

Abschlussbericht zum Projekt

02 NUK 030D

**Sensitivität von Trinkwasserreservoiren in Bezug auf
den Eintrag von künstlichen Radionukliden**

Gefördert durch das
Bundesministerium für Bildung und Forschung

Förderzeitraum:
01.06.2013 – 31.05.2017

Leibniz Universität Hannover:

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

Wissenschaftliche Mitarbeiter:

Dr. B. Riebe, Dr. S. Bister

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 Sensitivität von Trinkwasserreservoirn in Bezug auf den Eintrag von künstlichen Radionukli- den		
3b. Titel der Publikation		
4a. Autoren des Berichts (Name, Vorname(n)) Riebe, Beate; Bister, Stefan	5. Abschlussdatum des Vorhabens 31. Mai 2017	6. Veröffentlichungsdatum
4b. Autoren der Publikation (Name, Vorname(n))	7. Form der Publikation	
8. Durchführende Institution(en) (Name, Adresse) Leibniz Universität Hannover Institut für Radioökologie und Strahlenschutz Herrenhäuser Str. 2 D – 30419 Hannover	9. Ber.Nr. Durchführende Institution	
	10. Förderkennzeichen 02 NUK 030D	
	11a. Seitenzahl Bericht 67	
	11b. Seitenzahl Publikation	
13. Fördernde Institution (Name, Adresse) Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53107 Bonn	12. Literaturangaben 157	
	14. Tabellen 10	
	15. Abbildungen 25	
16. Zusätzliche Angaben		
17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum)		
18. Kurzfassung Die Freisetzung von Radionukliden aus kerntechnischen Anlagen im Rahmen zulässiger Emissionen führt zu einer diffusen Belastung von Atmosphäre, Ozeanen, Binnengewässern und Böden. Sie gelangen mit dem Niederschlag in die Oberflächengewässer, werden transportiert und infiltrieren das Grundwasser. Die Hauptquelle für anthropogene Radionuklide in Westeuropa sind die Wiederaufarbeitungsanlagen. Die Sensitivität von Trinkwasserreservoirn in Bezug auf den Eintrag von künstlichen Radionukliden wurde am Beispiel des Fuhrberger Feldes untersucht. Dazu wurden Untersuchungen zu Eintrag und Akkumulation von Tritium, ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{129}I und Plutonium in Grundwasser und Böden durchgeführt und die ausgewählten Radionuklide in die zugehörigen Stoffkreisläufe eingeordnet. Die gemessenen Aktivitäten für im Grundwasser lagen im Rahmen dessen, was für unkontaminierte Standorte erwartet wird. In der Humusaufgabe der untersuchten Waldstandorte lagen die Aktivitäten von ^{90}Sr , ^{137}Cs und ^{129}I mindestens eine Größenordnung höher als in unterliegenden Mineralböden, Plutoniumisotope konnten nur für die Humusaufgabe nachgewiesen werden. Die Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung wird als gering eingestuft, die Gefahr einer Akkumulation der untersuchten Radionuklide im Grundwasser ist jedoch nicht erkennbar.		
19. Schlagwörter ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{129}I , Plutonium, atmosphärische Einträge, Sensitivität, Trinkwasserreservoir		
20. Verlag	21. Preis	

Document Control Sheet

1. ISBN or ISSN	2. Type of Report Final Report	
3a. Report Title Sensitivity of drinking water reservoirs with regard to input of man-made radionuclides		
3b. Title of Publication		
4a. Author(s) of the Report (Family Name, First Name(s)) Riebe, Beate; Bister, Stefan	5. End of Project 05/2017	
	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 030D	
	11a. No. of Pages Report 67	
	11b. No. of Pages Publication	
	12. No. of References 157	
13. Sponsoring Agency (Name, Address) Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53107 Bonn	14. No. of Tables 10	
	15. No. of Figures 25	
	16. Supplementary Notes	
17. Presented at (Title, Place, Date)		
18. Abstract Liquid and gaseous releases from nuclear facilities in permissible amounts result in a continuous accumulation of radionuclides in the environment. Radionuclides washed out from the atmosphere by precipitation may infiltrate the soil and enter the groundwater. Main source of anthropogenic radionuclides in Western Europe are the nuclear fuel reprocessing plants. The sensitivity of the Fuhrberger Feld aquifer as a typical drinking water reservoir in Northern Germany was investigated with regard to input of man-made radionuclides. Measurements of ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{129}I , and plutonium isotopes were performed, and the selected radionuclides were integrated into the concerning biogeochemical cycles. Activity concentrations determined for the groundwater samples were in the range of values expected for uncontaminated sites. For ^{90}Sr , ^{137}Cs , and ^{129}I activity concentrations were at least one order of magnitude higher for the forest humus layers than for the underlying mineral soils. Plutonium isotopes could only be detected in the humus layer. The protective function of the soil covering the Fuhrberger Feld aquifer was rated low. However, a potential hazard of radionuclides accumulating in the groundwater could not be identified.		
19. Keywords ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{129}I , plutonium, atmospheric input, sensitivity, drinking water reservoir		
20. Publisher	21. Price	

Inhalt:

I. Teil - Kurzbeschreibung

I.1. Aufgabenstellung.....	3
I.2. Voraussetzungen unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde.....	3
I.3. Planung und Ablauf des Vorhabens.....	4
I.4. Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde....	4
I. 5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen.....	7
I.6. Literatur zu Teil 1.....	7

II. Teil - Eingehende Darstellung

II.1. Erzielte Ergebnisse.....	11
II.1.1. Untersuchungsgebiete.....	11
II.1.2. Stoffkreisläufe.....	14
II.1.3. Probenahme, -vorbereitung und –messung.....	27
II.1.3.1. Probenahme und –vorbereitung.....	27
II.1.3.2. Analysen.....	29
II.1.4. Radionuklide im Fuhrberger Feld.....	33
II.1.4.1 Tritium.....	33
II.1.4.2. ^{14}C	36
II.1.4.1 ^{90}Sr	37
II.1.4.2. ^{137}Cs	39
II.1.4.1 ^{129}I	41
II.1.4.2. Plutonium-Isotope.....	43
II 1.5. Sensitivität von Grundwasserleitern.....	45
II.2. Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises.....	48
II.3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit.....	48
II.4. Verwertbarkeit der Ergebnisse.....	48
II. 5. Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen.....	48
II.6. Erfolgte und geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses.....	48
II.7. Anhang.....	51
II.8. Literatur zu Teil 2.....	58

I. Teil 1 - Kurzbeschreibung

I.1. Aufgabenstellung

Die Freisetzung von Radionukliden aus kerntechnischen Anlagen im Rahmen zulässiger Emissionen führt zu einer diffusen Belastung von Atmosphäre, Ozeanen, Binnengewässern und Böden. Sie gelangen mit dem Niederschlag in die Oberflächengewässer, werden transportiert und infiltrieren das Grundwasser. Die Hauptquelle für anthropogene Radionuklide in Westeuropa sind die Wiederaufarbeitungsanlagen. Hier stellt sich die Frage nach den langfristigen lokalen Auswirkungen für die Umwelt vor dem Hintergrund, dass der generelle Schutz der Umwelt im Strahlenschutz an Bedeutung zunimmt. Im Rahmen des vom BMBF für vier Jahre (01.06.2013 – 31.05.2017) geförderten Verbundprojektes „Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen (TransAqua)“ wurde das Arbeitspaket 2.2., auf das sich der vorliegende Bericht bezieht, durchgeführt. Es hatte zum Ziel, die Sensitivität von Trinkwasserreservoirs in Bezug auf den Eintrag von künstlichen Radionukliden zu untersuchen.

Vorgesehen war, auf der Grundlage von experimentellen Ergebnissen Modelle von Trinkwassergewinnungsgebieten (Beispiele: Fuhrberger Feld, Westharztaiperron) zu erstellen und eine Langzeitsicherheitsanalyse der Entwicklung durchzuführen. Neben der Zusammenstellung von Kenntnissen über Stoffkreisläufe (Stoffflüsse, Inventare, Austauschzeiten, ggf. Reaktionen) der chemischen Elemente H, C, Sr, I, Cs, Pu sollten die Einordnung der Radionuklide ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ in diese Kreisläufe und die Prüfung der Sensitivität von Reservoirs in Hinblick auf Radionuklideinträge und -akkumulationen erfolgen, sowie auch die Prüfung von Strahlenschutzaspekten und Wirkungsketten, Aufzeigen von Kenntnisdefiziten für die Beurteilung der Nuklidausbreitungen und Ableiten weiteren Untersuchungsbedarfs.

I.2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Die Untersuchung des Eintrags von Radionukliden ins Grundwasser setzte den Zugang zu Proben aus unterschiedlichen Tiefen im Boden voraus. Dies war für das Fuhrberger Feld dadurch gegeben, dass vorhandene Multilevel-Messstellen der BGR (Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover) und Grundwasser-Messstellen des Wasserversorgers 'enercity' für die Probengewinnung genutzt werden konnten. Der Zugang zu den Multilevel-Messstellen wurde dabei durch einen Mitarbeiter des LBEG (Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie, Hannover) gewährleistet, während die Grundwasser-Messstellen eigenständig beprobt werden konnten. Eigene Bohrungen waren im Projektbudget nicht vorgesehen.

Für die Aufbereitung der Proben bzw. die Entwicklung spezieller Aufbereitungs- und Messverfahren für einige der ausgewählten Radionuklide wurde die technische Ausstattung des Isotopenlabors am IRS genutzt. Dabei konnte für die Bearbeitung einiger Aufgaben auf Erfahrungen aus bisherigen Arbeiten zurückgegriffen werden. Die Bestimmung der Isotopenverhältnisse von $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ und der Plutoniumisotope wurden durch die Mitarbeiter des Labors für Ionenstrahlphysik der ETH Zürich durchgeführt.

I.3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Die Planung und Durchführung der Untersuchungen gliederten sich in die unten aufgeführten Arbeitspakete aus dem Projektantrag. Änderungen ergaben sich in den Punkten AP-3 und AP-4. Die wesentlichen Gründe dafür lagen in Problemen bei der Probengewinnung und darin, dass die Bearbeitung der geplanten Aufgaben in AP-4 aufgrund ihrer Komplexität mehr Zeit in Anspruch nahm, als es in der Planungsphase des Projekts vorgesehen war. Außerdem musste in der Folge auf die Anpassung eines der Verfahren verzichtet werden. Weiterhin konnten für die Durchführung von AP-6 nicht ausreichend genug Daten gewonnen werden, so dass hier nur eine ungefähre Abschätzung möglich war.

AP-1: Zusammenstellung der Kenntnisse über Stoffkreisläufe (Stoffflüsse, Inventare, Austauschzeiten, Reaktionen)

AP-2: Organisation der Probenahme, Einrichtung der Messstellen

AP-3: Entnahme von Gewässer-, Sediment- und Bodenproben

AP-4: Vorbereitung der Proben für die Analyse (radiochemische Trennung etc.)

AP-5: Messungen (LSC/AMS/ICP-MS/Gammaspektrometrie), Auswertung der Ergebnisse

AP-6: Modellierung, Langzeitsicherheitsanalyse

I.4. Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Etwa 70 % des Trinkwasserbedarfs in Deutschland werden durch die Entnahme von Grund- und Quellwasser gedeckt. Im norddeutschen Flachland werden hierfür zum großen Teil Porengrundwasserleiter in quartären Lockersedimenten genutzt, zu denen auch das Wassergewinnungsgebiet Fuhrberger Feld gehört. Ein kleinerer Teil des Bedarfs wird aus Talsperren gedeckt. Bei letzteren ist die Gefährdung durch Einträge von Radionukliden und anderen Schadstoffen über den Luftpfad unmittelbar, weil sie mit der Atmosphäre in direktem Kontakt stehen. Bei Grundwasserleitern hängt die Gefährdung im Wesentlichen von der Tiefe der Grundwasseroberfläche und dem den Aquifer überlagernden Material ab.

Fuhrberger Feld: Das Fuhrberger Feld wird seit 1910 für die Trinkwassergewinnung genutzt. Seit Anfang der 1960er Jahre werden dort intensiv bodenkundliche und hydrologische Untersuchungen durchgeführt [z.B. Lillich et al., 1973; van Berk & Hansen, 2006].

Anfang der 1970er Jahren rückte die Auswaschung von Nähr- und Schadstoffen in den Vordergrund der Untersuchungen, insbesondere der Eintrag von Nitrat [Böttcher et al., 1985; Strebel et al., 1988; Duijnsveld et al., 1993]. In den 1980er Jahren folgte eine Fokussierung auf die Versauerung von Waldböden und Grundwasser (Stichwort 'Saurer Regen'), denn inzwischen war die pH-Werte der Böden so weit abgesunken, dass auch Spurenmetalle gelöst und ins Grundwasser eingetragen wurden [Franken et al., 1997; Franken et al. 2009]. Heute steht der Eintrag von Pflanzenschutzmittel-Metaboliten im Vordergrund des Interesses [BGR, 2016].

In Bezug auf Einträge von ^{137}Cs wurden in der Folge des Reaktorunfalls von Chernobyl Untersuchungen zum Gehalt von Böden und Pflanzen auf einer Dauerbeobachtungsfläche unter Kiefernwald im Fuhrberger Feld durchgeführt [Fortmann & Meesenburg, 2009], die jedoch keine Analyse des Grundwassers einschloss.

Hinweise auf Gehalte an ^3H und ^{14}C im Grundwasser finden sich bei Artinger et al. (2000). Im Hinblick auf andere Radionuklide und deren Migrationsverhalten gibt es für das Fuhrberger Feld noch keine Daten. Hier muss für Vergleichswerte auf Untersuchungen auf ähnlichen Standorten zurückgegriffen werden.

Stoffkreisläufe: Abgesehen von Plutonium lässt sich jedes der in diesem Projekt untersuchten Radionuklide einem entsprechenden stabilen Isotop und dessen Stoffkreislauf zuordnen. Für die einzelnen Element-Nuklid-Paare standen naturgemäß infolge ihrer Eigenschaften und Bedeutung für die Umwelt Informationen in unterschiedlichem Umfang zur Verfügung.

Das ubiquitäre Element Wasserstoff/ ^3H , bzw. der globalen Wasserkreislauf, ist in den verschiedensten Bereichen Gegenstand der Forschung (Hydrologie, Hydrogeologie, Ozeanographie, Meteorologie etc.) [z.B. Geyh et al., 2000; Shiklomanov & Rodda, 2003; Trenberth et al., 2007; Oki et al. 2004]. Darüber hinaus wird Tritium als Tracer und zur Altersbestimmung verwendet [z.B. Sültenfuß, 1998; Povinec et al., 2010; Visser et al., 2013].

Das Gleiche trifft auf Kohlenstoff/ ^{14}C - bzw. den globalen Kohlenstoffkreislauf zu. Auch dieses Thema wird aus unterschiedlichen Perspektiven betrachtet (Ozeanographie, Geowissenschaften, Landwirtschaft etc.) [z.B. Houghton, 2007; Prentice et al. 2001], und ^{14}C ist für viele Bereiche ebenfalls ein wichtiger Umwelttracer [z.B. Levin & Hesshaimer, 2000; Cook et al., 2010].

Für Iod, das sehr biophil und für Säugetiere essentiell ist, kann ebenfalls auf Daten aus unterschiedlichen Bereichen zurückgegriffen werden [z.B. Preedy et al., 2009; Fuge, 2005; Amachi, 2008]. ^{129}I als Tracer ist ein weiteres Forschungsgebiet, das Aufschluss

über den globalen Iodkreislauf gibt [z.B. Snyder et al., 2010; Álvarez et al., 2015]. Wegen seiner langen Halbwertszeit wird eine Anreicherung für viele Umweltkompartimente beobachtet [vergl. Riebe et al., 2014 und Literatur darin].

Caesium und Strontium als Alkali- bzw. Erdalkalielemente, in mehr oder weniger großen Mengen geogen vorhanden [De Vos & Tarvainen, 2006], bilden Analoga zu den Pflanzen(Makro-)nährstoffen Kalium und Calcium. ^{137}Cs und ^{90}Sr werden daher in diesem Zusammenhang betrachtet [z.B. Pröhl et al., 2006; Baeza et al., 2005].

Plutonium kann in Ermanglung eines stabilen Isotops nicht in einen globalen Stoffkreislauf eingeordnet werden. Das einzige natürlicherweise vorhandene Isotop, ^{244}Pu , ist praktisch ausgestorben. Alle übrigen Pu-Isotope wurden durch anthropogene Aktivitäten in die Umwelt eingebracht. Erkenntnisse stammen daher aus Untersuchungen des Ausbreitungsverhaltens von atmosphärischen und flüssigen Freisetzungen [z.B. Kersting, 2013; Neu et al., 2010].

Radionuklide im Grundwasser: Allgemein finden sich nur wenige grundwasserbezogene Daten zu den in diesem Projekt untersuchten Nukliden. Die Mehrzahl der Veröffentlichungen für den Grundwasserbereich bezieht sich auf Vertreter der natürlichen Zerfallsreihen [z.B. Beyermann et al., 2010], bzw. auf Oberflächen- und Grundwasser aus der direkten Umgebung kontaminierter Standorte, wie z. B. von den Plutonium-Produktionsanlagen Savannah River, Hanford Site [Kaplan et al., 2014; Dai et al., 2002] und Mayak [Aleksandrova et al., 2008] oder Wiederaufarbeitungsanlagen für Kernbrennstoffe [Wallace et al. 2012].

Vulnerabilität: Die Empfindlichkeit von Grundwasserleitern gegenüber Verschmutzungen bzw. Stoffeinträgen ist keine direkt messbare Größe. Der Begriff 'aquifer pollution vulnerability' wurde Ende der 1960er Jahre geprägt. Im Folgenden wurden unterschiedliche Methoden entwickelt, die eine indirekte Quantifizierung der Vulnerabilität über aufsummierte oder ausgewählte Kenngrößen vornehmen und deren Ergebnis eine Klassifizierung ist, die meist in Kartenform dargestellt wird [Magiera, 2000]. Die Methoden lassen sich in Gruppen einteilen: Hydrogeologische Systembetrachtungen, Indexverfahren und Analogiemodelle, Punktbewertungs- und Matrixverfahren, mathematische Modelle und statistische Verfahren. Von diesen Ansätzen haben sich die Punktbewertungs- und Matrixverfahren in der Praxis durchgesetzt. Weit verbreitet sind z.B. die von der EPA (US Environmental Protection Agency) eingeführte Methode 'DRASTIC', 'GOD' [Foster et al., 2013], 'EPIK', 'PI' und die von den Geologischen Landesämtern konzipierte Methode (GLA) [Neukum, 2013]. Da sich die Datengrundlage zur Bewertung der Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung mit Hinsicht auf Qualität, Flächendeckung und Verfügbarkeit in den letzten Jahren wesentlich verbessert hat, schlagen Wirsing et al. (2015) vor, die bislang eigenständigen hydrogeologischen und bodenkundlichen Bewertungsverfahren zu kombinieren.

I.5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Die Gewinnung der in diesem Projekt untersuchten Proben wurde wesentlich durch die 'enercity'-Mitarbeiter der Wasserwerke Fuhrberg und Elze-Berkhof unterstützt, sowie durch die Mitarbeiter der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), Hannover, und das Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie (LBEG), Hannover.

Der Zugang zu Acker- und Waldflächen wurde von den betreffenden Landwirten und vom Forstamt Fuhrberg ermöglicht.

Weiterhin gab es Zusammenarbeit mit dem Institut für Bodenkunde, Leibniz Universität Hannover.

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

I.4. Literatur zu Teil 1

Aleksandrova, O.N.; Schulz, M.; Matthies, M. (2008): Estimation of the Influence of Humic Acid on Radionuclide Binding to Solid Residuals in Deposits of Radioactive Waste. *Water Air Soil Pollut.* **194**, 287-299.

Álvarez, F.; Reich, M.; Pérez-Fodich, A.; Snyder, G.; Muramatsu, Y.; Vargas, G.; Fehn, U. (2015): Sources, sinks and long-term cycling of iodine in the hyperarid Atacama continental margin. *Geochim. Cosmochim. Acta* **161**, 50-70.

Amachi, S. (2008): Microbial contribution to global iodine cycling: Volatilization, accumulation, reduction, oxidation, and sorption. *Microbes Environ.* **23** (4), 269-276.

Artinger, R.; Buckau, G.; Geyer, S.; Fritz, P.; Wolf, M.; Kim, J.I. (2000): Characterization of groundwater humic substances: Influence of sedimentary organic carbon. *Appl. Geochem.* **15**, 97-116.

Baeza, A.; Guillén, J.; Bernedo, J.M. (2005): Soil-fungi transfer coefficients: Importance of the location of mycelium in soil and of the differential availability of radionuclides in soil fractions. *J. Environ. Rad.* **81**, 89-106.

Beyermann, M.; Bünger, T.; Schmidt, K.; Obrikat, D. (2010): Occurrence of natural radioactivity in public water supplies in Germany: ^{238}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Po and gross α activity concentrations. *Rad. Prot. Dosimetry* **141** (1), 72-81.

BGR (2016): Transport und Verbleib von PSM-Metaboliten in der ungesättigten Zone und dem Grundwasser (MetaBoTiG). (Seite zuletzt aufgerufen am 13.12.2017) <https://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Boden/Projekte/Stoffeigenschaften-laufend/MetaBoTiG/metabotig.html?nn=1541164>

- Böttcher, J.; Strebel, O.; Duijnsveld, W.H.M.: (1985): Vertikale Stoffkonzentrationsprofile im Grundwasser eines Lockergestein-Aquifers und deren Interpretation. *Z. dt. Geol. Ges.* **136**, 543-552.
- Cook, G.T.; Scott, E.M.; Harkness, D.D. (2010): Radiocarbon as a tracer in the global carbon cycle. In: Fröhlich, K. (ed.), *Environmental Radionuclides: Tracers and timers of terrestrial processes*. Elsevier B.V., Amsterdam, p. 89-137.
- Dai, M.H.; Kelley, J.M.; Buesseler, K.O. (2002): Sources and migration of plutonium in groundwater at the Savannah River Site. *Environ. Sci. Technol.* **36**, 3690-3699.
- De Vos, W.; Tarvainen, T. (Chief-editors) (2006): *Geochemical Atlas of Europe (Part 2) - Interpretation of Geochemical Maps, Additional Tables, Figures, Maps, and Related Publications*. Geological Survey of Finland, <http://weppi.gtk.fi/publ/foregsatlas/part2.php> (zuletzt aufgerufen am 07.11.2017).
- Duijnsveld, W.H.M.; Strebel, O.; Böttcher, J. (1993): Prognose der Grundwasserqualität in einem Wassereinzugsgebiet mit Stofftransportmodellen (Stoffanlieferung an das Grundwasser, Stofftransport und Stoffumsetzungen im Grundwasser) Report UBA-FB 92-106, Umweltbundesamt, Berlin.
- Fortmann, H.; Meesenburg, H. (2009): Waldböden Niedersachsens – 20 Jahre nach Tschernobyl – Bodendauerbeobachtung in Niedersachsen. *GeoBerichte* 11, Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie, 56 S.
- Foster, S.; Hirata, R.; Andreo, B. (2013): The aquifer pollution vulnerability concept: aid or impediment in promoting groundwater protection? *Hydrogeology Journal* **21**, 1389-1392.
- Franken, G.; Puhmann, M.; Duijnsveld, W.H.M.; Böttcher, J.; Strebel, O. (1997): Auswirkungen saurere atmosphärischer Depositionen bei Nadelwald auf Stoffanlieferung an das Grundwasser und Stoffumsetzungen in einem Aquifer aus basenarmen Sanden. UBA Forschungsbericht 58 056, BGR-Archiv 116 159, 272 S.
- Franken, G.; Postma, D.; Duijnsveld, W.H.M.; Böttcher, J.; Molson, J. (2009): Acid groundwater in an anoxic aquifer: Reactive transport modelling of buffering processes. *Appl. Geochem.* **24**, 890–899.
- Fuge, R. (2005): Soils and Iodine Deficiency. In: Selinus, O.; Alloway, B.J.; Centeno, J.A.; Finkelman, R.B.; Fuge, R.; Lindh, U. et al. (eds.), *Essentials of medical geology: Impacts of the natural environment on public health*, Elsevier, Amsterdam, pp. 417-433.
- Geyh, M.; D'Amore, F.; Darling, G.; Paces, T.; Pang, T.; Šilar, J. (2000): Groundwater - saturated and unsaturated zone. *Environmental Isotopes in the Hydrological Cycle, Principles and Applications*, Vol. 4, IAEA, Wien, S. 311-424.
- Houghton, R.A. (2007): Balancing the Global Carbon Budget. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.* **35**, 313-347.
- 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.
- Kersting, A.B. (2013): Plutonium Transport in the Environment. *Inorg. Chem.* **52**, 3533-3546.

- Levin, I.; Heshaimer, V. (2000): Radiocarbon – a unique tracer of global carbon cycle dynamics. *Radiocarbon* **42** (1), 69-80.
- Lillich, W., Kuckelkorn, K.F., Hofmann, W. (1973): Untersuchungen zum Grundwasserhaushalt im repräsentativen Lockersteinsgebiet Fuhrberger Feld bei Hannover - Bilanzjahre 1967 und 1968. Beihefte zum Geologischen Jahrbuch, Heft 107, Hannover, 67 S.
- Magiera, P. (2000): Methoden zur Abschätzung der Verschmutzungsempfindlichkeit des Grundwassers. *Grundwasser* **5** (3), 103-114.
- Neu, M.P.; Goff, G.S.; Runde, W. (2010): Plutonium. In: Atwood, D.A. (ed.), *Radionuclides in the Environment*, Wiley&Sons Ltd., p. 289-314.
- Neukum, C. (2013): Eine Übersicht zu Methoden und Anwendungen der Validierung von Vulnerabilitätsbewertungen. *Grundwasser* **18** (1), 15-24.
- Oki, T.; Entekhabi, D.; Harrold, T. I. (2004): The Global Water Cycle. In: Sparks, R.S.J.; Hawkesworth, C.J. (eds.), *The State of the Planet: Frontiers and Challenges in Geophysics*, Geophys. Monogr. Ser. 150, American Geophysical Union, Washington, D. C., 410 p.
- Povinec, P.P.; Lee, S.-H.; Liong Wee Kwong, L.; Oregioni, B.; Jull, A.J.T.; Kieser, W.E.; Morgenstern, U; Top, Z. (2010): Tritium, radiocarbon, ^{90}Sr and ^{129}I in the Pacific and Indian Oceans. *Nucl. Instr. Meth. Physics Research B* **268**, 1214-1218.
- Preedy, V.R.; Burrow, G.N.; Watson, R.E. (Eds.) (2009): *Comprehensive Handbook of Iodine*. Academic Press, Elsevier Inc. 1312 p.
- Prentice, I.C.; Farquhar, G.D.; Fasham, M.J.R.; Goulden, M.L.; Heimann, M.; Jaramillo, V.J.; Kheshgi, H.S.; LeQuéré, C.; Scholes, R.J.; Wallace, D.W.R. (2001): The Carbon Cycle and Atmospheric Carbon Dioxide. In: Houghton, J.T.; Ding, Y.; Griggs, D.J.; Noguer, M.; van der Linden, P.J.; Dai, X.; Maskell, K.; Johnson, C.A. (eds.), *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contributions of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge University Press, Cambridge, UK, pp. 185-237.
- Pröhl, G.; Ehlken, S.; Fiedler, I.; Kirchner, G.; Klemt, E.; Zibold, G. (2006): Ecological half-lives of ^{90}Sr and ^{137}Cs in terrestrial and aquatic ecosystems. *J. Environ. Rad.* **91**, 41-72.
- Riebe, B.; Daraoui, A.; Schwinger, M. (2014): Großflächiger Eintrag, Inventare und Transport von Iod-129 und Iod-127 in Deutschland. Abschlussbericht, Förderkennzeichen BMBF 02NUK015D, 159 S. <https://www.irs.uni-hannover.de/irs/publikationen.html>
- Shiklomanov, I.A.; Rodda, J.C. (eds.) (2003): *World Water Resources at the Beginning of the Twenty-First Century*. Cambridge University Press, Cambridge, 439 p.
- 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
- Strebel, O.; Böttcher, J.; Eberle, M.; Aldag, R. (1988). Quantitative und qualitative Veränderungen im A-Horizont von Sandböden nach Umwandlung von Dauergrünland in Ackerland. *Z. Pflanzenernähr. Bodenkd.* **151**, 341-347.

- Sültenfuß, J. (1998): Das Radionuklid Tritium im Ozean: Messverfahren und Verteilung von Tritium im Südatlantik und im Weddellmeer. Ber. Polarforsch. 256/1998, 199 S.
- Trenberth, K.E.; Smith, L.; Qian, T.; Dai, A.; Fasullo, J. (2007): Estimates of the Global Water Budget and Its Annual Cycle Using Observational and Model Data. *J. Hydrometeorology*, **8** (4), 758–769.
- van Berk, H.; Hansen, C. (2006): Hydrogeochemische Stoffflussmodelle - Leitfaden zur Modellierung der Beschaffenheitsentwicklung von Grund- und Rohwässern. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 226 S.
- Visser, A.; Broers, H.P.; Purtschert, R.; Sültenfuß, J.; de Jonge, M. (2013): Groundwater age distributions at a public drinking water supply well field derived from multiple age tracers (^{85}Kr , $^3\text{H}/^3\text{He}$, and ^{39}Ar). *Water Resources Res.* **49**, 7778-7796.
- Wallace, S.H.; Shaw, S.; Morris, K.; Small, J.S.; Fuller, A.J.; Burke, I.T. (2012): Effect of groundwater pH and ionic strength on strontium sorption in aquifer sediments: Implications for ^{90}Sr mobility at contaminated nuclear sites. *Appl. Geochem.* **27** (8), 1482-1491.
- Wirsing, T.; Neukum, C.; Goldscheider, N.; Maier, M. (2015): Integration der bodenkundlichen Filter- und Pufferfunktionen in die hydrogeologische Vulnerabilitätsbewertung. *Grundwasser-Zeitschrift der Fachsektion Hydrogeologie* 20, 97-106.

II. Teil 2 - Eingehende Darstellung der Ergebnisse

II.1. Erzielte Ergebnisse

II.1.1. Untersuchungsgebiete

Fuhrberger Feld

Das Wassergewinnungsgebiet Fuhrberger Feld liegt ca. 30 km nordöstlich von Hannover (Abb. 1) und umfasst eine Fläche von rund 30.400 ha, die seit 1996 als Wasserschutzgebiet ausgewiesen sind. Damit ist es das größte zusammenhängende Trinkwasserschutz- und gewinnungsgebiet in Norddeutschland.

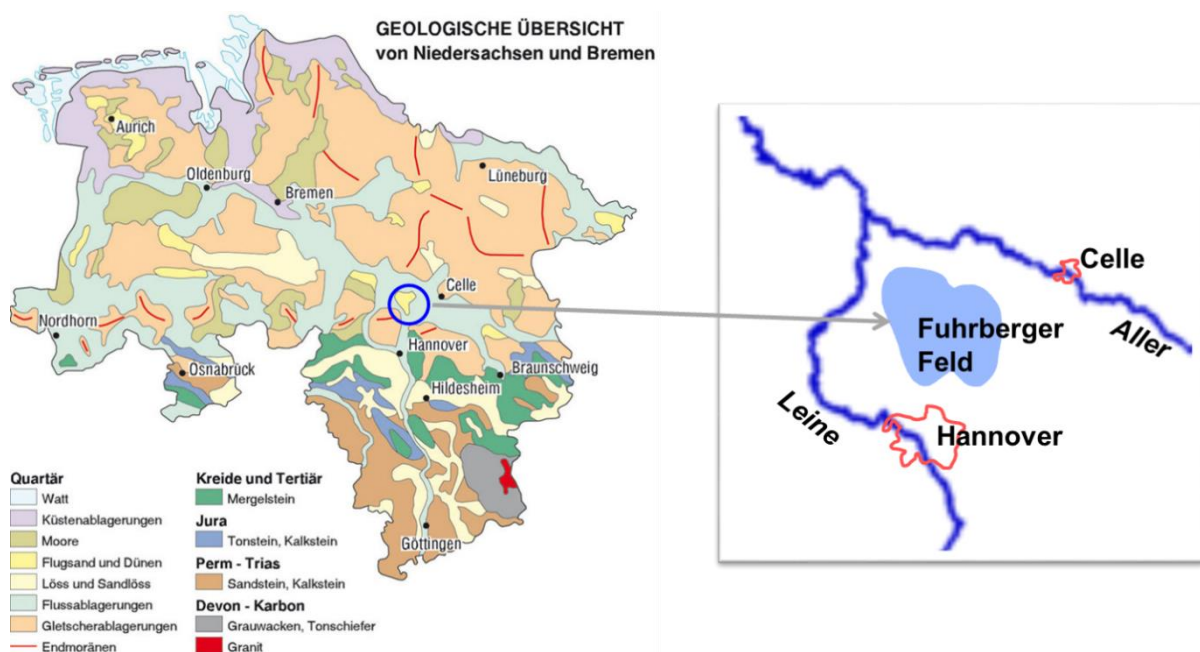


Abb. 1: Lage des Fuhrberger Feldes.

Geologie: Der Aquifer erreicht eine Mächtigkeit von durchschnittlich 25-30 m (min. 2-5 m, max. 39 m) und besteht aus fluviatilen Sanden und Kiesen des Quartärs, in die stellenweise Schluffbänder- und linsen eingelagert sind, sowie aus holozänem Flugsand. Die Basis des Grundwasserleiters ist aus tertiären Lockergesteinen (Tone, Tonsteine, Tonmergel, Schluffe) und kreidezeitlichen Ton-, Tonmergel und Mergelsteinen aufgebaut [Lillich et al. 1973]. Der Aquifer selbst ist nicht überdeckt. Auf den Talsanden entwickelten sich im Wesentlichen Podsole und Gley-Podsole, und im südöstlichen Teil aufgrund des höheren Gehalts an verwitterbaren Silicaten saure Braunerden und Braunerde-Pseudogleye. Im Bereich der Flussauen finden sich Auengleye und (inselweise) Brauneisengleye [DBG, 1999].

Hydrologie: Das Fuhrberger Feld gehört naturräumlich zum größten Teil zur Aller- und Wietze-Niederung. Es wird hauptsächlich von der Wietze mit den ihr zugehörigen Bächen und Grabensystemen entwässert. Der Abstrom des Grundwassers verläuft von Süden nach Norden Richtung Aller [van Berk & Hansen, 2006]. Im Osten besteht aber auch über die Große Beeke Vorflut zur Leine. Der Grundwasserspiegel variiert im Jahresverlauf zwischen wenigen Dezimetern bis wenigen Metern. Die Wasserleitfähigkeit der sandigen Böden liegt um $5 \cdot 10^{-4} \text{ m s}^{-1}$. Bei einer Jahresdurchschnittstemperatur von $8,9^\circ\text{C}$ und Niederschlägen mit einem langjährigen Mittel von etwa 680 mm beträgt jährliche Grundwasser-Neubildungsrate unter Wald ca. 150 mm a^{-1} , unter Acker 250 mm a^{-1} [Franken et al., 2009].

Trinkwassergewinnung: Die Stadtwerke Hannover AG (enercity) versorgen etwa 700.000 Menschen in Hannover und Umgebung. 46 % der Wasserversorgung entfallen dabei auf das Wasserwerk Fuhrberg, was etwa 18 Millionen m^3 entspricht. Das Werk fördert Wasser aus 5 Horizontal-Filterbrunnen mit 8 bis 10 Filtersträngen in 25 bis 28 m Tiefe und einer Förderleistung von $800 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$. Auf das benachbarte Wasserwerk Elze-Berkhof entfallen 42 % der Wasserversorgung (enercity, 2015).

Nutzung: Rund 45 % des Fuhrberger Feldes sind Waldfläche Ein nicht unbeträchtlicher Teil, nämlich 13.000 von 30.000 ha, wird landwirtschaftlich genutzt. In den letzten 20 Jahren wurde der Nadelwald auf rund 3.500 ha (das ist ca. $\frac{1}{4}$ der Fläche) mit gut 12 Mio. Laubbäumen unterpflanzt, um die Quantität und Qualität des Sickerwassers positiv zu beeinflussen. Es wird erwartet, dass so das Grundwasserdargebot, insbesondere in Brunnennähe, langfristig um rund 2 Mio. $\text{m}^3 \text{ a}^{-1}$ erhöht werden kann [Raue et al., 2016].

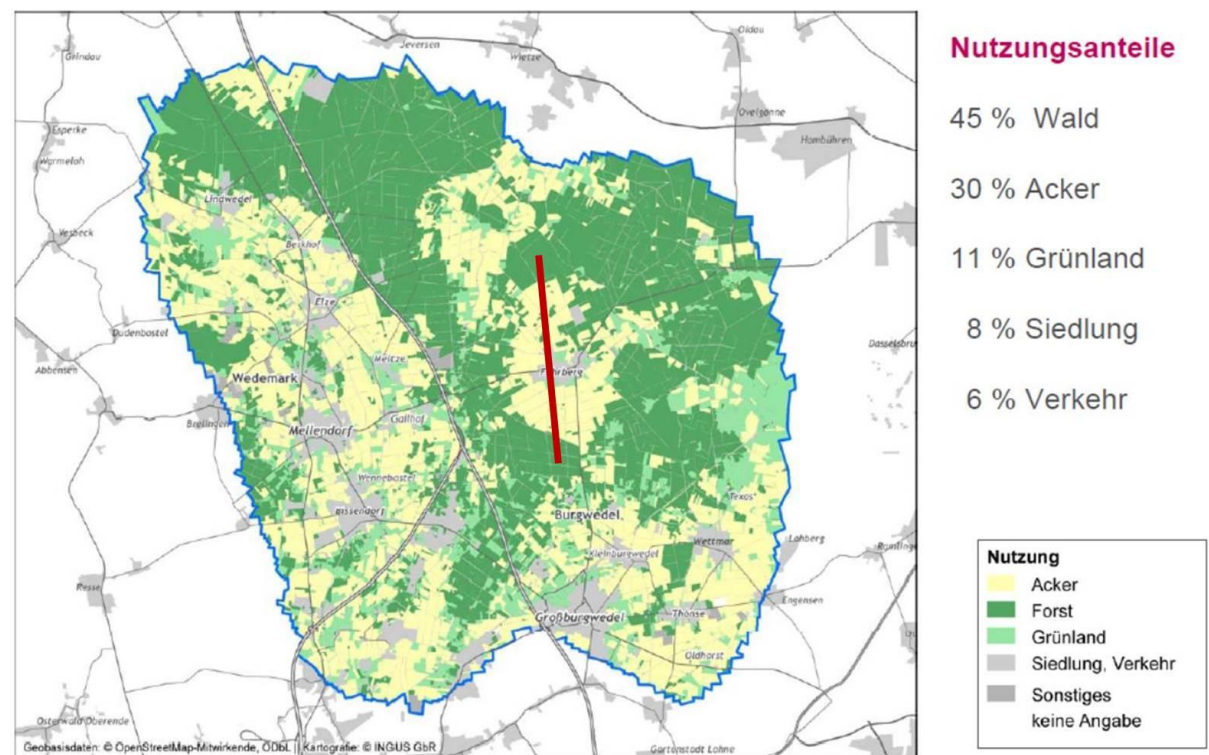


Abb. 2: Flächennutzung im Fuhrberger Feld [Rausch, 2013]. Die rote Linie markiert den Bereich, aus dem Grundwasserproben entnommen wurden.

Westharz-Talsperren

Gut 93 % des in Hannover und Umgebung benötigten Trinkwassers stammen aus dem Grundwasser des Fuhrberger Feldes und aus Grasdorf, einem Wassergewinnungsgebiet südlich von Hannover. Die übrigen knapp 7 % der rund 43 Millionen Kubikmetern werden von den Harztalsperren bereitgestellt. Der Harz gehört zu den regenreichsten Gebieten Deutschlands, Wasserkraft wurde dort besonders im 16. bis 19. Jahrhundert für den Bergbau genutzt. Viele der Talsperren, wie auch die angelegten Seen des „Oberharzer Wasserregals“ bestehen schon sehr lange. Heute werden sie zur Trinkwassergewinnung, zur Energieerzeugung und für den Hochwasserschutz genutzt. [Schmidt, 2012]. In diesem Projekt wurden die Granetalsperre bei Goslar und die Sösetalsperre bei Osterode untersucht.

Die Granetalsperre im nördlichen Westharz wurde 1969 in Betrieb genommen. Ihr Damm hat eine Höhe von 62 Metern über der Talsohle und ist etwa 600 Meter lang. Ihr Gesamtfassungsvermögen beträgt bei Vollstau 46,4 Millionen Kubikmeter.



Abb. 3: Luftaufnahme der Granetalsperre. [<http://talis.harzwasserwerke.de/images/hwwi0120.jpg>]

Die Sösetalsperre wurde von 1928-1931 zu den gleichen Zwecken wie die Granetalsperre gebaut. Ihr Damm weist eine Höhe von 52 Metern über der Talsohle auf und ist 485 Metern lang. Bei Vollstau beträgt ihr Fassungsvermögen ca. 25,6 Millionen Kubikmeter.



Abb. 4: Luftaufnahme der Sösetalsperre. [<http://talis.harzwasserwerke.de/images/hwwi0184.jpg>]

II.1.2. Stoffkreisläufe

Einige der hier untersuchten Radionuklide stammen sowohl aus natürlichen (geogen/Erdkruste, kosmogen/Weltall), als auch zum Teil aus anthropogenen Quellen. Dies trifft besonders auf ^3H , ^{14}C , ^{129}I zu. Die Hauptquellen für künstliche/anthropogene Radionuklide in der Umwelt sind die Kernwaffentests der 1950er und 1960er Jahre, Unfälle in kerntechnischen Anlagen (für Deutschland: Reaktorunfall Chernobyl) und die Ableitungen aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague.

In den Jahren 1945 bis 1980 wurden weltweit insgesamt 543 oberirdische Kernwaffenversuche durchgeführt [UNSCEAR 2000], fast 90% davon bis zum Jahr 1963. Abhängig von der Höhe, in der die Explosionen stattfanden hatten die Tests eine lokale, regionale oder weltweite Verteilung der entstandenen Spaltprodukte zur Folge [vergl. Tab. A-1 im Anhang]. Heute spielen wegen ihrer langen Halbwertszeiten hauptsächlich noch ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{14}C und ^3H eine Rolle, insbesondere auf der Nordhalbkugel.

Beim Unfall des Kernkraftwerks Chernobyl kam es zur Freisetzung einer großen Anzahl von Radionukliden, darunter etwa 85 PBq ^{137}Cs , 10 PBq ^{90}Sr und knapp 3 PBq verschiedener Plutonium-Isotope [UNSCEAR 2008]. Die Angaben für die Freisetzung von ^{129}I schwanken nach unterschiedlichen Schätzungen zwischen 43 kg (0,28 TBq) und 150 kg (0,98 TBq) [Carter und Moghissi 1977; UNSCEAR 1982, Chamberlain 2004, Eisenbud und Gesell 1997 (Literatur zitiert in: Michel et al. 2012)]. Die radioaktiven Stoffe wurden durch den heißen Luftstrom des Brandes bis in eine Höhe von 1,2 km getragen. Stark wechselnde Wetterbedingungen mit Niederschlägen beeinflussten den Transport der Radionuklide in der Troposphäre. Dies führte zu einer sehr inhomogenen Zusammensetzung und Verteilung des Fallouts.

Seit Ende der 1960er bzw. Anfang der 1970er Jahre beeinflussen die gasförmigen, besonders aber die flüssigen Ableitungen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in Sellafield (Großbritannien) und La Hague (Frankreich) die Aktivitätskonzentrationen in Westeuropa, insbesondere die der Irischen See und der Nordsee.

In der Umwelt verhalten sich die genannten Radioisotope wie die natürlicherweise vorkommenden stabilen Isotope. Im Folgenden wird versucht, einen Überblick über Einträge der ausgewählten Radionuklide in die Umwelt und deren Gehalt in verschiedenen Umweltkompartimenten zu geben, sowie sie in die entsprechenden Stoffkreisläufe einzuordnen.

Wasserstoff - ^3H

Tritium ist das mobilste der hier betrachteten Radionuklide. Als Wasserstoffisotop folgt es dem globalen Wasserkreislauf, ist damit ubiquitär vorhanden und unterliegt dessen Gesetzmäßigkeiten (Abb. 5, Tab. 1).

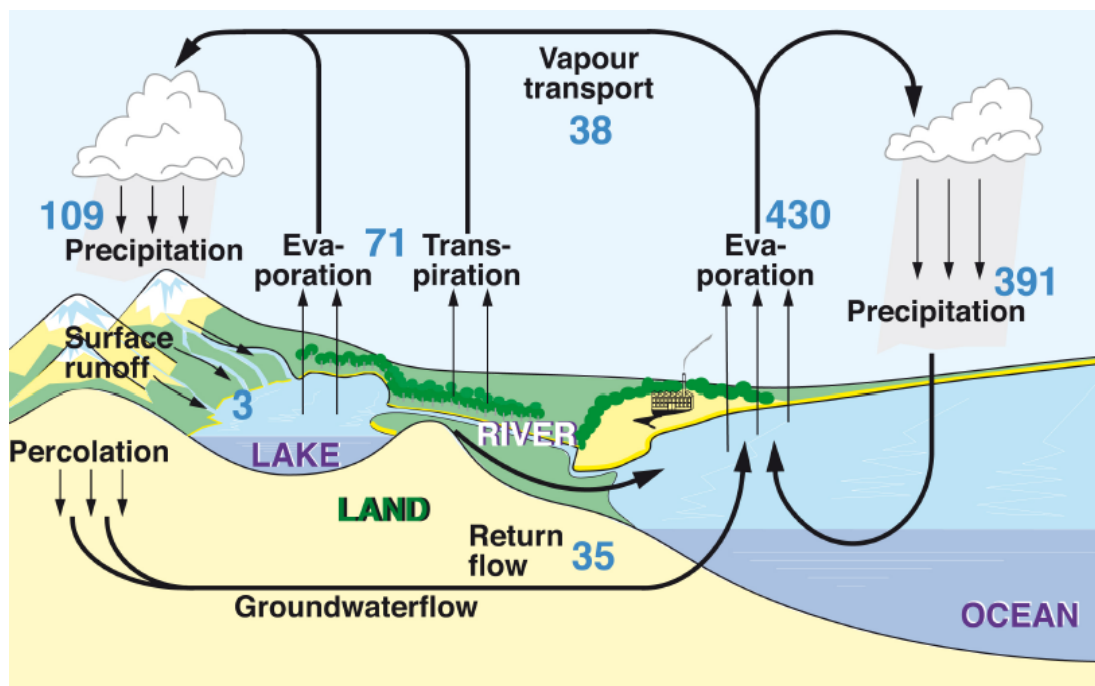


Abb. 5: Schematische Darstellung des globalen Wasserkreislaufs. Die angegebenen Zahlen geben die Wasserflüsse in 10^3 km^3 pro Jahr an (vergl. Tab. 1) [aus: Bengtsson, 2010].

Tab. 1: Wassermengen und -flüsse in verschiedenen Kompartimenten (nach Mook, 2000).

	Volumen in 10^3 km^3	% des ges. Süßwassers	Flux $10^3 \text{ km}^3 \text{ a}^{-1}$	Verweilzeit Jahre
Salzwasser				
Ozeane	1.350.000		425	3.000
Süßwasser				
Eis	27.000	69,3	2,4	12.000
Grundwasser	8.000	29,9	1,5	500
Seen	220	0,55		
Bodenwasser	70	0,18	90	0,48
Atmosphäre	15,5	0,038	496	0,03
Reservoir	5	0,013		
Flüsse	2	0,005	40	0,05
Biomasse	2	0,005		
gesamt	40.114	100		

Tritium entsteht auf natürlichem Weg vor allem in der Stratosphäre über die Reaktion von Stickstoff mit Neutronen ($^{14}\text{N} + n \rightarrow ^{12}\text{C} + ^3\text{H}$). ^3H ist ein reiner β -Strahler, der mit

einer Maximalenergie von 18,6 keV und einer Halbwertszeit von $12,323 \pm 0,004$ Jahren zu ^3He zerfällt [Lucas & Unterweger 2000]. Die jährliche natürliche Bildung von Tritium in der Atmosphäre beläuft sich auf 0,15 bis 0,20 kg (das entspricht $(5,0 - 7,0) \cdot 10^{16}$ Bq oder 50 -70 PBq) - vorausgesetzt, dass ein Gleichgewicht zwischen Neubildung und Zerfall besteht. Die Bildungsrate in der Erdkruste aufgrund von Spontanzerfall von ^{238}U ist im Vergleich dazu marginal [IRSN, 2010]. Das natürliche globale Inventar an Tritium ist $1,3 \cdot 10^{18}$ Bq (1300 PBq) bzw. 3,5 kg [UNSCEAR 2000].

Durch die Kernwaffentests der 1950er und 1960er Jahre insgesamt in die Atmosphäre freigesetzte Tritiummengen werden auf etwa 240 EBq (rund 670 kg) geschätzt [UNSCEAR 2000]. In der Stratosphäre hat ^3H eine Verweildauer von etwa $7,7 \pm 2,0$ Jahren [Ehhalt et al. 2002]. Dann ist es entweder zerfallen oder über Austauschprozesse in die Troposphäre gelangt, wo es als tritiumhaltiges Wasser (HTO) oder Wasserdampf in den Wasserkreislauf eintritt. Die Verweildauer von Wasser ist in der Atmosphäre beträgt ungefähr 4-5 Tage, bis es ausregnet oder –kondensiert [Läderach&Sodemann, 2016]. Anfang der 1960er Jahre erreichten die Tritiumgehalte im Niederschlag auf der Nordhalbkugel einen Spitzenwert. Nach dem Abschluss des Vertrages über das Verbot atmosphärischer Kernwaffentests 1963 sanken sie jedoch infolge radioaktiven Zerfalls und Verdünnung durch die großen Wassermassen der Weltmeere kontinuierlich ab (Abb. 6), so dass sie heute wenig über dem prä nuklearen Niveau liegen.

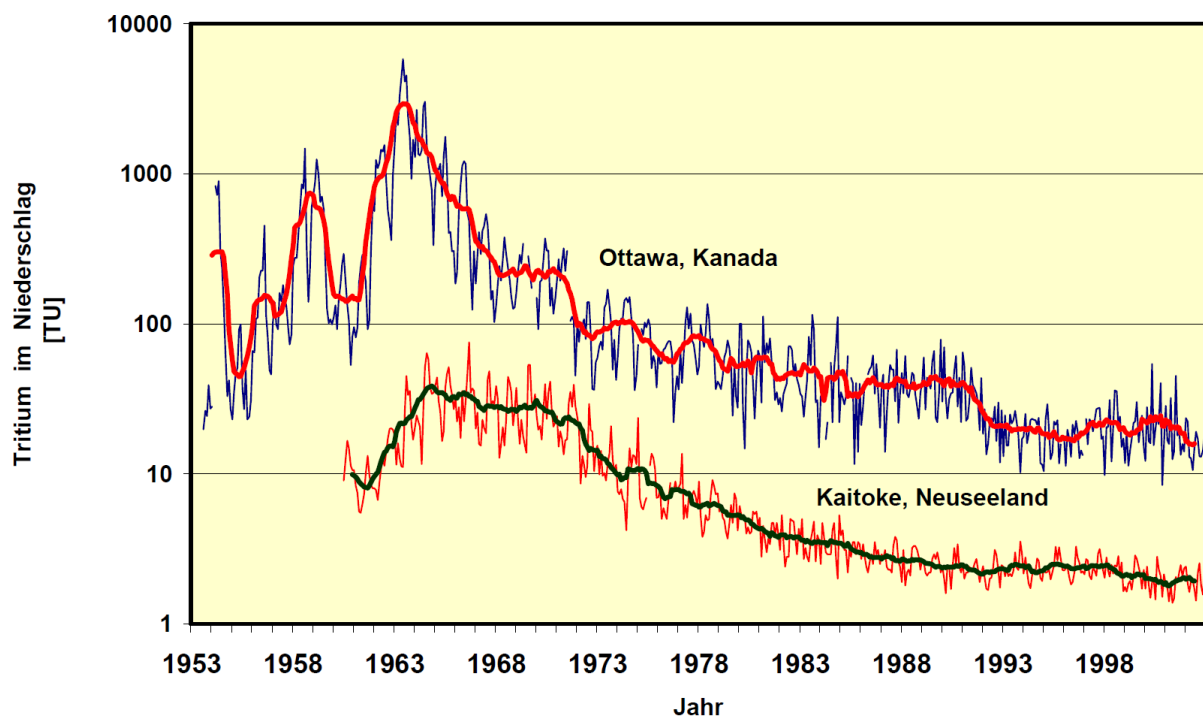


Abb. 6: im Niederschlag an GNIP-Referenzstationen auf der Nord- und Südhalbkugel von 1950-2002 [Gröning et al. 2006].

Die Tritiumaktivitäten, die durch die flüssigen Ableitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague im Zeitraum 1970 bis 2006 in die Umwelt gelangten, lagen bei 73,8 bzw. 175,9 PBq [UNSCEAR 2000; GRNC, 2009; Sellafield Ltd., 2013].

Nur eine kleine Menge des Tritiums befindet sich in der Gasphase (HT). Der weitaus größte Anteil entfällt auf tritiiertes Wasser (HTO). Im Boden wird HTO kaum zurückgehalten, da es praktisch nicht an Mineraloberflächen adsorbiert wird. Lediglich an organische Substanz kann es gebunden vorliegen (OBT - organically bound tritium), wobei hier je nach Bindungsstärke zwischen verschiedenen Fraktionen unterschieden wird [Kim et al., 2013]. Das Tritium kann austauschbar in Biomolekülen gebunden sein (an Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff) oder es ist kovalent an Kohlenstoff gebunden und gehört zur nicht austauschbaren Fraktion. Dort bleibt es, solange das Molekül nicht transformiert/zerstört wird.

Für hydrologische Anwendungen wird die Tritiumkonzentration von Wasser meist in TU (tritium units) angegeben. 1 TU ist definiert als 1 Atom ^3H pro 10^{18} Atome H und entspricht etwa einer Aktivität von $0,118 \text{ Bq kg}^{-1}$ [Stonestrom et al., 2013].

Kohlenstoff - ^{14}C

Der globale Kohlenstoffkreislauf ist von Austauschprozessen zwischen großen organischen und anorganischen Kompartimenten gekennzeichnet. Dazu gehören die der Erdatmosphäre, die Ozeane, Lithosphäre und Pedosphäre, marine und terrestrische Biomasse und fossile Kohlenstoffvorräte. Diese Kompartimente lassen sich in aktive und passive Reservoirs unterteilen. Die größten Anteile des aktiven Kreislaufs stellen der Austausch zwischen Atmosphäre und Ozean (Lösung und Ausgasung von CO_2) und Atmosphäre und Vegetation (Photosynthese, Respiration) dar. Dabei bilden die Bindung anorganischen Kohlenstoffs über die Photosynthese, der Einbau in organische Biomasse und die anschließende Ablagerung der Biomasse in Sedimente einen Übergang von aktiven in den passiven Kohlenstoffkreislauf. Austauschprozesse zwischen den Reservoirs (Abb. 7) und Zwischenspeicherung spielen sich in Zeiträumen von wenigen Tagen bis zu Millionen von Jahren ab.

In der Atmosphäre kommt Kohlenstoff mit einer Gesamtmenge von $7,5 \cdot 10^{15} \text{ kg C}$ vor, das meiste als CO_2 (rund 380 ppm), zu wesentlich kleineren Anteilen als Methan (ca. 1,8 ppm) oder CO (ca. 100 ppb). In der Hydrosphäre liegt Kohlenstoff gelöst in organischen und anorganischen Verbindungen (CO_2 , HCO_3^- , CO_3^{2-}) vor, in der Lithosphäre ist er gebunden (Carbonat-/Sedimentgesteine, fossile Brennstoffe, Kerogen). In den Böden (Pedosphäre), also an der Schnittstelle der Reservoirs, kommt der Kohlenstoff in den unterschiedlichsten Formen vor: in organischen Kohlenstoffverbindungen (lebende und tote Biomasse) gebunden, in festen oder gelösten Carbonatverbindungen oder als CO_2 (Bodenluft). Die gesamte in den Böden befindliche organisch gebundene Kohlenstoffmenge (SOC=soil organic carbon) wird auf rund $1,5 \cdot 10^{15} \text{ kg}$ geschätzt, wobei die Angaben zwischen $0,5 \cdot 10^{15} \text{ kg}$ und $3 \cdot 10^{15} \text{ kg}$ schwanken [Scharlemann et al., 2014].

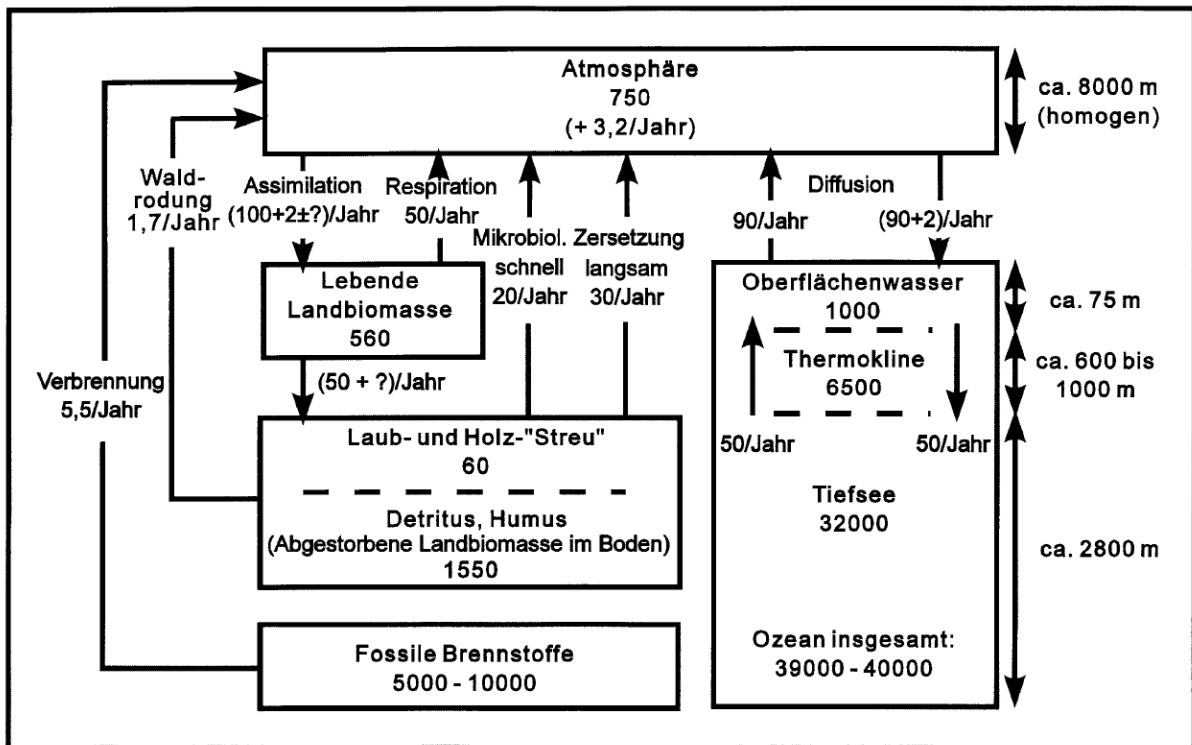


Abb. 7: CO₂-Kreislauf zwischen Atmosphäre, Biosphäre und Ozean. Zahlen in den umrandeten Kästen geben das jew. Inventar wieder (Gt C), die Zahlen an den Pfeilen die jährlichen Umsätze (Gt C pro Jahr). Sämtliche Zahlenangaben beziehen sich auf Kohlenstoffäquivalente (Umrechnung auf CO₂-Äquivalente ergibt sich durch Multiplikation mit 3,66). Rechts befinden sich Angaben über die Mächtigkeit der Schichten (Atmosphäre, Ozean) [Roedel & Wagner, 2011].

Kohlenstoff C hat 15 Isotope mit Massenzahlen von 8-22, von denen nur ¹²C und ¹³C stabil und mit Anteilen von 98,9 % (¹²C) und 1,1 % (¹³C) am Gesamtkohlenstoff vertreten sind. ¹⁴C kommt mit einer Häufigkeit von < 10⁻⁹ % vor. ¹⁴C wird kosmogen in der Atmosphäre über die Reaktion ¹⁴N(n,p)¹⁴C mit einer jährlichen Produktionsrate von ca. 1,40 · 10¹⁵ Bq gebildet (Abb. 8). Daraus resultiert ein ¹⁴C-Vorrat unter Gleichgewichtsbedingungen von rund 140 x 10¹⁵ Bq (UNSCEAR, 2008). Die Produktionsrate fluktuiert, wobei die Haupteinflussgrößen der 11-Jahres-Zyklus der Sonnenaktivität und Veränderungen im Erdmagnetfeld sind.

¹⁴C zerfällt mit einer Halbwertszeit von 5730 Jahren zu stabilem ¹⁴N unter Aussendung eines β-Partikels. Wegen seiner langen Halbwertszeit ist das ¹⁴C/¹²C-Verhältnis in der Atmosphäre in etwa konstant bei 1,2 · 10⁻¹². Im Zuge der oberirdischen Kernwaffenversuche nach dem 2. Weltkrieg kam es durch die Freisetzung von rund 213 PBq [UNSCEAR 2000] zunächst zu einer drastischen Erhöhung von ¹⁴C in der Atmosphäre, die jedoch zum heutigen Zeitpunkt fast wieder auf das Niveau wie vor den Tests zurückgegangen ist [Lehto&Hou, 2010]. Zusätzlich hat die Verbrennung fossilen Kohlenstoffs, der arm an ¹⁴C ist, im letzten Jahrhundert zur Verdünnung in der Konzentration beigetragen.

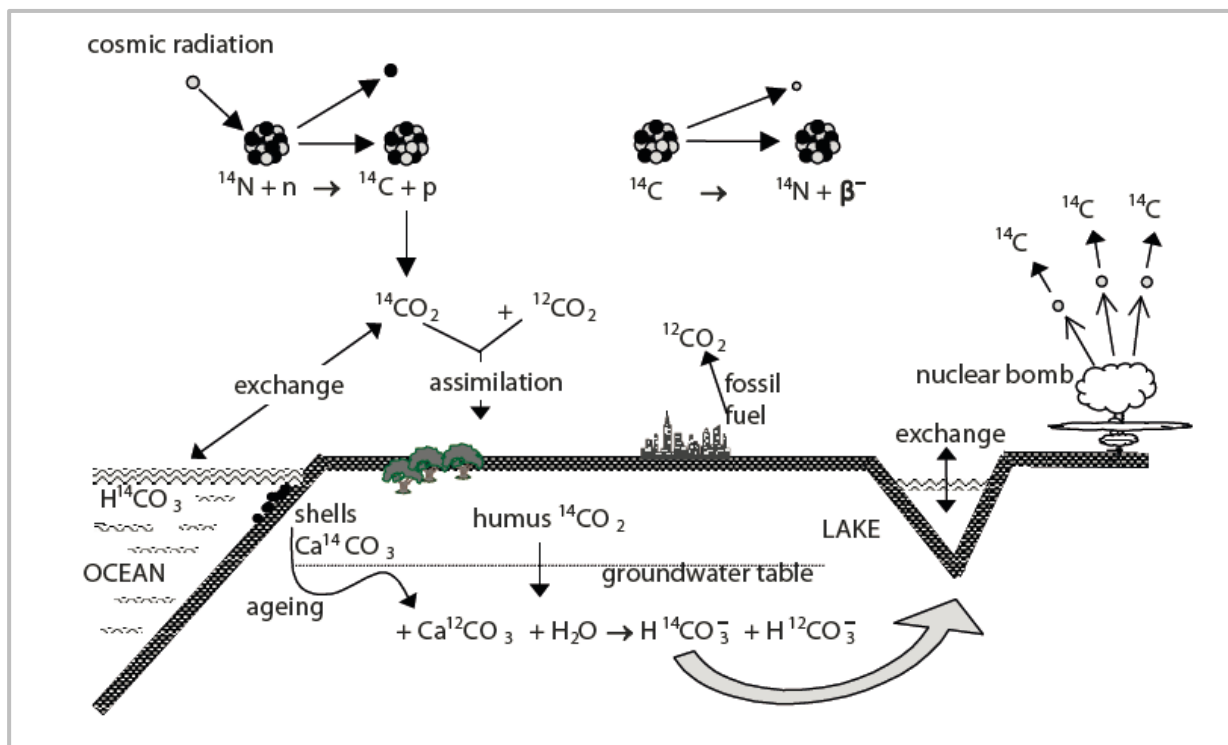


Abb. 8: Herkunft und Verteilung von ^{14}C in der Umwelt [aus: Mook, 2000].

Bei leichten Elementen, wie Wasserstoff und Kohlenstoff, machen sich Isotopieeffekte am ehesten bemerkbar. Während des Übergangs von Kohlenstoff von einer Verbindung in eine andere (Übergang von CO_2 von Luft in Wasser, Unterschied in der Effektivität bei der Aufnahme von CO_2 durch C3- und C4- Pflanzen) kommt es zu einer Isotopenfraktionierung, und zwar sowohl für ^{13}C als auch für ^{14}C . Würde man die Fraktionierung nicht berücksichtigen, würde dies bei der Altersbestimmung von Proben aus unterschiedlichen Kompartimenten (Carbonat, lebende Biomasse), die CO_2 gleichen Alters aus der Atmosphäre beinhalten, zu Fehlern führen [Mook & van der Plicht, 1999].

Das $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ -Verhältnis von Proben wird auf einen Standard normalisiert (VPDB=Vienna PeeDee Belemnite; Fossil mit hohem ^{13}C -Gehalt) und als $\delta^{13}\text{C}$ in ‰ angegeben. Dieser Wert gibt die Abweichung des Probenmesswertes vom Standard an. Um einen Bezug zwischen dem ^{14}C -Level in der Zeit vor den Kernwaffentests (1950) herzustellen, wird ein NIST-Standard (Oxalsäure) verwendet. Dieser wird wiederum auf den o.g. Standard (VPDB) normalisiert und hat einen $\delta^{13}\text{C}$ -Wert von -19‰ (weitere Einzelheiten zu Bezugsgrößen s. [Stenström et al., 2011]).

Strontium - ^{90}Sr

Strontium gehört zur Gruppe der Erdalkalielemente und ist mit einem Anteil von 370 ppm an der kontinentalen Erdkruste auf der Erde verhältnismäßig häufig. Es ist sehr reaktionsfreudig und bildet Verbindungen mit Halogenen, Sauerstoff, Stickstoff und Schwefel, in denen es als zweiwertiges Kation vorliegt. Strontium ist lithophil und ersetzt gerne Ca in gesteinsbildenden Mineralen (Plagioklase, Feldspat, Apatit), in Sulfaten, (Gips, Anhydrit) und in Carbonaten (Calcit, Dolomit, Aragonit). Sr^{2+} kann (nach

isomorphem Ersatz von Si^{4+} durch Al^{3+}) auch K^+ in Vermiculit und Smectit ersetzen [Capo et al. 1998]. Sr-Minerale (Strontianit SrCO_3 und Celestit SrSO_4) sind selten. Stabiles Strontium ist zusammengesetzt aus den Isotopen ^{84}Sr (0,56%), ^{86}Sr (9,87%), ^{87}Sr (7,04%), ^{88}Sr (82,53%). Sr-Gehalte von Gesteinen liegen zwischen 1-1000 ppm (Granit 100-440 ppm, magmatisches Gestein <450 ppm, intermediäres Gestein 500 ppm) - Sandstein 20 ppm, Schiefer 300 ppm, Quarz-Feldspat 610 ppm.

Die Strontiumsorption an Bodenpartikel erfolgt hauptsächlich über Ionenaustauschprozesse. Wichtige Faktoren sind deswegen die Kationenaustauschkapazität, der pH-Wert und die Konzentration der Konkurrenzionen Ca^{2+} und Mg^{2+} [Ishikawa et al., 2009; Gil-García et al., 2008]. pH-Werte > 7 begünstigen die Immobilisierung von Strontium, das nicht redoxaktiv ist und dessen Mobilität hauptsächlich durch Adsorption und Inkorporationsprozesse beeinflusst wird [Thorpe et al. 2017]. Typischerweise bildet Sr^{2+} outer-sphere Komplexe mit negativ geladenen Mineraloberflächen [Thorpe et al. 2012; Wallace et al. 2012]. In Böden wird Sr^{2+} an Eisen(hydr)oxide, Sulfide und Tonminerale (Illit, Chlorit, Montmorillonit) gebunden [Langley et al. 2009; Hofmann et al. 2005; Bellingner & Staunton, 2008; Jean & Bancroft 1986; Dyer et al. 2000]. Steigende pH-Werte begünstigen sowohl die Kationenadsorption, wie auch den Einbau in Calciumcarbonatphasen [Parkman et al. 1998; Mitchell & Ferris, 2005], in geringerem Maß auch den Einbau in Siderit (FeCO_3) [Thorpe et al. 2014]. Dagegen können Werte unterhalb von pH 7 die Freisetzung als Folge der reduktiven Auflösung von Fe(III)-oxiden bewirken [Langley et al. 2009].

^{90}Sr entsteht entweder durch Spontanspaltung von Uran oder als sekundäres Spaltprodukt in kurzer Zeit (innerhalb weniger Minuten) aus primären Spaltprodukten der Massenzahl 90. Anthropogene Quellen für ^{90}Sr sind die Freisetzung aus oberirdischen Kernwaffentests zwischen 1945 und 1963, aus kerntechnischen Anlagen (KKW und WAA) und kerntechnische Unfälle. Durch die Kernwaffentests gelangten 622 PBq ^{90}Sr in die Umwelt [UNSCEAR 2000]. Aus den WAA Sellafield und La Hague wurden im Zeitraum 1970-1998 mit den flüssigen Ableitungen 5,5 bzw. 1,1 PBq ^{90}Sr in die Irische See und den Ärmelkanal entlassen [IAEA, 2005]. Beim Reaktorunfall in Chernobyl belief sich die freigesetzte ^{90}Sr -Aktivität auf rund 10 PBq.

Caesium - ^{137}Cs

Von dem Alkalielement Caesium existiert in der Natur nur das stabile ^{133}Cs , alle anderen Isotope sind künstlich. Stabiles Caesium kommt in einer relativ niedrigen Konzentration von $2,6 \text{ mg kg}^{-1}$ in der Erdkruste vor. In geringem Umfang kann es Kalium in Mica und K-Feldspat ersetzen, die das meiste Caesium in der Erdkruste beinhalten. Für Muskovit wird ein Konzentrationsbereich von $140 - 3400 \text{ mg kg}^{-1}$ angegeben, für Granit dagegen nur $3 - 6 \text{ mg kg}^{-1}$ und für Sandstein und Kalkstein nur 1 mg kg^{-1} [Salminen et al., 2005]. In Böden kommt stabiles Caesium mit einer Konzentration von $0,3$ bis 26 mg kg^{-1} vor [Kabata-Pendias, 2011], die durchschnittliche Konzentration für Fließgewässer

wird mit nur $0,02 \mu\text{g L}^{-1}$ angegeben. Eine biologische Bedeutung ist für Caesium nicht bekannt, es wirkt aber auch nicht toxisch.

^{137}Cs entsteht als Spaltprodukt bei der Kernspaltung und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 30,07 Jahren über einen β -Zerfall zu stabilem ^{137}Ba . Durch die Kernwaffenversuche der 1950er und 1960er Jahre wurde es in einer Menge von 948 PBq freigesetzt [UNSCEAR 2000], beim Unfall von Chernobyl gelangten weitere 74-85 PBq in die Umwelt [UNSCEAR 2008]. Auch über die Ableitungen der Wiederausarbeitungsanlagen wird ^{137}Cs freigesetzt. Die im Zeitraum 1970-1998 von den WAA Sellafield und La Hague flüssig abgeleiteten ^{137}Cs -Aktivitäten beliefen sich auf 38,8 PBq bzw. 0,96 PBq [IAEA, 2005]

Caesium ist leicht löslich und liegt im Grundwasser unter allen Eh- und pH-Bedingungen als monovalentes Kation (Cs^+) vor. Daher wird seine Konzentration in der Bodenlösung, und damit auch seine Mobilität in der Umwelt hauptsächlich von der Sorption an die Oberflächen von Bodenbestandteilen bestimmt. Caesium wird weniger gut von Eisenoxiden, dafür umso besser von Tonmineralen adsorbiert, besonders, wenn die betreffenden Böden arm an organischer Substanz sind [Fuller et al., 2015 und Literatur darin]. Allerdings variiert die Cs-Sorption zwischen unterschiedlichen Tonmineralen und deren Sorptionsplätzen, und erfolgt über verschiedene Mechanismen, inkl. elektrostatische Bindung an die Mineraloberflächen und Kanten, wie auch die Einlagerung in die Zwischenschichten. Insbesondere aufgeweiteter Illit sorbiert und fixiert selektiv Caesium anstelle von Kalium [Hird et al., 1996; Chorover et al., 2008].

Auch wenn die organische Substanz im Boden eine geringe Affinität zu Caesium hat [Chibowski & Zygmunt, 2002] und es nur unspezifisch und reversibel gebunden wird, verbleibt in Waldböden die größte Menge des eingetragenen ^{137}Cs in den oberen Horizonten (Humusaufgabe, Ah-Horizont). Die Migrationsgeschwindigkeit auf diesen Böden ist sehr gering, weil der Auswaschung aus der Humusaufgabe die Aufnahme durch Pflanzenwurzeln und in Pilzmycele gegenüberstehen, die einen Aufwärtstransport bewirken [Rafferty et al., 2000]. In Pilzmycelen, besonders aber in den Fruchtkörpern von Pilzen werden im Vergleich zum Boden erhöhte Mengen an K, Rb und Cs gefunden [Vinichuk et al., 2010]. Dabei haben die folgenden Faktoren Einfluss auf die Cs-Aufnahme durch Pilze: Tongehalt = austauschbares Kalium > pH > Kationenaustauschkapazität = Gehalt an organischer Substanz [Kaduka et al., 2006].

Caesium ist kein Pflanzennährstoff und somit nicht essenziell. Es wird jedoch wegen seiner Ähnlichkeit mit Kalium von Pflanzen analog zu diesem aufgenommen. Daher hat die Konzentration von K^+ im Boden, bzw. in der Rhizosphäre einen direkten Einfluss auf die Cs^+ -Aufnahme. Besonders hoch ist die Bioverfügbarkeit in kaliumarmen, sauren Böden mit relativ geringem Gehalt an spezifischen Bindungsplätzen (FES – frayed edge sites), wie sie bestimmte Tonminerale bieten, und hohem Gehalt an schwer zersetzbarer organischer Substanz [Kruyts & Delvaux, 2002]. Dies trifft besonders auf sandige Böden unter Nadelwald zu.

Iod - ¹²⁹I

Das Iod hat 37 Isotope von ¹⁰⁸I bis ¹⁴⁴I [LBNL, 1999], von denen nur das ¹²⁷I stabil ist. Iod ist ein sehr biophiles Element, das in der Nahrung und im Trinkwasser überwiegend in anorganischer Form vorliegt, deswegen sehr schnell und zu fast 100 % im Gastrointestinaltrakt resorbiert [Grimminger, 2005] und insbesondere von der Schilddrüse angereichert wird.

Das größte Iodreservoir der Erde sind die Ozeane. Während jedoch nur etwa 0,8% im Meerwasser sind, befinden sich etwa 68% des Iods der Erdkruste in marinen Sedimenten. Weitere 28% sind Bestandteil von Sedimentgesteinen [Muramatsu et al. 2004].

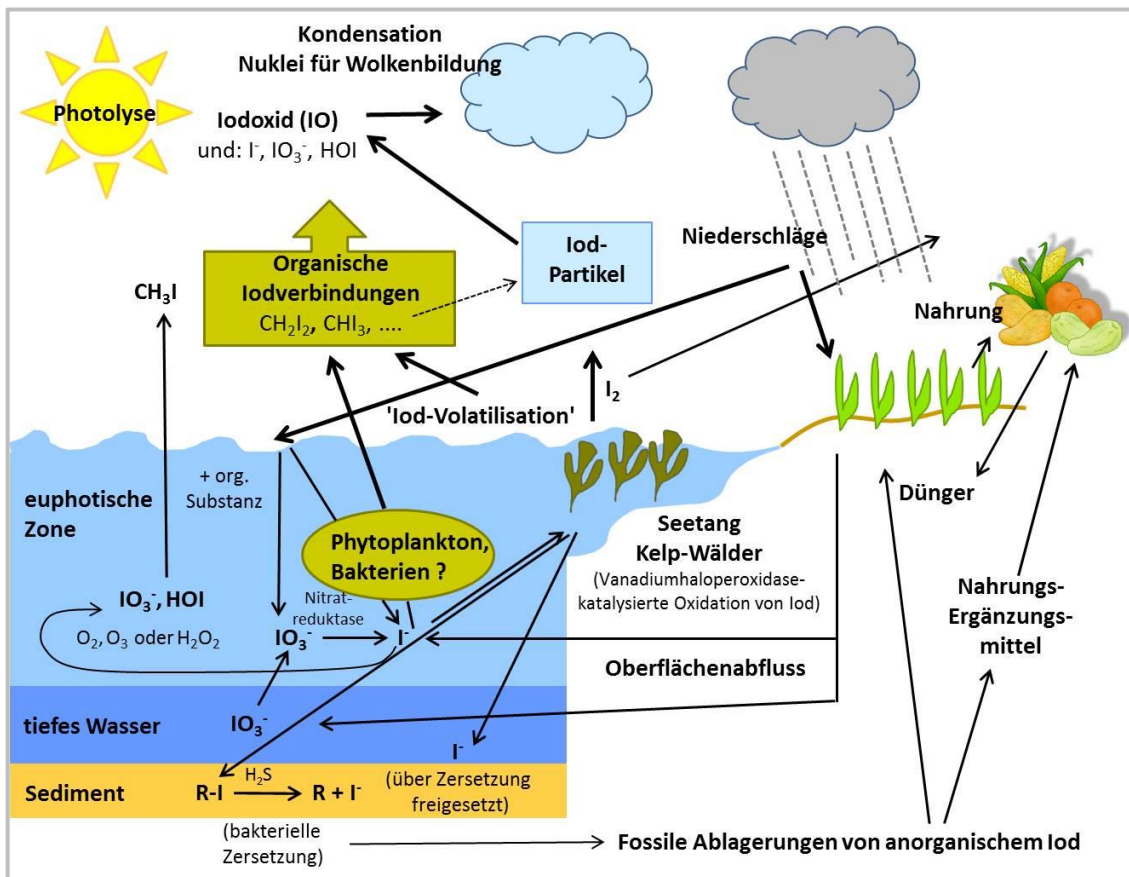


Abb. 9: Vereinfachte Darstellung der Quell- und Senkenfunktion der Meere (verändert nach [Leblanc, (2006)]).

In Seewasser liegt Iod als Iodat, Iodid und in flüchtigen gelösten organischen Verbindungen (CH₃I, CH₂I₂, CH₂CI, C₃H₇I etc.) vor. Letztere spielen trotz ihrer geringen Konzentration eine wichtige Rolle im globalen geochemischen Iodkreislauf [Carpenter 2003; Hou et al. 2009]. 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 (I₂) [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) Tagen ermittelt [Rahn et al. 1976]. Die Konzentration an Iodverbindungen in der Atmosphäre variiert mit dem Ort, dem Klima und der Jahreszeit.

Im Boden in seiner Funktion als Filter, Speicher und ‚Reaktor‘ finden zahlreiche Austausch- und Umsetzungsprozesse statt. So wird atmosphärisch deponiertes Iod 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].

Durch oberirdische Kernwaffenexplosionen wurde ^{129}I 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] ^{129}I freigesetzt. Für den Unfall von Fukushima wird die freigesetzte Gesamtmenge an ^{129}I 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 die Anlagen in Sellafield und La Hague 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).

Plutonium - ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu

Plutonium gehört zur Gruppe der Actinoide und hat 20 Isotope und 15 Kernisomere mit Massenzahlen von 228 bis 247, einige davon mit sehr langen Halbwertszeiten. Das natürlich vorkommende Isotop ist das ^{244}Pu [Hoffmann et al. 1971], zerfällt durch α -Zerfall zu ^{240}U , ist wegen seiner kurzen Halbwertszeit aber praktisch ausgestorben. Spuren von ^{244}Pu existieren nur noch in wenigen Mineralen (z.B. Bastnäsit), wobei der Nachweis schwierig bleibt [Wallner et al., 2015]. Das Inventar in der gesamten Erdkruste wird auf $7,1 \cdot 10^{-24}$ bis $3,1 \cdot 10^{-22} \text{ g kg}^{-1}$ (ges. 0,2 - 7 g) geschätzt. In Pechblende kommt ^{239}Pu vor, das nach Neutroneneinfang und zwei β -Zerfällen aus ^{238}U entsteht. Einige Kilogramm natürlichen ^{239}Pu sind schätzungsweise in der Erdkruste vorhanden. Im Naturreaktor Oklo (Gabun/Afrika), der bis vor etwa 1,5 Milliarden Jahren aktiv war, wurden mehr als 1 t ^{239}Pu gebildet [Neu et al., 2010].

Der größte Anteil an Plutonium, das in der Umwelt vorkommt, ist jedoch anthropogenen Ursprungs und stammt aus unterschiedlichen Quellen. Im Zuge der Kernwaffentests nach dem 2. Weltkrieg wurden insgesamt rund 150 PBq Plutonium in die Atmosphäre entlassen, wovon 140 PBq auf ^{241}Pu entfielen, weitere 6,52 PBq auf ^{239}Pu und 4,35 PBq auf ^{240}Pu [UNSCEAR 2000]. Eine weitere Plutoniumfreisetzung in die Atmosphäre gab es durch den Unfall mit dem US-Navigationssatelliten SNAP-9A und eine Reihe von lokalen Freisetzungen.

Tab. 2: Während des Reaktorunfalls in Chernobyl freigesetzte Plutonium-Isotope [UNSCEAR 2000].

Isotop	Halbwertszeit (a)	Aktivitätsinventar 26.04.1986 (PBq)	Freigesetzte Aktivität (PBq)	Freigesetzter Anteil des Inventars (%)
^{238}Pu	87,76	1	0,03	3
^{239}Pu	$2,41 \cdot 10^4$	0,85	0,03	3
^{240}Pu	$6,57 \cdot 10^3$	1,2	0,044	3
^{241}Pu	14,41	170	5,9	3
^{242}Pu	$3,74 \cdot 10^5$	0,0025	0,00009	3

Neben Unfällen mit B52-Bombern (Palomares, Thule) sind dies vor allem die Reaktorunfälle von Chernobyl und Fukushima. Die in Chernobyl freigesetzten Plutoniumaktivitäten sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Die beim Unfall von Fukushima freigesetzte Pu-Aktivitäten lagen mit 1,0-2,4 TBq $^{239,240}\text{Pu}$, 1,1-2,6 TBq ^{241}Pu und 2,9-6,9 TBq ^{238}Pu wesentlich niedriger. Zudem wurden weniger als 20 % davon auf der Landoberfläche deponiert [Xu et al., 2016].

Die Redoxchemie von Plutonium ist überaus komplex. Seine Löslichkeit in Wasser ist im Allgemeinen gering, sie wird bestimmt durch Komplexbildung mit Hydroxid-, Carbonat-, Phosphat-Ionen, sowie mit organischen Verbindungen. Durch die Bindung an Kolloide und suspendierte Partikel wird die Mobilität von Plutonium in Wasser erhöht, durch Fällungsreaktionen mit Phosphat, Carbonat oder Hydroxid bzw. durch die Sorption an mineralische Oberflächen verringert. In wässrigen Lösungen kann Plutonium in bis zu 4 verschiedenen Oxidationszuständen gleichzeitig vorliegen. In See- und Grundwasser ist Pu(IV) die vorherrschende Spezies, in anderen Gewässern kommen üblicherweise aber auch Pu(III, V, VI) vor [Runde, 2000]. Abb. 10 gibt eine Übersicht über Plutoniumspezies in natürlichen Wässern, die Hydroxid-, Carbonat-, Fluorid-Ionen enthalten.

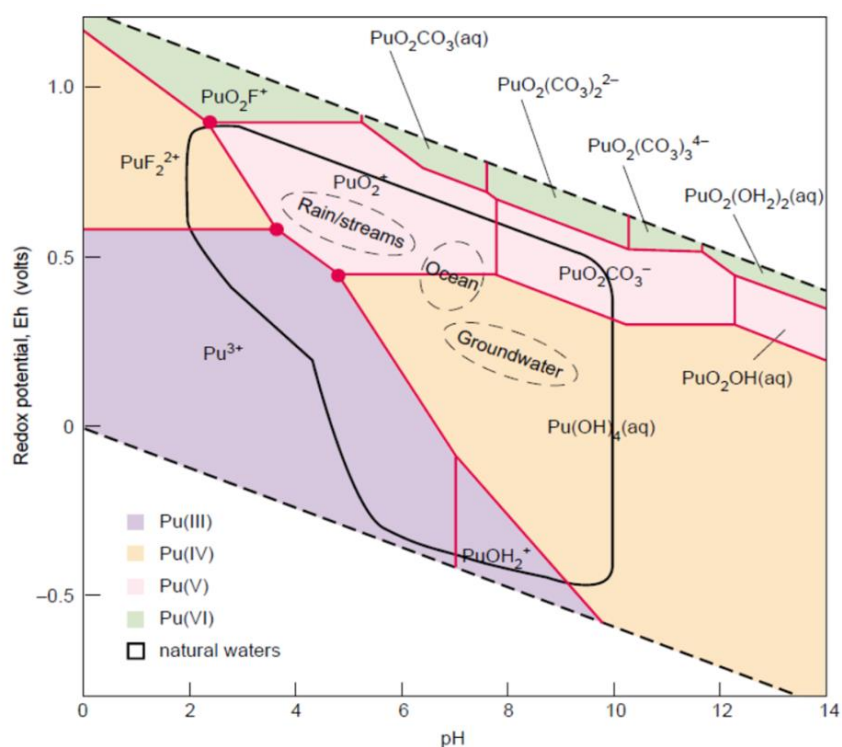


Abb. 10: Pourbaix-Diagramm für Plutonium [Runde, 2000].

Unter geochemischen Bedingungen reagiert Plutonium sehr empfindlich auf geringe Änderungen von pH, Eh, Carbonat-Konzentration oder Anwesenheit von Oxidations- oder Reduktionsmitteln oder Komplexbildnern. Im Boden wird es an unterschiedliche Minerale adsorbiert, und zwar an Fe- und Mn-(hydr)oxide, Tonminerale, Carbonate und Phosphate [Neu et al. 2010]. Die Verteilungskoeffizienten bewegen sich dabei im Bereich von $10 - 20 \text{ L kg}^{-1}$ (Quarz) und $10^3 - 10^5 \text{ L kg}^{-1}$ für Fe-(hydr)oxide. Der K_d -Wert für Tonminerale liegt dazwischen. Tabelle 3 zeigt die Bereiche für Verteilungskoeffizienten in verschiedenen Böden.

Tab. 3: Verteilungskoeffizienten für unterschiedliche Böden [aus: Bisinger, 2009; nach Sheppard & Thibault, 1990].

Bodenart	Erwartungswert ($l\text{ kg}^{-1}$)	Erwartungsbereich ($l\text{ kg}^{-1}$)
Sand	$5,4 \cdot 10^2$	$1,8 \cdot 10^1 - 1,6 \cdot 10^4$
Lehm	$1,2 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^2 - 1,3 \cdot 10^4$
Ton	$4,9 \cdot 10^3$	$7,4 \cdot 10^1 - 3,3 \cdot 10^5$
organisch	$1,8 \cdot 10^3$	$1,0 \cdot 10^1 - 3,3 \cdot 10^5$

In Anwesenheit von gelöster organischer Substanz in Boden- und Grundwasser ist Plutonium geneigt, Kolloide zu bilden, was seine Mobilität stark erhöht [Kersting et al., 1999; Marquardt et al., 2004; Santschi et al., 2017 und Literatur darin].

Zellen (Bakterien) und extrazelluläres Material (Polymere/organische Liganden) bieten Sorptionsoberflächen und können die Mobilität von Plutonium stark beeinflussen. Sie können Pu sowohl mobilisieren, wie auch immobilisieren (Ohnuki et al., 2007, Francis & Dodge, 2015; Lujanien et al., 2017).

II.1.3. Probenahme, -vorbereitung und -messung

II.1.3.1. Probenahme und -vorbereitung

Grundwasser: Oberflächennahe Grundwasserproben wurden aus zwei Bereichen gewonnen. Untersucht wurden kleinvolumige Proben aus Tiefen bis 17 m aus Multilevel-Messstellen (MLM) der BGR und großvolumige Proben aus den Grundwassermessstellen (GWM) des Hannoverschen Wasserversorgers 'enercity', die der kontinuierlichen Überprüfung der Grundwasserqualität dienen, aus Tiefen oberhalb von 5 m (Abb.11). Zusätzlich wurden Proben aus ca. 3 m Tiefe von einer Schwengelpumpe nahe Fuhrberg (Wassererlebnispfad Fuhrberg) sowie Roh- und Reinwasser aus dem Wasserwerk Fuhrberg analysiert.

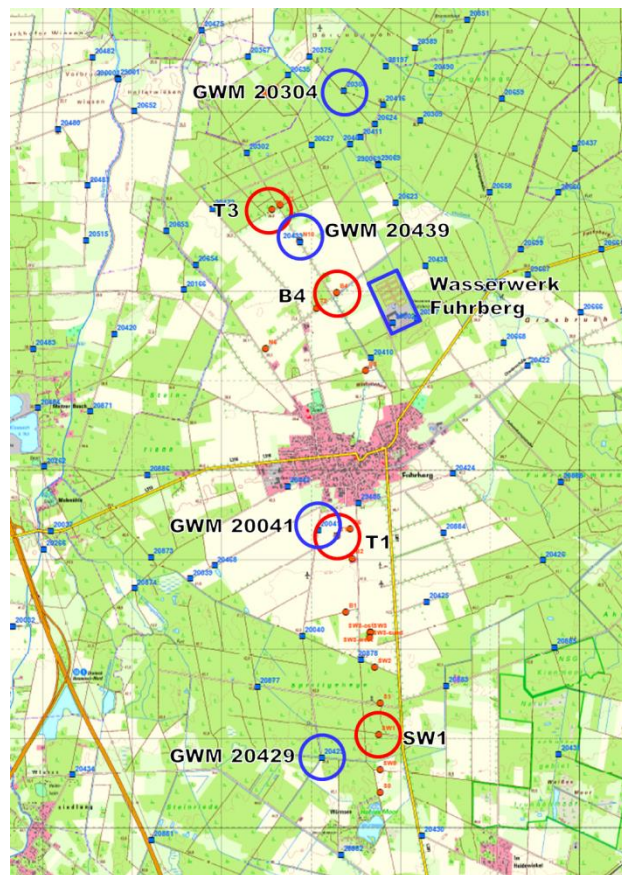


Abb. 11: Übersicht über Probenahmestellen für Grundwasserproben aus dem Fuhrberger Feld (rote Kreise = MLM, blaue Kreise = GWM).

Das Wasser aus den MLM wurde mit Hilfe einer Peristaltikpumpe (MasterFlex L/S 7518-00; Cole-Palmer) über Teflonschläuche an die Oberfläche gepumpt. Da das Wasser dabei stoßweise gefördert wird, hatte es zu Beginn der Probenahme intensiven Luftkontakt. Die Lieferrate der MLM ist gering (ca. $1-2 \text{ L h}^{-1}$), so dass auf diese Weise nur kleine Probenmengen von wenigen Litern gewonnen werden können.

Für die Gewinnung großvolumiger Proben aus dem oberflächlichen Grundwasser wurden die GWM ausgewählt, die in der Nähe der beprobten Multilevel-Messstellen lagen. In

diesem Fall wurden die Proben mit einer Saugpumpe (Hydrojet JP5; Grundfos) mit einer max. Förderhöhe von 7 m und einer Förderleistung von max. 3000 Litern pro Stunde entnommen.

Oberflächenwasser: Im Zeitraum von Juni 2014 bis September 2016 wurden im Fuhrberger Feld 13 Proben aus fließenden (Wietze, Wulbeck, Aller, Leine, Fuhse) und 8 Proben aus stehenden Gewässern im und nahe des Fuhrberger Feldes entnommen.

Die Beprobung der Harztalsperren konnte erst im Frühjahr 2017 durchgeführt werden. Proben wurde an der Grane- und der Sösetalsperre jeweils an der Gewässeroberfläche und am unteren Talsperrenablauf entnommen. Zusätzlich wurden Sickerwasserproben an der Dammsohle der Talsperren gewonnen.

Niederschlag: In der Zeit von Juni bis Dezember 2015 wurden Niederschlagsproben im zweiwöchigen bzw. monatlichen Abstand gewonnen. Ein Regensammler wurde zu diesem Zweck auf einer Grünfläche neben dem Gebäude des Wasserwerks in Fuhrberg aufgestellt.

Boden: Bodenproben wurden auf Acker- und Waldflächen in der Nähe der MLM bis zu einer Tiefe von 30 bzw. 10 cm entnommen.

Auf den beiden Ackerflächen in der Nähe der Multilevelmessstellen T1 und B4 wurden im Oktober 2015 hierfür Bohrkerne (Bohrstock $\varnothing = 35$ mm) von 20 Einstichen bis 30 cm auf einer Fläche von ca. 120 x 45 m zu einer Mischprobe vereinigt.

Nahe der Messstellen T3 und SW1 wurden auf je 2 unterschiedlichen Flächen entsprechende Proben von Böden unter Mischwald entnommen (Nadelwald im Zuge des Waldumbaus mit Laubbäumen unterpflanzt), und zwar im Juli 2016 (bis 30 cm) und März 2017 (bis 10 cm). Unter Wald mussten die Flächen infolge schlechter Zugänglichkeit kleiner gewählt werden, die Anzahl der Einstiche war die gleiche. Zusätzlich wurden hier Mischproben aus der etwa 10 cm dicken Humusaufgabe gewonnen (Bohrstock $\varnothing = 45$ mm), die zum überwiegenden Teil aus Kiefernstreu, zu einem wesentlich kleineren aus Laubstreu bestand.

Die Bodenproben wurden von Hand grob vorgereinigt (Aussortieren von Zweigen und Blattfragmenten), durchmischt und eine Teilmenge für die Iod-Analyse abgetrennt. Diese wurde unter Lichtabschluss luftgetrocknet. Das übrige Material wurde bei 105°C getrocknet, gemörsert auf eine Korngröße von < 2 mm gesiebt. Das Material aus dem Auflagehumus wurde ebenfalls getrocknet und im Häcksler zerkleinert.

Für die Charakterisierung der Proben wurden neben Messung des pH-Wertes [DIN EN 15933] und der Bestimmung des organischen Kohlenstoffs CNS-Analysators 'Vario EL Cube' (Fa. Elementar) die Korngrößenverteilung [DIN ISO 11277], der Gehalt an Fe-/Al-/Mn-oxiden [DIN EN ISO 12782-2 und DIN EN ISO 12782-3], und die Kationenaustauschkapazität [Dohrmann, 2006] untersucht. Tabelle 4 zeigt die Ergebnisse der Analysen.

Tab. 4: Charakteristische Eigenschaften der untersuchten Mineralboden- und Auflagehumusproben.

Probenbezeichnung	Korngrößenverteilung			pH	C _{org} %	KAK _{eff} mmol _c /kg	Fe _{ox} g/kg	Fe _{dith} g/kg
	(Ton %)	(Schluff %)	(Sand %)					
T1	3,3	5,7	91,0	5,8	1,8	64,6	1,62	6,39
T3 ¹	1,3	2,5	96,2	3,1	2,2	45,4	0,16	0,57
T3 II ²	1,9	3,7	94,4	3,3	4,9	62,0	0,16	0,84
B4	2,3	3,4	94,3	6,3	1,8	70,1	0,54	1,77
SW1 ¹	2,1	2,8	95,1	3,8	2,0	32,9	0,12	0,51
SW1 II ²	1,3	4,8	93,9	4,0	3,4	50,2	0,22	0,77

¹ Probenentnahmetiefe 30 cm² Probenentnahmetiefe 10 cm

II.1.3.2. Analysen

Unsicherheiten, Nachweis- und Erkennungsgrenzen wurden gemäß DIN ISO 11929 (DIN-ISO 11929, 2011; FS, 2015) ermittelt.

Bestimmung von ³H: Die Bestimmung von Tritium in Wasserproben wurde über Flüssigszintillation (LSC) in einem QuantulusTM 1220 (Fa. Wallac, Turku/Finnland) vorgenommen. Die Vorbereitung der Proben basiert auf Destillation im basischen Milieu nach Zugabe von Kaliumpermanganat. Ein 10 g Aliquot des Destillats wurde in ein Szintillationsgefäß aus Polyethylen gegeben und mit 10 mL eines Szintillationscocktails (Ultima Gold LLT, Perkin-Elmer) versetzt.

Als Blindprobe wurde tritiumfreies Wasser ('dead water') verwendet (IARMA, International Atomic Reference Material Agency, UK). Tritium-Standards wurden aus zertifiziertem HTO (Physikalisch-Technische Bundesanstalt, PTB-6.11-2013-1268) mit einer spezifischen Aktivität von $(161 \pm 5) \text{ Bq g}^{-1}$ angefertigt. Die Qualität der Messung wurde im Rahmen der Teilnahme an einem Ringversuch (IARMA ETRIT-PT-2015) sichergestellt.

Bestimmung von ¹⁴C: Für die Analyse von ¹⁴C in den Wasserproben sollte ursprünglich eine Methode angepasst werden, bei der die Anreicherung als Bariumcarbonat in Form einer Bariumsulfat-Mitfällung [IAEA, 2015] erfolgt, und die eine anschließende Messung im IRS-Isotopenlabor erlaubt. Dies führte jedoch nicht zum gewünschten Erfolg, so dass die Bestimmung der ¹⁴C/¹²C-Isotopenverhältnisse über Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich durchgeführt werden musste. Zum Einsatz kam das Mini Carbon Dating System (MICADAS), das mit einer Gasionenquelle ausgestattet ist [Wacker et al., 2010]. Bei der Vorbereitung zur Messung wurden die Proben mit 85% H₃PO₄ angesäuert, das aus dem enthaltenen anorganischen Kohlenstoff (DIC) freigesetzte CO₂ wurde mit Heliumgas in eine Zeolith-Falle gespült und erhitzt, das gereinigte Gas anschließend in die

Ionenquelle überführt. Weitere Einzelheiten der Methode finden sich in [Molnár et al., 2013].

Die Ergebnisse für die ^{14}C -Konzentration werden üblicherweise im Vergleich zu einem Standard (oxalic acid II) gemessen und in pMC (percent modern carbon) angegeben. pMC wird gemäß folgender Beziehung berechnet:

$$\frac{A_{\text{samp.}}}{A_{\text{abs.}}} * 100 = \text{pMC},$$

mit $A_{\text{samp.}}$ = Aktivität der Probe und $A_{\text{abs.}}$ = absolute international standard activity. Dabei bezeichnet eine Konzentration von 100 pMC die ^{14}C -Konzentration der Atmosphäre im Jahr 1950. Einzelheiten dazu finden sich bei Stuiver & Polach (1977) und Stenström et al. (2011).

Bestimmung von ^{90}Sr : Für die im Grundwasser zu erwartenden geringen ^{90}Sr -Konzentrationen wurden große Probenvolumina benötigt. Da diese jedoch auf 40 L begrenzt waren, musste ein Anreicherungsverfahren entwickelt werden, welches neben der Bestimmung von Strontium auch die Bestimmung von Plutonium-Isotopen erlaubte. Dazu wurden die filtrierten (Faltenfilter 4-7 μm) und mit HNO_3 angesäuerten Proben zunächst in einem Rotationsverdampfer (LABOROTA 20 control, Fa. Heidolph), anschließend unter einer Heizlampe bis zur Trockne eingeengt. Nach Lösen der Salzkruste und Tracerzugabe (^{85}Sr und ^{242}Pu) folgte ein Fällungsschritt für das Plutonium mit Eisenhydroxid, für das Strontium im Überstand schlossen sich ein Hydrogenphosphat-Fällungsschritt und eine Festphasenextraktion (Sr-Resin; Fa. TrisKem International) an. Eine wesentliche Herausforderung dieses Vorgehens ist das mit dem Strontium vergesellschaftet auftretende Calcium, welches als Homologes ebenfalls eine Affinität zur Trennsäule aufweist und somit durch Überfrachtung der Säule die Anreicherungs-möglichkeit einschränkt. Dem wurde durch eine vorgeschaltete Calciumhydroxidfällung begegnet. Diese garantiert einen Calciumgehalt, der auf der einen Seite die Säulenkapazitäten nicht überschreitet und auf der anderen Seite aber noch hinreichenden hoch ist um die anschließende Calcium/Strontiumhydrogenphosphatfällung zu tragen. Einzelheiten des Verfahrens (vergl. Abb. 12) sind in den Arbeiten von Faßbender (2016) und Pottgießer (2017) näher beschrieben.

Die Bestimmung der ^{90}Sr -Konzentration in den so vorbereiteten Proben erfolgte über Flüssigszintillationsmessungen (LSC) unter Verwendung eines Scintillationscocktails (Ultima Gold AB; Fa. Perkin Elmer) in einem QuantulusTM 1220 (Fa. Wallac, Turku/Finnland). Die Auswertung der Ergebnisse wurde nach der '2-Fenster-Methode' vorgenommen, die es erlaubt, sowohl den Ausbeutetracer ^{85}Sr , wie auch den Analyten ^{90}Sr im Gleichgewicht mit seiner Tochter ^{90}Y simultan zu bestimmen [Faßbender, 2016].

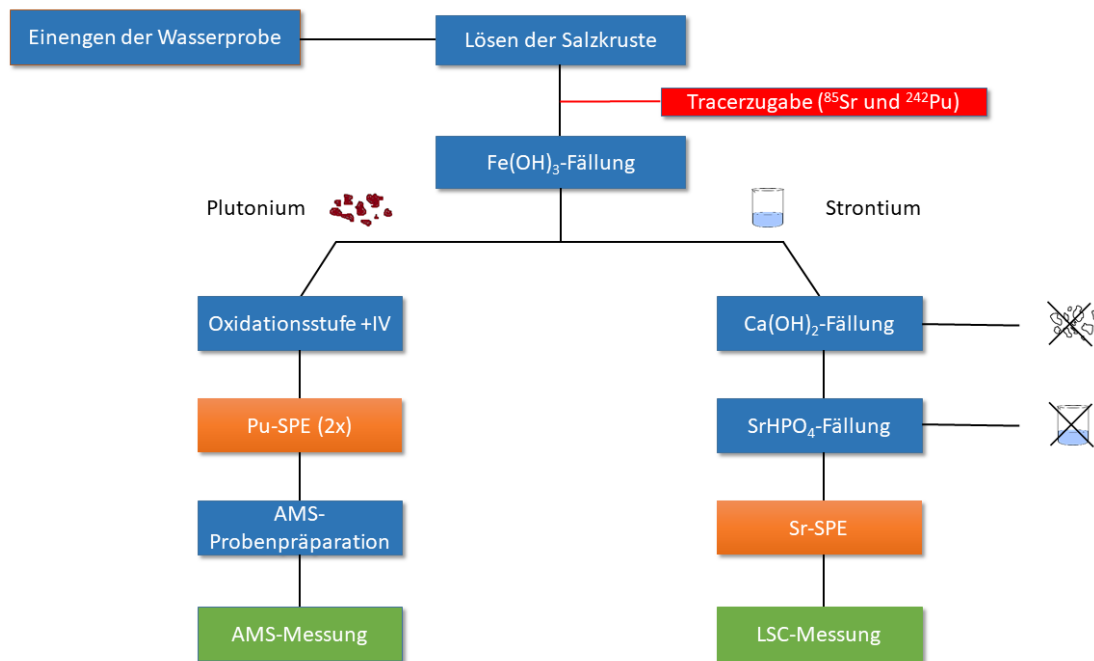


Abb. 12: Schema des verwendeten Probenaufbereitungsverfahrens [Pottgießer, 2017].

Bestimmung von Plutonium-Isotopen: Im Anschluss an die Einengung der Wasserproben, Tracerzugabe und Eisenhydroxidfällung (s. Bestimmung von ^{90}Sr) wurde eine zweimalige Festphasenextraktion (TEVA-Resin; Fa. TrisKem International) durchgeführt, um das zu Interferenzen führende ^{238}U gründlich zu entfernen. Im Folgenden wurden die Proben für die AMS-Messung vorbereitet, die aus einer weiteren Eisenhydroxidfällung, mehreren Waschschritten und dem Überführen des Hydroxids in seine Oxide im Muffelofen (800°C) bestand [Pottgießer, 2017]. Anschließend wurde das Plutoniumoxid mit elementarem Niob vermischt in Titantargets gepresst. Die AMS-Messungen wurden am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich durchgeführt.

Bestimmung von ^{137}Cs : Die rund 40 L umfassenden Wasserproben wurden filtriert (Faltenfilter $4\text{--}7\ \mu\text{m}$) und mit HNO_3 angesäuert. Anschließend wurde das Volumen der Proben in einem Rotationsverdampfer (LABOROTA 20 control, Fa. Heidolph) auf wenige Liter eingengt und unter Heizlampen bis zur Trockne eingedampft. Der Rückstand wurde entweder in Petrischalen gefüllt bzw. auf Filterpapier in Folie laminiert.

Das homogenisierte Probenmaterial von Boden und Auflagehumus wurde in Ringschalen (260 bzw. 560 mL) eingefüllt und der Deckel der Gefäße gasdicht verklebt. Die Messung der Proben wurde auf einem Reinstgermanium-Detektor (p-Typ koaxial Kristall; Fa. Canberra) durchgeführt.

Bestimmung von ^{129}I : Die Bestimmung der ^{127}I -Konzentrationen und der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Proben wurde mittels ICP-MS-Messung ('iCAP Q' von

'Thermo Fisher Scientific') und Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) durchgeführt. Die AMS-Messungen wurden am Institut für Teilchenphysik der ETH Höggerberg in Zürich mit dem AMS-System 'Tandy' durchgeführt.

Für die Bestimmung der ^{127}I -Konzentration der Wasserproben wurde jeweils ein 10 mL Aliquot für die ICP-MS-Messung von der Gesamtprobe abgetrennt und durch einen Filter von 0,45 μm Porendurchmesser gegeben. Die Messung wurde mit einem iCAP von Fisher Scientific durchgeführt. Zur Vorbereitung der Proben für die AMS-Messung wurde das enthaltene Iod nach Zugabe von 3 mg Woodward-Iod als Träger ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{14}$ [Boaretto et al. 1994]) 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. Für die Messung wurde die getrockneten Silberiodid-Proben in der Regel im Verhältnis 1:4 mit Silberpulver gemischt und anschließend in Probenhalter aus Titan gepresst. Eine ausführlichere Beschreibung des Verfahrens ist in Riebe et al. (2014) und der darin zitierten Literatur enthalten.

Für die Iod-Extraktion aus den Bodenproben wurden ca. 20 g lufttrockener Boden zusammen mit ^{125}I als Ausbeute-Tracer in ein Quarzrohr gefüllt und unter Sauerstoffüberschuss und Auswaschung der Verbrennungsgase in alkalischer Hydrogensulfidlösung trocken verascht. Die Einwaage, sowie die Zugabe des Trägeriods wurden dem jeweils zu erwartenden Iod-Gehalt angepasst. 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 ebenfalls in Riebe et al. (2014).

II.1.4. Radionuklide im Fuhrberger Feld

Die folgenden Abschnitte geben eine Übersicht über die Konzentrationen der ausgewählten Radionuklide in den untersuchten Proben. Da es wegen der unterschiedlichen Erfordernisse an die Probenahme nicht immer möglich war, Material für alle Untersuchungen vom selben Ort und aus derselben Tiefe zu bekommen, stehen hier Ergebnisse in unterschiedlichem Umfang zur Verfügung, die nicht immer direkt vergleichbar sind. Für die Harztalsperren konnte nur eine sehr begrenzte Probenmenge gewonnen werden. Daher sind die Ergebnisse dieser Proben in diesem Kapitel mit erfasst.

II.1.4.1 Tritium

Die ^3H -Konzentration der Niederschläge von Mai bis Dezember 2015 aus dem Fuhrberger Feld lag im Mittel bei $1,04 \pm 0,41 \text{ Bq L}^{-1}$ ($8,8 \pm 3,4 \text{ TU}$) mit Werten zwischen $< \text{NWG}$ bis $1,12 \text{ Bq L}^{-1}$ ($9,6 \text{ TU}$) (Abb. 13). Damit sind sie vergleichbar mit den Tritiumkonzentrationen, die an den Stationen Aachen, Berlin, München, Offenbach und Schleswig vom Deutschen Wetterdienst ermittelt wurden. Diese bewegten sich für das Jahr 2010 zwischen $0,75$ und $2,1 \text{ Bq L}^{-1}$ [BMU, 2012]. Für 2013 lagen diese bei $0,4$ bis $1,6 \text{ Bq L}^{-1}$ [BMU, 2015].

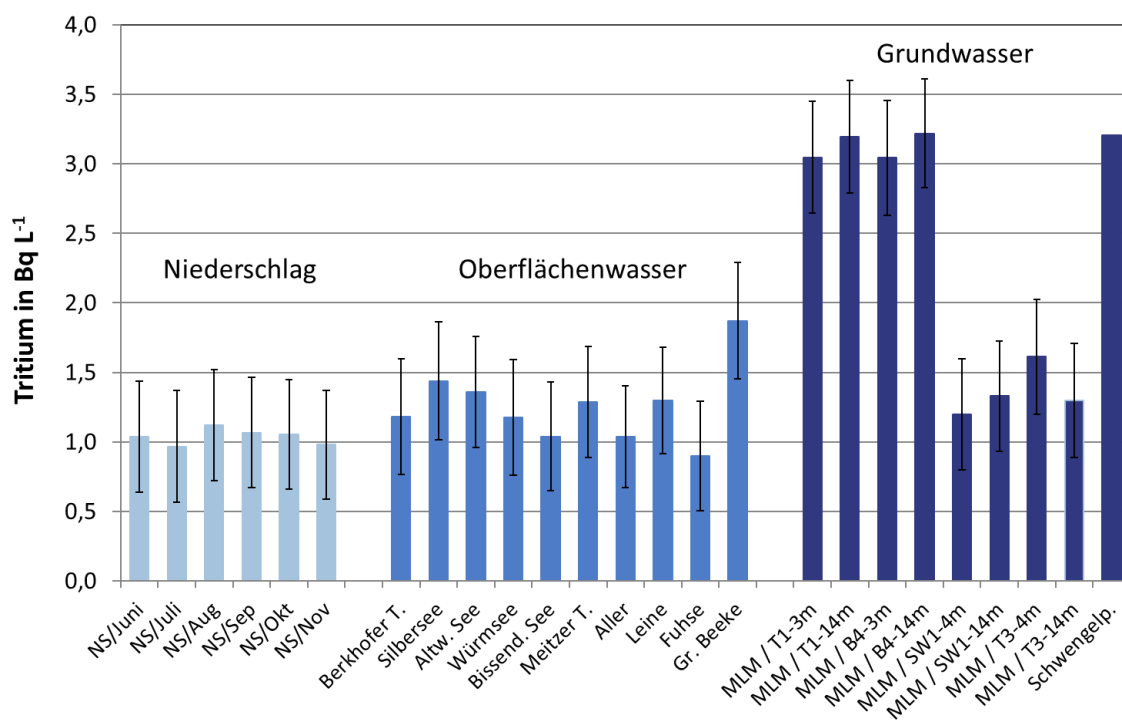


Abb. 13: ^3H -Aktivitäten in Niederschlägen, Oberflächen- und Grundwasserproben aus dem Fuhrberger Feld.

Werden die gemessenen Werte mit denen der GNIP-Stationen (Global Network of Isotopes in Precipitation; IAEA, 2016a) verglichen (Abb. 14), ist festzustellen, dass sie zu denen der Stationen in Braunschweig und Cuxhaven passen. Im Übrigen liegen die

Aktivitäten in dem Bereich ($1,0 \text{ Bq L}^{-1}$ bzw. $8,4 \text{ TU}$), der für die mittleren Breiten der Nordhalbkugel für Niederschläge angegeben wird [Chau et al., 2011].

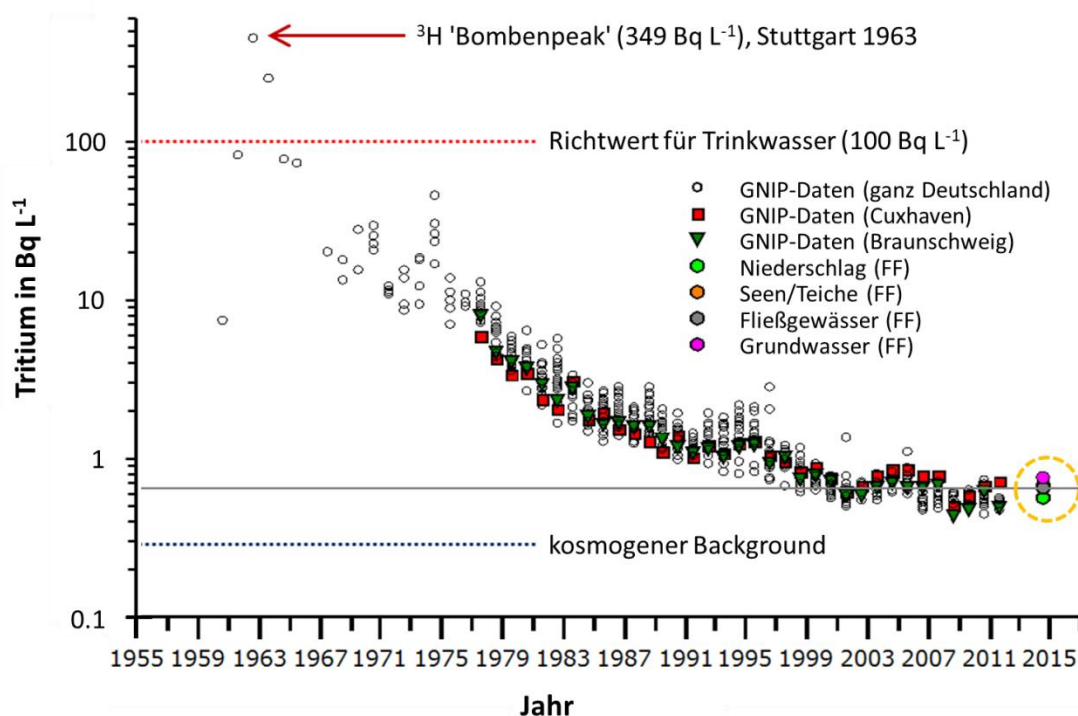


Abb. 14: Durchschnittliche ^3H -Konzentration von Niederschlags-, Oberflächen- und Grundwasser aus dem Fuhrberger Feld (orange Kreis) im Vergleich zu den GNIP-Daten für Deutschland (IAEA, 2016a).

Die ^3H -Konzentrationen der untersuchten Fließgewässer lagen im Mittel unwesentlich über denen der Niederschläge ($1,31 \pm 0,39 \text{ Bq L}^{-1}$ oder $11,0 \pm 3,3 \text{ TU}$), ebenso die der stehenden Gewässer ($1,26 \pm 0,41 \text{ Bq L}^{-1}$ oder $10,6 \pm 3,4 \text{ TU}$). Die für die Vergleich man diese mit den Daten von den GNIP-Stationen (Global Network of Isotopes in Rivers; IAEA, 2016b) der Aller bei Rethem und der Weser bei Langwedel, so liegen die in diesem Projekt ermittelten Werte unwesentlich über denen der Aller (vergl. Abb. 15). Die Tritium-Gehalte des Weserwasser fallen etwas höher aus, was darauf zurück geführt werden kann, dass der Probenahmeort ca. 50 km stromabwärts des Kernkraftwerks Grohnde liegt, das zwischen 2005 und 2014 jährlich rund 20 TBq Tritium mit dem Abwasser in die Weser abgegeben hat (MU, 2015a).

Messungen der ^3H -Konzentrationen im Flusswasser der Weser (Intschede – vergleichbare Lage wie Langwedel) und der Aller (Grafhorst, ca. 120 km stromaufwärts von Rethem) des NLWKN (Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz) ergaben für denselben Zeitraum Werte von $3\text{-}4 \text{ Bq L}^{-1}$ für die Weser bzw. $1\text{-}2 \text{ Bq L}^{-1}$ für die Aller (MU, 2015b).

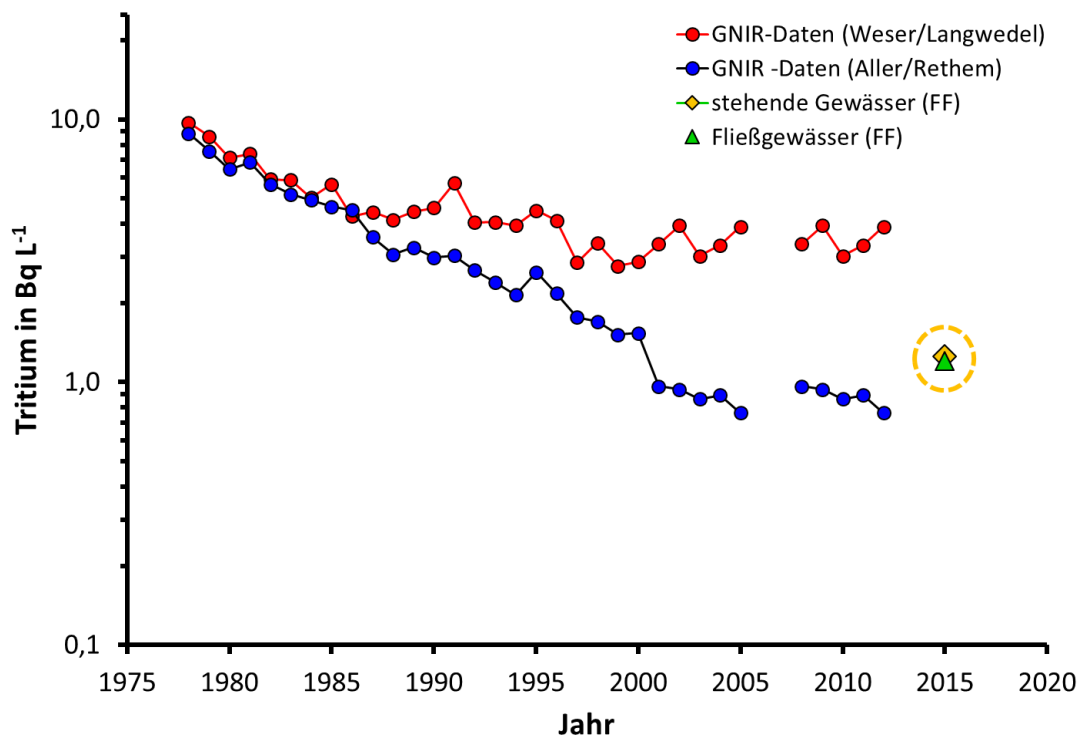


Abb. 15: Durchschnittliche ^3H -Konzentration von Proben aus Oberflächengewässern des Fuhrberger Feldes (orange Kreis) im Vergleich zu den GNIR-Daten für die Stationen Aller/Rethem und Weser/Langwedel (IAEA, 2016b).

Die Tritiumkonzentrationen der Grundwasserproben (MLM und Schwengelpumpe) variierten in einem Bereich von $1,22 \pm 0,40$ bis $3,22 \pm 0,41$ Bq L^{-1} (entspr. $10,0 \pm 3,4$ bis $27,0 \pm 3,3$ TU). Eine höhere Tritiumkonzentration ist in aller Regel ein Hinweis darauf, dass das Grundwasser aus einer Zeit stammt, in der die Niederschlagskonzentrationen infolge der Kernwaffenversuche hoch waren und so eine altersmäßige Einordnung erlaubt. Eine solche Aussage ist bei den Grundwässern des Fuhrberger Feldes jedoch schwierig, da das Grundwasser keine regelmäßige Schichtung aufweist. Gründe hierfür sind kleinräumige Änderungen in der Flächennutzung (vergl. Abb. 2), laterale Durchmischung des Grundwassers und sommerliche Bewässerung der Ackerflächen mit Grundwasser.

Insgesamt liegen alle gemessenen ^3H -Konzentrationen um Größenordnungen unterhalb der für Trinkwasser angegebenen Parameter- bzw. Richtwerte von 100 Bq L^{-1} [BMG, 2016] bzw. 10.000 Bq L^{-1} [WHO, 2017].

Das trifft auch auf die vom BfS im Rahmen der Überwachung von Grund- und Trinkwasser für das Jahr 2013 ermittelten Tritiumwerte zu, die im Bereich von $1,3$ bis 20 Bq L^{-1} bzw. $1,2$ bis 17 Bq L^{-1} lagen, wobei die höchsten Werte bei der Überwachung des KKW Phillipsburg und auf dem Gelände des Freilagers für radioaktive Abfälle (Kontrollbereich) des VKTA-Rosendorf festgestellt wurden.

II.1.4.2. ^{14}C

Die Ergebnisse für alle untersuchten Proben sind in Tabelle A-3 im Anhang zusammengefasst. Die ^{14}C -Konzentrationen werden in pMC (percent modern carbon) angegeben (vergl. Abschnitt I.1.3.2). Alle für Grundwasserproben gemessenen Werte lagen im Bereich zwischen $56,7 \pm 0,6$ und $86,4 \pm 0,9$ pMC (Abb. 16). Hier machen sich die Wechselwirkungen des atmosphärisch eingetragenen Kohlenstoffs mit den verschiedenen Komponenten der Bodenmatrix bei der Versickerung bemerkbar (vergl. Abschnitt II.1.2.). Es ist kein tiefenabhängiger Trend in der Höhe der Werte zu erkennen. Aus den gleichen Gründen wie beim Tritium (Heterogenität der Flächennutzung, laterale Flüsse im Grundwasser, künstliche Bewässerung im Sommer) lassen sich auch bei den ^{14}C - Daten keine Rückschlüsse auf das Alter der Grundwasserproben ziehen.

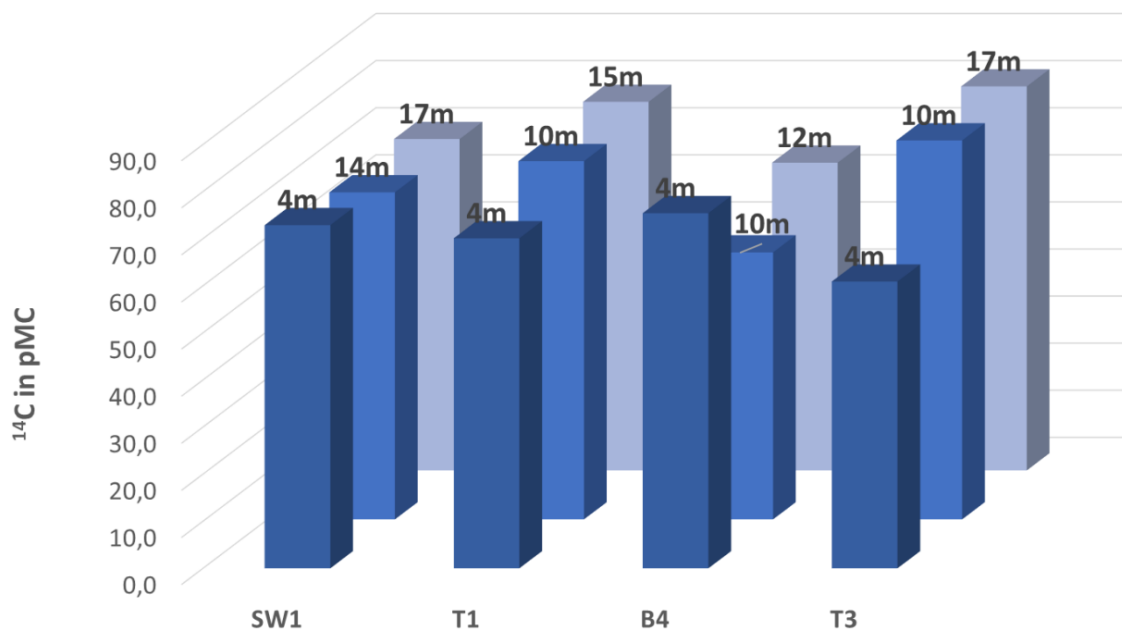


Abb. 16: ^{14}C -Aktivitäten in Grundwasserproben (Multilevel-Messstellen) aus dem Fuhrberger Feld aus verschiedenen Tiefen.

Die Werte, die für die Oberflächengewässer bestimmt wurden, lagen im Vergleich zu denen der Grundwasserproben mit $83,1 \pm 0,8$ und $97,1 \pm 1,0$ pMC deutlich über diesen (Abb. 17). Eine Ausnahme bildet die Sickerwasserprobe aus der Dammschle der Sösetalsperre mit $51,6 \pm 0,6$ pMC, bei der sich ebenfalls der Einfluss der Bodenpassage bemerkbar zu machen scheint.

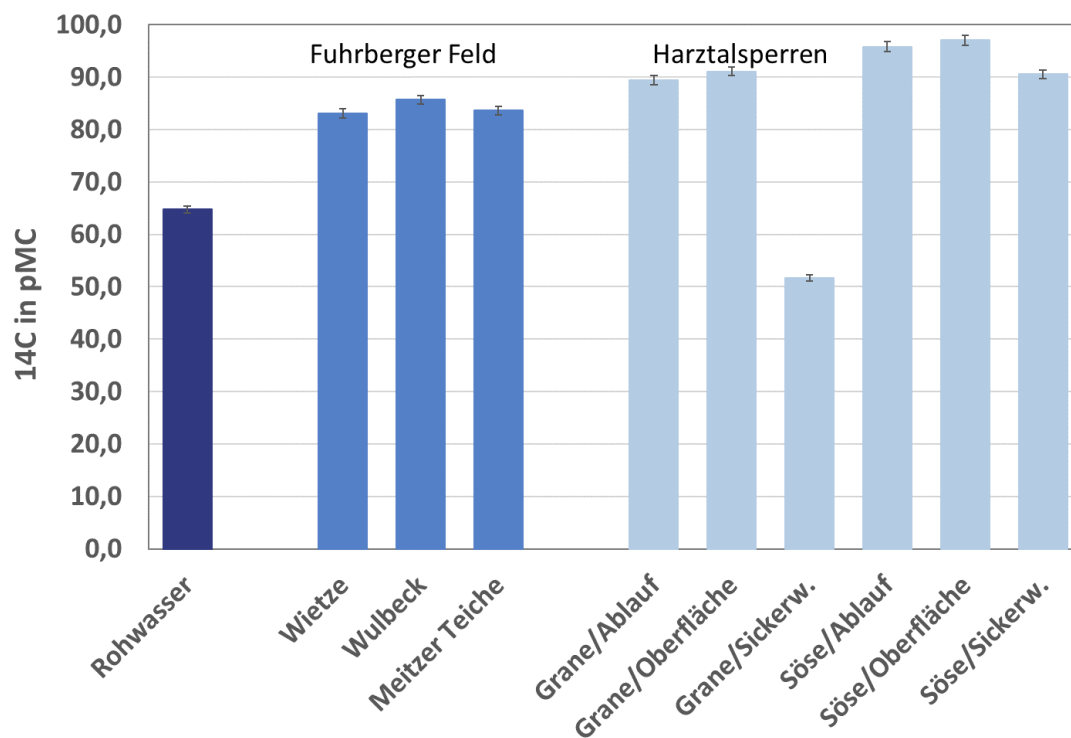


Abb. 17: ¹⁴C-Aktivitäten in Oberflächenwasser aus Gewässern des Fuhrberger Feldes und aus zwei Harztalsperren, sowie zum Vergleich aus Rohwasser (28 m Tiefe) aus dem Wasserwerk Fuhrberg.

II.1.4.1 ⁹⁰Sr

Es besteht eine weitgehende Übereinstimmung der Ergebnisse für alle Proben aus den Harztalsperren, die sich im Bereich von $1,6 \pm 0,1$ und $2,0 \pm 0,1$ mBq kg⁻¹ bewegten (Abb. 18). Alle Einzelergebnisse sind auch in Tabelle A-3 im Anhang aufgeführt. In einem sehr ähnlichen Bereich, mit $2,5 \pm 0,1$ und $2,2 \pm 0,1$ mBq kg⁻¹ liegen auch die Messwerte für zwei der im Fuhrberger Feld untersuchten Oberflächengewässer (Meitzer Teiche, Wietze). Die ⁹⁰Sr-Konzentration des Wassers aus der Wulbeck weist dagegen mit $5,0 \pm 0,4$ mBq kg⁻¹ einen deutlich höheren Wert auf. Sehr wahrscheinlich ist die Ursache hierfür in dem sehr viel intensiveren Kontakt des kleinen Baches mit dem Waldboden, bzw. dessen organischen Bestandteilen, zu suchen.

Bei den ⁹⁰Sr-Konzentrationen im Grundwasser fällt auf, dass die Proben aus den beiden in der Nähe von Ackerflächen gelegenen Grundwassermessstellen (GWM 20041, GWM 20439) mit $6,7 \pm 0,5$ und $7,7 \pm 0,7$ mBq kg⁻¹ weit höhere Messwerte aufweisen als die Proben aus den Grundwassermessstellen im Wald (GWM 20304, GWM 20249) sowie die übrigen Grundwasserproben. Die Entnahmetiefen bei beiden Varianten war vergleichbar: die Proben der GWM/Acker wurden aus 2,60 und 4,20 m entnommen, die der GWM/Wald aus 1,80 und 4,60 m. Der wesentliche Unterschied besteht darin, dass die Böden im Wald über eine >10 cm mächtige Humusaufgabe verfügen, die ausreichend Bindungsplätze für ⁹⁰Sr bietet. Darüber hinaus werden landwirtschaftlich ge-

nutzten Böden über die regelmäßige Düngung Konkurrenzionen (Ca^{2+} und Mg^{2+}) zugeführt, was sich auch in den Ergebnissen der Wasseranalyse ausdrückt (vergl. auch Tab. A-2 im Anhang).

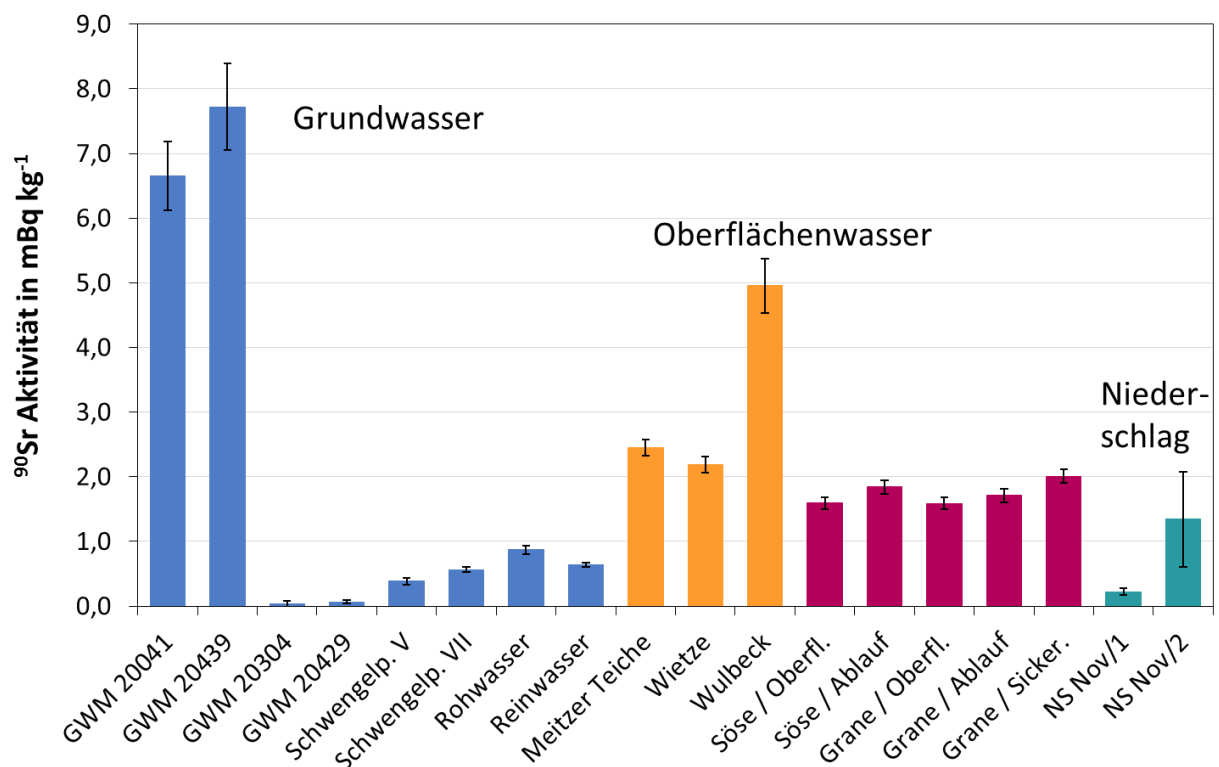


Abb. 18: ^{90}Sr -Aktivitäten in Grund-, Oberflächen- und Niederschlagswasser aus dem Fuhrberger Feld und den Harztalsperren.

Sowohl in der direkt im Wasserwerk entnommenen Rohwasser- wie auch in der Reinwasserprobe wurde eine geringe Konzentration an ^{90}Sr gemessen. Das ist darauf zurückzuführen, dass gelöstes Strontium bei der üblichen Wasseraufbereitung nicht so effizient entfernt werden kann wie ^{137}Cs [STUK, 2015]. Bei der Untersuchung von finnischem Trinkwasser im Oktober 2014 lagen die ^{90}Sr -Konzentrationen für 4 der 5 untersuchten Standorte zwischen 1 und 6 mBq L^{-1} , die Konzentrationen für ^{137}Cs im Bereich $< \text{NWG}$ bis 3 mBq L^{-1} . Eine Ausnahme bildete Helsinki. Dort lag der ^{137}Cs -Messwert bei 13 mBq L^{-1} , der von ^{90}Sr jedoch nur bei 5 mBq L^{-1} .

Für die Mineralböden selber treten die durch die Nutzung verursachten Unterschiede nicht eindeutig zutage. Vielmehr liegen die ^{90}Sr -Konzentrationen für die zwei Acker- und einen Waldstandort in einem ähnlichen Bereich, nämlich zwischen rund 370 und 565 mBq kg^{-1} , während der zweite Waldstandort mit 925 mBq kg^{-1} deutlich darüber liegt. Allerdings kann auch nicht ausgeschlossen werden, dass bei dieser Probe geringfügige Mengen der Humusaufgabe mit erfasst wurden.

Die ^{90}Sr -Gehalte der Proben aus der Humusauflage der beiden Waldstandort lagen mit (718 ± 92) und (2418 ± 242) mBq kg^{-1} jeweils deutlich über den Messwerten der unterliegenden Mineralböden. Das zeigt ein hohes Bindungspotential des organischen Materials und erklärt die geringen ^{90}Sr -Gehalte im Grundwasser im Vergleich zu den Ackerstandorten. (vergl. Abschnitt II.2.1.).

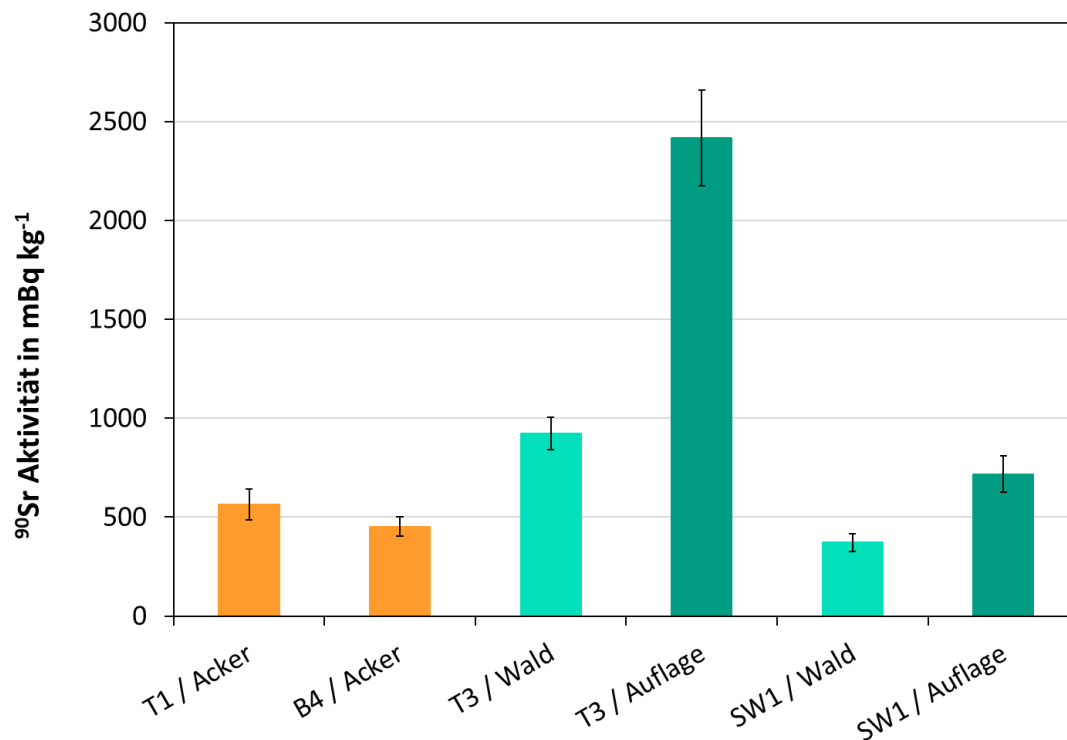


Abb. 19: ^{90}Sr -Aktivitäten in Mineralböden und Auflagehumus aus dem Fuhrberger Feld.

II.1.4.2. ^{137}Cs

Für die Grundwässer lagen die gemessenen Werte einer Probe aus den Grundwassermessstellen (GWM 20429), des Reinwassers aus dem Wasserwerk Fuhrberg, und bei den Oberflächenwässern die der Probe aus den Meitzer Teichen unterhalb der Nachweisgrenze. Die Ergebnisse für die übrigen Grundwasserproben lagen zwischen $0,50 \pm 0,14$ und $1,13 \pm 0,19$ mBq kg^{-1} , die der beiden Fließgewässer (Wietze, Wulbeck) bei $3,4 \pm 0,3$ und $3,9 \pm 0,3$ mBq kg^{-1} (Abb. 20).

Die im oberflächennahen Grundwasser der GWM und im Rohwasser des Wasserwerks gefundenen ^{137}Cs -Mengen waren vergleichsweise gering. Die unterschiedlichen Gehalte der Niederschlagsproben können Resuspension als Ursache haben.

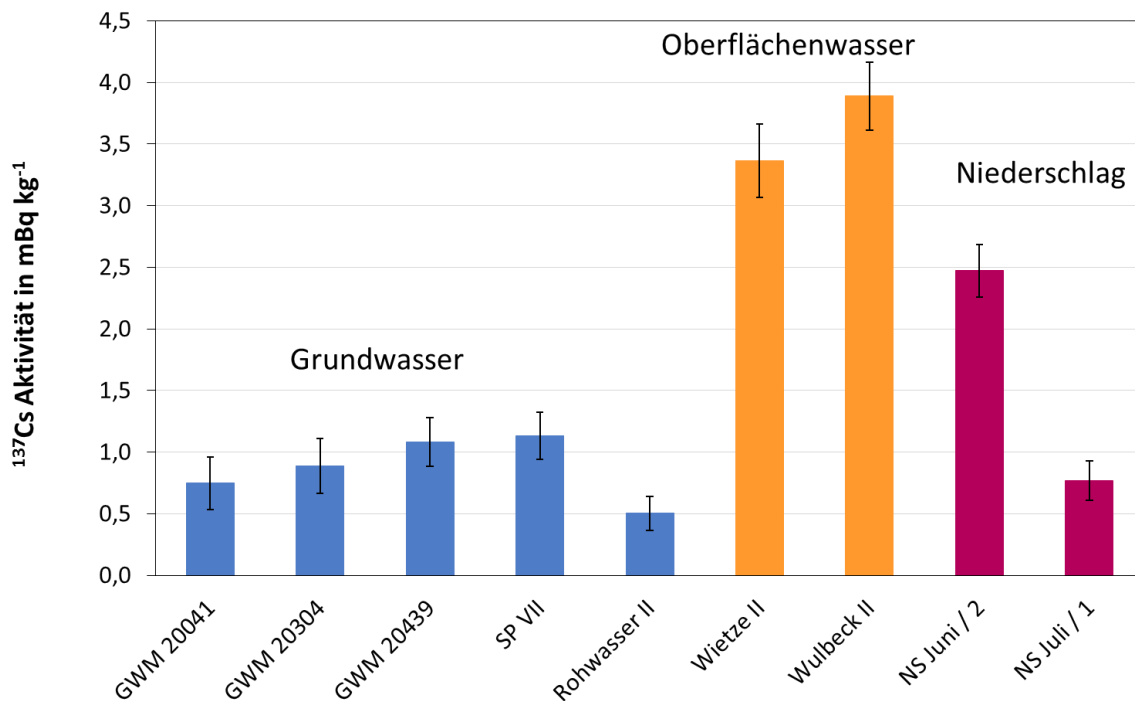


Abb. 20: ¹³⁷Cs-Aktivitäten in Grund-, Oberflächen- und Niederschlagswasser aus dem Fuhrberger Feld.

Die für die Mineralböden gemessenen ¹³⁷Cs-Aktivitäten lagen zwischen ($5,1 \pm 0,3$) und ($9,3 \pm 0,5$) Bq kg⁻¹. (Abb. 21). Die der Humusaufgabe der Waldböden fielen dagegen mit ($89,1 \pm 4,5$) bis ($133,1 \pm 6,7$) Bq kg⁻¹ eine Größenordnung höher aus.

Rafferty et al. (2000) gehen davon aus, dass die Verlagerung von ¹³⁷Cs in Böden mit einer Humusaufgabe (Nadelwald) in drei Phasen abläuft. Das erste Jahr nach der Kontamination ist dadurch gekennzeichnet, dass ein Teil des ¹³⁷Cs relativ schnell in den Boden eingewaschen wird, ein anderer mit dem Bestandsabfall auf der Oberfläche deponiert wird. Dadurch entsteht ein Konzentrationspeak im Oh/Ah-Horizont, also am Übergang von der Humusaufgabe zum Mineralboden.

In der zweiten Phase, die etwas 4-5 Jahre andauert, verlangsamt sich die Migration deutlich. Sie ist geprägt von Freisetzung des ¹³⁷Cs durch Zersetzung der organischen Substanz im L/Of-Horizont und Überdeckung durch frische Nadelstreu, mit Akkumulation im Oh-Horizont als Folge. Daran schließt sich eine weitere Phase an, in die Verlagerung noch weiter verlangsamt ist, weil der Auswaschung aus der Humusaufgabe die Aufnahme durch Pflanzenwurzeln und in Pilzmyzele gegenüberstehen, die einen Aufwärtstransport bewirken.

Wie bereits in Teil I erwähnt, wurden in der Folge des Reaktorunfalls von Chernobyl Untersuchungen Bezug auf Einträge von ¹³⁷Cs zum Gehalt von Böden und Pflanzen auf einer Dauerbeobachtungsfläche unter Kiefernwald im Fuhrberger Feld durchgeführt [Fortmann & Meesenburg, 2009], die jedoch keine Analyse des Grundwassers einschloss. Auch hier wurden die höchsten Aktivitäten für den L-, Of- und Oh-Horizont,

also die Humusaufgabe gemessen. Da die Verlagerungsgeschwindigkeit von ^{137}Cs äußerst gering war, sahen die Autoren keine Gefährdung des Grund- und damit Trinkwassers.

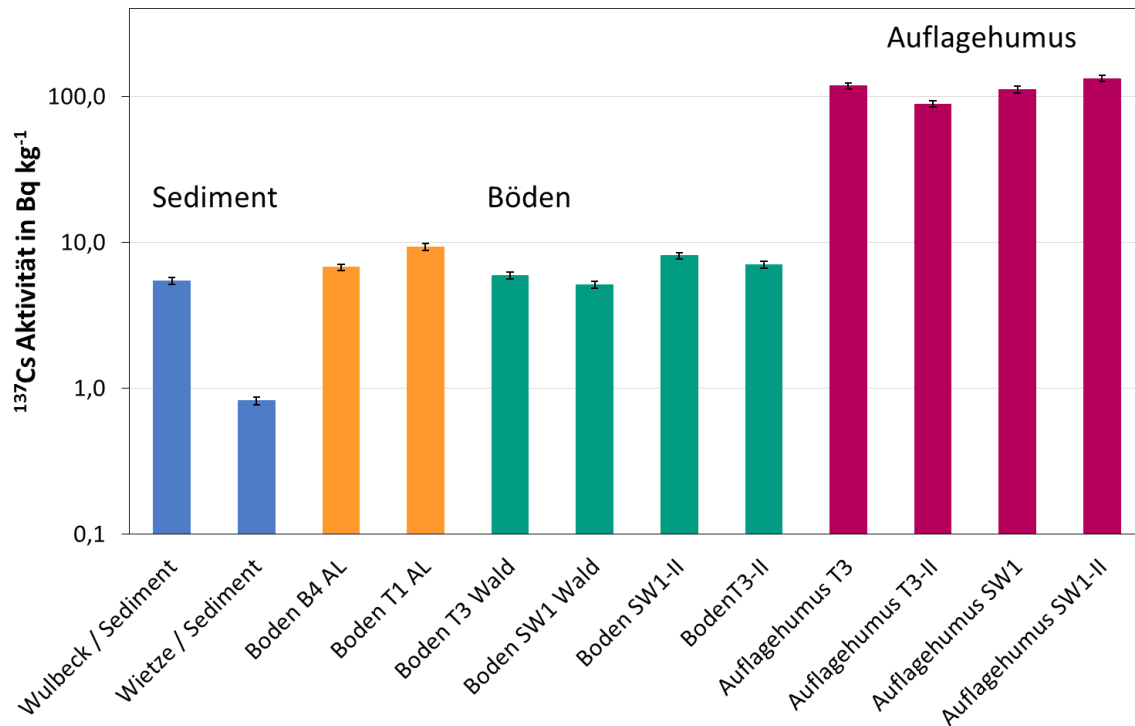


Abb. 21: ^{137}Cs -Aktivitäten in Proben von Bachsediment, Boden und Auflagehumus aus dem Fuhrberger Feld.

II.1.4.1 ^{129}I

Die ^{129}I -Aktivitäten sowie die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die für die Oberflächenwässer im Bereich Fuhrberger Feld und dessen naher Umgebung ermittelt wurden, lassen sich mit denen anderer stehender und fließender Gewässer in Niedersachsen vergleichen [Osman et al., 2016]. Sie lagen im Bereich von $(4,0 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$ und $(6,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-6} \text{ Bq kg}^{-1}$, die Isotopenverhältnisse bei $(1,2 \pm 0,05) \cdot 10^{-9}$ bis $(1,0 \pm 0,04) \cdot 10^{-7}$. Auch die in den Niederschlägen von Mai bis Dezember 2015 gemessenen Werte fallen in den Bereich, der für andere Orte in Niedersachsen bestimmt wurde. Sie bewegten sich zwischen $(1,0 \pm 0,03) \cdot 10^{-6}$ und $(2,3 \pm 0,04) \cdot 10^{-5} \text{ Bq kg}^{-1}$, die Isotopenverhältnisse zwischen $(1,1 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$ bis $(6,3 \pm 0,4) \cdot 10^{-7}$ [vergl. Tab A-4a und -4b im Anhang].

Im Gegensatz dazu fügen sich die ^{129}I -Aktivitäten für die untersuchten Grundwasserproben nicht in dieses Bild ein. Diese lagen für das Fuhrberger Feld mit Werten von $(6,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-8}$ und $(2,8 \pm 0,05) \cdot 10^{-6} \text{ Bq kg}^{-1}$ eher in dem Bereich, in den auch die Ergebnisse der Oberflächenwässer einzuordnen sind. Das Gleiche trifft auch auf die Isotopenverhältnisse zu, die sich im Bereich von $(2,7 \pm 0,08) \cdot 10^{-9}$ bis $(1,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$

bewegten. Damit liegen beide Parameter jeweils ein bis zwei Größenordnungen über den Werten, die für vergleichbare Standorte ermittelt wurden (Abb. 22).

Im Unterschied zum nicht überdeckten Aquifer im Fuhrberger Feld mit den geringen Entnahmetiefen stammen die Vergleichsproben jedoch aus einem Grundwasserleiter, der von einer schützenden Tonschicht überdeckt ist und einem zwar ebenfalls nicht überdeckten Grundwasserleiter, bei dem das Wasser jedoch aus einer wesentlich größeren Tiefe (75 m) entnommen wurde. Außerdem enthält das Grundwasser des Fuhrberger Feldes eine beträchtliche Menge an gelöstem organischem Kohlenstoff (DOC), wie bereits in der Untersuchung von Artinger et al. (2000) festgestellt wurde (4,4-16,8 mg C L⁻¹). In den meisten Grundwässern liegen die Gehalte bei 0,1 bis 2,0 mg C L⁻¹ [Thurman, 1985 zitiert in Frimmel, 2001].

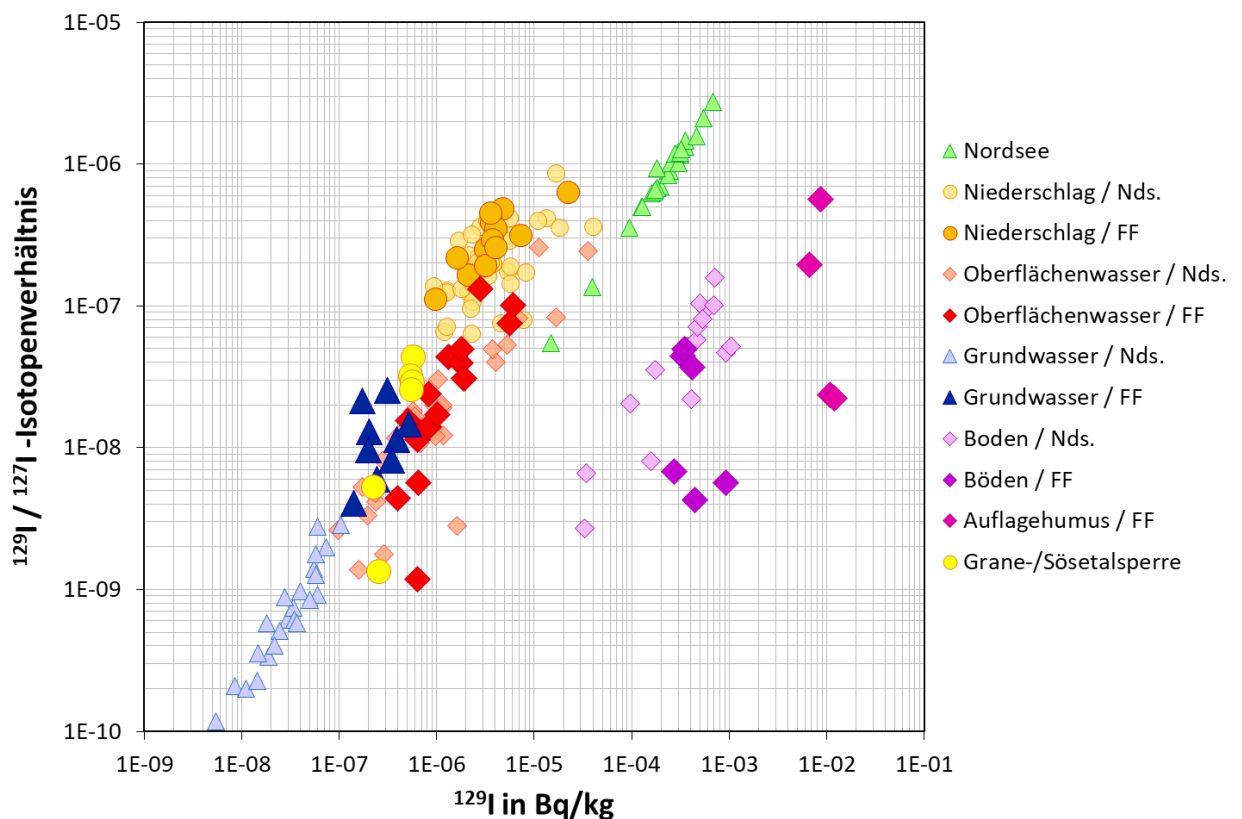


Abb. 22: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Abhängigkeit von der ^{129}I -Aktivität in Proben aus dem Fuhrberger Feld im Vergleich zu Proben von anderen niedersächsischen Standorten und der Nordsee (Lage der Vergleichsstandorte s. Abb. A-1 im Anhang).

Der Eintrag von DOC variiert unter anderem unter dem Einfluss der Vegetation und der Bodenbearbeitung und liegt auf unkontaminierten landwirtschaftliche Flächen bei 1-5 mg C L⁻¹ [Thayalakumaran et al., 2015], die Gehalte können aber bei intensiver Düngung mit Wirtschaftsdüngern teilweise auch Werte von bis zu 55 mg C L⁻¹ erreichen [Chomycia et al., 2008]. Gelöster organischer Kohlenstoff beschleunigt den Transport

verschiedener Schadstoff, z.B. Schwermetalle, organische Stoffe, aber auch Radionuklide, ins Grundwasser [Kretzschmar et al., 1999].

Die für die Mineralböden gemessenen ^{129}I -Aktivitäten fielen ähnlich aus wie die der Vergleichsstandorte aus Niedersachsen. Der organophile Charakter von Iod zeigt sich aber insbesondere in den für den Auflagehumus gemessenen Aktivitäten, die – wie auch bei ^{137}Cs und bei ^{90}Sr - mehr als eine Größenordnung über denen der Mineralböden lagen.

II.1.4.2. Plutonium-Isotope

Für die meisten der untersuchten Proben lag die $^{239+240}\text{Pu}$ Aktivität unterhalb der Nachweis- und Erkennungsgrenze. Von den insgesamt 28 Proben lassen sich nur für 4 Proben, und zwar für den Auflagehumus der Waldböden, Angaben machen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5 aufgeführt. Weder in den Wasser- noch in den Mineralbodenproben konnten messbare Plutoniumkonzentrationen festgestellt werden.

Tab. 5: Aktivitäten und Isotopenverhältnisse von $^{239+240}\text{Pu}$ der Proben aus dem Fuhrberger Feld.

Probe	A [Bq kg^{-1}]	u (A) [Bq kg^{-1}]	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	u
T3 / Auflagehumus	5,172	0,126	0,1920	0,0070
T3-II / Auflagehumus	1,263	0,033	0,1816	0,0073
SW1 / Auflagehumus	0,144	0,007	0,1846	0,0071
SW1-II / Auflagehumus	0,936	0,023	0,1816	0,0233

Die Isotopenverhältnisse von $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in den Humusproben weisen mit Werten von 0,18-0,19 darauf hin, dass das gefundene Plutonium aus dem Fallout der Kernwaffentests stammt (vergl. Abb. 23).

Für die Oberflächengewässer ist davon auszugehen, dass eingetragenes Plutonium relativ zügig im Sediment abgelagert wird und deswegen nicht im Wasser nachzuweisen ist. Im obersten Horizont der Ackerböden finden durch kontinuierliche Bodenbearbeitung eine Homogenisierung und eine starke Verdünnung eingetragener Radionuklide statt, was einen Nachweis bei sehr geringen Konzentrationen stark erschwert.

Da aber weder im Mineralboden noch im Grundwasser unter Wald Plutoniumisotope gefunden wurden, ist anzunehmen, dass diese in der organischen Substanz der Humusaufgabe gebunden und nicht weiter verlagert wurden. Die Konzentrationen sind mit rund $0,1 - 5 \text{ Bq kg}^{-1}$ so gering, dass Plutonium im Grundwasser durch die starke Verdünnung vermutlich auch nicht nachzuweisen wäre, wenn es kolloidal im Profil verla-

gert worden wäre. An kontaminierten Standorten wurden Konzentrationen im mBq-Bereich im Grundwasser nachgewiesen. Hier lagen jedoch die Ausgangskonzentrationen im Boden entsprechend hoch.

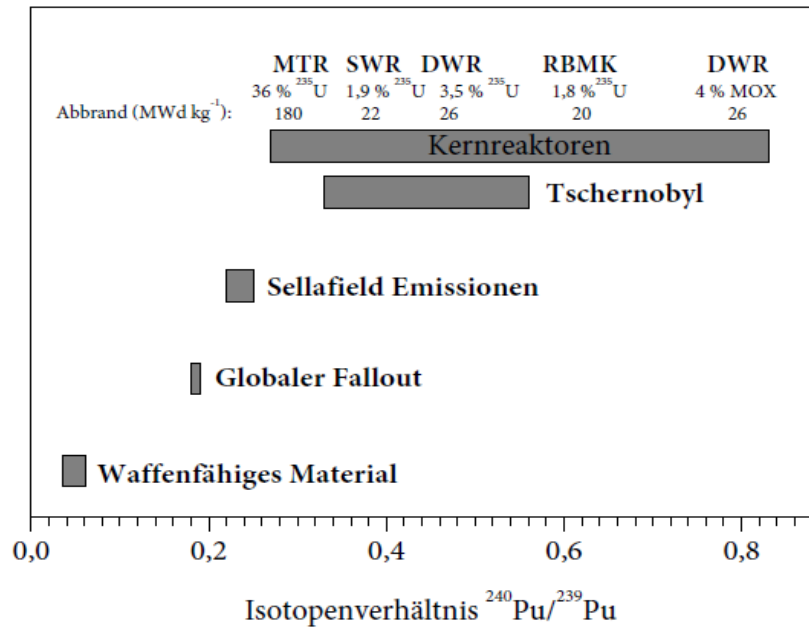


Abb. 23: ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu-Isotopenverhältnisse verschiedener Quellen [aus: Bisinger, 2009].

II 1.5. Sensitivität von Grundwasserleitern

Die Empfindlichkeit oder Vulnerabilität eines Grundwasserleiters gegenüber Stoffeinträgen aus der Atmosphäre hängt von verschiedenen Faktoren ab. Zum einen sind dies Eigenschaften des Grundwasserleiters und seiner Überdeckung, zum anderen wird die Eintragswahrscheinlichkeit durch die Chemie und das Verhalten der Schadstoffe bestimmt.

Bei Grundwasserleitern wird grundsätzlich zwischen Karst-, Kluft- und Porengrundwasserleitern unterschieden, wobei letztere die geringste Verschmutzungsempfindlichkeit zeigen. Sie treten in kiesigem bzw. sandigem Untergrund auf und weisen weniger hohe Fließgeschwindigkeiten und längere Verweilzeiten des Wassers auf als die anderen Typen.

Seit Ende der 1960er Jahre werden im Rahmen des Risikomanagements in der Trinkwassergewinnung Verfahren konzipiert und weiterentwickelt, um die Verschmutzungsempfindlichkeit von Grundwasserleitern zu beurteilen [Wirsing et al., 2015].

In Deutschland haben die Staatliche Geologischen Dienste Deutschlands (SGD) im Rahmen der Berichtspflicht zur Umsetzung der im Jahr 2000 in Kraft getretenen Wasserrahmenrichtlinie der Europäischen Union (EU-WRRL – Richtlinie 2000/60/EG des Europäischen Parlaments und des Rats vom 23. Oktober 2000) Informationen zum Schutzpotential der Grundwasserüberdeckung zusammengetragen. Das Schutzpotential beinhaltet eine Abschätzung der geologisch begründeten Schutzwirkung der ungesättigten Zone (Grundwasserüberdeckung) gegenüber dem Eindringen von Schadstoffen.

Die Herangehensweise der einzelnen Bundesländer war dabei unterschiedlich, je nach zur Verfügung stehenden Flächen- (Karten) oder Punktinformationen (Schichtenverzeichnisse aus Bohrungen). In einigen Bundesländern wurde eine von den SGD entwickelte Methode zur Ermittlung der Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung [Höltling et al., 1995] verwendet, für die allerdings flächendeckende detaillierte Informationen zu hydrologischen und bodenkundlichen Parametern (Sickerwasserrate, nutzbare Feldkapazität des Bodens, strukturelle Eigenschaften der Festgesteine etc.) benötigt werden. Die Beurteilung der Schutzfunktion wird hier nach einem Punktvorgabeverfahren durchgeführt und das Ergebnis anschließend in Anlehnung an die Arbeitshilfe der Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA) [LAWA, 2003] den Kategorien 'günstig', 'mittel' und 'ungünstig' zugeordnet. Auf diese Weise entstand in Zusammenarbeit von SGD und BGR bis 2007 eine deutschlandweite Karte Schutzpotential der Grundwasserüberdeckung [BGR, 2007].

Fuhrberger Feld

Abbildung 24 zeigt einen Ausschnitt aus der Karte, die den Bereich des Fuhrberger Feldes umfasst. Der weitaus größte Anteil der Fläche ist hinsichtlich der Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung als 'ungünstig' ausgewiesen, was wegen seiner Lage in

geringer Tiefe, der fehlende Überdeckung durch eine schwerdurchlässige Schicht und der ungünstigen Bodeneigenschaften zu erwarten war.

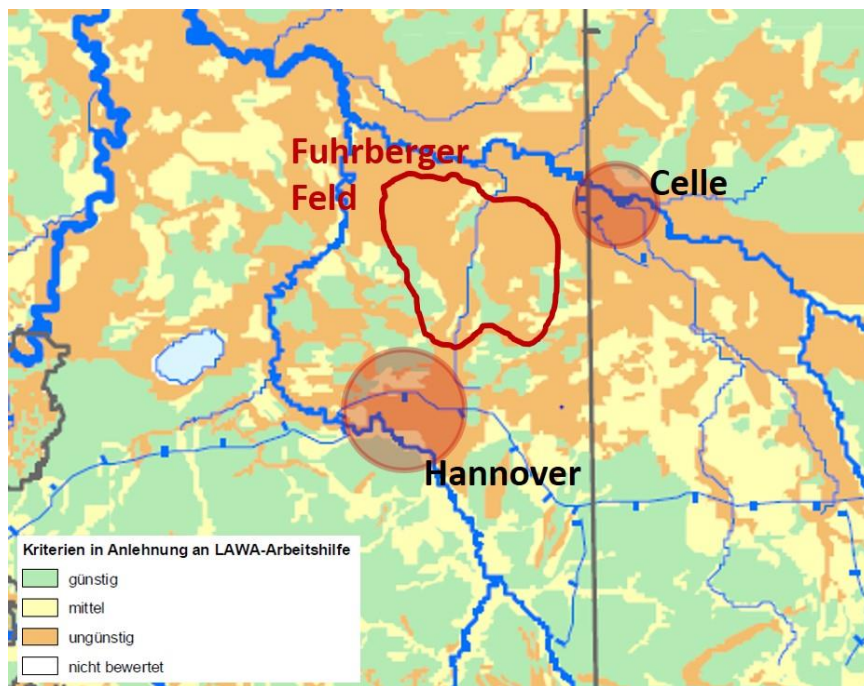


Abb. 24: Ausschnitt aus der Karte zum Schutzpotential der Grundwasserüberdeckung [BGR, 2007] mit Fuhrberger Feld.

Im Gegensatz zu den allgemeinen Zusammenhängen zwischen geologischen, hydrogeologischen und bodenkundlichen Bedingungen und der Verschmutzungsempfindlichkeit von Grundwässern, die vergleichsweise einfach erscheinen, ist die Quantifizierung der Prozesse, die dazu führen recht komplex. Chemische, physikalische und biologische Abläufe führen zu Filterung, Verdünnung, Adsorption, zu einer Verlangsamung der Migration von Stoffen oder zu deren Abbau. Das Ausmaß, in dem diese Prozesse einer potentiellen Verschmutzung entgegenwirken ist im Wesentlichen vom Boden in seiner Funktion als Filter, Speicher, Puffer und 'Reaktor' abhängig.

Zur Sensitivität des Grundwasserleiters im Fuhrberger Feld gegenüber dem atmosphärischen Eintrag von künstlichen Radionukliden kann an dieser Stelle keine detaillierte quantitative Beurteilung abgegeben werden, da im Projektverlauf nicht genügend aussagekräftige Daten gewonnen werden konnten. Das lag zum einen daran, dass für die großvolumigen Proben die Entnahme nicht tief genug und nicht ausreichend ortsaufgelöst erfolgen konnte, zum anderen daran, dass in vielen Proben die Aktivitätskonzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze lagen.

Die vorhandenen Informationen erlauben lediglich eine grobe qualitative Aussage über die Gefährdung gegenüber einzelnen atmosphärisch eingetragenen Radionukliden. Die in diesem Projekt untersuchten Radionuklide sind von den genannten Bodenprozessen in ganz unterschiedlicher Art und Weise betroffen. Anders als bei den beiden

sehr mobilen Nukliden ^3H und ^{14}C , die in den globalen Wasser- bzw. Kohlenstoffkreislauf integriert werden und mit teilweise sehr kurzen Verweilzeiten in der Atmosphäre als HTO bzw. gelöstes CO_2 mehr oder weniger schnell mit dem Sickerwasser im Boden abwärts verlagert werden, bewirken sie bei den anderen untersuchten Nukliden in unterschiedlichem Ausmaß eine Rückhaltung.

Caesium besitzt eine hohe Affinität zu Tonmineralen, insbesondere zu Illiten, tritt dabei jedoch in Konkurrenz zu K^+ und NH_4^+ . Allerdings lagen die Tongehalte der untersuchten Böden bei etwa 1-3 %, während 91-96 % der mineralischen Bestandteile der Sandfraktion zugerechnet werden müssen. In tonarmen Böden wird Caesium stark an organische Substanz gebunden, insbesondere in der Humusauflage von Waldböden und infolge der Aufnahme durch Pflanzen und Pilze eher nach oben transportiert wird als nach unten. Im Fuhrberger Feld zeigt sich dieser Sachverhalt auf den Waldböden sehr deutlich. Die organische Auflage ist wegen des (immer noch) hohen Anteils an Nadelbäumen recht mächtig z.T. >10 cm), die ^{137}Cs -Aktivitäten liegen eine Größenordnung über denen des obersten Mineralbodenhorizonts.

Ähnliches gilt für ^{90}Sr , das weniger spezifisch gebunden wird, und dessen Verlagerungsgeschwindigkeit im Bodenprofil etwas größer ist als beim ^{137}Cs . Auch dieses wird in der Humusauflage der untersuchten Waldböden zurückgehalten, wenn auch nicht so deutlich wie das beim ^{137}Cs der Fall ist. Für landwirtschaftliche genutzte Flächen gilt allerdings, dass der Eintrag von Konkurrenzionen (Ca^{2+} , Mg^{2+}) über die Zufuhr durch Kalkung zu berücksichtigen ist.

Für die redoxsensitiven Isotope ^{129}I und $^{239,240}\text{Pu}$ muss festgehalten werden, dass sie auf eine andere Art den mikroorganismenbeeinflussten Bodenprozessen ausgesetzt sind als die beiden Nährstoff-Analoga Strontium und Caesium. Ihre Mobilität kann durch Einwirkung von Bakterien und organischen Liganden/Polymeren sowohl erhöht, wie auch verringert werden. Beide Nuklide können in Anwesenheit gelöster organischer Substanz in der Bodenlösung in Richtung Grundwasser verlagert werden.

Für das Grundwasser im Fuhrberger Feld bedeutet das, dass trotz der geringen Schutzwirkung der Grundwasserüberdeckung voraussichtlich keine Anreicherung der untersuchten Radionuklide zu befürchten ist, falls keine größeren Einträge stattfinden, wie es beispielsweise bei einem Unfall in einer kerntechnischen Anlage der Fall wäre. Abgesehen von ^3H und ^{14}C werden die betrachteten Radionuklide weitgehend vom Boden, insbesondere aber von der Humusauflage unter Wald zurückgehalten. ^{90}Sr und ^{137}Cs weisen zudem mit rund 29 bzw. 30 Jahren überschaubare Halbwertszeiten auf. Eine gewisse Möglichkeit der Freisetzung der vorhandenen Aktivitäten besteht bei einer Nutzungsänderung von bewirtschafteten Flächen (Grünlandumbruch, Waldumbau, Kalkung, Düngung). In welchem Ausmaß dies zum Tragen käme, wäre in entsprechenden Untersuchungen auf landwirtschaftlichen und als Wald genutzten Flächen im Untersuchungsgebiet zu klären.

2. Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Der zahlenmäßige Nachweis wurde separat übermittelt.

3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die im Projekt durchgeführten Arbeiten waren notwendig und angemessen, da sie der im Projektantrag formulierten Zielen entsprachen und die im Arbeitsplan vorgesehenen Aufgaben im Wesentlichen erfolgreich bearbeitet wurden.

Die bei den sächlichen Verwaltungsausgaben (Position 0847) eingesparten Kosten wurden für Personalausgaben eingesetzt (Position 0824), so dass keine zusätzlichen Ressourcen für das Projekt benötigt wurden,

4. Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit des Ergebnisses

Die Kernaufgabe, die im Rahmen dieses Teilprojektes erarbeitet werden sollte, bestand darin, an ein bzw. zwei Trinkwassergewinnungsgebieten beispielhaft Kenntnisse über deren Sensitivität gegenüber atmosphärisch eingetragenen Radionukliden zu gewinnen. Die im Projekt gewonnenen Ergebnisse und Erfahrungen können als Referenzobjekt für weitere Forschungsprojekte zur Weiterentwicklung von Konzepten zum Grundwasserschutz dienen. Darüber hinaus besteht ein wesentlicher Nutzen des Projekts in der Förderung des wissenschaftlichen Nachwuchses und im Kompetenzerhalt (1 Bachelor-, 2 Masterarbeiten; Weiterbildung eines Post-Doktoranden, der nicht aus dem Projekt finanziert wurde).

5. Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Im Projektzeitraum sind uns keine Ergebnisse Dritter bekannt geworden, die für die Durchführung des Vorhabens relevant waren.

6. Erfolgte und geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses

Veröffentlichungen in Zeitschriften nach dem „peer-review“ Verfahren

A.A.A. Osman, S. Bister, B. Riebe, A. Daraoui, C. Vockenhuber, L. Wacker, C. Walther (2016): Radioecological investigation of ^3H , ^{14}C , and ^{129}I in natural waters from Fuhrberger Feld catchment, Northern Germany. *Journal of Environmental Radioactivity* 165, 243-252.

Sonstige Veröffentlichungen

- S. Faßbender (2016): Nachweis von Radionukliden in norddeutschen Trinkwasserreservoirien. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 89 S.
- F. Hentel (2017): Gamma-spektrometrische Untersuchungen von Wässern aus norddeutschen Trinkwassergewinnungsgebieten. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, 65 S.
- S. Pottgießer (2017): Bestimmung von ^{90}Sr und Plutonium in Umweltproben aus norddeutschen Trinkwassergewinnungsgebieten. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 73 S.
- B. Riebe, S. Bister, A.A.A. Osman, A. Daraoui, C. Walther, C. Vockenhuber, H-A. Synal (2015): RADIONUCLIDES IN DRINKING WATER RESERVOIRES. Sensitivity of reservoirs to input of man-made radionuclides. Ion Beam Physics, ETH Zurich, Annual report 2015.
- B. Riebe, S. Bister, A.A.A. Osman, A. Daraoui, C. Walther, C. Vockenhuber, H-A. Synal (2016): RADIONUCLIDES IN DRINKING WATER RESERVOIRES. Sensitivity of reservoirs to input of man-made radionuclides. Ion Beam Physics, ETH Zurich, Annual report 2016.
- S. Bister, S. Pottgießer, B. Riebe, C. Walther (2017): PLUTONIUM IN DRINKING WATER RESERVOIRES. Migration of Plutonium into North German groundwater. Ion Beam Physics, ETH Zurich, Annual report 2017.
- B. Riebe, S. Bister, C. Walther, C. Vockenhuber, H.-A. Synal (2017): RADIONUCLIDES IN DRINKING WATER RESERVOIRES. Sensitivity of reservoirs to input of man-made radionuclides. Ion Beam Physics, ETH Zurich, Annual report 2017.

Vorträge/Präsentationen/Poster

- VORTRAG: S. Bister, B. Riebe, C. Walther: Sensitivität von Trinkwasserreservoirien gegenüber diffusen Radionuklideinträgen. 8. LSC-Anwendertreffen, Tübingen, 30. September – 01. Oktober 2013
- POSTER: S. Bister, B. Riebe, C. Walther: Sensitivität von Trinkwasserreservoirien gegenüber diffusen Radionuklideinträgen. 8. LSC-Anwendertreffen, Tübingen, 30. September – 01. Oktober 2013
- VORTRAG: A. A. A. Osman, S. Bister, B. Riebe, C. Walther: Analyse von ^3H und ^{14}C in Wasserproben. 9. LSC-Anwendertreffen, Villigen, Schweiz, 23. – 24. April 2015
- VORTRAG: A.A.A. Osman, S. Bister, B. Riebe, C. Walther: Tritium activity levels in natural waters around Hanover, Northern Germany. ENVIRA 2015 Conference, Thessaloniki, Griechenland, 21.-25. September 2015

POSTER: A.A.A. Osman, S. Bister, B. Riebe, C. Walther: ^{129}I and stable iodine in natural waters from lower Saxony, Germany. International Symposium on Isotope Hydrology: Revisiting Foundations and Exploring Frontiers, Wien, 11.–15. Mai 2015

POSTER: S. Bister, A. Osman, A. Daraoui, M. Gorny, B. Riebe, C. Walther: Eintrag von Iod-129 in norddeutsches Grundwasser am Beispiel des Trinkwassergewinnungsgebietes Fuhrberger Feld bei Hannover. GDCH Wissenschaftsforum Chemie, Dresden, 30.08.- 02.09.2015

POSTER: A. A. A. Osman, S. Bister, A. Daraoui, A. Hölzer, B. Riebe, C. Walther, C. Vockenhuber, H. Synal: ^{129}I and stable iodine in natural waters from Fuhrberger Feld catchment near Hannover, Northern Germany. DPG-Tagung, Hannover, 29.02.-04.03.2016

POSTER: S. Bister, A. Osman, A. Daraoui, M. Gorny, B. Riebe, C. Walther: Eintrag von Radionukliden in norddeutsches Grundwasser am Beispiel eines Trinkwassergewinnungsgebietes. GDCH Wissenschaftsforum Chemie, Berlin, 10.- 14. September 2017

II.7. Anhang

Tabellen und Abbildungen

Tab. A-1: Globaler Fallout aus Kernwaffentests: angegeben sind die freigesetzten und die auf der Erdoberfläche deponierten Aktivitäten in PBq [verändert nach: Bouville et al., 2000/UNSCEAR, 2000].

Radionuklid	Halbwertszeit	Freisetzung [PBq]	Deposition [PBq]
^3H	12 a	186.000	--- ^a
^{14}C	5.700 a	213	--- ^a
^{90}Sr	29 a	622	612
^{129}I	15,7 Mio a	d	--- ^c
^{137}Cs	30 a	948	919
^{239}Pu	24.000 a	6,52	6,52 ^b
^{240}Pu	6.600 a	4,35	4,35 ^b
^{241}Pu	14 a	140	140 ^b

^a kann nicht angegeben werden, da die deponierte Aktivität in Wasser- bzw. globalen Kohlenstoffkreislauf einfließt

^b Freisetzung und Deposition werden als identisch angesehen

^c sehr biophil und flüchtig

^d (1) Eisenbud and Gesell (1997), (2) Wagner et al. (1996), (3) Raisbeck and Yiu (1999) - ^{129}I -Freisetzung: 0,32–0,96 TBq = ca. 0,00032-0,00096 PBq

Tab. A-2: Ergebnisse der ICP-OES-Messungen für die Wasserproben aus den Multilevel-Messstellen T1*, B4, T3, SW1), Schwengelpumpe (SP-V), Wietze (Wi), Wulbeck (Wu), Meitzer Teiche (MT), Niederschläge November 2015 (RegW) sowie Roh- und Reinwasser aus dem Wasserwerk Fuhrberg (RohW, ReinW).

Element	T1_3		T1_14		B4_3		B4_14		T3_4		T3_14	
	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ
Sr in ppb	122,9	1,0	232,6	1,1	201,2	1,9	177,9	0,3	45,92	0,17	224,1	0,7
Ca in ppm	67,6	0,4	54,4	0,1	64,9	0,3	43,99	0,06	7,10	0,04	52,4	0,2
K in ppm	15,83	0,17	7,9	0,2	27,2	0,3	10,03	0,15	4,6	0,3	12,33	0,12
Na in ppm	16,4	0,5	16,5	0,1	6,85	0,05	24,43	0,07	4,02	0,10	17,8	0,3
Mg in ppm	18,7	0,2	5,7	0,1	7,03	0,10	7,20	0,06	0,757	0,009	6,88	0,08
Ba in ppb	115,9	0,2	76,7	0,1	130,2	1,0	103,3	0,2	207,5	0,2	68,3	0,3
Fe in ppb	35,6	0,4	113,4	1,1	159,4	0,4	142,4	0,8	2678	3	6761	21
Pb in ppb	< 10	/	< 3	/	< 10	/	< 3	/	< 3	/	< 3	/

Element	SW1_4		SW1_14		SP_V		Wu_II		Wi_II		MT_II	
	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ
Sr in ppb	88,20	0,10	163,8	0,7	90,1	0,3	198,1	1,2	397	4	239,1	0,3
Ca in ppm	26,8	0,4	46,2	0,3	19,71	0,04	49,9	0,3	100,5	0,7	74,6	0,3
K in ppm	2,15	0,13	2,05	0,11	2,8	0,2	7,20	0,12	13,2	0,19	3,18	0,18
Na in ppm	10,9	0,3	26,94	0,16	9,85	0,10	18,1	0,2	73,7	0,8	46,1	0,3
Mg in ppm	2,450	0,009	2,79	0,06	2,77	0,04	5,43	0,06	8,05	0,08	3,86	0,05
Ba in ppb	6,32	0,04	85,48	0,18	51,3	0,2	58,43	0,19	119,4	0,9	176,82	0,06
Fe in ppb	116	2	1393	4	4781	5	666	3	296,9	0,5	< 0,6	/
Pb in ppb	< 3	/	< 3	/	< 3	/	< 3	/	< 3	/	< 3	/

Element	RegW_1		RegW_2		RohW		ReinW	
	w	2σ	w	2σ	w	2σ	w	2σ
Sr in ppb	4,80	0,05	2,98	0,02	246,1	0,3	156,3	0,5
Ca in ppm	0,84	0,03	0,64	0,02	60,53	0,10	41,4	0,3
K in ppm	0,6	0,2	0,21	0,12	3,71	0,05	3,46	0,12
Na in ppm	0,77	0,05	0,96	0,03	25,02	0,19	23,3	0,2
Mg in ppm	0,16	0,02	0,14	0,08	4,92	0,06	4,62	0,05
Ba in ppb	3,80	0,07	2,19	0,03	81,2	0,2	11,97	0,03
Fe in ppb	< 0,6	/	< 0,6	/	483	3	< 0,6	/
Pb in ppb	< 3	/	< 3	/	< 3	/	< 3	/

* Die Zahl hinter der Probenbezeichnung kennzeichnet die Entnahmetiefe (z.B. T1_3 = Entnahmetiefe 3 m)

Tab. A-3: Ergebnisse der ^{14}C -Bestimmungen der untersuchten Grund- und Oberflächenwässer.

Probe	pMC	u_{abs}	$\delta^{13}\text{C}$ [‰]	$^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$	u_{rel} [%]
T1 4m	72,876	0,782	-22,4	8,10E-13	0,88
T1 10m	69,446	0,710	-27,5	7,64E-13	0,82
T1 15m	70,371	0,753	-17,6	7,90E-13	0,88
B4 4m	70,082	0,868	-28,2	7,70E-13	1,07
B4 10m	76,069	0,799	-26,5	8,38E-13	0,85
B4 12m	78,272	0,781	-23,0	8,68E-13	0,79
T3 4m	75,420	0,795	-28,0	8,28E-13	0,86
T3 10m	56,697	0,646	-25,9	6,27E-13	0,95
T3 17m	65,348	0,674	-23,5	7,25E-13	0,83
SW1 4m	60,892	0,523	-23,1	6,77E-13	0,60
SW1 14m	80,474	0,750	-22,0	8,94E-13	0,71
SW1 17m	81,547	0,779	-17,9	9,14E-13	0,74
GWM 20041	86,413	0,896	-20,7	9,62E-13	0,84
GWM 20304	62,374	0,702	-20,4	6,97E-13	0,94
GWM 20429	68,292	0,727	-18,6	7,65E-13	0,87
GWM 20439	69,295	0,787	-23,5	7,69E-13	0,95
Schwengelpumpe	66,046	0,705	-23,1	7,33E-13	0,87
Rohwasser	64,733	0,688	-17,4	7,27E-13	0,87
Wietze	83,089	0,848	-19,1	9,29E-13	0,82
Wulbeck	85,675	0,846	-18,9	9,58E-13	0,78
Meitzer Teiche	83,661	0,824	-11,4	9,49E-13	0,78
Grane/Ablauf	89,406	0,868	-13,3	1,01E-12	0,76
Grane/Oberfläche	91,096	0,832	-11,0	1,03E-12	0,69
Grane/Sickerw.	51,679	0,570	-16,7	5,83E-13	0,91
Söse/Ablauf	95,826	0,971	-13,6	1,08E-12	0,81
Söse/Oberfläche	97,050	0,957	-10,6	1,10E-12	0,78
Söse/Sickerw.	90,547	0,826	-23,9	1,00E-12	0,68

Tab. A-4a: Ergebnisse der ^{129}I -Bestimmungen für Grund- und Oberflächenwässer.

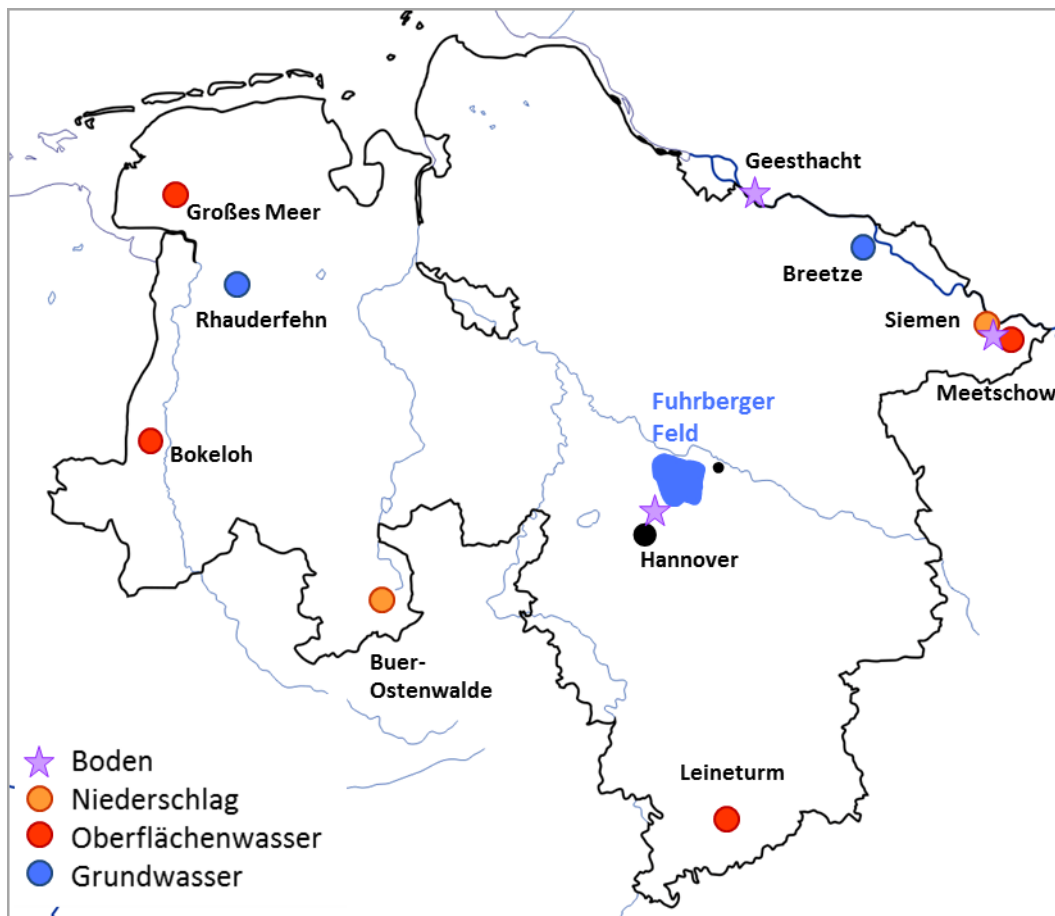
Probe	^{127}I		^{129}I		^{129}I		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	
	g/g	U_{abs}	g/kg	U_{abs}	Bq/kg	U_{abs}	Ratio	U_{abs}
Grundwasser								
MLM T1 3m	5,2E-09	2,4E-10	2,1E-14	9,2E-16	1,4E-07	6,0E-09	4,1E-09	2,5E-10
MLM T1 14m	6,2E-09	2,0E-10	3,8E-14	1,1E-15	2,5E-07	7,0E-09	6,0E-09	2,5E-10
MLM B4 3m	2,4E-09	9,0E-11	3,1E-14	1,0E-15	2,0E-07	6,8E-09	1,3E-08	6,3E-10
MLM B4 14m	5,2E-09	2,0E-10	6,0E-14	1,4E-15	3,9E-07	9,0E-09	1,1E-08	4,9E-10
MLM SW1 4m	5,4E-09	2,1E-10	8,0E-14	1,7E-15	5,2E-07	1,1E-08	1,5E-08	6,0E-10
MLM SW1 14m	6,3E-09	2,1E-10	5,2E-14	1,3E-15	3,4E-07	8,5E-09	8,2E-09	3,1E-10
MLM T3 4m	3,1E-09	1,5E-10	3,0E-14	9,9E-16	2,0E-07	6,4E-09	9,6E-09	5,3E-10
MLM T3 14m	1,8E-09	9,1E-11	4,8E-14	5,2E-15	3,1E-07	3,4E-08	2,5E-08	3,0E-09
Schwengelpumpe	1,2E-09	5,7E-11	2,6E-14	7,5E-16	1,7E-07	4,9E-09	2,1E-08	1,1E-09
Rohwasser WWF	5,4E-09	2,7E-10	2,7E-13	5,3E-15	1,8E-06	3,5E-08	5,0E-08	2,6E-09
Reinwasser WWF	3,2E-09	2,6E-10	4,3E-13	8,2E-15	2,8E-06	5,3E-08	1,3E-07	1,1E-08
GWM 20041	5,9E-09	3,5E-10	2,2E-14	4,3E-16	1,4E-07	2,8E-09	3,7E-09	2,2E-10
GWM 20304	2,1E-09	2,3E-10	2,5E-14	6,5E-16	1,6E-07	4,2E-09	1,1E-08	1,2E-09
GWM 20429	4,7E-09	2,7E-10	2,8E-14	5,3E-16	1,8E-07	3,5E-09	5,8E-09	3,4E-10
GWM 20439	1,4E-09	2,2E-10	1,2E-14	4,2E-16	7,9E-08	2,7E-09	8,4E-09	1,3E-09
MLM T1-II 4 m	5,5E-09	1,5E-10	2,1E-14	3,8E-16	1,4E-07	2,5E-09	3,7E-09	1,1E-10
MLM T1-II 10 m	5,0E-09	1,5E-10	2,3E-14	4,1E-16	1,5E-07	2,7E-09	4,4E-09	1,4E-10
MLM T1-II 15 m	5,2E-09	1,5E-10	1,4E-14	2,6E-16	9,2E-08	1,7E-09	2,7E-09	8,2E-11
MLM B4-II 4 m	1,2E-09	6,0E-11	3,5E-14	6,4E-16	2,3E-07	4,2E-09	3,0E-08	1,6E-09
MLM B4-II 10 m	1,9E-09	6,7E-11	4,3E-14	7,9E-16	2,8E-07	5,2E-09	2,3E-08	8,6E-10
MLM B4-II 12 m	4,2E-09	1,2E-10	5,0E-14	9,2E-16	3,3E-07	6,0E-09	1,2E-08	3,7E-10
MLM T3-II 4 m	6,4E-10	4,5E-11	9,5E-15	1,8E-16	6,2E-08	1,2E-09	1,5E-08	1,1E-09
MLM T3-II 10 m	7,7E-10	4,8E-11	1,0E-14	2,0E-16	6,9E-08	1,3E-09	1,3E-08	8,4E-10
MLM T3-II 17 m	3,1E-09	6,7E-11	1,5E-14	2,8E-16	9,8E-08	1,8E-09	4,8E-09	1,2E-10
MLM SW1-II 4 m	5,2E-09	1,3E-10	5,4E-14	1,0E-15	3,6E-07	6,5E-09	1,0E-08	2,9E-10
MLM SW1-II 14 m	4,3E-09	2,5E-10	6,3E-14	1,1E-15	4,1E-07	7,5E-09	1,4E-08	8,6E-10
MLM SW1-II 17 m	4,4E-09	3,9E-10	3,9E-14	7,2E-16	2,6E-07	4,7E-09	8,7E-09	7,8E-10
Oberflächenwasser								
Wulbeck	4,9E-09	1,6E-10	7,7E-14	1,7E-15	5,1E-07	1,1E-08	1,6E-08	5,6E-10
Meitzer Teiche	9,3E-09	2,8E-10	2,9E-13	5,5E-15	1,9E-06	3,6E-08	3,1E-08	1,0E-09
Wietze	8,9E-09	4,2E-10	1,3E-13	2,5E-15	8,2E-07	1,6E-08	1,4E-08	6,9E-10
Berkh. Teich	5,1E-09	2,3E-10	1,3E-13	2,4E-15	8,2E-07	1,6E-08	2,4E-08	1,1E-09
Aller	1,7E-08	5,9E-10	9,8E-14	2,0E-15	6,4E-07	1,3E-08	5,7E-09	2,1E-10
Leine	1,4E-08	6,1E-10	6,1E-14	1,4E-15	4,0E-07	8,9E-09	4,4E-09	2,1E-10
Fuhse	8,1E-08	2,9E-09	9,6E-14	1,9E-15	6,3E-07	1,3E-08	1,2E-09	4,5E-11
Gr. Beeke	8,4E-09	3,6E-10	9,7E-14	2,0E-15	6,4E-07	1,3E-08	1,1E-08	5,1E-10
Bissend. See	4,5E-09	1,7E-10	2,0E-13	3,8E-15	1,3E-06	2,5E-08	4,4E-08	1,7E-09
Würmsee	9,1E-09	3,2E-10	9,3E-13	1,7E-14	6,1E-06	1,1E-07	1,0E-07	3,7E-09
Altwarmb. See	1,1E-08	3,1E-10	8,5E-13	1,5E-14	5,6E-06	1,0E-07	7,6E-08	2,3E-09
Silbersee	6,6E-09	2,7E-10	2,7E-13	4,9E-15	1,7E-06	3,2E-08	4,0E-08	1,7E-09
Aller/Rethem	8,9E-09	2,0E-10	1,5E-13	3,2E-15	1,0E-06	2,1E-08	1,7E-08	4,6E-10
Talsperrenwasser								
Sösetalsp. Oberfl.	2,1E-09	1,0E-10	9,0E-14	1,7E-15	5,9E-07	1,1E-08	4,3E-08	2,2E-09
Sösetalsp. Ablauf	2,1E-09	1,2E-10	8,4E-14	1,5E-15	5,5E-07	1,0E-08	3,2E-08	1,5E-09
Sösetalsp. Sickerw.	3,0E-08	9,7E-10	4,0E-14	7,5E-16	2,6E-07	4,9E-09	1,3E-09	4,6E-11
Granetalsp. Oberfl.	3,0E-09	1,2E-10	8,8E-14	1,6E-15	5,7E-07	1,1E-08	2,9E-08	1,2E-09
Granetalsp. Ablauf	3,4E-09	1,9E-10	8,7E-14	1,6E-15	5,7E-07	1,0E-08	2,5E-08	1,5E-09
Granetalsp. Sickerw.	6,6E-09	2,8E-10	3,5E-14	6,7E-16	2,3E-07	4,4E-09	5,2E-09	2,3E-10

Tab. A-4b: Ergebnisse der ^{129}I -Bestimmungen für Niederschlagswasser, Mineralboden- und Humusproben.

Probe	^{127}I		^{129}I		^{129}I		$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	
	g/g	U_{abs}	g/kg	U_{abs}	Bq/kg	U_{abs}	Ratio	U_{abs}
Niederschlag								
NS Mai 2/15	5,5E-09	3,7E-10	3,5E-12	6,5E-14	2,3E-05	4,3E-07	6,3E-07	4,3E-08
NS Juni 2/15	3,6E-09	2,7E-10	1,1E-12	2,0E-14	7,4E-06	1,3E-07	3,1E-07	2,3E-08
NS Juli 1/15	1,5E-09	1,5E-10	7,5E-13	1,4E-14	4,9E-06	9,3E-08	4,8E-07	4,7E-08
NS Juli 2/15	1,5E-09	1,0E-10	5,8E-13	1,1E-14	3,8E-06	7,2E-08	3,8E-07	2,6E-08
NS Aug 1/15	2,0E-09	9,4E-11	3,3E-13	6,4E-15	2,1E-06	4,2E-08	1,6E-07	7,9E-09
NS Aug 2/15	1,4E-09	8,0E-11	1,5E-13	3,8E-15	1,0E-06	2,5E-08	1,1E-07	6,8E-09
NS Sep 1/15	1,9E-09	1,2E-10	4,9E-13	9,5E-15	3,2E-06	6,2E-08	2,5E-07	1,6E-08
NS Sep 2/15	1,8E-09	1,3E-10	6,3E-13	1,2E-14	4,1E-06	7,9E-08	3,5E-07	2,5E-08
NS Okt 1/15	2,6E-09	2,3E-10	4,9E-13	9,6E-15	3,2E-06	6,3E-08	1,9E-07	1,8E-08
NS Okt 2/15	1,2E-09	8,3E-11	2,5E-13	5,3E-15	1,6E-06	3,5E-08	2,1E-07	1,6E-08
NS Nov 1/15	2,0E-09	1,5E-10	5,8E-13	1,1E-14	3,8E-06	7,2E-08	2,9E-07	2,3E-08
NS Nov 2/15	1,2E-09	9,6E-11	5,6E-13	1,1E-14	3,6E-06	7,0E-08	4,5E-07	3,5E-08
NS Dez 1/15	2,5E-09	1,4E-10	6,4E-13	1,2E-14	4,2E-06	7,9E-08	2,6E-07	1,5E-08
Bodenproben								
Boden SW1-min	1,1E-06	1,1E-07	5,1E-11	6,5E-13	3,3E-04	4,3E-06	4,4E-08	4,5E-09
Boden T3-min	6,1E-06	3,3E-07	4,2E-11	5,1E-13	2,7E-04	3,3E-06	6,8E-09	3,8E-10
Boden B4-min	1,6E-05	1,0E-06	5,4E-11	5,9E-13	3,5E-04	3,9E-06	5,0E-08	1,4E-09
Boden T1-min	2,7E-05	1,7E-06	6,4E-11	7,1E-13	4,2E-04	4,7E-06	3,7E-08	1,0E-09
Boden T3-II min	2,5E-05	1,1E-06	1,4E-10	4,3E-12	9,3E-04	2,8E-05	5,6E-09	3,0E-08
Boden SW1-II min	1,6E-05	6,4E-07	6,8E-11	2,0E-12	4,4E-04	1,3E-05	4,3E-09	2,2E-08
Humusauflage SW1	5,1E-06	2,8E-07	1,0E-09	1,2E-11	6,6E-03	8,0E-05	2,0E-07	1,1E-08
Humusauflage T3	2,3E-06	1,8E-07	1,3E-09	1,6E-11	8,7E-03	1,0E-04	5,7E-07	4,5E-08
Humusauf. T3-II	6,9E-05	2,2E-06	1,7E-09	3,3E-10	1,1E-02	2,2E-03	2,4E-08	4,8E-07
Humusauf. SW1-II	8,0E-05	2,2E-06	1,8E-09	3,7E-10	1,2E-02	2,4E-03	2,2E-08	4,5E-07

Tab. A-5: Ergebnisse der ⁹⁰Sr-Bestimmungen für Wasser- und Bodenproben.

Probe	A [mBq/kg]	ÜB [mBq/kg]	EG [mBq/kg]	NWG [mBq/kg]
GWM 20041	6,650	0,532	0,140	0,283
GWM 20439	7,723	0,671	0,163	0,328
GWM 20304	0,033	0,041	0,041	0,081
GWM 20429	0,064	0,026	0,026	0,052
Schwengelp. V	0,385	0,05	0,049	0,098
Schwengelp. VII	0,565	0,035	0,028	0,057
Rohwasser	0,873	0,066	0,046	0,092
Reinwasser	0,636	0,034	0,025	0,050
Meitzer Teiche	2,451	0,128	0,056	0,112
Wietze	2,191	0,125	0,052	0,105
Wulbeck	4,956	0,423	0,105	0,213
Söse / Oberfl.	1,592	0,097	0,041	0,082
Söse / Ablauf	1,842	0,104	0,046	0,092
Grane / Oberfl.	1,588	0,092	0,037	0,075
Grane / Ablauf	1,709	0,101	0,041	0,082
Grane / Sicker.	2,010	0,105	0,07	0,140
NS Nov/1	0,221	0,053	0,052	0,104
NS Nov/2	1,343	0,740	0,198	0,635
T1 / Acker	564,9	77,3	74,5	149,1
B4 / Acker	451,7	48,3	44,7	89,5
T3 / Wald	924,9	81,7	70,3	140,8
T3 / Auflage	2418,5	242,4	53,6	296,0
SW1 / Wald	371,6	44,8	42,3	84,8
SW1 / Auflage	718,3	92,1	50,6	113,8

Abb. A-1: Übersicht über Probenahmestandorte für ^{129}I -Vergleichsproben.

II.8. Literatur zu Teil 2

Literatur zu Kapitel Untersuchungsgebiete:

- DBG, 1999): Nachhaltige Bodennutzung im dritten Jahrtausend (Exkursionsführer), Mitteilungen der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft, Band 90, 490 S.
- enercity (2015): enercity Wasser. Broschüre, enercity Hannover, 28 S.
<https://www.enercity.de/infothek/.../broschueren/wasser/trinkwasser-enercity.pdf>
- Franken, G.; Postma, D.; Duijnsveld, W.H.M.; Böttcher, J.; Molson, J. (2009): Acid groundwater in an anoxic aquifer: Reactive transport modelling of buffering processes. *Appl. Geochem.* 24, 890–899.
- Lillich, W., Kuckelkorn, K.F., Hofmann, W. (1973): Untersuchungen zum Grundwasserhaushalt im repräsentativen Lockersteinsgebiet Fuhrberger Feld bei Hannover - Bilanzjahre 1967 und 1968. Beihefte zum Geologischen Jahrbuch, Heft 107, Hannover, 67 S.
- Raue, W.; Rausch, A.; Antony, F.; Witt-Altfelder, P. (2016): Kooperativer Grundwasserschutz im Fuhrberger Feld. *Wasserwirtschaft Wassertechnik* 10, 32-36.
- Rausch, A. (2013). Wasserversorgungsunternehmen als Schutzgebietsmanager und Trinkwasserlieferanten. Vortrag 18. Grundwasser-Workshop, Cloppenburg, 12.06.2013.
- Schmidt, M. (2012): Talsperren im Harz. Ost- und Westharz. Papierflieger Verlag GmbH, Clausthal-Zellerfeld, 115 S.
- van Berk, H.; Hansen, C. (2006): Hydrogeochemische Stoffflussmodelle - Leitfaden zur Modellierung der Beschaffenheitsentwicklung von Grund- und Rohwässern. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 226 S.

Literatur zu Kapitel Stoffkreisläufe:

- Aldahan, A., Alfimov, V., Possnert, G. (2007): The ¹²⁹I anthropogenic budget: sources and sinks. *Appl. Geochem.* 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.aveva.com/EN/operations-2315/cumulative-release-results-report-for-the-aveva-la-hague-plant.html> (zuletzt aufgerufen: 13.08.2014)
- Bellenger, J. P.; Staunton, S. (2008): Adsorption and desorption of Sr-85 and Cs-137 on reference minerals, with and without inorganic and organic surface coatings. *J. Environ. Rad.* 99, 831-840.
- Bengtsson, L. (2010): The global atmospheric water cycle. *Environ. Res. Lett.* 5, 025002, 8 p.

- Bisinger, T. (2009): Bestimmung von Plutonium-Isotopen in der Umwelt mittels Alpha-spektrometrie und AMS. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 204 S.
https://www.irs.uni-hannover.de/irs_publicationen.html
- BMG - Bundesministerium für Gesundheit (2016): Trinkwasserverordnung in der Fassung der Bekanntmachung vom 10. März 2016. BGBl. Teil I Nr. 12 S. 459-491.
- Bouville, A.; Simon, S.L.; Miller, C.W.; Beck, H.L.; Anspaugh, L.R.; Bennett, B.G. (2002): Estimates of doses from global fallout. *Health Physics* **82** (5), 690-705.
- Capo, R.; Stewart, B.W.; Chadwick, O.A. (1998): Strontium isotopes as tracers of ecosystem processes: theory and methods. *Geoderma* **82**, 197-225.
- 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.
- Chibowski, S.; Zygmunt, J. (2002): The influence of the sorptive properties of organic soils on the migration rate of ^{137}Cs . *J. Environ. Rad.* **61**(2), 213–223.
- Chorover, J.; Choi, S.; Rotenberg, P.; Serne, R.J.; Rivera, N.; Strepka, C.; Thompson, A.; Mueller, K.T.; O'Day, P.A. (2008): Silicon control of strontium and cesium partitioning in hydroxide-weathered sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* **72**, 2024–2047.
- Dyer, A.; Chow, J. K.K.; Umar, I.M. (2000): The uptake of caesium and strontium radioisotopes onto clays. *J. Mater. Chem.* **10**, 2734-2740.
- Ehhalt, D.H.; Rohrer, F.; Schauffler, S.; Pollock, W. (2002): Tritiated water vapor in the stratosphere: vertical profiles and residence time. *J. Geophys. Res.* **107** (D24), 4757.
- 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. *Appl. Geochem.* **45**, 105–113.
- 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.
- Francis, A.J.; Dodge, C.J. (2015): Microbial mobilization of plutonium and other actinides from contaminated soil. *J. Environ. Rad.* **150**, 277-285.
- Fuge, R.; Johnson, C.C. (1986): The geochemistry of iodine – a review. *Environmental Geochemistry and Health* **8** (2), 31-54.
- Fuller, A.J Shaw, S.; Ward, M.B.; Haigh, S.J.; Mosselmans, J.F.W.; Peacock, C.L.; Stackhouse, S.; Dent, A.J.; Trivedi, D.; Burke, I.T. (2015): Caesium incorporation and retention in illite interlayers. *Appl. Clay Sci.* **108**, 128–134.

- Garland, J.A., Curtis, H. (1981): Emission of Iodine From the Sea Surface in the Presence of Ozone. *J. Geophys. Res.* **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.
- Gil-García, C.; Rigol, A.; Vidal, M. (2009): New best estimates for radionuclide solid-liquid distribution coefficients in soils, Part 1: radiostrontium and radiocaesium. *J. Environ. Rad.* **100**, 690-696.
- Gray, J., Jones, S., Smith, A. (1995): Discharges to the environment from the Sellafield Site 1951–1992. *J. Radio. Prot.* **15**(2), 99-131.
- Grimminger, S.P. (2005) Zum Iodbedarf und zur Iodversorgung der Haus- und Nutztiere und des Menschen. Dissertation Ludwig-Maximilians-Universität München, 157 S.
- GRNC (2009): Groupe Radioécologie Nord-Cotentin. Appréciation par le GRNC de l'estimation des doses dans le rapport annuel de surveillance de l'environnement de Cogéma-La Hague, Année 2006.
- Gröning, M.; Araguas-Araguas, L.; Vitvar, T. (2006): Internationale Messnetze der IAEA für Wasserisotope. In: BfG, Radiologische Untersuchungen an Bundeswasserstraßen als Teil der radiologischen Umweltüberwachung, Tagungsband, 15. Chemisches Kolloquium Radiologische Untersuchungen an Bundeswasserstraßen als Teil der radiologischen Umweltüberwachung, Koblenz, 27.09.2006, S. 9-16.
- Hird, A.B.; Rimmer, D.L.; Livens, F.R. (1996): Factors affecting the sorption and fixation of caesium in acid organic soil. *Eur. J. Soil Sci.* **47**, 97–104.
- Hoffman, D.C.; Lawrence, F.O.; Mewherter, J.L.; Rourke, F.M. (1971): Detection of plutonium-244 in nature. *Nature* **234**, 132-134.
- Hofmann, A.; van Beinum, W.; Meeussen, J.C.L.; Kretzschmar, R. (2005): Sorption kinetics of strontium in porous hydrous ferric oxide aggregates II. Comparison of experimental results and model predictions. *J. Colloid Interface Sci.* **283**, 29–40.
- Hou, X., Hansen, V., Aldahan, A., Possnert, G., Lind, O. C., Lujaniene, G. (2009), A review on speciation of iodine-¹²⁹ in the environmental and biological samples. *Analytica Chimica Acta* **632**, 181–196.
- 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.
- Hou, X., Hou, Y. (2012): Analysis of ¹²⁹I and its Application as Environmental Tracer. *J. Anal. Sci. Tech.* **3** (2), 135-153.
- IAEA (2005): Worldwide marine radioactivity studies (WOMARS) - Radioactivity levels in oceans and seas. Int. Atomic Energy Agency, IAEA TEC-DOC-1429, Vienna, 197 p.
- IRSN (2010): Tritium and the environment. Radionuclide fact sheet. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, 26 p. <http://www.irsn.fr/EN/Research/publications-documentation/radionuclides-sheets/Pages/radionuclides-sheets.aspx> (zuletzt aufgerufen 06.11.2017)

- Ishikawa, N.K.; Uchida, S.; Tagami, K. (2009): Estimation of soil-soil solution distribution coefficient of radiostrontium using soil properties. *Appl. Rad. Isotopes* **67**, 319-323.
- Jaenicke, R. (1980): Atmospheric aerosols and global climate. *Journal of Aerosol Science* **11**, 577- 588.
- Jean, G.E.; Bancroft, G.M. (1986): Heavy metal adsorption by sulphide mineral surfaces. *Geochim. Cosmochim. Acta* **50**, 1455-1463.
- Kabata-Pendias, A. (2011) Trace elements in soils and plants. 4th edition, CRC Press, Boca Raton, Florida, 520 p.
- Kaduka, M.V.; Shutov, V.N.; Bruk, G.Ya.; Balonov, M.I.; Brown, J.E.; Strand, P. (2006): Soil-dependent uptake of ¹³⁷Cs by mushrooms: experimental study in the Chernobyl accident areas. *J. Environ. Rad.* **89**, 199-211.
- 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.
- Kersting, A.B.; Efurud, D.W.; Finnegan, D.L.; Rokop, D.J.; Smith, D.K.; Thompson, J.L. (1999.): Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site. *Nature* **397**, 56–59.
- Kim, S.B.; Baglan, N.; Davis, P.A. (2013): Current understanding of organically bound tritium (OBT) in the environment. *J. Environ. Rad.* **126**, 83-91.
- Koch-Steindl, H.; Pröhl, G. (2001): Considerations on the behaviour of long-lived radionuclides in the soil. *Radiat. Environ. Biophys.* **40**, 93-104.
- Kruyts, N.; Delvaux, B. (2002): Soil organic horizons as a major source for radiocesium biorecycling in forest ecosystems. *J. Environ. Rad.* **58**, 175–190.
- Läderach, A.; Sodemann, H. (2016): A revised picture of the atmospheric moisture residence time. *Geophysical Research Letters* **43** (2), 924–933.
- Lagzi, I.; Mézáros, R.; Gelybó, G.; Leelössy, Á. (2013): Atmospheric Chemistry. Eötvös Loránd University, e-book. Verfügbar unter: <http://elte.prompt.hu/elkeszult-tananyagok> (zuletzt aufgerufen am 19.10.2015)
- Langley, S.; Gault, A.G.; Ibrahim, A.; Takahashi, Y.; Renaud, R.; Fortin, D.; Clark, I.D.; Ferris, F.G. (2009): Sorption of strontium onto bacteriogenic iron oxides. *Environ. Sci. Technol.* **43**, 1008-1014.
- 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.
- LBNL (1999): The Lund/LBNL Nuclear Data Search. Version 2.0, February 1999. <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/> (zuletzt aufgerufen am 23.03.2015)
- Lehto, J.; Hou, X.L. (2010): Chemistry and Analysis of Radionuclides. Laboratory Techniques and Methodology. Wiley-VCH Verlag & Co. KGaA, Weinheim, 406 S.
- Lucas, L.L.; Unterweger, M.P. (2000): Comprehensive Review and Critical Evaluation of the Half-Life of Tritium. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **105**, 541-549.

- Lujanien, G.; Levinskait, L.; Kačergius, A.; Gavutis, M. (2017): Sorption of plutonium to bacteria and fungi isolated from groundwater and clay samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **311**, 1393–1399.
- 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. *J. Environ. Rad.* **118**, 30-39.
- Marquardt, C.M.; Seibert, A.; Artinger, R.; Denecke, M.A.; Kuczewski, B.; Schild, D.; Fanghänel, T. (2004): The redox behaviour of plutonium in humic rich groundwater. *Radiochim. Acta* **92**, 617–623.
- Martino, M.; Mills, G.P.; Woeltjen, J.; Liss, P.S. (2009): A new source of volatile organoiodine compounds in surface seawater. *Geochem. Res. 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. *J. Geophys. Res.* **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.; 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.
- Mitchell, A.C.; Ferris, G.C. (2005): The coprecipitation of Sr into calcite precipitates induced by bacterial ureolysis in artificial groundwater: Temperature and kinetic dependence. *Geochim. Cosmochim. Acta* **69** (17), 4199-4210.
- Miyake, Y.; Tsunogai, S. (1963): Evaporation of Iodine from the Ocean. *J. Geophys. Res.* **68**, 13, 3989- 3993.
- Mook, W. (2000): Groundwater - saturated and unsaturated zone. *Environmental Isotopes in the Hydrological Cycle, Principles and Applications*, Vol. 1, IAEA, Wien, S. 1-164.
- Mook, W.G.; van der Plicht, J. (1999): Reporting ^{14}C activities and concentrations. *Radiocarbon* **41** (3), 227-239.
- Moyers, J.L.; Duce, R.A. (1972): Gaseous and Particulate Iodine in the Marine Atmosphere. *J. Geophys. Res.* **77** (27), 5229-5238.
- 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. *J. Environ. Rad.* **74**, 221–232.
- Neu, M.P., Goff, G.S.; Runde, W. (2010): Plutonium. In: D.A. Atwood (ed.), *Radionuclides in the Environment*, John Wiley & Sons LTD., p. 289-314.
- 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.
- Ohnuki, T.; Yoshida, T.; Ozaki, T.; Kozai, N.; Sakamoto, F.; Nankawa, T.; Suzuki, Y.; Francis, A.J. (2007): Chemical Speciation and Association of Plutonium with Bacteria, Kaolinite Clay, and Their Mixture. *Environ. Sci. Technol.* **41**, 3134-3139.

- Parkman, R.H.; Charnock, J.M.; Livens, F.R.; Vaughan, D.J.A. (1998): A study of the interaction of strontium ions in aqueous solution with the surfaces of calcite and kaolinite. *Geochim. Cosmochim. Acta* **62**, 1481-1492.
- Rafferty, B.; Brennan, M.; Dawson, D.; Dowding, D. (2000): Mechanisms of ¹³⁷Cs migration in coniferous forest soils. *J. Environ. Rad.* **48**, 131-143.
- Rahn, K.A.; Borys, R.D.; Duce, R.A. (1976): Tropospheric Halogen Gases: Inorganic and Organic Components. *Science* **192**, 549-550.
- Rao, U.; Fehn, U. (1999): Sources and Reservoirs of Anthropogenic Iodine-129 in Western New York. *Geochim. Cosmochim. Acta* **63** (13/14), 1927-1938.
- Roedel, W.; Wagner, T. (2011): Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre. Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2011, S.393-461.
- Runde, W. (2000): The Chemical Interactions of Actinides in the Environment. Los Alamos Science 26, 392-411.
- Santschi, P.H.; Xu, C.; Zhang, S.; Schwehr, K.A.; Grandbois, R.; Kaplan, D.I.; Yeager, C.M. (2017): Iodine and plutonium association with natural organic matter: A review of recent advances. *Appl. Geochem.* **85**, 121-127.
- Scharlemann, J.P.W.; Tanner, E.V.J.; Hiederer, R.; Kapos, V. (2014): Global soil carbon: understanding and managing the largest terrestrial carbon pool. *Carbon Management* **5** (1), 81-91.
- Schmidt, A. (1998): ¹²⁹I 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)
- 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)
- Sheppard, M.E.; Thibault, D. H. (1990): Default soil soil/liquid partition coefficients, K_{ds}, for four major soil types: A compendium. *Health Phys.* **59** (4), 471-482.
- Shetaya, W.H., Young, S.D., Watts, M.J., Ander, E.L., Bailey, E.H. (2012): Iodine dynamics in soils. *Geochim. Cosmochim. Acta* **77**, 457-473.
- Snyder, G., Aldahan, A., Possnert, G. (2010): Global distribution and long-term fate of anthropogenic ¹²⁹I in marine and surface water reservoirs. *Geochem. Geophys. Geosyst.* **11** (4), 19 S.
- Stenström, K.E.; Skog, G.; Georgiadou, E.; Genberg, J.; Johansson, A. (2011): A Guide to Radiocarbon Units and Calculations. Internal Report LUNFD6 (NFFR-3111)/1-17.
- Stonestrom, D.A.; Andraski, B.J.; Cooper, C.A.; Mayers, C.J.; Michel, R.L. (2013): On the conversion of tritium units to mass fractions for hydrologic applications. *Isotopes in Environmental and Health Studies*, **49** (2), 250-256.
- Thompson, A.M., Zafiriou, O.C. (1983): Air-Sea Fluxes of Transient Atmospheric Species. *J. Geophys. Res.* **88**, (C11), 6696-6708.
- Thorpe, C.L.; Law, G.T.W.; Lloyd, J.R.; Williams, H.A.; Atherton, N.; Morris, K. (2017): Quantifying Technetium and Strontium Bioremediation Potential in Flowing Sediment Columns. *Environ. Sci. Technol.* **51**, 12104-12113.

- Thorpe, C.L.; Lloyd, J.R.; Law, G.T.W.; Burke, I.T.; Shaw, S.; Bryan, N.D.; Morris, K. (2012): Strontium sorption and precipitation behaviour during bioreduction in nitrate impacted sediments. *Chem. Geol.* **306–307**, 114-122.
- Thorpe, C.L.; Boothman, C.; Lloyd, J.R.; Law, G.T.W.; Bryan, N.D.; Atherton, N.; Livens, F.R.; Morris, K. (2014): The interactions of strontium and technetium with Fe(II) bearing biominerals: Implications for bioremediation of radioactively contaminated land. *Appl. Geochem.* **40**, 135-143.
- UNSCEAR (1982): Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects. Report to the General Assembly of the United Nations, United Nations, New York, 82 p.
- UNSCEAR, (2000): Sources and Effects of Ionizing Radiation, Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation to the General Assembly, Vol I Sources, United Nations, New York, 659 p.
- UNSCEAR, (2008): Sources and Effects of Ionizing Radiation, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, UNSCEAR 2008, Vol II Scientific Annexes C, D and E, United Nations, New York, 2011, 179 p.
- 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.
- Vinichuk, M.; Taylor, A.F.S.; Rosén, K.; Johanson, K.J. (2010): Accumulation of potassium, rubidium and caesium (^{133}Cs and ^{137}Cs) in various fractions of soil and fungi in a Swedish forest. *Sci. Total Environ.* **408**, 2543-2548.
- Wallace, S.H.; Shaw, S Morris, K.; Small, J.S.; Fuller, A.J Burke, I.T. (2012): Effect of groundwater pH and ionic strength on strontium sorption in aquifer sediments: Implications for ^{90}Sr mobility at contaminated nuclear sites. *Appl. Geochem.* **27**, 1482-1491.
- Wallner, A.; Faestermann, T.; Feige, J.; Feldstein, C.; Knie, K.; Korschinek, G.; Kutschera, W.; Ofan, A.; Paul, M.; Quinto, F.; Rugel, G.; Steier, P. (2015): Abundance of live ^{244}Pu in deep-sea reservoirs on Earth points to rarity of actinide nucleosynthesis. *Nature Communications* **6**, 5956, 9 p.
- Whitehead, D. C. (1984): The distribution and transformation of iodine in the environment. *Environment International* **10**, 321-339.
- WHO (2017): Guidelines for Drinking-water Quality - fourth edition incorporating the first addendum. World Health Organization, Genf, 631 S.
- Xu, C.; Zhang, S.; Sugiyama, Y.; Ohte, N.; Ho, Y.-F.; Fujitake, N.; Kaplan, D.I.; Yeager, C.M.; Schwehr, K.; Santschi, P.H. (2016): Role of natural organic matter on iodine and $^{239,240}\text{Pu}$ distribution and mobility in environmental samples from the north-western Fukushima Prefecture, Japan. *J. Environ. Rad.* **153**, 156-166.

Literatur zu Kapitel Probenahme, -vorbereitung und –messung:

- 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.
- DIN EN 15933 (2012): Schlamm, behandelter Bioabfall und Boden – Bestimmung des pH-Werts. Deutsche Fassung, November 2012.

- DIN ISO 11277 (2002): Bodenbeschaffenheit - Bestimmung der Partikelgrößenverteilung in Mineralböden - Verfahren mittels Siebung und Sedimentation. Fassung August 2002.
- 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.
- Dohrmann, R. (2006): Cation exchange capacity methodology II: A modified silver-thiourea method. *Appl. Clay Sci.* **34** (1-4), 38-46.
- DIN ISO 11929 (2011): Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereiches) bei Messungen ionisierender Strahlung - Grundlagen und Anwendungen. Beuth Verlag, Berlin.
- Faßbender, S. (2016): Nachweis von Radionukliden in norddeutschen Trinkwasserreservoirs. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 89 S. ., https://www.irs.uni-hannover.de/irs_publicationen.html
- FS (Fachverband für Strahlenschutz e.V.), (2015): Loseblattsammlung FS-78-15-AKU, Blatt: 5.5 Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Beispiele zur Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenze gemäß DIN ISO 11929. Stand: April 2013. <http://www.fs-ev.org/arbeitskreise/umweltueberwachung/loseblattsammlung/> (zuletzt aufgerufen: 30. September 2016).
- IAEA (2015): Groundwater Sampling Procedures for Isotope Hydrology, Booklet, 8 p. http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/IHS_resources_sampling.html#introsampling (zuletzt aufgerufen: Dezember 2015)
- Molnár, M.; Hajdas, I.; Janovics, R.; Rinyu, L.; Synal, H.-A.; Veres, M.; Wacker, L. (2013): C-14 analysis of groundwater down to the millilitre level. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **B 294**, 573-576.
- Pottgießer, S. (2017): Bestimmung von ⁹⁰Sr und Plutonium in Umweltproben aus norddeutschen Trinkwassergewinnungsgebieten. Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 73 S., https://www.irs.uni-hannover.de/irs_publicationen.html
- Riebe, B.; Daraoui, A.; Schwinger, M. (2014): Großflächiger Eintrag, Inventare und Transport von Iod-129 und Iod-127 in Deutschland, Abschlussbericht, Förderkennzeichen BMBF 02NUK015D, 159 S., https://www.irs.uni-hannover.de/irs_publicationen.html
- Stenström, K.E.; Skog, G.; Georgiadou, E.; Genberg, J.; Johansson, A. (2011): A Guide to Radiocarbon Units and Calculations. Internal Report LUNFD6 (NFFR-3111)/1-17.
- Stuiver, M.; Polach, H.A. (1977): Discussion: Reporting of ¹⁴C Data. *Radiocarbon* **19**, 355-363.
- Wacker, L.; Bonani, G.; Friedrich, M.; Hajdas, I.; Kromer, B.; Nemeč, M.; Ruff, M.; Suter, M., Synal, H.-A.; Vockenhuber, C. (2010): MICADAS: Routine and High-Precision Radiocarbon Dating. *Radiocarbon*, **52**, 252-262.

Literatur zu Kapitel Radionuklide im Fuhrberger Feld:

- Artinger, R.; Buckau, G.; Geyer, S.; Fritz, P.; Wolf, M.; Kim, J.I. (2000): Characterization of groundwater humic substances: Influence of sedimentary organic carbon. *Appl. Geochem.* **15**, 97-116.
- Bisinger, T. (2009): Bestimmung von Plutonium-Isotopen in der Umwelt mittels Alpha-spektrometrie und AMS. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 204 S. https://www.irs.uni-hannover.de/irs_publicationen.html
- BMU (2012): Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland - Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz (Stand 2011). Bonn, 117 S.
- BMU (2015): Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland - Bericht der Leitstellen des Bundes und des Bundesamtes für Strahlenschutz (Stand 2014). Bonn, 107 S.
- Chau, N.D.; Dulinski, M.; Jodlowski, P.; Nowak, J.; Rozanski, K.; Slezia, M.; Wachniew, P. (2011): Natural radioactivity in groundwater – a review. *Isot. Environ. Health Stud.* **47**, 415-437.
- Chomycia, J.C.; Hernes, P.J.; Harter, T.; Bergamaschi, B.A. (2008): Land Management Impacts on Dairy-Derived Dissolved Organic Carbon in Ground Water. *J. Env. Qual. Abstract* **37** (2), 333-343.
- Fortmann, H.; Meesenburg, H. (2009): Waldböden Niedersachsens – 20 Jahre nach Tschernobyl – Bodendauerbeobachtung in Niedersachsen. *GeoBerichte* **11**, Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie, 56 S.
- Frimmel, F.H. (2001): Aquatic humic substances. In: Steinbüchel, A. (Ed.), *Biopolymers*. Vol. 1: Lignin, Humic Substances and Coal. Wiley-VCH, Weinheim, pp. 301-324.
- IAEA, 2016a. Global Network of Isotopes in Precipitation. The GNIP Database. http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/IHS_resources_gnip.html (accessed 30 September 2016).
- IAEA, 2016b. Global Network of Isotopes in Rivers. The GNIR Database. http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/IHS_resources_gnir.html (accessed 30 September 2016).
- Kretzschmar, R.; Borkovec, M.; Grolimund, D.; Elimelech, M. (1999): Mobile Subsurface Colloids and Their Role in Contaminant Transport. *Adv. Agronomy* **66**, 121–193.
- MU (Niedersächsisches Ministerium für Umwelt, Energie und Klimaschutz) (2015a): Emissionsüberwachung Abwasser. http://www.umwelt.niedersachsen.de/themen/atomaufsicht/radioaktivitaet_strahlung/ueberwachung_kerntechnischer_anlagen/emissionsueberwachung_abwasser/emissionsueberwachung-abwasser-89433.html (zuletzt aufgerufen: 30. September 2016).
- MU (Niedersächsisches Ministerium für Umwelt, Energie und Klimaschutz) (2015b): Emissionsüberwachung Abwasser. https://www.umwelt.niedersachsen.de/themen/atomaufsicht/radioaktivitaet_strahlung/ueberwachung_kerntechnischer_anlagen/umgebungsueberwachung/umgebungsueberwachung-89436.html (zuletzt aufgerufen: 30. September 2016).

- Osman, A.A.A.; Bister, S.; Riebe, B.; Daraoui, A.; Vockenhuber, C.; Wacker, L.; Walther, C. (2016): Radioecological investigation of ^3H , ^{14}C , and ^{129}I in natural waters from Fuhrberger Feld catchment, Northern Germany. *J. Environ. Rad.* **165**, 243-252.
- STUK (2015): Radiation and Nuclear Safety Authority / Finland , Radioactivity in drinking water. www.stuk.fi/web/en/topics/food-and-drinking-water/radioactivity-in-drinking-water
- Thayalakumaran, T.; Lenahan, M.J.; Bristow, K.L. (2015): Dissolved Organic Carbon in Groundwater Overlain by Irrigated Sugarcane. *Groundwater* **53**, (4), 525–530.
- WHO (2017): Guidelines for drinking-water quality - fourth edition incorporating the first addendum. World Health Organization, Genf, 631 S.

Literatur zu Kapitel Sensitivität von Grundwasserleitern:

- BGR (2007): Karte zum Schutzpotential der Grundwasserüberdeckung. Kartenausschnitt Europäische Wasserrahmenrichtlinie/Charakterisierung der Deckschichten. Zusammenarbeit der Staatlichen Geologischen Dienste der Länder und der BGR. <https://produktcenter.bgr.de/terraCatalog/DetailResult.do?fileIdentifier=8BEBDE77-8C6A-48D5-BBAA-C7D7EF01D85D>
- EU (2000): Richtlinie 2000/60/EG der europäischen Parlaments und des Rates zur Schaffung eines Ordnungsrahmens für Maßnahmen der Gemeinschaft im Bereich der Wasserpolitik (WRRL). Europäische Union.
- Hölting, B.; Haertle, T.; Hohberger, K.-H.; Nachtigal, K.H.; Villinger, E.; Weinzierl, W.; Wrobel, J.-P. (1995): Konzept zur Ermittlung der Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung. *Geol. Jahrb.* **C 63**, 5–24.
- LAWA 2003): Arbeitshilfe zur Umsetzung der EG-Wasserrahmenrichtlinie. Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Wasser, Bearbeitungsstand: 30.04.2003, 140 S. www.lawa.de/documents/Arbeitshilfe_30-04-2003_314.pdf