: Übersicht über die von verschiedenen Autoren in Deutschland und der Schweiz ermittelten jährlichen Depositiosraten von ^{129}I .
- Tab. 4.2: Mittlere ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für die untersuchten Flusswasserproben.
- Tab. 4.3: Länge und Größe der Einzugsgebiete der untersuchten Fließgewässer.
- Tab. 4.4: Abschätzung der mittleren jährliche Einträge und Austräge von ^{127}I und ^{129}I durch Fließgewässer anhand der mittleren jährlichen Abflüsse (MQ) und der durchschnittlichen ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen des Wassers.
- Tab. 5.1: Mittlere jährliche Deposition von ^{129}I durch Niederschläge und Aerosole für die Messstationen Langenhagen, Offenbach, Potsdam und Lahr/Schauinsland (Schau.).
- Tab. 5.2: Mittlere jährliche Deposition von ^{127}I und ^{129}I durch Niederschläge und Inventare der Böden an denselben Standorten. Die mit * gekennzeichneten Orte wurden für die Bodenprobenahme durch Breungeshain und Puch ersetzt.

Anhang A

- Tab A.1: Daten zu Flächen für die Bodenprobenahme.
- Tab. A.2: Verwendete Einwaagen für Bodenproben.
- Tab.A.3: Abschätzung der jährlichen luftgetragenen Depositionsraten für ^{127}I in $10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.
- Tab.A.4: Abschätzung der jährlichen luftgetragenen Depositionsraten für ^{129}I in $10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.
- Tab. A.5: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Aerosolen im Zeitraum von März 2011 bis Februar 2013.
- Tab. A.6: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlagsproben im Zeitraum von März 2011 bis Februar 2013.
- Tab. A.7: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Flusswasser (Januar 2011 – März 2013) an 15 Messstationen der BfG.
- Tab. A.8: Monatliche Abflüsse an den Messstationen der BfG.
- Tab.A.9: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden.

Tab. A.10: Chemische und physikalische Eigenschaften der untersuchten Böden (Fe_d, Al_d, Mn_d = dithionitlösliche Fe-, Al-, Mn-Oxide; C_{org} = organischer Kohlenstoff; T=Ton, U=Schluff, S=Sand; *=extrapolierte Werte; Werte in Klammern geschätzt).

Tab. A.11: Übersicht über die von verschiedenen Autoren an vergleichbaren Orten in Deutschland ermittelten jährlichen Depositiosraten von ¹²⁹I und mittleren ¹²⁹I/¹²⁷I-Isotopenverhältnisse in unterschiedlichen Zeiträumen.

Tab. A.12: Abschätzung der ¹²⁹I/¹²⁷I-Isotopenverhältnisse, bei denen in Deutschland das Erreichen des Dosisgrenzwertes für die Schilddrüse zu erwarten ist, und die daraus resultierenden Werte der effektiven Dosis [aus: Michel et al. 2004].

9 Abbildungsverzeichnis

- Abb. 1.1: Flüssige (a) und luftgetragene (b) Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield bis 2012.
- Abb. 1.2: Vereinfachte Darstellung der Quell- und Senkenfunktion der Meere (verändert nach Leblanc (2006)).
- Abb. 2.1: Standorte des europäischen 'sparse network' (rote Sterne) in Deutschland, an denen Aerosolproben für die ^{129}I -Analyse gesammelt wurden. Die ovale Markierung bezeichnet den DWD-Standort Hannover-Langenhagen.
- Abb. 2.2: Standorte der Radioaktivitätsmessstationen des DWD, an denen Niederschlagsproben für die ^{129}I -Analyse gesammelt wurden.
- Abb. 2.3: Standorte Messstationen der BfG, an denen Proben für die ^{129}I -Analyse aus den Bundeswasserstraßen entnommen wurden.
- Abb. 2.4: Standorte für die Entnahme von Bodenproben zur ^{129}I -Analyse.
- Abb. 3.1: (a) High-Volume-Sampler an der Radioaktivitätsmessstelle des DWD in Aachen; (b, c) Iod-Sammler zur Erfassung von gasförmigem Iod mit Adsorberpatrone, gefüllt mit Adsorbergranulat und Aktivkohle.
- Abb. 3.2: (a) Schematische Darstellung der Niederschlagssammler an den Radioaktivitätsmessstellen des DWD [FS, 2010]; (b, c) Sammler an der Messstelle in Hannover-Langenhagen.
- Abb. 3.3: Automatische Fließgewässer-Probenahme (Radioaktivitätsmessstation der BfG in Rockenau/Neckar) [Dersch 2006].
- Abb. 3.4: Verwendete Bohrstöcke.
- Abb. 3.5: Mit dem Bohrstock entnommene ‚Bohrkerne‘.
- Abb. 3.6: Entnahme von Stechzylinderproben.
- Abb. 3.7: Schematischer Aufbau der Iod-Extraktionsapparatur für Boden- und Filterproben.
- Abb. 3.8: AMS 'Tandy' am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich (<http://www.ams.ethz.ch/instruments/tandy>).
- Abb. 4.1: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der DWD-Messstation in Offenbach (02/2011 – 02/2013).
- Abb. 4.2: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der BfS-Messstation auf dem Schauinsland (02/2011 – 02/2013).
- Abb. 4.3: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der DWD-Messstation in Potsdam (03/2011 – 02/2013).

- Abb. 4.4: Aerosolgebundene ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen der Luft an der DWD-Messstation in Langenhagen (04/2011 – 12/2012).
- Abb. 4.5: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messstation in Offenbach (02/2011 – 02/2013).
- Abb. 4.6: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messstation auf dem Schauinsland (02/2011 – 02/2013).
- Abb. 4.7: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messstation in Potsdam (03/2011 – 02/2013).
- Abb. 4.8: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der DWD-Messstation in Langenhagen (04/2011 – 12/2012).
- Abb. 4.9: Geschätzte mittlere jährliche Depositionsraten (aerosolgetragen) von ^{127}I (a) in $10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ und ^{129}I (b) in $10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.
- Abb. 4.10: Konzentration von ^{127}I (a) und ^{129}I (b) im Niederschlag in Abhängigkeit von der monatlichen Niederschlagsmenge.
- Abb. 4.11: Monatliche ^{127}I -Konzentration und ^{127}I -Deposition mit dem Niederschlag in Potsdam (monatliche Niederschlagsmengen für einige Monate in mm).
- Abb. 4.12: Monatliche ^{129}I -Konzentration und ^{129}I -Deposition mit dem Niederschlag in Potsdam (monatliche Niederschlagsmengen für einige Monate in mm).
- Abb. 4.13: Trockene und nasse Deposition von ^{127}I im Niederschlag an DWD-Stationen Norderney, Schleswig und Langenhagen (Nord).
- Abb. 4.14: Trockene und nasse Deposition von ^{127}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Essen und Offenbach (West).
- Abb. 4.15: Trockene und nasse Deposition von ^{127}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Potsdam und Görlitz (Ost).
- Abb. 4.16: Trockene und nasse Deposition von ^{127}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Nürnberg, Lahr und Oberschleißheim (Süd)
- Abb. 4.17: Trockene und nasse Deposition von ^{129}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Norderney, Schleswig und Langenhagen (Nord).
- Abb. 4.18: Trockene und nasse Deposition von ^{129}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Essen und Offenbach (West).
- Abb. 4.19: Trockene und nasse Deposition von ^{129}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Potsdam und Görlitz (Ost).
- Abb. 4.20: Trockene und nasse Deposition von ^{129}I im Niederschlag an den DWD-Stationen Nürnberg, Lahr und Oberschleißheim (Süd).

- Abb. 4.21: Jährliche Depositionsraten (trockene und nasse Deposition) von ^{127}I (a) in $10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ und ^{129}I (b) in $10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ mit dem Niederschlag (mit * gekennzeichnete Werte vermutlich leicht unterschätzt, da Aufzeichnungen nicht ganz vollständig).
- Abb. 4.22: Jährliche Depositionsraten (trockene und nasse Deposition) von ^{127}I (a) und ^{129}I (b) mit dem Niederschlag in Abhängigkeit der Messstationen von der Nordseeküste.
- Abb. 4.23: Verhältnis von jährlicher ^{127}I - und ^{129}I -Deposition mit dem Niederschlag in Abhängigkeit von der Entfernung des Probenahmestandes von der Nordsee.
- Abb. 4.24: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Norderney, Schleswig und Langenhagen (Nord).
- Abb. 4.25: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Essen und Potsdam (West).
- Abb. 4.26: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Potsdam und Görlitz (Ost).
- Abb. 4.27: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben an den DWD-Stationen Nürnberg, Lahr und Oberschleißheim (Süd).
- Abb. 4.28: ^{127}I -Konzentrationen im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).
- Abb. 4.29: ^{129}I -Konzentrationen im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).
- Abb. 4.30: ^{129}I -Konzentration im Wasser von Flüssen der nördlichen Hemisphäre in Abhängigkeit von der geographischen Lage ([1] Kekli et al. 2003; [2] Aldahan et al. 2006; [3] Atarashi-Andoh et al. 2007; [4] Zhang et al. 2011; [5] Rao und Fehn 1999; [6] Moran et al. 2002; [7] Keogh et al. 2010).
- Abb. 4.26: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).
- Abb. 4.31: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Wasser von Ems, Weser, Elbe, Oder, Rhein und Donau an 15 Messstationen der BfG (I/2011-I/2013).
- Abb. 4.32: Einteilung der Probenahmestandorte für Bodenproben in Sektoren.
- Abb. 4.33: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Norden).
- Abb. 4.34: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Westen).

- Abb. 4.35: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Osten).
- Abb. 4.36: ^{127}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Süden).
- Abb. 4.37: Beziehung zwischen dem Iodgehalt von Böden und deren Entfernung vom Meer (aus: [Johnson 2003]).
- Abb. 4.38: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Norden).
- Abb. 4.39: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Westen).
- Abb. 4.40: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Osten).
- Abb. 4.41: ^{129}I -Konzentrationen im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Süden).
- Abb. 4.42: ^{129}I -Konzentrationen in niedersächsischen Böden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 250 cm (Daten aus [Ernst et al. 2003]) und in den Proben der DWD-Messstation Langenhagen [diese Arbeit].
- Abb. 4.43: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Norden).
- Abb. 4.44: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Westen).
- Abb. 4.45: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Osten).
- Abb. 4.46: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden in Abhängigkeit von der Tiefe bis 50 cm (Süden).
- Abb. 4.47: Inventare der untersuchten Böden an ^{127}I (a) in g m^{-2} und ^{129}I in 10^{-9} g m^{-2} (b) bis in eine Tiefe von 0,5 m.
- Abb. 4.48: Theoretisch möglicher pe-pH-Bereich in wässrigen Systemen (weißes Feld) und häufiger pe-pHBereich in Böden (rotes Feld) [verändert nach Blume et al. 2010].
- Abb. 4.49: Stabilitätsdiagramm für Iod im System I-O-H. $\Sigma\text{I} = 10^{-10}$; 298,15 K; 105 Pa. [aus: Takeno 2005].
- Abb. 4.50: Konzentration von ^{129}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an organischer Substanz.

Abb. 5.1: Mittlere jährliche Depositionsraten von ^{127}I (a) und ^{129}I (b) in Niederschlägen und Aerosolen für die Messstationen Langenhagen, Offenbach, Potsdam und Lahr/Schauinsland.

Abb. 5.2: Mittlere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlägen und Aerosolen für die Messstationen Langenhagen, Offenbach, Potsdam und Lahr/Schauinsland.

Abb. 5.3: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Verhältnis zur ^{129}I -Konzentration im Probenmaterial (Ergebnisse für Nordseeproben aus [Daraoui et al. 2012]).

Anhang B

Abb. B.1: Schematische Darstellung der Aufbereitung von Aerosolfilter-Proben für die AMS-Messung.

Abb. B.2: Schematische Darstellung der Aufbereitung von Wasser-Proben für die AMS-Messung.

Abb. B.3: Beispiel für ein Datenerfassungsblatt für Niederschlagsproben (DWD Radioaktivitätsmesselle Schleswig).

Abb. B.4: ^{129}I -Konzentrationen in Böden in Niedersachsen, China, Chile und der Ukraine in Abhängigkeit von der Tiefe bis 250 cm (Daten aus: [1] Ernst et al. 2003; [2] Luo et al. 2013; [3] Sahoo et al. 2009; [4] Daraoui 2010).

Abb. B.5: Konzentration von ^{127}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an organischer Substanz.

Abb. B.6: Konzentration von ^{127}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Eisen.

Abb. B.7: Konzentration von ^{129}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Eisen.

Abb. B.8: Konzentration von ^{127}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Aluminium.

Abb. B.9: Konzentration von ^{129}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Aluminium.

Abb. B.10: Einzugsgebiete der großen Fließgewässer in Deutschland [Quelle: Duden; ©Bibliographisches Institut Berlin].

Anhang A

Tabellen

Tab A.1: Daten zu Flächen für die Bodenprobenahme.

Ort	Zuständigkeit	Nutzung	ungestört*	Probenahme	Länge**	Breite**	H. über NN	Bodenart
Aachen-Orsbach	DWD	Messfeld/Rasen	2 Jahre	04.06.2013	06°01'	50°47'	231 m	schluffiger Ton
Angermünde-Kerkow	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	15.05.2013	13°59'	53°01'	54 m	lehmgiger Sand
Ankershagen	LUNG Meckl.-V.	Grünland/Wiese	> 30 Jahre	16.05.2013	12°57'	53°29'	58 m	lehmgiger Sand
Bad Arolsen	HLUG / Hessen	Grünland/Wiese	> 15 Jahre	10.10.2012	09°01'	51°23'	343 m	schw. toniger Lehm
Bielefeld	privat	Rasen/Hausgarten	> 20 Jahre	23.09.2011	08°32'	52°01'	118 m	Sand
Biendorf	LUNG Meckl.-V.	Grünland/Weide	> 15 Jahre	26.09.2012	11°42'	54°04'	48 m	Sand
Breungeshain	HLUG / Hessen	Grünland/Mähwiese	> 15 Jahre	05.09.2012	09°12'	50°30'	552 m	schluffiger Lehm
Essen-Bredene	DWD	Messfeld/Rasen	> 20 Jahre	07.04.2011	06°58'	51°24'	150 m	toniger Schluff
Freiburg-Schauinsland	BfS	Grünland/Wiese	> 15 Jahre	24.07.2013	07°54'	47°54'	1195 m	stark sandiger Lehm
Fürstzell	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	23.05.2013	13°21'	48°32'	476 m	sandiger Lehm
Geesthacht	HZ Geesthacht	Grünland/Wiese	> 15 Jahre	26.04.2012	10°21'	53°26'	27 m	lehmgiger Sand
Gohre	LAU Sachsen-Anh.	Grünland/Wiese	seit 2003	07.05.2013	11°48'	52°33'	41 m	anmoor. sand. Lehm
Görlitz	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	26.05.2011	14°57'	51°09'	238 m	lehmgiger Sand
Hannover-Langenhagen	DWD	Messfeld/Rasen	ca. 40 Jahre	14.04.2011	09°42'	52°27'	53 m	lehmgiger Sand
Kempten-Spitalhof	LfL Bayern	Dauergrünland/Wiese	> 50 Jahre	23.07.2013	10°19'	47°44'	730 m	schw. toniger Lehm
Kiel/Schädtek	MRI	Grünland/Weide	> 30 Jahre	24.04.2012	10°16'	54°18'	25 m	schw. sandiger Lehm
Lahr	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	11.05.2011	07°49'	48°21'	155 m	sand.-lehm. Schluff
Lehnmühle	LfULG Sachsen	Grünland/Weide	seit 2000	14.05.2013	13°36'	50°49'	534 m	stark lehmiger Sand
Ludwigshöhe	LUWG Rheinl.-Pf.	Rasen/öff. Grün	> 30 Jahre	06.09.2012	8°20'	49°49'	86 m	stark sandiger Lehm
München-Oberschleißh.	DWD	Messfeld/Rasen	-----	-----	11°49'	48°22'	444 m	-----
Neu-Boltenhagen	LUNG Meckl.-V.	Grünland/Mähwiese	> 10 Jahre	27.09.2012	13°36'	54°03'	22 m	schw. schluff. Sand
Nordenham	LBEG Nieders.	Grünland/Weide	seit 1994	19.06.2012	08°29'	53°29'	2 m	schluffiger Ton
Norderney	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	09.08.2012	07°09'	53°42'	11 m	Sand
Nürnberg	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	25.05.2011	11°03'	49°30'	314 m	toniger Sand
Oberweißbach	TLUG	Grünland/Wiese	seit 1992	20.06.2012	11°09'	50°35'	684 m	schluffiger Lehm
Offenbach	DWD	Messfeld/Rasen	-----	-----	08°47'	50°05'	119 m	-----
Potsdam	DWD	Messfeld/Rasen	> 20 Jahre	05.04.2011	13°03'	52°23'	81 m	Sand
Puch-Fürstenfeldbruck	LfL Bayern	Grünland/Wiese	> 20 Jahre	23.05.2013	11°13'	48°11'	550 m	stark toniger Schluff
Schleswig	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	04.04.2011	09°32'	54°31'	47 m	lehmgiger Sand
Sophienhof	TLL	Grünland/Wiese	> 30 Jahre	21.06.2012	10°47'	51°38'	584 m	schw. toniger Lehm
Stötten	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	23.07.2013	09°51'	48°40'	734 m	schw. schluffiger Ton
Trier/Petrisberg	DWD	Messfeld/Rasen	> 10 Jahre	05.06.2013	06°39'	49°44'	265 m	sandiger Lehm

* meistens keine exakte Information verfügbar; Alter geschätzt; Flächen können deutlich älter sein

** aus Datenschutzgründen werden hier für die meisten Flächen die Koordinaten der nächstgelegenen größeren Ortschaft angegeben

Tab A.1: (fortgesetzt)

DWD	Deutscher Wetterdienst
LUNG Meckl.-V.	Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg-Vorpommern
TLUG	Thüringer Landesanstalt für Umwelt und Geologie
LfL Bayern	Bayrische Landesanstalt für Landwirtschaft
LBEG Nieders.	Niedersächsisches Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie
LUWG Rheinl.-Pf.	Landesamt für Umwelt, Wasserwirtschaft und Gewerbeaufsicht Rheinland-Pfalz
TLL	Thüringer Landesanstalt für Landwirtschaft
LfULG Sachsen	Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie
HLUG	Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie
HZ Geesthacht	Helmholtz-Zentrum Geesthacht
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
MRI	Max-Rubner-Institut
LAU Sachsen-Anh.	Landesamt für Umwelt Sachsen-Anhalt

Tab. A.2: Verwendete Einwaagen für Bodenproben.

Tiefe [cm]	Einwaage [g]	Woodward Iod [mL]
0 - 5	15	0,2
5 - 10	15	0,2
10 - 20	20	0,1
20 - 30	20	0,1

Tab.A.3: Abschätzung der jährlichen luftgetragenen Depositionsraten für ^{127}I in $10^{-6} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

Station	Minimum ¹	Maximum ²	Mittel ³
Offenbach	63 ± 4	1252 ± 79	657 ± 41
Freiburg/Schauinsland	98 ± 6	1968 ± 113	1033 ± 60
Potsdam	111 ± 5	2211 ± 93	1161 ± 49
Langenhagen	68 ± 3	1363 ± 49	716 ± 26

$${}^1v_D = 0,0001 \text{ m s}^{-1} \quad {}^2v_D = 0,02 \text{ m s}^{-1} \quad {}^3v_D = 0,0105 \text{ m s}^{-1}$$

Tab.A.4: Abschätzung der jährlichen luftgetragenen Depositionsraten für ^{129}I in $10^{-12} \text{ g m}^{-2} \text{ a}^{-1}$.

Station	Minimum ¹	Maximum ²	Mittel ³
Offenbach	5,9 ± 0,1	119 ± 7	62 ± 4
Freiburg/Schauinsland	2,8 ± 0,1	56 ± 3	29 ± 1
Potsdam	7,0 ± 0,5	141 ± 9	74 ± 5
Langenhagen	9,2 ± 0,5	184 ± 11	96 ± 6

$${}^1v_D = 0,0001 \text{ m s}^{-1} \quad {}^2v_D = 0,02 \text{ m s}^{-1} \quad {}^3v_D = 0,0105 \text{ m s}^{-1}$$

Tab. A.5: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Aerosolen im Zeitraum von März 2011 bis Februar 2013.**Offenbach (DWD)**

Monat	Durchsatz [m^3]	^{127}I [$10^{-9} \text{g}/\text{m}^3$]	U_{abs}	^{129}I [$10^{-15} \text{g}/\text{m}^3$]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
Feb 11	875	3,94	0,13	0,20	0,003	4,9 E-8	1,8 E-9
Mrz 11	1875	6,84	0,19	0,22	0,004	3,2 E-8	1,1 E-9
Apr 11	1871	1,99	0,11	0,28	0,005	1,4 E-7	8,4 E-9
Mai 11	1880	1,36	0,08	0,16	0,003	1,2 E-7	7,8 E-9
Jun 11	1935	0,55	0,03	0,14	0,007	2,5 E-7	1,8 E-8
Jul 11	1846	0,88	0,05	0,14	0,006	1,5 E-7	1,1 E-8
Aug 11	1779	1,22	0,05	0,10	0,005	8,0 E-8	5,0 E-9
Sep 11	1827	0,88	0,04	0,09	0,004	1,0 E-7	6,8 E-9
Okt 11	1782	1,28	0,05	0,12	0,006	9,0 E-8	5,5 E-9
Nov 11	1867	5,57	0,35	0,05	0,002	8,9 E-9	7,2 E-10
Dez 11	1797	2,40	0,13	0,27	0,013	1,1 E-7	7,9 E-9
Jan 12	1741	1,89	0,11	0,42	0,020	2,2 E-7	1,6 E-8
Feb 12	1571	1,45	0,08	0,50	0,024	3,4 E-7	2,4 E-8
Mrz 12	1872	3,24	0,19	0,51	0,025	1,6 E-7	1,2 E-8
Apr 12	1557	1,23	0,07	0,19	0,007	1,5 E-7	1,0 E-8
Mai 12	1781	0,66	0,05	0,05	0,002	7,3 E-8	5,8 E-9
Jun 12	1713	0,65	0,03	0,03	0,001	4,1 E-8	2,5 E-9
Jul 12	1637	0,48	0,03	0,03	0,002	7,1 E-8	5,6 E-9
Aug 12	1785	0,87	0,05	0,09	0,004	1,0 E-7	7,0 E-9
Sep 12	1453	1,68	0,09	0,16	0,006	9,4 E-8	6,2 E-9
Okt 12	1725	1,22	0,07	0,09	0,003	7,1 E-8	4,9 E-9
Nov 12	1632	1,92	0,12	0,17	0,007	8,8 E-8	6,4 E-9
Dez 12	1570	2,03	0,10	0,19	0,007	9,2 E-8	5,7 E-9
Jan 13	1987	2,03	0,06	0,18	0,003	8,5 E-8	2,7 E-9
Feb 13	2202	1,59	0,04	0,17	0,003	1,1 E-7	3,4 E-9

Tab. A.5: (fortgesetzt)

Freiburg / Schauinsland (BfS)

Monat	Durchsatz [m ³]	¹²⁷ I [10 ⁻⁹ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I [10 ⁻¹⁵ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I	U _{abs}
Feb 11	1299	3,07	0,07	0,05	0,002	1,7 E-8	7,6 E-10
Mrz 11	2203	0,49	0,01	0,07	0,001	1,5 E-7	4,5 E-9
Apr 11	1768	1,40	0,06	0,19	0,003	1,3 E-7	6,2 E-9
Mai 11	1770	2,15	0,11	0,15	0,003	6,6 E-8	3,6 E-9
Jun 11	2214	1,95	0,13	0,03	0,001	1,4 E-8	8,9 E-10
Jul 11	1768	6,17	0,16	0,18	0,007	4,6 E-8	4,3 E-9
Aug 11	1774	2,91	0,05	0,10	0,004	3,4 E-8	1,7 E-9
Sep 11	2212	3,15	0,06	0,06	0,002	1,7 E-8	8,0 E-10
Okt 11	1738	1,14	0,04	0,04	0,001	3,1 E-8	1,4 E-9
Nov 11	1772	1,46	0,11	0,01	0,001	8,0 E-9	8,4 E-10
Dez 11	2209	1,25	0,10	0,04	0,002	3,5 E-8	3,1 E-9
Jan 12	1767	2,24	0,17	0,06	0,002	2,7 E-8	2,3 E-9
Feb 12	1767	1,52	0,08	0,09	0,003	5,7 E-8	3,7 E-9
Mrz 12	2212	1,47	0,09	0,08	0,003	5,1 E-8	3,6 E-9
Apr 12	1769	1,18	0,03	0,04	0,001	3,3 E-8	1,0 E-9
Mai 12	2219	3,45	0,23	0,06	0,003	1,7 E-8	1,4 E-9
Jun 12	1778	4,03	0,23	0,09	0,003	2,1 E-8	1,5 E-9
Jul 12	1776	2,16	0,18	0,02	0,002	1,0 E-8	1,1 E-9
Aug 12	2222	3,45	0,19	0,04	0,002	1,2 E-8	8,3 E-10
Sep 12	1781	3,33	0,17	0,11	0,004	3,2 E-8	2,1 E-9
Okt 12	1772	9,49	0,62	0,09	0,004	9,3 E-9	7,2 E-10
Nov 12	2217	3,38	0,18	0,23	0,009	6,6 E-8	4,2 E-9
Dez 12	1774	2,06	0,14	0,10	0,004	5,0 E-8	3,9 E-9
Jan 13	2215	3,33	0,09	0,10	0,002	2,9 E-8	9,3 E-10
Feb 13	1860	9,16	0,36	0,10	0,002	1,1 E-8	4,6 E-10

Tab. A.5: (fortgesetzt)

Potsdam (DWD)

Monat	Durchsatz [m ³]	¹²⁷ I [10 ⁻⁹ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I [10 ⁻¹⁵ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I	U _{abs}
Feb 11	---	---	---	---	---	---	---
Mrz 11	1964	3,71	0,07	0,27	0,010	7,0 E-8	3,1 E-9
Apr 11	2433	4,23	0,20	0,26	0,012	5,7 E-8	3,9 E-9
Mai 11	1914	3,58	0,17	0,09	0,005	3,4 E-8	2,4 E-9
Jun 11	2791	6,22	0,25	0,27	0,011	4,2 E-8	2,2 E-9
Jul 11	2124	4,14	0,20	0,19	0,009	4,5 E-8	2,8 E-9
Aug 11	2015	1,63	0,09	0,12	0,005	7,1 E-8	4,6 E-9
Sep 11	2404	4,53	0,19	0,32	0,014	6,9 E-8	3,6 E-9
Okt 11	1847	5,90	0,29	0,34	0,015	5,7 E-8	3,4 E-9
Nov 11	1796	7,72	0,28	0,22	0,010	2,7 E-8	1,5 E-9
Dez 11	2191	4,99	0,22	0,77	0,032	1,5 E-7	8,2 E-9
Jan 12	1756	2,63	0,10	0,41	0,017	1,5 E-7	7,7 E-9
Feb 12	1715	2,55	0,12	0,45	0,019	1,8 E-7	9,7 E-9
Mrz 12	2098	7,38	0,21	0,46	0,008	6,1 E-8	2,0 E-9
Apr 12	1645	2,02	0,09	0,11	0,005	5,5 E-8	3,1 E-9
Mai 12	2021	2,40	0,09	0,08	0,003	3,3 E-8	1,7 E-9
Jun 12	1772	2,78	0,12	0,06	0,002	2,0 E-8	1,2 E-9
Jul 12	1729	0,68	0,05	0,02	0,001	3,5 E-8	3,1 E-9
Aug 12	2084	2,38	0,14	0,08	0,004	3,4 E-8	2,5 E-9
Sep 12	1618	2,12	0,11	0,15	0,006	6,7 E-8	4,5 E-9
Okt 12	1597	3,08	0,17	0,19	0,008	6,2 E-8	4,4 E-9
Nov 12	1956	2,82	0,16	0,35	0,014	1,2 E-7	8,4 E-9
Dez 12	1528	2,52	0,13	0,13	0,006	5,1 E-8	3,4 E-9
Jan 13	1506	4,02	0,10	0,09	0,002	2,1 E-8	7,3 E-10
Feb 13	1944	---	---	0,21	0,004	---	---

Tab. A.5: (fortgesetzt)

Langenhagen (DWD)

Monat	Durchsatz [m ³]	¹²⁷ I [10 ⁻⁹ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I [10 ⁻¹⁵ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I	U _{abs}
Feb 11	---	---	---	---	---	---	---
Mrz 11	---	---	---	---	---	---	---
Apr 11	1286	1,58	0,08	0,21	0,011	1,3 E-7	9,8 E-9
Mai 11	1275	0,93	0,06	0,14	0,008	1,4 E-7	1,2 E-8
Jun 11	1964	0,89	0,05	0,32	0,014	3,6 E-7	2,6 E-8
Jul 11	1520	1,02	0,07	0,19	0,009	1,9 E-7	1,5 E-8
Aug 11	1861	1,74	0,08	0,19	0,009	1,0 E-7	6,8 E-9
Sep 11	1952	1,97	0,07	0,17	0,008	8,7 E-8	5,2 E-9
Okt 11	1938	2,07	0,08	0,23	0,011	1,1 E-7	6,5 E-9
Nov 11	1897	4,10	0,16	0,28	0,012	6,7 E-8	3,9 E-9
Dez 11	1933	2,53	0,11	0,35	0,015	1,3 E-7	8,3 E-9
Jan 12	1943	2,68	0,10	0,89	0,038	3,3 E-7	1,9 E-8
Feb 12	1892	2,30	0,10	0,64	0,027	2,7 E-7	1,7 E-8
Mrz 12	2417	2,78	0,12	0,70	0,030	2,5 E-7	1,5 E-8
Apr 12	1868	2,86	0,13	0,28	0,012	9,6 E-8	6,0 E-9
Mai 12	1840	2,28	0,08	0,14	0,007	5,9 E-8	3,7 E-9
Jun 12	2354	1,79	0,06	0,12	0,006	6,4 E-8	3,9 E-9
Jul 12	---	---	---	---	---	---	---
Aug 12	2418	4,62	0,19	0,14	0,007	3,1 E-8	2,0 E-9
Sep 12	1876	1,46	0,06	0,14	0,007	9,4 E-8	6,3 E-9
Okt 12	1885	1,62	0,05	0,18	0,008	1,1 E-7	6,0 E-9
Nov 12	2315	1,58	0,06	0,18	0,008	1,1 E-7	6,7 E-9
Dez 12	1830	2,27	0,08	0,33	0,015	1,4 E-7	8,2 E-9
Jan 13	---	---	---	---	---	---	---
Feb 13	---	---	---	---	---	---	---

Tab. A.5: (fortgesetzt)

Braunschweig (PTB)

Monat	Durchsatz [m ³]	¹²⁷ I [10 ⁻⁹ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I [10 ⁻¹⁵ g/m ³]	U _{abs}	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I	U _{abs}
Feb 11	65405	1,04	0,04	0,35	0,013	3,3 E-7	1,6 E-8
Mrz 11	121786	1,56	0,08	0,45	0,017	2,9 E-7	1,7 E-8
Apr 11	127029	1,93	0,09	0,56	0,021	2,9 E-7	1,8 E-8
Mai 11	160330	1,12	0,06	0,32	0,012	2,8 E-7	1,8 E-8
Jun 11	97249	0,79	0,04	0,30	0,012	3,8 E-7	2,5 E-8
Jul 11	64821	0,92	0,04	0,57	0,023	6,2 E-7	3,1 E-8
Aug 11	163608	0,46	0,02	0,29	0,011	6,2 E-7	3,9 E-8
Sep 11	143588	0,40	0,02	0,23	0,009	5,7 E-7	3,1 E-8
Okt 11	142899	0,45	0,02	0,20	0,008	4,5 E-7	2,3 E-8
Nov 11	175743	0,66	0,04	0,19	0,007	2,8 E-7	1,9 E-8
Dez 11	139191	1,34	0,06	0,17	0,006	1,2 E-7	6,8 E-9
Jan 12	176906	0,50	0,02	0,35	0,013	6,8 E-7	3,7 E-8
Feb 12	136355	1,10	0,03	0,48	0,018	4,3 E-7	1,8 E-8
Mrz 12	134333	1,48	0,05	0,62	0,024	4,1 E-7	2,0 E-8
Apr 12	180109	0,99	0,05	0,54	0,027	5,3 E-7	2,8 E-8
Mai 12	140997	0,65	0,04	0,22	0,012	3,3 E-7	1,8 E-8
Jun 12	151061	0,66	0,02	0,15	0,006	2,2 E-7	1,0 E-8
Jul 12	164864	0,56	0,01	0,14	0,005	2,5 E-7	1,0 E-8
Aug 12	133385	0,46	0,01	0,17	0,006	3,6 E-7	1,7 E-8
Sep 12	171266	0,79	0,01	0,17	0,006	2,1 E-7	8,4 E-9
Okt 12	146777	0,78	0,02	0,27	0,010	3,4 E-7	1,4 E-8
Nov 12	140993	1,00	0,02	0,18	0,007	1,8 E-7	7,4 E-9
Dez 12	177787	1,08	0,02	0,27	0,010	2,5 E-7	1,0 E-8
Jan 13	108122	1,26	0,03	0,27	0,010	2,1 E-7	9,0 E-9
Feb 13	136595	0,66	0,02	0,21	0,005	3,1 E-7	1,0 E-8

Tab. A.6: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Niederschlagsproben im Zeitraum von März 2011 bis Februar 2013.

Norderney

Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m^2]	U_{abs}
Mrz 11	8	309	575	27,9	1,0	4,70	0,17	1,7 E-07	8,5 E-09	234,6	8,4	39,5	1,5
Apr 11	8	284	625	19,0	1,4	6,16	0,23	3,2 E-07	2,7 E-08	153,6	11,5	49,9	1,8
Mai 11	45	1696	425	3,1	0,2	2,01	0,07	6,4 E-07	5,5 E-08	140,4	10,9	90,8	3,3
Jun 11	112	3904	300	2,4	0,2	1,42	0,05	5,9 E-07	6,3 E-08	264,6	26,5	159,1	5,9
Jul 11	88	2611	375	4,0	0,2	2,30	0,08	5,6 E-07	3,4 E-08	353,9	17,2	201,0	7,4
Aug 11	128	4706	150	2,1	0,1	1,13	0,04	5,4 E-07	3,2 E-08	262,5	12,4	144,6	5,3
Sep 11	89	3285	350	4,0	0,2	1,06	0,04	2,6 E-07	1,7 E-08	353,3	18,4	94,7	3,5
Okt 11	77	2791	450	3,2	0,2	1,38	0,05	4,2 E-07	3,3 E-08	248,2	17,2	106,0	3,9
Nov 11	5	160	625	16,7	0,7	6,02	0,22	3,5 E-07	2,0 E-08	75,3	3,1	27,1	1,0
Dez 11	158	5490	100	2,5	0,1	2,50	0,09	9,9 E-07	5,8 E-08	394,3	17,8	395,2	14,6
Jan 12	89	3125	250	2,6	0,1	1,77	0,07	6,6 E-07	3,7 E-08	234,8	10,0	157,8	5,9
Feb 12	17	629	350	6,6	0,3	5,01	0,19	7,5 E-07	4,1 E-08	112,8	4,5	85,6	3,2
Mrz 12	13	417	500	11,9	0,4	5,13	0,19	4,2 E-07	2,1 E-08	149,0	4,6	64,2	2,4
Apr 12	49	1757	250	5,2	0,2	1,98	0,07	3,8 E-07	2,1 E-08	251,0	10,0	96,3	3,6
Mai 12	47	1757	500	3,9	0,2	1,11	0,04	2,8 E-07	1,6 E-08	182,0	7,9	51,6	1,9
Jun 12	100	3529	250	3,7	0,1	0,84	0,03	2,2 E-07	1,1 E-08	370,7	12,4	84,5	3,2
Jul 12	128	4553	350	3,4	0,2	1,44	0,05	4,2 E-07	2,6 E-08	431,4	20,7	184,9	6,9
Aug 12	85	3016	375	5,1	0,1	3,78	0,14	7,2 E-07	3,0 E-08	434,3	8,7	319,5	11,8
Sep 12	98	3737	275	2,5	0,1	1,43	0,05	5,7 E-07	2,9 E-08	242,0	8,3	139,3	5,2
Okt 12	104	3933	75	2,0	0,0	1,08	0,04	5,2 E-07	2,3 E-08	212,6	5,1	112,8	4,2
Nov 12	50	1962	225	2,4	0,1	1,82	0,07	7,3 E-07	3,6 E-08	122,6	3,8	91,2	3,4
Dez 12	108	3859	150	1,9	0,0	1,66	0,06	8,5 E-07	3,9 E-08	206,2	5,4	178,5	6,6
Jan 13	44	1533	325	2,9	0,1	1,95	0,01	6,7 E-07	1,6 E-08	126,6	3,0	86,0	0,5
Feb 13	21	727	375	5,3	0,1	3,25	0,09	6,1 E-07	1,9 E-08	108,9	1,6	67,3	1,9

Schleswig

Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m^2]	U_{abs}
Mrz 11	24	942	725	2,4	0,1	0,96	0,04	3,9 E-07	2,7 E-08	56,5	3,2	22,6	0,8
Apr 11	10	453	600	4,2	0,3	1,41	0,05	3,3 E-07	2,9 E-08	41,4	3,3	13,9	0,5
Mai 11	72	2797	400	2,7	0,1	1,48	0,05	5,5 E-07	3,3 E-08	192,4	9,4	106,7	3,9
Jun 11	91	3437	400	2,4	0,1	1,22	0,05	4,9 E-07	3,4 E-08	223,4	13,1	111,3	4,1
Jul 11	137	5617	400	2,5	0,1	0,53	0,02	2,1 E-07	1,4 E-08	343,3	20,1	72,5	2,7
Aug 11	248	9428	225	1,5	0,1	0,68	0,03	4,4 E-07	4,2 E-08	374,2	32,8	167,9	6,2
Sep 11	128	5094	250	2,7	0,1	1,02	0,04	3,8 E-07	2,2 E-08	341,4	15,0	131,0	4,8
Okt 11	101	4268	500	2,6	0,2	1,29	0,05	4,9 E-07	4,1 E-08	264,7	19,8	130,9	5,0
Nov 11	19	716	600	4,7	0,3	3,08	0,11	6,5 E-07	5,1 E-08	88,5	6,2	58,4	2,2
Dez 11	135	5169	50	2,2	0,1	1,27	0,05	5,6 E-07	3,4 E-08	302,3	14,7	172,2	6,4
Jan 12	104	3817	225	2,1	0,1	1,29	0,05	6,0 E-07	3,0 E-08	220,6	7,6	134,2	5,0
Feb 12	41	1591	325	4,2	0,1	2,29	0,08	5,3 E-07	2,5 E-08	175,0	5,1	94,3	3,5
Mrz 12	13	564	525	6,1	0,1	3,59	0,13	5,8 E-07	2,5 E-08	77,7	1,7	45,9	1,7
Apr 12	48	2026	375	2,9	0,1	0,90	0,03	3,0 E-07	1,5 E-08	139,1	4,3	42,8	1,6
Mai 12	54	2140	450	2,3	0,1	0,46	0,02	2,0 E-07	8,8 E-09	124,0	3,0	24,8	0,9
Jun 12	93	3593	225	3,3	0,2	0,77	0,03	2,3 E-07	1,4 E-08	308,6	14,4	72,1	2,7
Jul 12	169	5926	325	3,6	0,1	0,63	0,02	1,7 E-07	9,1 E-09	608,6	22,6	107,1	4,0
Aug 12	60	2286	375	6,0	0,2	1,01	0,04	1,6 E-07	7,4 E-09	360,7	9,2	60,3	2,2
Sep 12	87	3572	250	4,4	0,2	1,40	0,05	3,2 E-07	1,7 E-08	381,7	14,1	122,2	4,6
Okt 12	89	3587	150	2,4	0,1	1,00	0,04	4,1 E-07	2,0 E-08	215,4	7,2	89,1	3,3
Nov 12	65	2634	175	2,8	0,1	1,35	0,05	4,8 E-07	2,4 E-08	183,0	6,3	88,3	3,3
Dez 12	112	3894	175	2,0	0,1	0,75	0,03	3,7 E-07	2,1 E-08	223,6	9,3	84,1	3,2
Jan 13	86	2740	275	2,3	0,1	1,70	0,06	7,4 E-07	3,4 E-08	195,1	5,1	146,4	5,4
Feb 13	27	988	450	4,0	0,1	2,33	0,09	5,7 E-07	2,5 E-08	108,8	2,5	63,4	2,4

Tab. A.6: (fortgesetzt)

Langenhagen

Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m 2]	U_{abs}
Mrz 11	9	555	500	4,8	0,1	2,06	0,08	4,2 E-07	1,9 E-08	45,6	1,2	19,3	0,7
Apr 11	46	1877	550	3,1	0,2	0,51	0,02	1,6 E-07	1,1 E-08	141,6	8,2	23,5	0,9
Mai 11	23	1043	500	4,7	0,2	0,83	0,03	1,7 E-07	9,1 E-09	109,8	4,1	19,4	0,7
Jun 11	96	3051	200	2,3	0,1	0,45	0,02	2,0 E-07	1,4 E-08	215,2	13,0	42,8	1,6
Jul 11	54	2182	325	1,8	0,2	0,38	0,01	2,1 E-07	2,1 E-08	95,4	8,5	20,7	0,8
Aug 11	77	3032	150	1,5	0,1	0,19	0,01	1,3 E-07	1,1 E-08	114,3	8,3	14,9	0,6
Sep 11	33	1453	400	2,8	0,2	0,18	0,01	6,5 E-08	6,4 E-09	90,0	8,1	6,0	0,2
Okt 11	62	2661	275	1,8	0,1	0,42	0,02	2,2 E-07	1,9 E-08	113,9	8,7	25,9	1,0
Nov 11	2	127	625	14,6	0,9	1,19	0,05	8,0 E-08	5,8 E-09	30,7	1,9	2,5	0,1
Dez 11	97	3672	75	2,8	0,2	0,57	0,02	2,0 E-07	1,6 E-08	273,5	19,9	55,2	2,0
Jan 12	103	4192	175	1,5	0,1	0,59	0,02	3,8 E-07	3,0 E-08	155,1	10,8	60,2	2,2
Feb 12	14	557	375	2,9	0,1	2,56	0,07	8,6 E-07	3,9 E-08	39,6	1,4	34,8	0,9
Mrz 12	14	609	575	2,6	0,1	0,83	0,03	3,1 E-07	1,6 E-08	37,3	1,3	11,9	0,4
Apr 12	22	946	400	4,5	0,2	0,87	0,03	1,9 E-07	1,0 E-08	100,7	3,8	19,4	0,7
Mai 12	50	2050	325	2,9	0,2	0,58	0,02	2,0 E-07	1,3 E-08	143,5	7,7	28,9	1,1
Jun 12	70	2717	325	1,5	0,1	0,19	0,01	1,2 E-07	9,9 E-09	105,5	7,3	13,4	0,5
Jul 12	90	3410	325	2,5	0,1	0,32	0,01	1,3 E-07	8,1 E-09	229,2	11,9	29,2	1,1
Aug 12	46	1763	350	5,5	0,2	0,35	0,01	6,3 E-08	3,3 E-09	252,3	9,2	16,2	0,6
Sep 12	34	1313	525	2,0	0,1	0,28	0,01	1,3 E-07	7,4 E-09	69,7	2,9	9,4	0,3
Okt 12	78	3046	450	1,0	0,1	0,14	0,01	1,4 E-07	1,0 E-08	81,0	5,3	11,3	0,4
Nov 12	30	1259	450	1,4	0,1	0,33	0,01	2,3 E-07	1,5 E-08	43,3	2,3	10,0	0,4
Dez 12	75	2999	325	1,2	0,1	0,43	0,02	3,6 E-07	2,2 E-08	88,8	4,3	32,4	1,2
Jan 13	53	2139	225	2,9	0,1	0,85	0,03	2,9 E-07	1,3 E-08	155,0	3,7	45,2	1,7
Feb 13	34	1373	150	9,1	0,2	0,69	0,03	7,5 E-08	3,3 E-09	307,3	7,2	23,5	0,9

Essen

Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m 2]	U_{abs}
Mrz 11	19	501	575	8,4	0,5	2,04	0,08	2,4 E-07	1,7 E-08	157,0	9,2	37,9	1,4
Apr 11	27	1048	500	4,0	0,2	0,49	0,02	1,2 E-07	7,2 E-09	109,0	5,1	13,4	0,5
Mai 11	23	915	575	7,1	0,2	1,34	0,05	1,9 E-07	9,3 E-09	165,6	5,5	31,4	1,2
Jun 11	84	3224	250	3,5	0,2	1,01	0,04	2,9 E-07	1,9 E-08	292,3	15,7	85,2	3,1
Jul 11	116	4526	300	3,4	0,2	0,94	0,03	2,8 E-07	2,0 E-08	391,1	24,4	109,4	4,1
Aug 11	147	4748	325	1,8	0,1	0,23	0,01	1,3 E-07	1,1 E-08	265,1	19,7	34,4	1,3
Sep 11	57	2139	525	8,1	0,5	0,31	0,01	3,7 E-08	2,6 E-09	458,7	27,4	17,4	0,7
Okt 11	79	2954	500	4,3	0,1	0,52	0,02	1,2 E-07	5,0 E-09	338,4	6,7	40,9	1,5
Nov 11	6	233	600	11,2	0,5	1,33	0,05	1,2 E-07	6,4 E-09	64,8	2,6	7,7	0,3
Dez 11	141	5284	75	2,5	0,1	0,87	0,03	3,4 E-07	2,2 E-08	358,4	19,3	122,3	4,5
Jan 12	128	4463	275	1,8	0,1	0,97	0,03	5,2 E-07	2,6 E-08	236,8	9,9	124,9	3,3
Feb 12	27	989	325	9,7	0,3	2,71	0,10	2,8 E-07	1,3 E-08	264,9	8,5	74,1	2,7
Mrz 12	21	766	550	11,1	0,4	1,60	0,06	1,4 E-07	7,2 E-09	232,9	8,1	33,7	1,2
Apr 12	69	2537	225	5,1	0,2	0,60	0,02	1,2 E-07	5,9 E-09	347,8	12,1	41,4	1,5
Mai 12	41	1496	425	3,9	0,2	0,78	0,03	2,0 E-07	1,3 E-08	160,3	8,8	32,2	1,2
Jun 12	93	3605	225	3,1	0,1	0,28	0,01	8,8 E-08	4,8 E-09	288,9	11,2	26,0	1,0
Jul 12	119	4489	275	3,2	0,1	0,39	0,01	1,2 E-07	6,3 E-09	387,7	14,7	46,8	1,8
Aug 12	33	1307	475	4,0	0,2	0,50	0,02	1,2 E-07	7,1 E-09	133,1	5,9	16,6	0,6
Sep 12	44	1739	425	4,7	0,2	0,55	0,02	1,1 E-07	7,4 E-09	205,5	10,9	23,9	0,9
Okt 12	87	3251	425	1,4	0,0	0,15	0,01	1,0 E-07	5,4 E-09	124,7	4,1	13,2	0,5
Nov 12	40	1585	350	3,3	0,1	0,39	0,01	1,2 E-07	5,8 E-09	132,0	4,3	15,7	0,6
Dez 12	131	4643	50	2,5	0,1	0,75	0,03	3,0 E-07	1,3 E-08	319,8	7,0	97,5	3,6
Jan 13	128	2149	300	2,9	0,1	1,07	0,04	3,6 E-07	1,9 E-08	374,8	13,2	137,8	5,1
Feb 13	57	2042	300	2,8	0,1	1,01	0,02	3,5 E-07	1,1 E-08	161,9	3,9	57,6	1,2

Tab. A.6: (fortgesetzt)

Potsdam													
Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m 2]	U_{abs}
Mrz 11	17	865	575	3,1	0,1	0,19	0,01	5,9 E-08	3,0 E-09	53,5	1,7	3,2	0,1
Apr 11	38	1890	525	3,6	0,2	0,29	0,01	8,1 E-08	5,7 E-09	136,3	8,1	11,2	0,4
Mai 11	18	865	525	4,2	0,2	0,37	0,01	8,7 E-08	5,9 E-09	73,3	4,1	6,5	0,2
Jun 11	48	2395	325	2,2	0,1	0,30	0,01	1,3 E-07	9,6 E-09	103,5	6,3	14,0	0,5
Jul 11	193	9645	375	3,2	0,1	0,16	0,01	5,1 E-08	2,9 E-09	613,5	25,8	31,7	1,2
Aug 11	68	3375	325	1,6	0,1	0,10	0,00	6,0 E-08	5,7 E-09	106,6	9,2	6,5	0,3
Sep 11	59	2965	500	1,8	0,1	0,18	0,01	9,5 E-08	7,3 E-09	108,9	7,2	10,6	0,4
Okt 11	39	1960	550	1,9	0,1	0,22	0,01	1,1 E-07	6,6 E-09	76,3	3,4	8,7	0,3
Nov 11	2	90	700	25,8	1,8	0,75	0,03	2,9 E-08	2,3 E-09	46,4	3,2	1,3	0,1
Dez 11	72	3620	125	2,7	0,2	0,28	0,01	1,0 E-07	1,0 E-08	193,1	17,3	20,4	0,8
Jan 12	57	2865	300	2,5	0,1	0,61	0,02	2,4 E-07	1,6 E-08	145,6	8,4	34,8	1,3
Feb 12	33	1660	300	2,9	0,1	0,78	0,03	2,7 E-07	1,3 E-08	96,5	2,9	26,0	1,0
Mrz 12	9	430	500	6,5	0,2	1,30	0,05	2,0 E-07	9,2 E-09	55,9	1,6	11,2	0,4
Apr 12	18	885	500	2,7	0,1	0,40	0,02	1,5 E-07	8,3 E-09	48,2	2,1	7,1	0,3
Mai 12	42	2075	550	2,5	0,1	0,20	0,01	8,1 E-08	5,2 E-09	102,2	5,4	8,4	0,3
Jun 12	98	4895	325	2,8	0,1	0,13	0,01	4,5 E-08	2,9 E-09	272,9	13,4	12,5	0,5
Jul 12	148	7395	275	2,4	0,1	0,12	0,00	4,8 E-08	3,5 E-09	354,7	21,0	17,5	0,7
Aug 12	37	1845	450	3,2	0,2	0,31	0,01	9,6 E-08	6,1 E-09	117,4	6,0	11,5	0,4
Sep 12	35	1725	400	3,0	0,1	0,30	0,01	1,0 E-07	5,3 E-09	102,4	3,8	10,4	0,4
Okt 12	32	1610	425	2,2	0,1	0,24	0,01	1,0 E-07	5,8 E-09	72,0	3,0	7,6	0,3
Nov 12	49	2455	300	1,5	0,1	0,15	0,01	9,6 E-08	5,7 E-09	73,5	3,4	7,2	0,3
Dez 12	49	2440	275	1,8	0,1	0,43	0,01	2,3 E-07	1,1 E-08	89,6	3,8	20,9	0,4
Jan 13	75	3740	275	2,1	0,0	0,62	0,02	2,9 E-07	1,3 E-08	156,0	3,7	46,6	1,7
Feb 13	40	2005	325	1,2	0,0	0,12	0,00	9,6 E-08	4,7 E-09	50,1	1,4	4,9	0,2

Görlitz													
Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m 2]	U_{abs}
Mrz 11	28	1559	575	1,9	0,1	0,19	0,01	9,9 E-08	8,0 E-09	52,6	3,8	5,3	0,2
Apr 11	28	1088	575	2,2	0,2	0,24	0,01	1,0 E-07	8,2 E-09	63,0	4,4	6,6	0,3
Mai 11	40	1499	475	1,7	0,1	0,22	0,01	1,3 E-07	9,1 E-09	67,2	4,0	8,7	0,3
Jun 11	42	1613	325	1,6	0,1	0,23	0,01	1,4 E-07	1,2 E-08	66,9	4,9	9,8	0,4
Jul 11	192	7307	325	2,0	0,1	0,10	0,00	5,1 E-08	3,4 E-09	388,0	20,5	19,9	0,8
Aug 11	76	2756	450	1,2	0,1	0,05	0,00	4,3 E-08	3,7 E-09	90,7	6,6	4,0	0,2
Sep 11	62	2306	550	1,0	0,1	0,07	0,00	6,6 E-08	6,1 E-09	64,5	5,2	4,4	0,2
Okt 11	25	1046	400	1,7	0,1	0,35	0,01	2,0 E-07	1,3 E-08	43,7	2,4	8,7	0,3
Nov 11	0,1	25	725	12,2	0,9	0,71	0,04	5,8 E-08	5,5 E-09	1,2	0,1	0,1	0,0
Dez 11	60	2375	100	1,4	0,1	0,36	0,01	2,6 E-07	2,6 E-08	81,1	7,4	21,4	0,8
Jan 12	91	3733	250	1,4	0,1	0,41	0,02	2,9 E-07	1,6 E-08	127,1	5,5	37,0	1,4
Feb 12	41	1466	225	2,1	0,1	0,76	0,03	3,6 E-07	1,8 E-08	85,2	2,8	31,3	1,2
Mrz 12	19	655	550	4,6	0,1	1,00	0,04	2,2 E-07	1,0 E-08	86,1	2,4	18,8	0,7
Apr 12	58	2127	450	1,2	0,1	0,12	0,01	9,9 E-08	6,0 E-09	72,4	3,2	7,3	0,3
Mai 12	62	2289	550	1,6	0,1	0,13	0,01	7,8 E-08	4,3 E-09	100,6	3,6	7,9	0,3
Jun 12	105	3930	200	1,9	0,1	0,11	0,00	5,5 E-08	4,1 E-09	201,0	12,1	11,3	0,5
Jul 12	143	5166	275	2,0	0,1	0,06	0,00	2,9 E-08	2,3 E-09	280,4	17,7	8,2	0,4
Aug 12	117	4246	375	2,2	0,1	0,09	0,00	3,9 E-08	2,8 E-09	254,7	14,0	10,0	0,5
Sep 12	37	1464	450	1,5	0,1	0,27	0,01	1,7 E-07	1,0 E-08	57,7	2,5	10,2	0,4
Okt 12	29	1123	425	2,0	0,1	0,16	0,01	7,9 E-08	4,5 E-09	56,9	2,3	4,5	0,2
Nov 12	60	2367	450	1,4	0,1	0,09	0,00	6,6 E-08	4,3 E-09	84,7	4,0	5,7	0,2
Dez 12	40	1504	300	1,3	0,1	0,18	0,01	1,4 E-07	8,7 E-09	51,9	2,6	7,2	0,3
Jan 13	82	2932	225	0,9	0,0	0,21	0,01	2,2 E-07	1,2 E-08	74,7	2,7	16,9	0,6
Feb 13	37	1373	225	1,3	0,0	0,27	0,01	2,0 E-07	8,9 E-09	49,6	1,2	10,0	0,4

Tab. A.6: (fortgesetzt)

Offenbach													
Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m ²]	U_{abs}
Mrz 11	13	472	490	4,9	0,2	0,21	0,01	4,2 E-08	2,3 E-09	61,8	2,4	2,6	0,1
Apr 11	22	783	287	2,2	0,1	0,27	0,01	1,2 E-07	6,6 E-09	49,0	2,0	5,9	0,2
Mai 11	29	1113	425	1,8	0,1	0,40	0,01	2,2 E-07	1,8 E-08	50,8	3,5	11,4	0,4
Jun 11	70	2792	175	1,5	0,1	0,11	0,00	7,1 E-08	5,4 E-09	103,8	6,7	7,5	0,3
Jul 11	90	3460	200	1,3	0,1	0,57	0,02	4,2 E-07	4,4 E-08	118,3	11,5	50,8	1,9
Aug 11	93	3478	300	1,8	0,1	0,08	0,00	4,6 E-08	3,5 E-09	167,8	10,5	7,8	0,3
Sep 11	33	1326	350	2,4	0,2	0,06	0,00	2,5 E-08	2,0 E-09	79,8	5,2	2,0	0,1
Okt 11	27	1250	375	2,4	0,2	0,34	0,01	1,4 E-07	1,1 E-08	66,4	4,5	9,2	0,3
Nov 11	1	22	496	32,7	2,3	1,17	0,05	3,5 E-08	2,9 E-09	16,4	1,1	0,6	0,0
Dez 11	140	5075	100	0,7	0,1	0,22	0,01	3,1 E-07	2,7 E-08	96,8	7,6	30,2	1,1
Jan 12	54	2133	325	1,1	0,1	0,57	0,02	5,1 E-07	4,1 E-08	59,1	4,3	30,6	1,1
Feb 12	4	218	425	5,9	0,2	0,48	0,02	8,0 E-08	4,1 E-09	21,7	0,7	1,8	0,1
Mrz 12	12	492	400	2,6	0,1	0,22	0,01	8,4 E-08	5,3 E-09	31,8	1,6	2,7	0,1
Apr 12	34	2589	125	1,5	0,1	0,23	0,01	1,5 E-07	9,6 E-09	51,6	2,7	7,8	0,3
Mai 12	57	2235	325	1,7	0,1	0,15	0,01	9,1 E-08	6,1 E-09	93,3	5,1	8,7	0,3
Jun 12	128	4765	175	1,8	0,1	0,06	0,00	3,2 E-08	2,5 E-09	234,6	14,2	7,5	0,4
Jul 12	105	3481	275	2,9	0,1	0,13	0,01	4,5 E-08	2,8 E-09	306,0	15,0	13,8	0,6
Aug 12	38	1577	325	3,2	0,1	0,08	0,00	2,3 E-08	1,4 E-09	123,7	4,3	2,9	0,2
Sep 12	45	1778	325	3,4	0,1	0,21	0,01	6,0 E-08	3,3 E-09	150,7	5,8	9,2	0,4
Okt 12	64	2324	350	1,3	0,1	0,11	0,00	8,5 E-08	5,8 E-09	85,1	4,6	7,3	0,3
Nov 12	53	2005	350	1,0	0,1	0,05	0,00	4,9 E-08	3,4 E-09	54,6	3,2	2,7	0,1
Dez 12	78	3121	100	1,1	0,1	0,21	0,01	1,9 E-07	1,1 E-08	85,2	4,1	16,1	0,6
Jan 13	41	1771	200	0,9	0,0	0,09	0,00	9,4 E-08	4,9 E-09	36,6	1,3	3,5	0,1
Feb 13	39	1712	250	1,4	0,0	0,23	0,01	1,6 E-07	7,1 E-09	56,1	1,5	8,9	0,3

Nürnberg													
Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/m ²]	U_{abs}
Mrz 11	10	700	420	2,9	0,1	0,19	0,01	6,6 E-08	3,6 E-09	29,9	1,2	2,0	0,1
Apr 11	48	1750	540	2,0	0,1	0,08	0,00	3,8 E-08	3,0 E-09	95,8	6,5	3,7	0,1
Mai 11	69	2360	540	2,2	0,1	0,12	0,00	5,6 E-08	4,2 E-09	149,3	9,6	8,6	0,3
Jun 11	56	2174	349	1,9	0,1	0,06	0,00	3,2 E-08	2,5 E-09	105,9	6,8	3,5	0,1
Jul 11	142	4516	255	1,1	0,1	0,12	0,00	1,1 E-07	1,1 E-08	160,8	15,3	17,3	0,7
Aug 11	58	2258	214	2,4	0,2	0,06	0,00	2,4 E-08	1,9 E-09	137,5	8,8	3,4	0,2
Sep 11	47	1675	494	2,2	0,1	0,03	0,00	1,6 E-08	1,3 E-09	103,3	6,0	1,6	0,1
Okt 11	41	1636	536	2,1	0,1	0,19	0,01	8,9 E-08	7,1 E-09	85,1	5,9	7,7	0,3
Nov 11	1	33	611	15,9	1,4	0,31	0,02	1,9 E-08	2,3 E-09	12,7	1,1	0,3	0,0
Dez 11	86	3201	179	0,8	0,1	0,19	0,01	2,3 E-07	2,1 E-08	71,0	5,9	16,4	0,6
Jan 12	73	2765	265	1,0	0,0	0,21	0,01	2,1 E-07	1,3 E-08	71,8	3,3	15,4	0,6
Feb 12	14	505	328	23,3	0,9	0,46	0,02	2,0 E-08	1,1 E-09	315,0	12,7	6,3	0,2
Mrz 12	9	400	416	8,5	0,6	0,44	0,02	5,0 E-08	3,9 E-09	79,4	5,4	4,1	0,2
Apr 12	17	687	311	2,0	0,1	0,25	0,01	1,3 E-07	7,9 E-09	33,3	1,7	4,2	0,2
Mai 12	62	2340	374	1,6	0,1	0,24	0,01	1,4 E-07	1,1 E-08	101,8	6,7	14,6	0,5
Jun 12	46	1667	216	1,9	0,1	0,09	0,00	4,5 E-08	2,3 E-09	88,6	2,4	4,0	0,2
Jul 12	95	1946	187	2,0	0,1	0,08	0,00	4,0 E-08	2,0 E-09	194,1	5,1	7,9	0,3
Aug 12	47	1711	395	1,7	0,1	0,06	0,00	3,3 E-08	2,3 E-09	77,5	3,6	2,6	0,1
Sep 12	55	1932	477	1,8	0,1	0,09	0,00	4,7 E-08	3,1 E-09	100,7	4,7	4,8	0,2
Okt 12	36	1486	377	1,2	0,0	0,08	0,00	6,8 E-08	4,1 E-09	41,8	1,6	2,9	0,1
Nov 12	71	2817	343	0,9	0,0	0,07	0,00	7,2 E-08	5,1 E-09	63,5	3,3	4,7	0,2
Dez 12	86	3053	130	1,2	0,1	0,19	0,01	1,6 E-07	9,6 E-09	101,6	4,8	16,5	0,6
Jan 13	41	1637	249	8,8	0,2	0,23	0,00	2,6 E-08	8,0 E-10	357,4	8,5	9,5	0,2
Feb 13	41	1749	225	0,8	0,0	0,12	0,00	1,6 E-07	6,2 E-09	32,5	1,1	5,2	0,1

Tab. A.6: (fortgesetzt)

Lahr													
Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/ m^2]	U_{abs}
Mrz 11	26	1005	1000	2,2	0,1	0,35	0,02	1,6 E-07	9,8 E-09	57,7	2,6	9,1	0,4
Apr 11	22	841	1200	3,3	0,1	0,29	0,01	8,6 E-08	5,0 E-09	71,8	3,1	6,3	0,2
Mai 11	40	1528	900	4,0	0,3	0,41	0,02	1,0 E-07	7,9 E-09	158,5	10,8	16,3	0,6
Jun 11	150	5120	650	1,4	0,1	0,10	0,00	7,3 E-08	6,4 E-09	205,5	15,8	15,2	0,6
Jul 11	80	3148	800	2,2	0,1	0,24	0,01	1,1 E-07	7,3 E-09	173,5	9,9	18,8	0,7
Aug 11	99	3394	850	2,7	0,2	0,16	0,01	5,7 E-08	4,6 E-09	265,5	18,4	15,4	0,6
Sep 11	46	1854	950	1,4	0,1	0,04	0,00	2,9 E-08	3,0 E-09	63,6	5,6	1,8	0,1
Okt 11	49	1802	1050	1,3	0,1	0,22	0,01	1,7 E-07	1,6 E-08	63,8	5,7	10,8	0,4
Nov 11	1	96	1050	11,3	0,5	0,29	0,02	2,5 E-08	1,9 E-09	15,9	0,7	0,4	0,0
Dez 11	96	3735	350	1,0	0,0	0,20	0,01	2,0 E-07	1,1 E-08	96,3	4,2	19,2	0,7
Jan 12	66	2559	550	1,4	0,0	0,41	0,02	2,8 E-07	1,4 E-08	95,5	3,2	26,9	1,0
Feb 12	11	365	1150	3,7	0,2	0,35	0,01	9,3 E-08	5,7 E-09	41,8	2,0	4,0	0,2
Mrz 12	19	728	1150	1,8	0,1	0,46	0,02	2,5 E-07	1,8 E-08	33,3	2,0	8,6	0,3
Apr 12	65	2503	650	1,9	0,1	0,22	0,01	1,1 E-07	9,0 E-09	123,1	8,6	14,2	0,5
Mai 12	73	2600	650	1,7	0,1	0,16	0,01	9,5 E-08	6,2 E-09	121,6	6,2	11,7	0,5
Jun 12	150	5315	500	1,3	0,0	0,08	0,00	6,5 E-08	3,7 E-09	187,8	6,2	12,5	0,6
Jul 12	110	3938	600	2,0	0,1	0,13	0,01	6,5 E-08	4,8 E-09	218,6	13,4	14,5	0,6
Aug 12	54	1924	900	3,5	0,1	0,09	0,00	2,7 E-08	1,7 E-09	187,2	7,0	5,1	0,3
Sep 12	65	2401	1000	4,2	0,1	0,18	0,01	4,1 E-08	2,1 E-09	275,8	8,3	11,5	0,5
Okt 12	101	3710	750	0,8	0,1	0,05	0,00	6,9 E-08	7,3 E-09	76,5	6,9	5,4	0,3
Nov 12	109	4158	600	1,0	0,1	0,08	0,00	8,7 E-08	7,1 E-09	104,7	7,3	9,2	0,4
Dez 12	71	2794	350	0,9	0,1	0,18	0,01	2,0 E-07	1,7 E-08	61,1	4,4	12,7	0,5
Jan 13	34	1351	600	1,1	0,0	0,20	0,01	1,8 E-07	9,1 E-09	38,1	1,3	6,8	0,3
Feb 13	66	2543	600	1,5	0,0	0,21	0,00	1,4 E-07	4,6 E-09	97,3	2,4	14,2	0,3

Oberschleißheim													
Monat	NS [mm]	Anteil Regen [mL]	Anteil Spülwasser [mL]	^{127}I [ng/g]	U_{abs}	^{129}I [fg/g]	U_{abs}	$^{127}\text{I}/^{129}\text{I}$	U_{abs}	^{127}I [$\mu\text{g}/\text{m}^2$]	U_{abs}	^{129}I [pg/ m^2]	U_{abs}
Mrz 11	62	1954	1200	2,6	0,1	0,08	0,00	2,9 E-08	1,7 E-09	162,5	6,7	4,8	0,2
Apr 11	16	615	1150	3,2	0,1	0,24	0,01	7,4 E-08	4,4 E-09	53,2	2,4	4,0	0,2
Mai 11	118	3749	950	2,5	0,1	0,10	0,00	4,0 E-08	2,8 E-09	289,6	16,4	11,8	0,5
Jun 11	110	4902	450	2,2	0,1	0,04	0,00	1,9 E-08	1,2 E-09	240,6	8,7	4,6	0,3
Jul 11	167	5817	600	3,0	0,2	0,08	0,00	2,7 E-08	1,9 E-09	508,2	27,6	14,1	0,6
Aug 11	98	3344	750	0,8	0,0	0,03	0,00	3,7 E-08	2,7 E-09	80,7	3,4	3,0	0,2
Sep 11	100	3644	800	0,8	0,0	0,04	0,00	4,8 E-08	3,3 E-09	75,7	3,2	3,7	0,2
Okt 11	40	1514	950	1,7	0,1	0,14	0,01	8,4 E-08	4,6 E-09	67,3	2,6	5,7	0,2
Nov 11	1	24	1450	60,2	2,4	0,88	0,07	1,4 E-08	1,3 E-09	48,2	1,9	0,7	0,1
Dez 11	101	3863	350	0,6	0,0	0,18	0,01	2,8 E-07	2,2 E-08	63,0	4,5	17,8	0,7
Jan 12	93	3606	550	1,4	0,1	0,19	0,01	1,3 E-07	1,0 E-08	133,3	8,7	17,9	0,7
Feb 12	21	740	700	3,1	0,1	0,52	0,02	1,6 E-07	9,8 E-09	65,0	3,1	10,7	0,4
Mrz 12	20	763	1050	2,6	0,2	0,52	0,02	2,0 E-07	2,0 E-08	51,5	4,7	10,4	0,4
Apr 12	65	2480	550	1,8	0,1	0,16	0,01	8,5 E-08	5,6 E-09	117,6	6,4	10,2	0,4
Mai 12	86	3204	700	1,6	0,1	0,18	0,01	1,1 E-07	8,3 E-09	135,3	8,4	15,8	0,6
Jun 12	182	6407	450	1,0	0,0	0,03	0,00	3,3 E-08	2,5 E-09	183,7	5,7	6,1	0,4
Jul 12	70	2575	500	1,8	0,1	0,05	0,00	2,7 E-08	1,9 E-09	122,5	3,7	3,3	0,2
Aug 12	212	6618	800	1,2	0,0	0,03	0,00	2,3 E-08	2,0 E-09	263,3	7,5	6,1	0,5
Sep 12	49	1967	850	1,5	0,1	0,16	0,01	1,1 E-07	6,1 E-09	74,3	2,9	8,0	0,3
Okt 12	62	2284	900	0,9	0,1	0,03	0,00	3,5 E-08	4,0 E-09	53,8	3,3	1,9	0,2
Nov 12	64	2446	950	1,6	0,1	0,02	0,00	1,4 E-08	1,9 E-09	103,3	5,6	1,5	0,2
Dez 12	83	2981	600	1,0	0,1	0,12	0,01	1,3 E-07	9,4 E-09	80,8	5,0	10,4	0,4
Jan 13	80	2820	400	1,0	0,0	0,08	0,00	7,8 E-08	4,5 E-09	79,8	2,8	6,3	0,3
Feb 13	86	2908	600	0,8	0,0	0,08	0,00	1,1 E-07	6,7 E-09	65,1	2,8	7,3	0,3

Tab. A.7: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Flusswasser (Januar 2011 – März 2013) an 15 Messstationen der BfG.

Messstation	Zeitraum	^{127}I [10^{-6} g/kg]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/kg]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
Eisenhüttenstadt (Oder)	1. Quartal 2011	10,2	0,8	52,8	3,6	5,2 E-9	4,8 E-10
	2. Quartal 2011	10,2	0,5	63,9	3,9	6,6 E-9	5,2 E-10
	3. Quartal 2011	8,1	0,4	80,5	3,3	9,8 E-9	5,9 E-10
	4. Quartal 2011	14,6	0,4	116,7	4,5	7,9 E-9	3,6 E-10
	1. Quartal 2012	9,6	0,2	93,7	3,7	9,6 E-9	4,3 E-10
	2. Quartal 2012	22,8	0,7	74,6	3,2	3,2 E-9	1,7 E-10
	3. Quartal 2012	19,4	0,4	72,1	3,1	3,7 E-9	1,7 E-10
	4. Quartal 2012	17,2	0,4	59,3	2,3	3,4 E-9	1,5 E-10
	1. Quartal 2013	7,5	0,2	78,4	1,5	1,0 E-8	2,8 E-10
Schwedt (Oder)	1. Quartal 2011	10,3	0,7	65,8	4,1	6,3 E-9	5,8 E-10
	2. Quartal 2011	8,1	0,4	61,5	3,9	8,0 E-9	6,4 E-10
	3. Quartal 2011	8,4	0,7	126,1	4,9	1,5 E-8	1,3 E-9
	4. Quartal 2011	14,3	0,3	83,1	3,3	5,7 E-9	2,5 E-10
	1. Quartal 2012	10,4	0,3	80,2	3,2	7,6 E-9	3,6 E-10
	2. Quartal 2012	15,5	0,4	67,8	3,0	4,3 E-9	2,2 E-10
	3. Quartal 2012	16,6	0,5	85,6	3,6	5,1 E-9	2,5 E-10
	4. Quartal 2012	13,5	0,3	63,6	2,5	4,6 E-9	2,0 E-10
	1. Quartal 2013	7,8	0,2	91,4	1,8	1,2 E-8	2,9 E-10
Geesthacht (Elbe)	1. Quartal 2011	6,6	0,5	103,0	6,9	1,5 E-8	1,5 E-9
	2. Quartal 2011	5,0	0,4	132,3	7,0	2,9 E-8	2,4 E-9
	3. Quartal 2011	8,4	0,2	127,6	5,0	1,5 E-8	6,7 E-10
	4. Quartal 2011	8,3	0,2	810,6	29,8	9,6 E-8	3,9 E-9
	1. Quartal 2012	6,0	0,1	129,3	4,9	2,1 E-8	8,5 E-10
	2. Quartal 2012	8,1	0,2	78,5	3,4	9,6 E-9	4,3 E-10
	3. Quartal 2012	9,9	0,3	128,9	5,1	1,3 E-8	5,8 E-10
	4. Quartal 2012	7,5	0,1	100,5	3,8	1,3 E-8	5,2 E-10
	1. Quartal 2013	2,5	0,1	52,0	1,1	2,1 E-8	7,1 E-10
Tangermünde (Elbe)	1. Quartal 2011	6,6	0,5	56,8	3,6	8,5 E-9	7,7 E-10
	2. Quartal 2011	4,2	0,3	41,2	3,2	1,0 E-8	9,1 E-10
	3. Quartal 2011	6,6	0,3	56,7	2,5	8,4 E-9	5,1 E-10
	4. Quartal 2011	7,2	0,2	66,2	2,7	9,1 E-9	4,0 E-10
	1. Quartal 2012	4,1	0,1	63,7	2,9	1,5 E-8	7,6 E-10
	2. Quartal 2012	6,6	0,1	46,6	2,4	6,9 E-9	3,7 E-10
	3. Quartal 2012			-	-		
	4. Quartal 2012	7,7	0,2	64,7	2,5	8,3 E-9	3,5 E-10
	1. Quartal 2013	5,2	0,1	75,0	2,9	1,4 E-8	5,8 E-10
Wittenberg (Elbe)	1. Quartal 2011	5,5	0,3	44,5	2,3	8,0 E-9	5,6 E-10
	2. Quartal 2011	7,0	0,4	52,1	3,8	9,2 E-9	7,9 E-10
	3. Quartal 2011	6,6	0,3	64,9	2,8	9,6 E-9	5,6 E-10
	4. Quartal 2011	7,3	0,2	69,4	2,8	9,3 E-9	4,3 E-10
	1. Quartal 2012	4,0	0,1	64,8	2,7	1,6 E-8	7,3 E-10
	2. Quartal 2012	5,8	0,1	49,6	2,5	8,5 E-9	4,5 E-10
	3. Quartal 2012	6,0	0,1	72,6	3,2	1,2 E-8	5,7 E-10
	4. Quartal 2012	6,0	0,1	72,5	2,8	1,2 E-8	5,1 E-10
	1. Quartal 2013	2,5	0,1	52,0	1,1	2,1 E-8	7,1 E-10

Tab. A.7: (fortgesetzt)

Messtation	Zeitraum	^{127}I [10^{-6} g/kg]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/kg]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}	
Dresden (Elbe)	1. Quartal 2011	6,6	0,4	74,4	4,5	1,1 E-8	1,1 E-9	
	2. Quartal 2011	3,7	0,2	29,3	1,8	7,7 E-9	6,0 E-10	
	3. Quartal 2011	6,8	0,2	34,0	1,8	5,0 E-9	2,9 E-10	
	4. Quartal 2011	7,2	0,2	48,2	2,2	6,6 E-9	3,3 E-10	
	1. Quartal 2012	4,2	0,1	38,2	1,8	8,9 E-9	4,6 E-10	
	2. Quartal 2012	5,9	0,1	27,3	1,9	4,6 E-9	3,4 E-10	
	3. Quartal 2012	5,5	0,1	49,2	2,5	8,8 E-9	4,6 E-10	
	4. Quartal 2012	5,4	0,1	203,5	7,6	3,7 E-8	1,5 E-9	
	1. Quartal 2013	3,9	0,1	77,8	3,0	2,0 E-8	8,3 E-10	
Rinteln (Weser)	1. Quartal 2011	3,4	0,2	35,0	2,8	1,0 E-8	1,0 E-9	
	2. Quartal 2011	2,8	0,2	44,1	3,1	1,8 E-8	1,6 E-9	
	3. Quartal 2011	4,9	0,2	116,1	4,5	2,3 E-8	1,3 E-9	
	4. Quartal 2011	4,3	0,2	46,9	2,1	1,1 E-8	5,9 E-10	
	1. Quartal 2012	3,1	0,1	53,5	2,3	1,7 E-8	8,5 E-10	
	2. Quartal 2012	4,4	0,1	52,6	2,6	1,2 E-8	6,5 E-10	
	3. Quartal 2012	4,2	0,1	57,6	2,7	1,4 E-8	6,9 E-10	
	4. Quartal 2012	4,2	0,1	61,5	2,4	1,5 E-8	6,6 E-10	
	1. Quartal 2013	2,9	0,1	90,7	3,4	3,1 E-8	1,4 E-9	
Höxter (Weser)	1. Quartal 2011	4,2	0,3	32,9	2,6	7,9 E-9	9,1 E-10	
	2. Quartal 2011	2,4	0,2	62,4	3,8	3,0 E-8	2,7 E-9	
	3. Quartal 2011	4,2	0,2	114,1	4,4	2,7 E-8	1,4 E-9	
	4. Quartal 2011	4,4	0,1	47,5	2,1	1,1 E-8	4,9 E-10	
	1. Quartal 2012	4,1	0,2	60,3	2,5	1,4 E-8	7,7 E-10	
	2. Quartal 2012	3,7	0,1	38,4	2,2	1,0 E-8	6,6 E-10	
	3. Quartal 2012	3,5	0,1	55,1	2,6	1,6 E-8	7,5 E-10	
	4. Quartal 2012	4,2	0,1	551,6	21,0	1,3 E-7	5,6 E-9	
	1. Quartal 2013	2,6	0,1	51,7	2,0	2,0 E-8	8,7 E-10	
Geeste (Ems)	1. Quartal 2011	9,2	0,7	135,3	7,4	1,5 E-8	1,2 E-9	
	2. Quartal 2011	13,3	0,5	232,4	18,2	1,8 E-8	1,6 E-9	
	3. Quartal 2011	14,1	0,4	180,8	6,8	1,3 E-8	5,9 E-10	
	4. Quartal 2011	11,2	0,3	165,2	6,2	1,5 E-8	6,3 E-10	
	1. Quartal 2012	Ausfall der Pumpe (Keine Probe)						
	2. Quartal 2012	11,0	0,3	169,0	6,5	1,5 E-8	6,6 E-10	
	3. Quartal 2012	14,6	0,3	180,7	6,9	1,2 E-8	5,1 E-10	
	4. Quartal 2012	10,4	0,2	640,1	24,1	6,1 E-8	2,3 E-9	
	1. Quartal 2013	4,9	0,1	145,6	2,7	3,0 E-8	8,0 E-10	
Wesel (Rhein)	1. Quartal 2011	8,1	0,5	52,2	3,5	6,5 E-9	5,7 E-10	
	2. Quartal 2011	10,7	0,6	116,3	10,6	1,0 E-8	8,7 E-10	
	3. Quartal 2011	9,1	0,3	80,9	3,2	8,8 E-9	4,3 E-10	
	4. Quartal 2011	10,1	0,2	305,2	11,3	3,0 E-8	1,2 E-9	
	1. Quartal 2012	5,7	0,2	57,5	2,3	9,9 E-9	4,6 E-10	
	2. Quartal 2012	8,4	0,2	369,1	13,8	4,3 E-8	1,8 E-9	
	3. Quartal 2012	9,7	0,2	144,5	5,6	1,5 E-8	6,0 E-10	
	4. Quartal 2012	8,3	0,2	80,4	3,1	9,5 E-9	4,2 E-10	
	1. Quartal 2013	6,5	0,1	57,1	2,2	8,6 E-9	3,7 E-10	

Tab. A.7: (fortgesetzt)

Messtation	Zeitraum	^{127}I [10^{-6} g/kg]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/kg]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
Koblenz (Rhein)	1. Quartal 2011	5,2	0,3	57,3	3,6	1,1 E-8	9,5 E-10
	2. Quartal 2011	4,5	0,3	92,3	5,9	2,1 E-8	1,7 E-9
	3. Quartal 2011	4,8	0,2	68,1	2,8	1,4 E-8	8,0 E-10
	4. Quartal 2011	5,2	0,1	72,5	2,9	1,4 E-8	6,4 E-10
	1. Quartal 2012	4,4	0,1	66,9	2,7	1,5 E-8	6,8 E-10
	2. Quartal 2012	4,2	0,1	51,5	2,5	1,2 E-8	6,1 E-10
	3. Quartal 2012	4,2	0,1	43,8	2,3	1,0 E-8	5,9 E-10
	4. Quartal 2012	3,7	0,1	57,2	2,3	1,5 E-8	6,7 E-10
	1. Quartal 2013	3,7	0,1	42,8	1,7	1,1 E-8	5,3 E-10
Worms (Rhein)	1. Quartal 2011	5,3	0,3	50,4	3,5	9,4 E-9	8,4 E-10
	2. Quartal 2011	3,7	0,3	97,7	6,3	2,5 E-8	2,5 E-9
	3. Quartal 2011	4,3	0,2	57,4	2,4	1,3 E-8	8,3 E-10
	4. Quartal 2011	5,6	0,1	105,3	4,1	1,9 E-8	7,9 E-10
	1. Quartal 2012	4,4	0,1	59,2	2,4	1,3 E-8	6,4 E-10
	2. Quartal 2012	4,3	0,1	48,9	2,4	1,1 E-8	6,1 E-10
	3. Quartal 2012	4,6	0,1	51,8	2,6	1,1 E-8	6,3 E-10
	4. Quartal 2012	3,5	0,1	51,8	2,0	1,5 E-8	6,3 E-10
	1. Quartal 2013	3,7	0,1	46,4	1,9	1,2 E-8	5,2 E-10
Breisach (Rhein)	1. Quartal 2011	3,7	0,2	36,6	2,9	9,6 E-9	9,5 E-10
	2. Quartal 2011	2,1	0,2	49,3	3,4	2,4 E-8	2,2 E-9
	3. Quartal 2011	2,4	0,2	63,1	2,7	2,6 E-8	2,3 E-9
	4. Quartal 2011	3,0	0,1	48,0	2,1	1,6 E-8	8,1 E-10
	1. Quartal 2012	3,1	0,1	44,6	1,9	1,4 E-8	7,0 E-10
	2. Quartal 2012	2,5	0,1	43,1	2,3	1,7 E-8	9,6 E-10
	3. Quartal 2012	4,5	0,1	42,4	2,3	9,3 E-9	5,4 E-10
	4. Quartal 2012	2,4	0,1	40,4	1,6	1,7 E-8	7,6 E-10
	1. Quartal 2013	2,5	0,1	73,5	1,5	2,9 E-8	7,3 E-10
Regensburg (Donau)	1. Quartal 2011	5,3	0,4	18,6	2,3	3,5 E-9	4,7 E-10
	2. Quartal 2011	2,7	0,2	20,1	2,2	7,2 E-9	9,5 E-10
	3. Quartal 2011	4,0	0,2	31,5	1,6	7,7 E-9	4,9 E-10
	4. Quartal 2011	5,2	0,1	28,3	1,5	5,4 E-9	3,1 E-10
	1. Quartal 2012	4,5	0,1	30,9	1,4	6,8 E-9	3,4 E-10
	2. Quartal 2012	3,8	0,1	29,1	2,0	7,6 E-9	5,4 E-10
	3. Quartal 2012	4,5	0,1	25,5	2,0	5,6 E-9	4,5 E-10
	4. Quartal 2012	3,9	0,1	47,4	1,9	1,2 E-8	5,3 E-10
	1. Quartal 2013	2,4	0,1	39,0	0,9	1,6 E-8	4,6 E-10
Vilshofen (Donau)	1. Quartal 2011	4,4	0,3	25,1	2,4	5,7 E-9	6,4 E-10
	2. Quartal 2011	2,9	0,2	30,9	2,5	1,1 E-8	1,1 E-9
	3. Quartal 2011	3,8	0,2	43,2	2,0	1,1 E-8	6,9 E-10
	4. Quartal 2011	4,1	0,1	30,5	1,6	7,3 E-9	4,1 E-10
	1. Quartal 2012	3,5	0,1	25,5	1,2	7,1 E-9	3,7 E-10
	2. Quartal 2012	4,1	0,1	36,0	2,1	8,7 E-9	5,2 E-10
	3. Quartal 2012	4,1	0,1	27,9	2,0	6,8 E-9	4,9 E-10
	4. Quartal 2012	3,5	0,1	33,9	1,4	9,5 E-9	4,5 E-10
	1. Quartal 2013	7,5	0,2	78,4	1,5	1,0 E-8	2,8 E-10

Tab. A.8: Monatliche Abflüsse an den Messstationen der BfG.

Neu Darchau ¹ Elbe	Tanger- münde Elbe	Witten- berge Elbe	Dresden		Höxter		Rinteln		Dalum ²		Wesel		Koblenz*		Worms		Breisach		Hohens- Finow ³		Eisenhüt- tenstadt		Schwabel- weis ⁴		Hofkirchen ⁵	
			Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]	Q [m³/s]						
01/2011	2310	1990	2280	994	479	530	157	4890	3290	1970	1050	1470	794	918	1210											
02/2011	1760	1180	1590	510	187	220	72,3	2220	1520	978	791	1220	532	486	646											
03/2011	951	656	935	359	104	124	36,1	1550	1160	853	791	827	386	363	528											
04/2011	773	552	752	302	79,6	95,1	27,4	1260	1010	784	771	684	318	297	446											
05/2011	465	353	446	181	68,7	79,3	14,6	1010	850	691	772	471	251	223	367											
06/2011	364	304	366	175	72,1	79,4	15,2	1310	1150	1000	894	326	174	310	507											
07/2011	520	398	521	267	69,4	77,1	11,3	1690	1560	1380	1170	454	315	459	707											
08/2011	732	459	693	248	64,6	70,9	16,5	1710	1430	1220	996	668	378	381	598											
09/2011	617	381	564	191	63,9	70,8	20,1	1370	1160	978	856	416	215	329	457											
10/2011	543	379	513	220	63	68,7	20,8	1390	1190	1010	954	364	176	362	495											
11/2011	446	313	429	159	47,6	50,8	14,9	932	760	606	736	325	157	284	327											
12/2011	577	423	577	258	137	145	59,9	2670	1870	1420	1010	366	182	550	627											
01/2012	1250	1010	1250	597	379	417	127	4430	2990	2090	1390	607	341	883	1110											
02/2012	1040	701	993	408	135	159	46,5	1980	1420	1060	895	519	285	539	677											
03/2012	1260	942	1240	573	110	125	43,4	1700	1290	1020	855	861	492	540	671											
04/2012	674	494	659	301	78	88	27,6	1670	1400	1210	1030	601	323	497	631											
05/2012	488	371	475	214	72,8	79,6	19,7	2040	1650	1460	1250	444	222	435	558											
06/2012	347	294	367	179	77,5	83,7	19	2350	2090	1880	1730	319	180	549	747											
07/2012	486	363	485	211	105	109	22,8	2260	1820	1540	1310	438	221	377	493											
08/2012	359	280	360	168	72,1	79,5	12,7	1350	1140	997	973	309	140	341	423											
09/2012	310	259	333	174	68,8	72,8	12,7	1540	1410	1280	1210	305	148	387	514											
10/2012	378	284	381	195	68,7	73,2	22,8	2000	1720	1540	1380	308	141	421	552											
11/2012	425	326	408	219	70,2	73,9	20,4	2180	1820	1580	1330	408	202	476	543											
12/2012	616	540	632	355	212	209	71	3840	3040	2340	1590	461	214	760	894											
01/2013	1360	1090	1280	611	187	204	71,4	2930	2120	1560	1130	580	297	721	897											
02/2013	1390	1100	1310	707	236	262	89,3	3770	2710	1990	1220	818	432	846	1050											
03/2013	1130	918	1110	529	153	168	50,1	2290	1690	1250	927	821	456	630	714											

¹ für Geesthacht

² für Geeste

³ für Schwedt

⁴ für Regensburg

⁵ für Vilshofen

* keine offiziellen Daten; Q berechnet durch Addition der Abflüsse von Kaub/Rhein und Kalkofen/Lahn

Tab.A.9: Konzentrationen von ^{127}I , ^{129}I und $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Boden.

Ort/Tiefe	^{127}I [10^{-6} g/g]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/g]	U_{abs}	^{129}I [mBq/g]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
<u>Potsdam</u>								
0 - 5 cm	1,99	0,10	215,12	3,99	1406	26,1	1,1 E-7	5,6 E-9
5 - 10 cm	1,32	0,05	43,00	0,51	281	3,3	3,2 E-8	1,3 E-9
10 - 20 cm	1,19	0,04	23,38	0,28	153	1,8	1,9 E-8	6,5 E-10
20 - 30 cm	0,91	0,04	8,28	0,11	54	0,7	9,0 E-9	3,7 E-10
30 - 50 cm	0,85	0,05	3,95	0,06	26	0,4	4,6 E-9	2,7 E-10
<u>Langenhagen</u>								
0 - 5 cm	3,01	0,24	159,15	1,82	1040	11,9	5,2 E-8	4,2 E-9
5 - 10 cm	2,96	0,13	140,06	1,60	915	10,4	4,7 E-8	2,2 E-9
10 - 20 cm	2,80	0,10	62,99	0,72	412	4,7	2,2 E-8	8,5 E-10
20 - 30 cm	2,92	0,17	23,91	0,28	156	1,8	8,1 E-9	4,9 E-10
30 - 50 cm	1,82	0,07	4,97	0,06	32	0,4	2,7 E-9	1,1 E-10
<u>Görlitz</u>								
0 - 5 cm	1,85	0,19	55,15	0,77	360	5,1	2,9 E-8	3,0 E-9
5 - 10 cm	1,77	0,14	57,73	0,70	377	4,6	3,2 E-8	2,7 E-9
10 - 20 cm	1,59	0,09	43,93	0,54	287	3,5	2,7 E-8	1,6 E-9
20 - 30 cm	1,00	0,09	21,45	0,29	140	1,9	2,1 E-8	1,8 E-9
30 - 50 cm	1,15	0,06	5,76	0,09	38	0,6	4,9 E-9	2,8 E-10
<u>Nürnberg</u>								
0 - 5 cm	2,82	0,16	95,05	1,11	621	7,3	3,3 E-8	1,9 E-9
5 - 10 cm	3,32	0,15	76,67	0,91	501	5,9	2,3 E-8	1,1 E-9
10 - 20 cm	2,77	0,18	43,33	0,53	283	3,5	1,5 E-8	1,0 E-9
20 - 30 cm	3,15	0,18	27,22	0,37	178	2,4	8,5 E-9	4,9 E-10
30 - 50 cm	7,41	0,31	13,00	0,19	85	1,2	1,7 E-9	7,6 E-11
<u>Lahr</u>								
0 - 5 cm	2,76	0,13	125,40	1,47	820	9,6	4,5 E-8	2,1 E-9
5 - 10 cm	2,79	0,30	115,21	1,36	753	8,9	4,1 E-8	4,4 E-9
10 - 20 cm	2,81	0,14	120,34	1,40	787	9,2	4,2 E-8	2,1 E-9
20 - 30 cm	3,08	0,15	110,48	1,29	722	8,5	3,5 E-8	1,8 E-9
30 - 50 cm	2,68	0,12	27,73	0,34	181	2,2	1,0 E-8	4,7 E-10
<u>Schleswig</u>								
0 - 5 cm	3,83	0,20	359,80	4,15	2352	27,1	9,3 E-8	4,9 E-9
5 - 10 cm	3,61	0,37	222,10	2,64	1452	17,2	6,1 E-8	6,2 E-9
10 - 20 cm	3,99	0,28	68,13	0,86	445	5,6	1,7 E-8	1,2 E-9
20 - 30 cm	4,40	0,21	23,09	0,32	151	2,1	5,2 E-9	2,5 E-10
30 - 50 cm	4,33	0,12	7,97	0,13	52	0,9	1,8 E-9	5,8 E-11

Tab. A.9: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	^{127}I [10^{-6} g/g]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/g]	U_{abs}	^{129}I [mBq/g]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
<u>Bielefeld</u>								
0 - 5 cm	2,52	0,13	304,35	10,63	1989	69,5	1,2 E-7	7,4 E-9
5 - 10 cm	3,12	0,18	204,88	7,20	1339	47,1	6,5 E-8	4,3 E-9
10 - 20 cm	2,56	0,17	37,84	1,50	247	9,8	1,5 E-8	1,1 E-9
20 - 30 cm	2,52	0,23	22,06	0,97	144	6,3	8,6 E-9	8,8 E-10
30 - 50 cm	2,51	0,12	7,03	0,42	46	2,8	2,8 E-9	2,1 E-10
<u>Essen</u>								
0 - 5 cm	3,93	0,20	320,56	11,18	2095	73,0	8,0 E-8	5,0 E-9
5 - 10 cm	4,24	0,22	229,53	8,07	1500	52,7	5,3 E-8	3,3 E-9
10 - 20 cm	4,73	0,33	104,36	3,77	682	24,7	2,2 E-8	1,7 E-9
20 - 30 cm	4,08	0,29	25,44	1,13	166	7,4	6,1 E-9	5,2 E-10
30 - 50 cm	3,66	0,20	29,19	1,13	191	7,4	7,8 E-9	5,3 E-10
<u>Geesthacht</u>								
0 - 5 cm	1,05	0,04	107,23	3,90	701	25,5	1,0 E-7	5,6 E-9
5 - 10 cm	0,99	0,04	81,61	2,98	533	19,5	8,1 E-8	4,7 E-9
10 - 20 cm	0,74	0,07	26,73	1,14	175	7,5	3,5 E-8	3,6 E-9
20 - 30 cm	0,71	0,04	14,82	0,63	97	4,1	2,1 E-8	1,4 E-9
30 - 50 cm	0,78	0,03	5,26	0,28	34	1,8	6,6 E-9	4,4 E-10
<u>Kiel</u>								
0 - 5 cm	4,51	0,26	134,30	4,83	878	31,6	2,9 E-8	2,0 E-9
5 - 10 cm	5,15	0,12	80,69	2,96	527	19,3	1,5 E-8	6,7 E-10
10 - 20 cm	4,91	0,11	63,68	2,32	416	15,2	1,3 E-8	5,5 E-10
20 - 30 cm	4,63	0,16	65,26	2,36	427	15,4	1,4 E-8	6,9 E-10
30 - 50 cm	4,20	0,10	9,41	0,42	61	2,7	2,2 E-9	1,1 E-10
<u>Oberweißbach</u>								
0 - 5 cm	4,45	0,24	168,87	6,21	1104	40,6	3,7 E-8	2,5 E-9
5 - 10 cm	5,05	0,46	214,26	7,69	1400	50,3	4,2 E-8	4,0 E-9
10 - 20 cm	3,32	0,19	58,47	2,03	382	13,3	1,7 E-8	1,2 E-9
20 - 30 cm	5,08	0,26	51,05	1,77	334	11,6	9,9 E-9	6,1 E-10
30 - 50 cm	5,30	0,12	29,20	1,01	191	6,6	5,4 E-9	2,2 E-10
<u>Sophienhof</u>								
0 - 5 cm	8,20	0,19	265,30	9,25	1734	60,4	3,2 E-8	1,3 E-9
5 - 10 cm	7,38	0,35	218,51	7,62	1428	49,8	2,9 E-8	1,7 E-9
10 - 20 cm	7,77	0,17	102,17	3,52	668	23,0	1,3 E-8	5,3 E-10
20 - 30 cm	5,26	0,34	16,96	0,58	111	3,8	3,2 E-9	2,3 E-10
30 - 50 cm	5,48	0,15	11,53	0,41	75	2,7	2,1 E-9	9,3 E-11

Tab. A.9: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	^{127}I [10^{-6} g/g]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/g]	U_{abs}	^{129}I [mBq/g]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
<u>Nordenham</u>								
0 - 5 cm	12,20	0,74	630,28	22,07	4119	144,2	5,1 E-8	3,5 E-9
5 - 10 cm	8,20	0,27	265,34	9,23	1734	60,3	3,2 E-8	1,5 E-9
10 - 20 cm	8,86	0,18	52,56	1,82	344	11,9	5,8 E-9	2,4 E-10
20 - 30 cm	9,32	0,19	22,90	0,80	150	5,2	2,4 E-9	9,8 E-11
30 - 50 cm	7,27	0,24	10,12	0,36	66	2,3	1,4 E-9	6,6 E-11
<u>Norderney</u>								
0 - 5 cm	13,45	0,83	650,17	22,66	4249	148,1	4,8 E-8	3,4 E-9
5 - 10 cm	17,70	0,56	501,95	17,45	3281	114,1	2,8 E-8	1,3 E-9
10 - 20 cm	5,45	0,15	80,52	2,83	526	18,5	1,5 E-8	6,6 E-10
20 - 30 cm	2,15	0,12	26,99	0,94	176	6,1	1,2 E-8	8,1 E-10
30 - 50 cm	0,37	0,02	11,19	0,39	73	2,6	2,9 E-8	1,9 E-9
<u>Breungeshain</u>								
0 - 5 cm	8,16	0,21	399,32	13,64	2610	89,2	4,8 E-8	2,1 E-9
5 - 10 cm	6,40	0,13	314,45	10,74	2055	70,2	4,8 E-8	1,9 E-9
10 - 20 cm	9,50	0,33	119,52	4,18	781	27,3	1,2 E-8	6,1 E-10
20 - 30 cm	4,61	0,25	42,71	1,48	279	9,7	9,1 E-9	5,8 E-10
30 - 50 cm	3,72	0,13	40,05	1,39	262	9,1	1,1 E-8	5,2 E-10
<u>Bad Arolsen</u>								
0 - 5 cm	1,36	0,03	120,91	4,14	790	27,0	8,7 E-8	3,6 E-9
5 - 10 cm	1,34	0,10	82,98	2,84	542	18,5	6,1 E-8	4,9 E-9
10 - 20 cm	1,68	0,12	52,08	1,84	340	12,0	3,0 E-8	2,4 E-9
20 - 30 cm	1,71	0,08	53,93	1,86	352	12,1	3,1 E-8	1,7 E-9
30 - 50 cm	0,87	0,04	7,43	0,26	49	1,7	8,4 E-9	4,5 E-10
<u>Ludwigshöhe</u>								
0 - 5 cm	1,76	0,04	121,55	4,16	794	27,2	6,8 E-8	2,8 E-9
5 - 10 cm	2,75	0,05	91,84	3,14	600	20,5	3,3 E-8	1,3 E-9
10 - 20 cm	2,27	0,07	36,81	1,26	241	8,2	1,6 E-8	7,3 E-10
20 - 30 cm	1,83	0,04	23,97	0,82	157	5,4	1,3 E-8	5,1 E-10
30 - 50 cm	2,01	0,05	15,62	0,54	102	3,5	7,7 E-9	3,3 E-10
<u>Biendorf</u>								
0 - 5 cm	1,66	0,05	99,95	3,43	653	22,4	5,9 E-8	2,7 E-9
5 - 10 cm	1,80	0,06	42,05	1,44	275	9,4	2,3 E-8	1,1 E-9
10 - 20 cm	1,93	0,04	29,76	1,02	195	6,7	1,5 E-8	6,2 E-10
20 - 30 cm	1,84	0,05	32,61	1,12	213	7,3	1,7 E-8	7,8 E-10
30 - 50 cm	1,43	0,07	11,58	0,40	76	2,6	8,0 E-9	4,6 E-10

Tab. A.9: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	^{127}I [10^{-6} g/g]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/g]	U_{abs}	^{129}I [mBq/g]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
<u>Neu Boltenhagen</u>								
0 - 5 cm	1,35	0,04	52,68	2,01	344	13,1	3,8 E-8	1,9 E-9
5 - 10 cm	1,31	0,04	50,94	1,75	333	11,4	3,8 E-8	1,8 E-9
10 - 20 cm	1,48	0,04	29,39	1,01	192	6,6	2,0 E-8	8,4 E-10
20 - 30 cm	1,73	0,04	21,91	0,75	143	4,9	1,2 E-8	5,2 E-10
30 - 50 cm	1,27	0,04	7,42	0,26	48	1,7	5,8 E-9	2,9 E-10
<u>Kerkow</u>								
0 - 5 cm	2,12	0,12	93,46	3,25	611	21,2	4,3 E-8	2,8 E-9
5 - 10 cm	2,83	0,06	88,05	3,08	575	20,2	3,1 E-8	1,2 E-9
10 - 20 cm	2,25	0,04	34,07	1,19	223	7,8	1,5 E-8	5,9 E-10
20 - 30 cm	1,09	0,02	6,88	0,24	45	1,6	6,2 E-9	2,4 E-10
30 - 50 cm	0,76	0,03	2,12	0,07	14	0,5	2,7 E-9	1,4 E-10
<u>Ankershagen</u>								
0 - 5 cm	1,25	0,06	137,31	4,73	897	30,9	1,1 E-7	6,2 E-9
5 - 10 cm	1,19	0,05	91,02	3,16	595	20,7	7,5 E-8	4,2 E-9
10 - 20 cm	1,54	0,04	35,77	1,25	234	8,1	2,3 E-8	1,0 E-9
20 - 30 cm	1,67	0,05	19,00	0,67	124	4,4	1,1 E-8	5,3 E-10
30 - 50 cm	2,40	0,10	11,23	0,39	73	2,6	4,6 E-9	2,5 E-10
<u>Lehnmühle</u>								
0 - 5 cm	4,54	0,09	170,28	5,86	1113	38,3	3,7 E-8	1,5 E-9
5 - 10 cm	4,31	0,09	85,46	2,97	559	19,4	2,0 E-8	7,8 E-10
10 - 20 cm	3,39	0,06	40,60	1,41	265	9,2	1,2 E-8	4,5 E-10
20 - 30 cm	3,76	0,08	16,26	0,58	106	3,8	4,3 E-9	1,8 E-10
30 - 50 cm	3,17	0,05	4,59	0,16	30	1,0	1,4 E-9	5,5 E-11
<u>Gohre</u>								
0 - 5 cm	8,34	0,10	161,77	5,58	1057	36,4	1,9 E-8	6,9 E-10
5 - 10 cm	7,92	0,12	140,09	4,83	916	31,6	1,7 E-8	6,6 E-10
10 - 20 cm	5,50	0,13	70,31	2,44	460	16,0	1,3 E-8	5,3 E-10
20 - 30 cm	6,84	0,12	34,54	1,21	226	7,9	5,0 E-9	2,0 E-10
30 - 50 cm	2,85	0,04	11,46	0,40	75	2,6	4,0 E-9	1,5 E-10
<u>Puch</u>								
0 - 5 cm	2,81	0,08	122,42	4,21	800	27,5	4,3 E-8	1,9 E-9
5 - 10 cm	2,45	0,08	108,40	3,73	709	24,4	4,4 E-8	2,0 E-9
10 - 20 cm	2,49	0,08	57,80	1,99	378	13,0	2,3 E-8	1,1 E-9
20 - 30 cm	2,45	0,08	6,06	0,21	40	1,3	2,4 E-9	1,2 E-10
30 - 50 cm	3,21	0,04	16,21	0,56	106	3,7	5,0 E-9	1,8 E-10

Tab. A.9: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	^{127}I [10^{-6} g/g]	U_{abs}	^{129}I [10^{-15} g/g]	U_{abs}	^{129}I [mBq/g]	U_{abs}	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	U_{abs}
<u>Fürstentzell</u>								
0 - 5 cm	1,10	0,05	87,70	3,02	573	19,7	7,8 E-8	4,7 E-9
5 - 10 cm	1,15	0,06	71,01	2,45	464	16,0	6,1 E-8	3,7 E-9
10 - 20 cm	1,40	0,05	49,13	1,69	321	11,1	3,5 E-8	1,7 E-9
20 - 30 cm	1,32	0,05	24,99	0,86	163	5,6	1,9 E-8	9,4 E-10
30 - 50 cm	2,20	0,05	19,74	0,69	129	4,5	8,8 E-9	3,8 E-10
<u>Stötten</u>								
0 - 5 cm	6,18	0,27	260,08	8,93	1700	58,3	4,1 E-8	2,3 E-9
5 - 10 cm	6,10	0,32	194,46	6,68	1271	43,6	3,1 E-8	2,0 E-9
10 - 20 cm	6,69	0,21	87,77	3,02	574	19,7	1,3 E-8	6,0 E-10
20 - 30 cm	8,86	0,21	23,94	0,82	156	5,4	2,7 E-9	1,1 E-10
30 - 50 cm	14,17	0,25	13,73	0,48	90	3,1	9,5 E-10	3,7 E-11
<u>Kempten</u>								
0 - 5 cm	3,62	0,12	187,13	6,43	1223	42,0	5,1 E-8	2,4 E-9
5 - 10 cm	3,51	0,10	166,79	5,73	1090	37,5	4,7 E-8	2,1 E-9
10 - 20 cm	3,76	0,10	51,04	1,76	334	11,5	1,3 E-8	5,7 E-10
20 - 30 cm	4,02	0,08	33,43	1,15	218	7,5	8,2 E-9	3,3 E-10
30 - 50 cm	3,44	0,09	13,17	0,45	86	3,0	3,8 E-9	1,6 E-10
<u>Trier</u>								
0 - 5 cm	1,60	0,05	133,06	4,58	870	29,9	8,2 E-8	3,8 E-9
5 - 10 cm	1,58	0,05	153,81	5,29	1005	34,6	9,6 E-8	4,4 E-9
10 - 20 cm	1,62	0,05	96,04	3,30	628	21,6	5,8 E-8	2,7 E-9
20 - 30 cm	1,33	0,04	69,16	2,37	452	15,5	5,1 E-8	2,4 E-9
30 - 50 cm	1,28	0,07	25,78	0,89	168	5,8	2,0 E-8	1,3 E-9
<u>Schauinsland</u>								
0 - 5 cm	8,19	0,18	157,80	5,43	1031	35,5	1,9 E-8	7,8 E-10
5 - 10 cm	7,82	0,32	360,47	12,36	2356	80,8	4,5 E-8	2,4 E-9
10 - 20 cm	6,83	0,28	254,14	8,72	1661	57,0	3,7 E-8	1,9 E-9
20 - 30 cm	9,83	0,23	82,50	2,83	539	18,5	8,3 E-9	3,4 E-10
30 - 50 cm	8,25	0,16	49,42	1,69	323	11,1	5,9 E-9	2,3 E-10

Tab. A.10: Chemische und physikalische Eigenschaften der untersuchten Böden (Fe_d, Al_d, Mn_d = dithionitlösliche Fe-, Al-, Mn-Oxide; C_{org} = organischer Kohlenstoff; T=Ton, U=Schluff, S=Sand; *=extrapolierte Werte; Werte in Klammern geschätzt).

Ort/Tiefe	Fe _d [g/kg]	Al _d [g/kg]	Mn _d [g/kg]	C _{org} %	Körnung			pH	Lagerungs- dichte [g/cm ³]
					(T %)	(U %)	(S %)		
<u>Potsdam</u>									
0 - 5 cm	2,32	0,77	0,09	3,32	3,5	5,2	91,3	5,1	1,48*
5 - 10 cm	1,71	0,63	0,07	1,47	2,0	5,9	92,1	5,3	1,48
10 - 20 cm	1,59	0,54	0,06	0,87	1,8	5,1	93,2	5,6	1,54
20 - 30 cm	1,26	0,39	0,04	0,49	1,7	3,7	94,6	6,7	1,51
30 - 50 cm	0,96	0,32	0,03	0,28	1,2	2,2	96,6	7,0	1,51*
<u>Langenhagen</u>									
0 - 5 cm	3,10	0,57	0,25	2,81	9,5	29,5	61,0	4,9	1,38*
5 - 10 cm	3,30	0,59	0,26	2,04	10,2	29,8	60,0	5,0	1,38
10 - 20 cm	3,24	0,52	0,27	1,52	10,5	33,6	56,0	5,5	1,54
20 - 30 cm	3,55	0,42	0,27	1,01	9,5	25,9	64,6	6,3	1,62
30 - 50 cm	5,31	0,36	0,36	1,04	12,9	25,1	62,1	7,2	1,62*
<u>Görlitz</u>									
0 - 5 cm	4,25	0,50	0,27	2,05	12,6	43,1	44,3	5,5	1,31*
5 - 10 cm	4,72	0,54	0,24	1,74	12,6	41,7	45,7	5,9	1,31
10 - 20 cm	4,93	0,51	0,19	1,66	12,8	37,9	49,4	6,8	1,38
20 - 30 cm	4,89	0,59	0,18	1,28	11,5	37,0	51,6	6,5	1,48
30 - 50 cm	4,24	0,43	0,09	0,37	12,1	28,4	59,5	6,9	1,48*
<u>Nürnberg</u>									
0 - 5 cm	3,09	0,36	0,96	3,24	19,0	10,2	70,8	6,8	1,65*
5 - 10 cm	2,97	0,30	0,92	1,90	17,6	11,2	71,2	6,8	1,65
10 - 20 cm	2,86	0,30	1,04	1,41	16,7	11,1	72,2	6,9	1,71
20 - 30 cm	2,92	0,30	1,18	1,16	21,0	14,0	64,9	7,0	1,71*
30 - 50 cm	4,40	0,45	2,15	0,76	20,7	9,0	70,3	7,1	---
<u>Lahr</u>									
0 - 5 cm	4,37	0,33	0,36	2,54	16,0	53,9	30,2	6,7	1,33*
5 - 10 cm	4,38	0,34	0,40	1,86	15,3	52,6	32,1	6,8	1,33
10 - 20 cm	4,84	0,37	0,37	1,48	16,1	54,8	29,1	6,8	1,44
20 - 30 cm	4,69	0,35	0,39	1,14	15,7	54,5	29,8	6,9	1,49
30 - 50 cm	4,92	0,37	0,44	0,75	15,2	59,1	25,7	6,9	1,49*
<u>Schleswig</u>									
0 - 5 cm	4,10	1,10	0,22	3,38	11,2	24,4	64,4	4,7	1,16*
5 - 10 cm	3,98	1,05	0,21	1,94	10,8	23,3	65,9	5,0	1,16
10 - 20 cm	4,22	1,07	0,22	1,36	10,6	25,1	64,3	5,4	1,27
20 - 30 cm	5,05	1,12	0,24	1,14	11,1	29,8	59,1	6,1	1,31
30 - 50 cm	4,90	1,14	0,26	0,71	13,2	28,2	58,6	5,1	1,31*

Tab. A.10: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	Fe _d	Al _d	Mn _d	Corg %	Körnung			pH	Lagerungs- dichte [g/cm ³]
	[g/kg]	[g/kg]	[g/kg]		(T %)	(U %)	(S %)		
<u>Bielefeld</u>									
0 - 5 cm	1,83	0,85	0,21	3,03	3,8	4,0	92,2	5,4	1,2*
5 - 10 cm	2,01	0,98	0,23	1,93	3,5	3,8	92,8	5,4	1,20
10 - 20 cm	1,66	0,90	0,17	1,50	2,0	3,1	94,9	5,7	1,46
20 - 30 cm	1,50	0,90	0,13	1,22	3,3	2,9	93,8	6,2	1,41
30 - 50 cm	1,12	0,81	0,05	0,97	2,7	1,9	95,4	6,1	1,41*
<u>Essen</u>									
0 - 5 cm	6,36	0,87	0,32	2,99	14,6	62,2	23,2	5,4	1,58*
5 - 10 cm	6,84	0,85	0,37	2,03	14,8	63,6	21,6	5,4	1,58
10 - 20 cm	6,83	0,87	0,44	1,29	14,1	68,0	17,9	5,4	1,61
20 - 30 cm	7,27	0,86	0,45	0,91	15,3	73,0	11,8	5,7	1,64
30 - 50 cm	8,13	0,87	0,45	0,61	16,7	69,5	13,8	6,2	1,64*
<u>Geestacht</u>									
0 - 5 cm	2,35	0,65	0,16	2,03	9,3	11,6	79,1	4,0	1,5*
5 - 10 cm	2,57	0,34	0,17	1,39	9,3	11,5	79,2	4,1	1,50
10 - 20 cm	2,59	0,41	0,21	0,85	8,8	12,1	79,2	4,3	1,66
20 - 30 cm	4,46	0,48	0,40	0,60	8,3	11,6	80,1	4,5	1,67
30 - 50 cm	2,61	0,33	0,20	0,37	8,4	11,9	79,7	4,8	1,67*
<u>Kiel</u>									
0 - 5 cm	5,12	0,91	0,35	3,30	18,6	41,5	40,0	5,4	1,55*
5 - 10 cm	4,55	0,88	0,37	1,76	18,0	40,7	41,4	5,5	1,55
10 - 20 cm	5,21	0,92	0,38	1,37	18,3	40,9	40,8	5,5	1,59
20 - 30 cm	5,25	0,95	0,38	1,25	19,0	40,1	40,9	5,6	1,53
30 - 50 cm	6,17	0,95	0,32	0,62	23,4	39,9	40,9	5,8	1,53*
<u>Oberweißbach</u>									
0 - 5 cm	7,76	1,65	0,31	7,74	22,9	56,5	20,6	4,2	---
5 - 10 cm	8,96	1,84	0,29	4,85	20,0	54,1	26,0	4,0	(0,93)
10 - 20 cm	7,89	1,65	0,24	2,69	21,4	50,4	28,2	4,0	---
20 - 30 cm	8,70	1,93	0,14	2,71	19,8	53,3	26,9	4,0	---
30 - 50 cm	9,43	2,13	0,12	1,77	18,8	50,5	30,7	4,1	---
<u>Sophienhof</u>									
0 - 5 cm	8,52	3,66	0,97	6,72	27,4	50,1	22,5	5,9	0,93*
5 - 10 cm	8,12	3,79	0,95	6,20	27,3	48,3	24,4	5,1	0,93
10 - 20 cm	5,83	3,25	0,72	4,02	24,8	44,8	30,4	4,8	0,96
20 - 30 cm	6,26	3,93	0,71	2,19	25,3	45,0	29,7	4,7	0,89
30 - 50 cm	5,98	3,06	0,53	1,22	19,3	44,8	36,0	4,6	0,89*

Tab. A.10: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	Fe _d	Al _d	Mn _d	Corg %	Körnung			pH	Lagerungs- dichte [g/cm ³]
	[g/kg]	[g/kg]	[g/kg]		(T %)	(U %)	(S %)		
<u>Nordenham</u>									
0 - 5 cm	4,50	0,20	0,32	11,54	34,6	51,0	14,4	5,3	(0,82)
5 - 10 cm	6,40	0,23	0,20	5,67	34,0	53,9	12,1	5,4	(0,82)
10 - 20 cm	6,06	0,21	0,11	2,28	35,6	53,4	11,0	5,5	1,36
20 - 30 cm	6,14	0,26	0,11	1,57	40,0	49,7	10,3	5,5	1,40*
30 - 50 cm	4,35	0,25	0,08	0,93	36,3	53,1	10,6	5,8	1,40*
<u>Norderney</u>									
0 - 5 cm	1,62	0,12	0,10	2,12	11,9	7,1	80,9	6,7	1,51*
5 - 10 cm	1,98	0,14	0,13	1,61	13,7	7,8	78,6	7,0	1,51
10 - 20 cm	1,22	0,11	0,07	0,67	5,7	3,2	91,2	7,1	1,61
20 - 30 cm	0,55	0,10	0,03	0,23	2,1	2,1	95,8	7,3	1,68
30 - 50 cm	0,24	0,03	0,01	0,15	0,5	0,7	98,8	6,5	1,68*
<u>Breungeshain</u>									
0 - 5 cm	35,84	5,43	1,42	6,06	28,7	53,0	18,3	5,7	0,98*
5 - 10 cm	32,81	5,25	1,36	4,33	30,1	54,4	15,5	5,4	0,98
10 - 20 cm	34,07	5,46	1,31	2,75	24,4	50,0	25,6	5,1	0,98
20 - 30 cm	31,74	5,34	1,18	2,04	20,0	45,7	34,3	4,9	---
30 - 50 cm	32,04	5,41	1,23	0,87	13,4	36,4	50,2	4,9	---
<u>Arolsen</u>									
0 - 5 cm	8,57	0,38	0,23	3,48	24,5	31,1	44,4	5,7	1,40*
5 - 10 cm	8,82	0,36	0,26	1,67	24,5	30,9	44,7	5,8	1,40
10 - 20 cm	8,81	0,36	0,27	1,02	23,5	32,7	43,8	5,9	1,59
20 - 30 cm	9,03	0,35	0,24	0,76	26,4	21,7	51,9	6,0	1,60
30 - 50 cm	10,51	0,37	0,11	0,14	19,9	41,5	38,6	6,0	1,60*
<u>Ludwigshöhe</u>									
0 - 5 cm	2,45	0,23	0,21	4,05	17,1	29,3	53,6	7,1	---
5 - 10 cm	2,37	0,22	0,20	2,57	15,7	24,2	60,1	7,2	---
10 - 20 cm	2,51	0,25	0,21	1,87	16,6	26,9	56,5	7,4	---
20 - 30 cm	2,85	0,28	0,23	1,87	14,1	27,8	58,1	7,1	---
30 - 50 cm	2,60	0,26	0,22	1,73	13,2	22,4	64,5	7,3	---
<u>Biendorf</u>									
0 - 5 cm	1,54	0,46	0,06	3,29	3,8	7,2	89,0	5,6	---
5 - 10 cm	2,20	0,80	0,03	1,63	3,8	5,8	90,4	5,0	---
10 - 20 cm	1,91	0,71	0,03	1,20	3,5	6,4	90,1	4,3	1,25
20 - 30 cm	2,05	0,73	0,04	1,14	3,4	5,1	91,5	4,2	1,26
30 - 50 cm	1,98	0,46	0,05	0,57	3,5	8,1	88,4	4,4	1,26*

Tab. A.10: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	Fe _d	Al _d	Mn _d	Corg %	Körnung			pH	Lagerungs- dichte [g/cm ³]
	[g/kg]	[g/kg]	[g/kg]		(T %)	(U %)	(S %)		
<u>Boltenhagen</u>									
0 - 5 cm	2,81	0,61	0,25	1,29	4,8	15,3	79,9	4,5	---
5 - 10 cm	2,83	0,63	0,25	1,11	4,6	12,2	83,2	4,4	1,52*
10 - 20 cm	2,92	0,67	0,25	0,74	4,7	14,0	81,3	4,5	1,52
20 - 30 cm	2,88	0,65	0,25	0,64	4,2	12,2	83,7	4,6	1,43
30 - 50 cm	2,78	0,64	0,20	0,41	3,3	12,4	84,3	4,8	1,43*
<u>Kerkow</u>									
0 - 5 cm	2,33	0,12	0,11	2,53	12,4	18,9	68,7	6,9	1,44*
5 - 10 cm	2,97	0,16	0,15	1,73	11,4	24,7	63,9	7,0	1,44
10 - 20 cm	3,15	0,17	0,15	1,08	11,9	21,5	66,5	7,1	1,63
20 - 30 cm	2,97	0,14	0,12	0,56	9,6	28,2	62,2	7,3	1,67
30 - 50 cm	3,05	0,13	0,10	0,46	9,0	28,1	62,9	7,4	1,67*
<u>Ankershagen</u>									
0 - 5 cm	3,43	0,43	0,19	4,57	9,8	15,9	74,3	5,2	---
5 - 10 cm	3,66	0,49	0,15	2,79	9,5	17,5	73,0	4,5	(1,34)
10 - 20 cm	3,73	0,49	0,24	1,39	8,4	16,9	74,7	4,3	(1,47)
20 - 30 cm	3,75	0,47	0,25	0,99	7,9	16,9	75,2	4,4	---
30 - 50 cm	3,23	0,40	0,18	0,64	6,4	17,2	76,4	4,6	---
<u>Lehnmühle</u>									
0 - 5 cm	8,52	1,74	0,45	3,88	16,4	38,9	44,7	4,3	(1,36)*
5 - 10 cm	9,46	1,90	0,58	2,02	15,3	33,5	51,2	4,2	(1,36)
10 - 20 cm	8,82	1,76	0,54	1,58	14,0	37,0	49,0	4,4	(1,37)
20 - 30 cm	8,51	1,82	0,42	0,81	11,1	34,6	54,3	4,6	---
30 - 50 cm	7,00	1,46	0,28	0,38	8,3	29,7	62,0	4,8	---
<u>Gohre</u>									
0 - 5 cm	2,25	1,16	0,14	12,94	25,9	33,6	40,5	7,1	0,85*
5 - 10 cm	2,20	1,11	0,14	12,00	24,1	34,9	41,0	7,2	0,85
10 - 20 cm	2,38	1,18	0,15	11,68	26,4	34,3	39,3	7,3	0,98
20 - 30 cm	2,55	1,31	0,14	6,86	23,4	40,6	36,0	7,4	0,88
30 - 50 cm	2,64	2,07	0,09	12,31	20,3	39,6	40,1	7,5	0,88*
<u>Puch</u>									
0 - 5 cm	7,14	1,16	0,77	3,95	23,1	66,1	10,8	5,7	1,25
5 - 10 cm	7,36	1,21	0,85	2,84	22,7	66,5	10,8	5,3	1,17
10 - 20 cm	8,02	1,29	0,99	1,67	23,6	65,7	10,6	5,3	1,44
20 - 30 cm	9,95	1,49	0,69	0,56	27,4	62,8	9,8	5,4	1,49
30 - 50 cm	7,69	1,24	0,95	1,03	22,1	67,0	10,9	5,4	1,49*

Tab. A.10: (fortgesetzt)

Ort/Tiefe	Fe _d	Al _d	Mn _d	Corg	Körnung			pH	Lagerungs- dichte [g/cm ³]
	[g/kg]	[g/kg]	[g/kg]	%	(T %)	(U %)	(S %)		
<u>Fürstentzell</u>									
0 - 5 cm	6,01	0,94	0,70	2,69	17,9	35,4	46,7	4,5	1,13
5 - 10 cm	5,83	0,87	0,65	1,53	17,3	50,6	32,0	4,6	(1,08)
10 - 20 cm	6,11	0,82	0,87	1,27	17,6	38,3	44,1	4,6	(1,22)
20 - 30 cm	5,15	0,62	0,76	0,95	17,4	39,7	42,9	4,8	---
30 - 50 cm	6,47	0,37	0,42	0,73	21,7	38,6	39,6	5,1	---
<u>Stötten</u>									
0 - 5 cm	16,28	2,02	0,96	6,32	53,6	41,8	4,6	5,9	---
5 - 10 cm	17,06	2,15	1,08	4,38	52,6	42,2	5,2	6,0	1,02
10 - 20 cm	17,08	2,22	1,16	2,85	49,0	43,3	7,7	6,3	---
20 - 30 cm	19,88	2,57	0,93	1,82	59,6	35,1	5,3	6,5	---
30 - 50 cm	25,30	3,16	0,68	1,35	18,4	47,9	33,7	6,9	---
<u>Kempten</u>									
0 - 5 cm	11,59	1,47	1,19	6,32	28,1	39,1	32,7	5,6	0,91
5 - 10 cm	12,48	1,58	1,45	3,95	28,6	37,4	34,0	5,5	---
10 - 20 cm	11,42	1,54	1,28	2,62	28,4	36,1	35,5	5,5	---
20 - 30 cm	9,55	2,28	0,88	1,71	28,0	30,9	41,2	5,5	---
30 - 50 cm	12,00	1,55	1,23	1,17	28,1	32,8	39,1	6,0	---
<u>Trier</u>									
0 - 5 cm	8,85	0,78	0,83	2,73	16,4	32,0	51,6	5,1	---
5 - 10 cm	8,81	0,79	0,93	2,59	18,0	31,4	50,5	5,1	---
10 - 20 cm	10,10	0,87	1,05	1,87	18,6	34,4	46,9	5,1	---
20 - 30 cm	11,70	0,95	1,21	1,49	16,7	28,8	54,5	5,9	---
30 - 50 cm	12,33	0,92	1,32	0,83	17,8	27,3	54,8	5,7	---
<u>Schauinsland</u>									
0 - 5 cm	6,78	2,55	0,40	5,18	19,7	26,4	53,9	4,8	1,04
5 - 10 cm	6,55	2,39	0,42	4,69	19,0	28,0	53,1	4,7	0,91
10 - 20 cm	6,70	2,46	0,45	3,80	18,1	26,4	55,6	4,7	---
20 - 30 cm	9,32	2,25	0,88	2,69	14,7	30,6	54,7	4,7	---
30 - 50 cm	8,21	3,43	0,52	2,27	12,2	35,2	52,6	4,7	---

Tab. A.11: Übersicht über die von verschiedenen Autoren an vergleichbaren Orten in Deutschland ermittelten jährlichen Depositoraten von ^{129}I und mittleren $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in unterschiedlichen Zeiträumen.

Ort	Material	Quelle	Jahr	Entfernung Nordsee (km)	^{129}I in $10^{-12} \text{ g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
Westerland	Niederschlag	[1]	1994-1995	1,5	1010	$(7,4 \pm 3,0) \cdot 10^{-7}$
Schleswig	Niederschlag	[3]	2011-2012	40	947 - 1216	$(4,2 \pm 0,3) \cdot 10^{-7}$
Norderney	Niederschlag	[2]	1997-2002	0,1	1224 - 3091	$(7,5 \cdot 1,3^{\pm 1}) \cdot 10^{-7}$
Norderney	Niederschlag	[3]	2011-2012	0,1	1476 - 1551	$(5,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-7}$
Schauinsland*	Niederschlag	[1]	1994-1995	515	1630	$(9,7 \pm 3,9) \cdot 10^{-7}$
Lahr*	Niederschlag	[3]	2011-2012	490	127 - 144	$(1,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$
Buer-Ostenwalde	Niederschlag	[2]	1997-2001	180	230 - 1163	$(4,5 \cdot 1,6^{\pm 1}) \cdot 10^{-7}$
Siemen	Niederschlag	[2]	1997-2001	180	184 - 964	$(3,3 \cdot 1,7^{\pm 1}) \cdot 10^{-7}$
Waldhof	Niederschlag	[1]	1994-1995	175	780	$(6,0 \pm 2,5) \cdot 10^{-7}$
Langenhagen	Niederschlag	[3]	2011-2012	170	251 - 325	$(2,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$
Seesen	Niederschlag	[2]	1997-2000	230	184 - 1117	$(4,0 \cdot 1,7^{\pm 1}) \cdot 10^{-7}$
Essen	Niederschlag	[3]	2011-2012	210	542 - 699	$(2,0 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$
*Höhenunterschied: 1205 m - 170 m		[1]	Krupp & Aumann (1999)			
		[2]	Michel et al. (2004)			
		[3]	diese Arbeit			

Tab. A.12: Abschätzung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, bei denen in Deutschland das Erreichen des Dosisgrenzwertes für die Schilddrüse zu erwarten ist, und die daraus resultierenden Werte der effektiven Dosis [aus: Michel et al. 2004].

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

Anhang B

Abbildungen

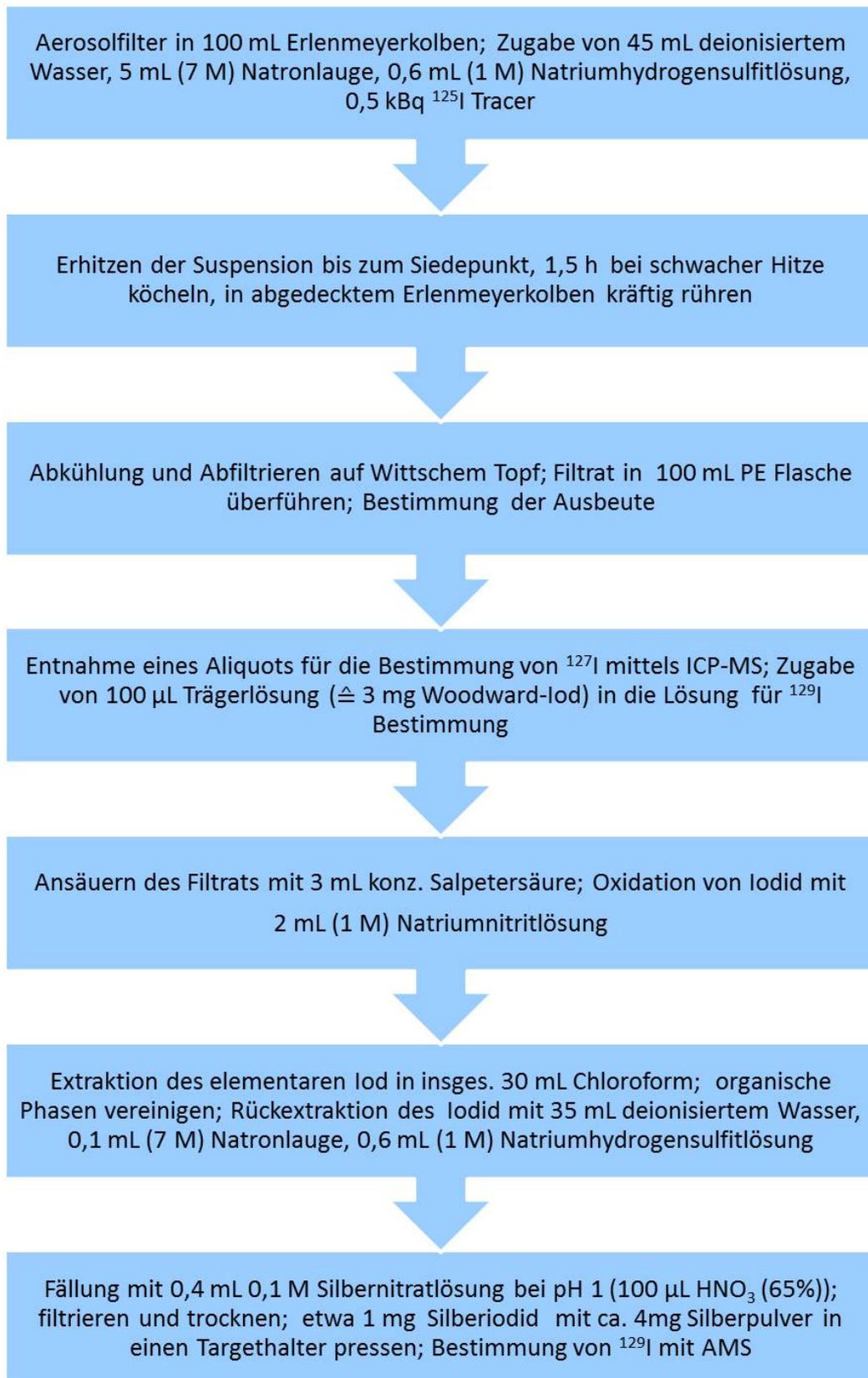


Abb. B.1: Schematische Darstellung der Aufbereitung von Aerosolfilter-Proben für die AMS-Messung.

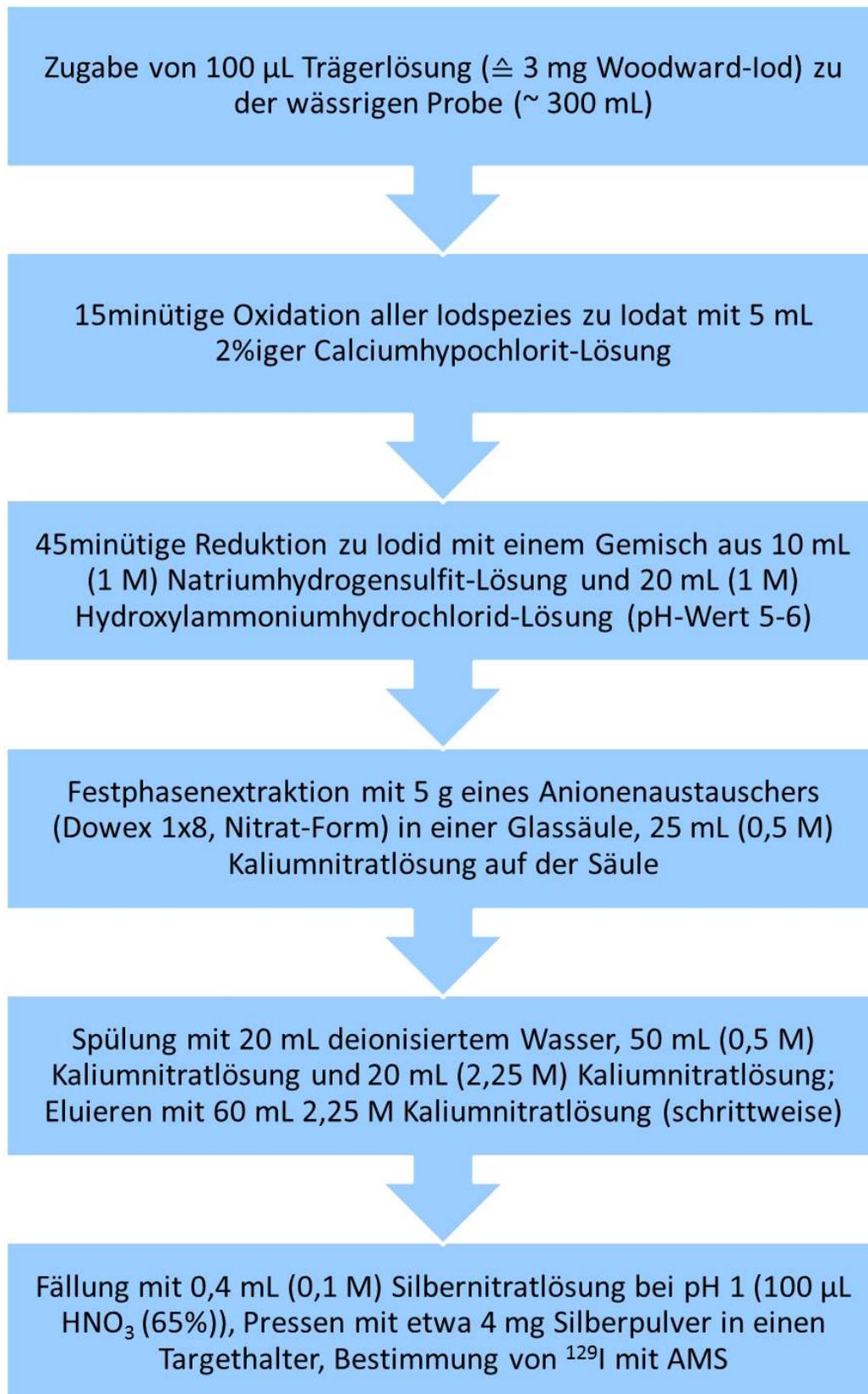


Abb. B.2: Schematische Darstellung der Aufbereitung von Wasser-Proben für die AMS-Messung.

**Deutscher Wetterdienst
Radioaktivitätsmessstelle Schleswig**
Januar 12

Tag	Datum	ND-Art (R/S/H/G)	Synop RR-Höhe mm	Wanne1 5% Volumen für I-129 in ml	Wanne1 Volumen Trocken- deposition in ml	Wanne1 10% von RR für Tritium in ml	Wanne1 Gesamtmenge Betamessung max. 1000ml	Wanne2 Gesamtmenge Monatsprobe in ml
Sonntag	01.	R	11,4	451		1140	1000	9010
Montag	02.	R	0,8	33		80	547	660
Dienstag	03.	R	20,6	742		2060	1000	14840
Mittwoch	04.	RS	19,2	670		1920	1000	13400
Donnerstag	05.	R	4,1	144		410	1000	2880
Freitag	06.	R	2,8	108		280	1000	2150
Samstag	07.	RS	8,1	290		810	1000	5800
Sonntag	08.	T	0,0	25	500	0	0	0
Montag	09.	RS	5,5	210		550	1000	4200
Dienstag	10.	R	1,0	39		100	641	780
Mittwoch	11.	R	0,4	12		40	188	240
Donnerstag	12.	R	3,5	133		350	1000	2650
Freitag	13.	RS	0,4	15		40	245	300
Samstag	14.	T	0,0	25	500	0	0	0
Sonntag	15.	R	0,2	8		20	132	160
Montag	16.	R	1,6	56		160	904	1120
Dienstag	17.	T	0,0	25	500	0	0	0
Mittwoch	18.	R	7,0	270		700	1000	5400
Donnerstag	19.	R	5,4	198		540	1000	3960
Freitag	20.	RSG	1,1	40		110	650	800
Samstag	21.	RSG	9,4	340		940	1000	6800
Sonntag	22.	R	0,5	19		50	302	370
Montag	23.	T	0,0	25	500	0	0	0
Dienstag	24.	T	0,0	25	500	0	0	0
Mittwoch	25.	T	0,0	25	500	0	0	0
Donnerstag	26.	S	0,9	18		90	243	350
Freitag	27.	S	0,4	18		40	293	350
Samstag	28.	T	0,0	25	500	0	0	0
Sonntag	29.	S	0,1	6		10	95	110
Montag	30.	T	0,0	25	500	0	0	0
Dienstag	31.	T	0,0	25	500	0	0	0
Gesamtsumme			104,4	4042				76330

Niederschlag als: Trockendep.=T, Regen=R, Graupel=G, Schnee=S u. Tau=Tau

RA_SG(MR) 02.01.2012

Monatsniederschlag_Januar_2012

Abb. B.3: Beispiel für ein Datenerfassungsblatt für Niederschlagsproben (DWD Radioaktivitätsmessstelle Schleswig).

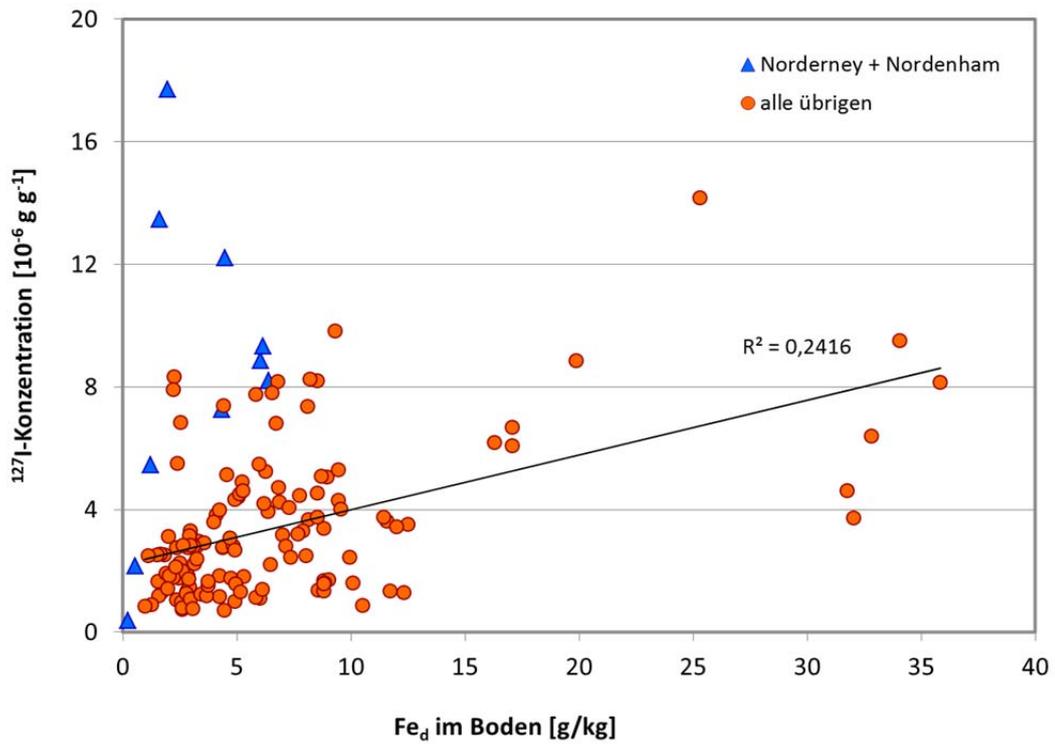


Abb. B.6: Konzentration von ^{127}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Eisen.

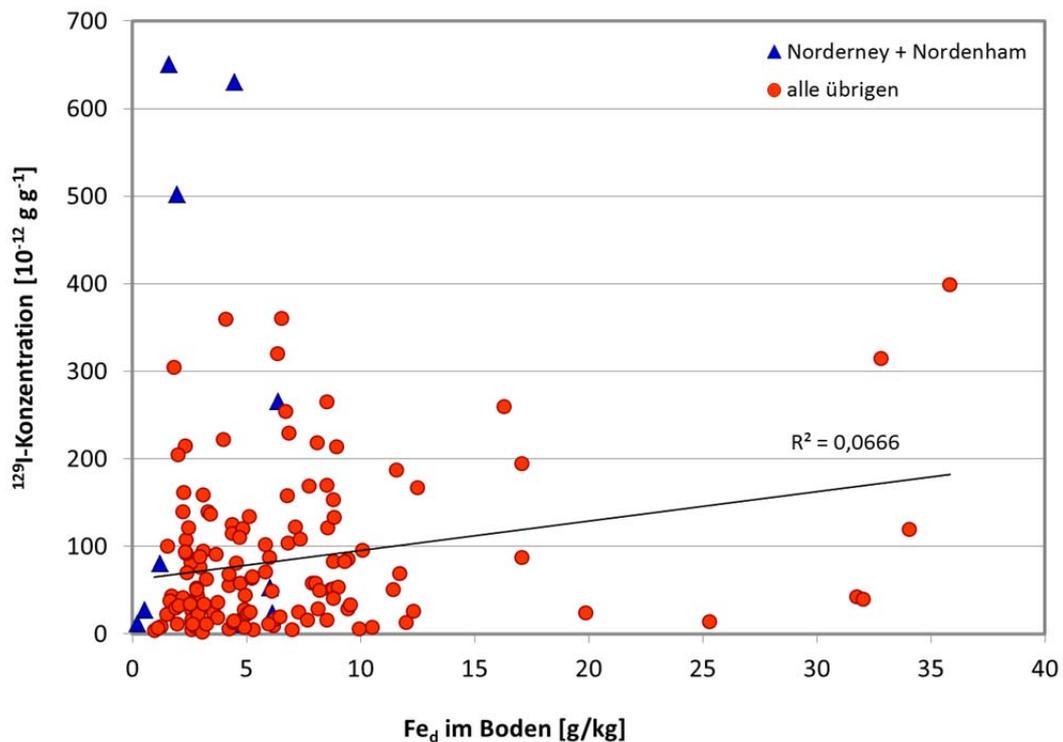


Abb. B.7: Konzentration von ^{129}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Eisen.

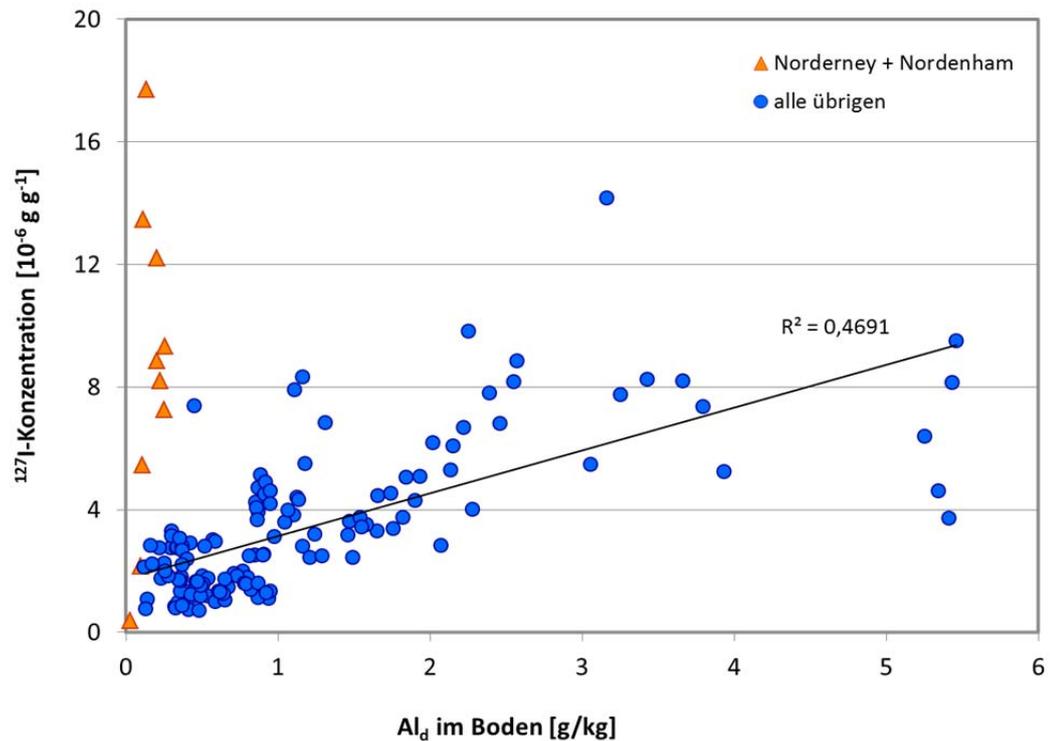


Abb. B.8: Konzentration von ^{127}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Aluminium.

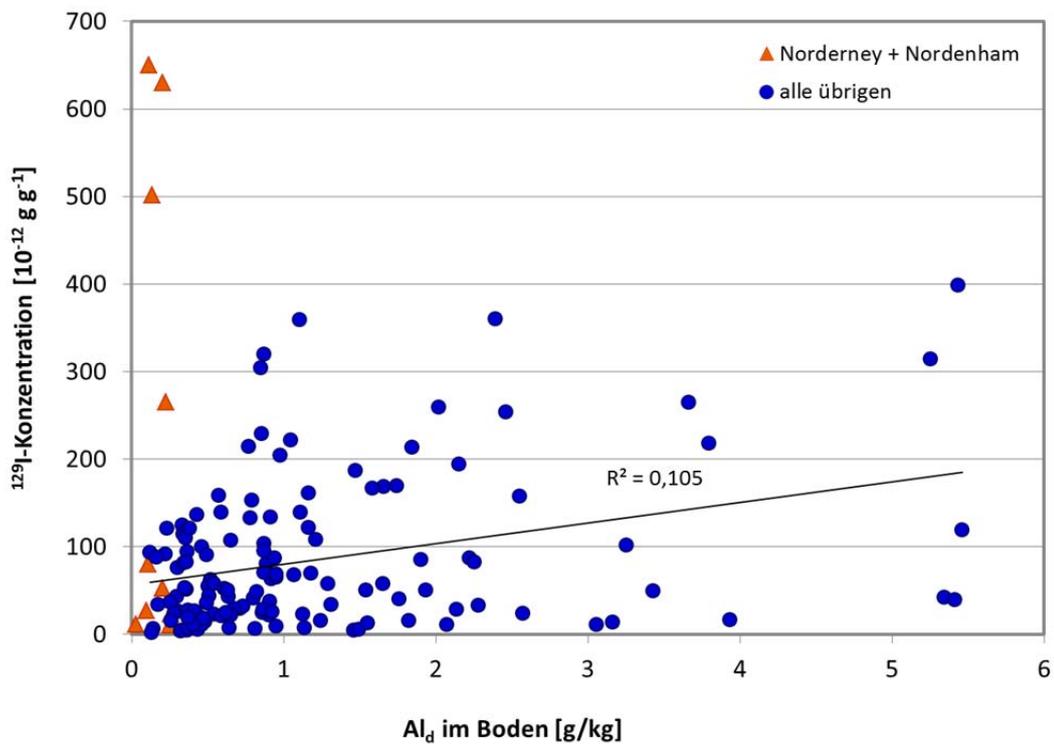


Abb. B.9: Konzentration von ^{129}I im Boden bis 50 cm Tiefe in Abhängigkeit von dessen Gehalt an dithionitlöslichem Aluminium.



Abb. B.10: Einzugsgebiete der großen Fließgewässer in Deutschland [Quelle: Duden; ©Bibliographisches Institut Berlin].

Anhang C

Aerosolsammlung in Braunschweig

Ein Vergleich der beiden verwendeten Sammelsysteme für luftgetragene Partikel auf dem Gelände der PTB im Zeitraum Juli/August 2012 ergab große Unterschiede für die Gehalte an ^{127}I und ^{129}I (Abb. C.2 und C.3), und auch für die resultierenden $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse (Abb. C4). Während die ^{127}I -Konzentrationen der anlysierten Glasfaser-Filter zum Teil deutlich höher lagen als die der Polypropylen-Filter, nämlich im Mittel bei $(2,9 \pm 0,7) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ gegenüber $(0,66 \pm 0,04) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$, war die Situation für die ^{129}I -Konzentrationen tendenziell umgekehrt: die gefundenen Werte lagen für die Glasfaser-Filter im Schnitt etwas niedriger als für die der Polypropylen-Filter, und zwar bei $(0,06 \pm 0,02) \cdot 10^{-15} \text{ g m}^{-3}$ gegenüber $(0,20 \pm 0,03) \cdot 10^{-15} \text{ g m}^{-3}$.

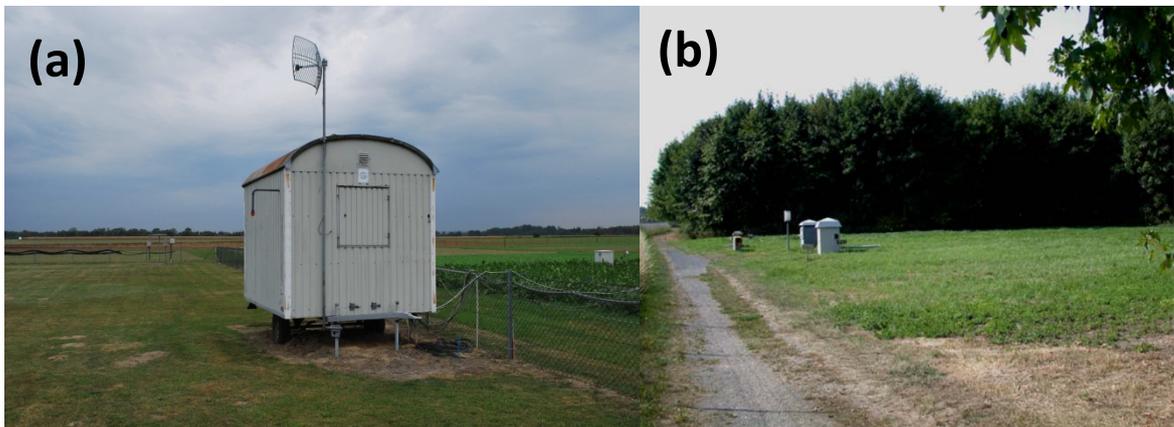


Abb. C.1: Luftstaubsammlung in Braunschweig: (a) Iod-Sammler im Bauwagen (Agrar-Meteorologie, DWD), (b) High Volume Sampler (PTB).

Verglichen mit den Ergebnissen von Langenhagen für die Sammlung für August 2012 ($(4,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-9} \text{ g m}^{-3}$ für ^{127}I und $(0,14 \pm 0,01) \cdot 10^{-15} \text{ g m}^{-3}$ für ^{129}I) ergibt sich eine größere Übereinstimmung zwischen den Glasfaser-Filtern aus Langenhagen und Braunschweig als zwischen den verschiedenen, am selben Ort verwendeten Filtern. Durch die Unterschiede bei den Konzentrationen fielen auch die Isotopenverhältnisse sehr unterschiedlich aus. Diese waren für die Proben aus dem High Volume Sampler durchgehend um eine Größenordnung höher als für die Proben aus der Iodfalle. Auch hier ist die Übereinstimmung des Wertes von August 2012 aus Langenhagen ($(30,5 \pm 2,0) \cdot 10^{-9}$) mit dem Ergebnis der Glasfaser-Filter aus Braunschweig gut.

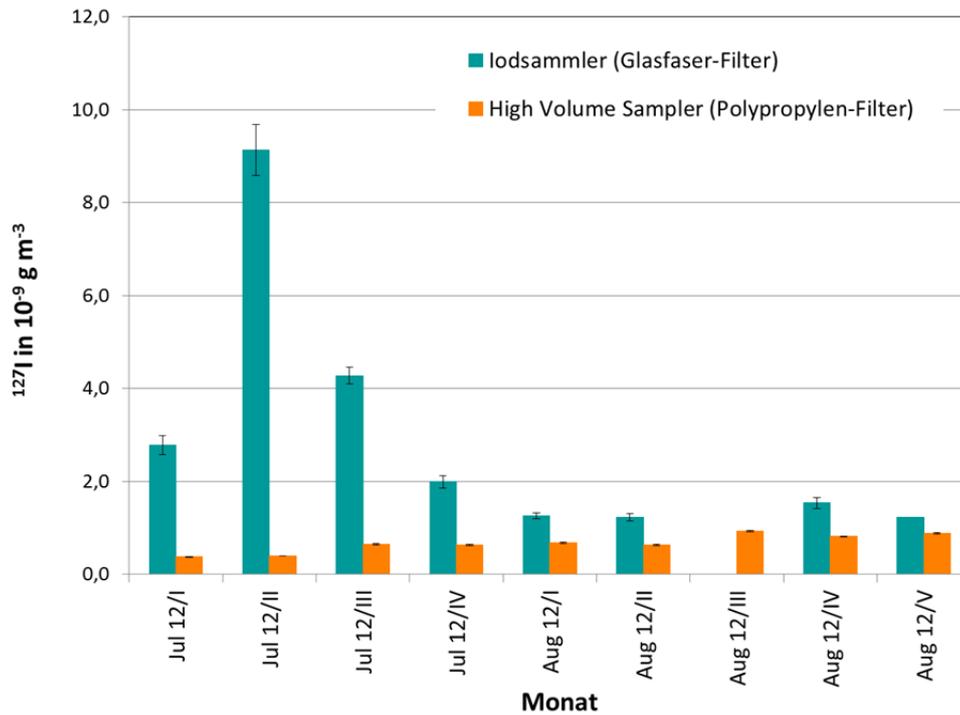


Abb. C.2: Aerosolgebundene ¹²⁷I-Konzentrationen der Luft an der PTB-Messstation in Braunschweig (07/2012 – 08/2012).

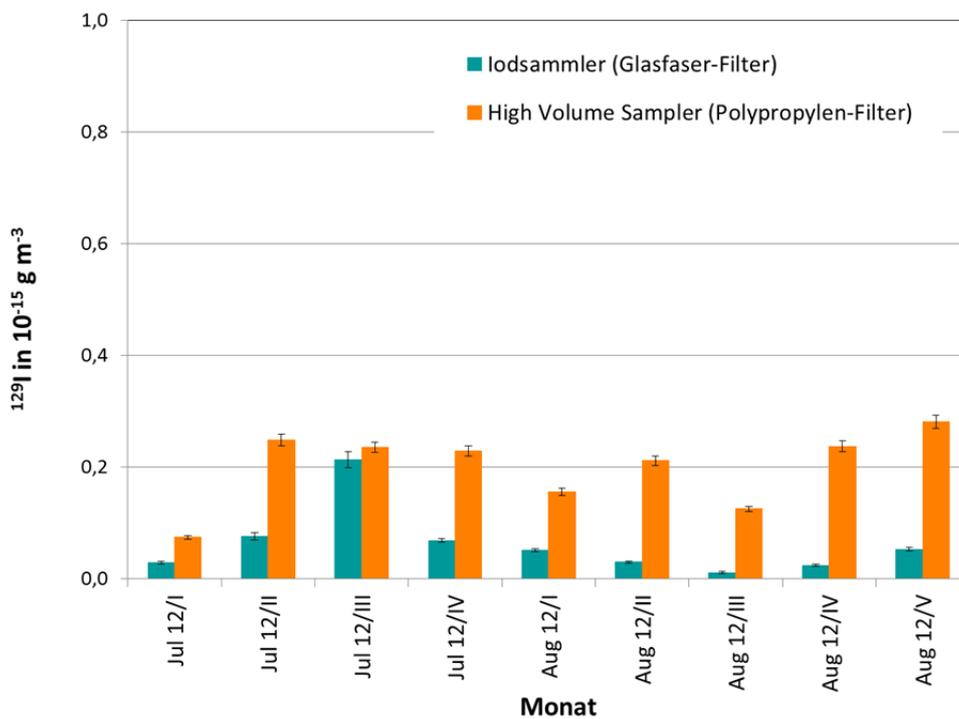


Abb. C.3: Aerosolgebundene ¹²⁹I-Konzentrationen der Luft an der PTB-Messstation in Braunschweig (07/2012 – 08/2012).

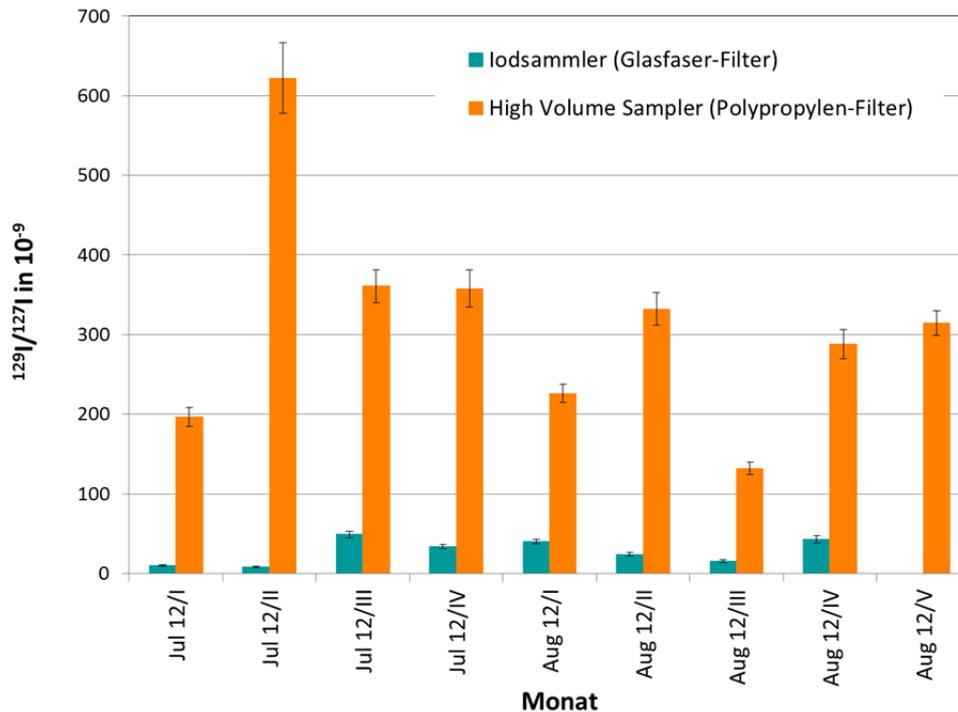


Abb. C.4: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Luftfilterproben an der PTB-Messstation in Braunschweig(07/2012 – 08/2012).

Eine mögliche Erklärung für die voneinander abweichenden Ergebnisse aus Braunschweig könnte in der unterschiedlichen Sammeleffizienz der Filtermaterialien liegen [Markert 1994]. Die beiden Sammelgeräte arbeiten mit unterschiedlichen Durchflussgeschwindigkeiten und –mengen und mit verschiedenen Filtergrößen und -arten. Das könnte zumindest einen Unterschied in der gesammelten Menge bewirken. Unklar bleibt jedoch die Differenz in den gefundenen Isotopenverhältnissen. Diese sollten von der Partikelgröße und –menge unabhängig sein. Da die Fragen nach der Ursache bisher nicht zufriedenstellend beantwortet werden konnte, wurden für den Vergleich der Messstationen die Ergebnisse aus Langenhagen anstelle der aus Braunschweig verwendet.

Markert, B. (1994): Environmental sampling for trace analysis. VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, New York, 524 S.

