

¹²⁹I UND ¹²⁷I IN EUROPÄISCHEN BÖDEN

¹²⁹I AND ¹²⁷I IN EUROPEAN SOILS

T. Ernst ^a, S. Szidat ^{a,b}, J. Handl ^a, D. Jakob ^a, R. Michel ^a, Ch. Schnabel ^{b,c}, H.-A. Synal ^c, F.J. Santos Arevalo ^c, I. Benne ^d, J. Boess ^d, J. Böttcher ^f, E. Gehrt ^d, A. Capelle ^d, J. Schneider ^d, W. Schäfer ^e

^a Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR), Universität Hannover

^b Paul Scherrer Institut, Labor für Radiochemie und Umweltchemie, Universität Bern, CH

^c Paul Scherrer Institut, c/o Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, Zürich, CH

^d Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung (NLFb), Hannover

^e NLFb, Bodentechnologisches Institut Bremen

^f Institut für Bodenkunde, Universität Hannover

Zusammenfassung

Zur Bilanzierung des anthropogenen ¹²⁹I-Eintrages in europäische Böden wurden sieben niedersächsische Böden bis zu einer Tiefe von 250 cm auf ihre ¹²⁹I- und ¹²⁷I-Gehalte untersucht. Es konnte ein deutlich belegbarer Eintrag von anthropogenem ¹²⁹I durch Vergleiche mit prä-nuklearen Böden und ukrainischen Böden ermittelt werden. Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Eintragszeiträume für ¹²⁹I und ¹²⁷I konnte die Dynamik der Einstellung von Gleichgewichtskonzentrationsgradienten beurteilt werden. Damit ist es gelungen, den anthropogenen ¹²⁹I-Eintrag als Tracer zur Klärung der Iod-Migration in Böden zu nutzen.

Summary

To draw the balance of anthropogenic ¹²⁹I input into European soils, the concentrations of ¹²⁹I and ¹²⁷I in seven soils from Lower Saxony were analyzed down to a depth of 250 cm. In comparison with pre-nuclear soils and Ukrainian soils, we detected a significant anthropogenic input of ¹²⁹I. Considering the different time periods for the input of ¹²⁹I and ¹²⁷I it was possible to assess the dynamic adjustment of equilibrium concentration gradients. Anthropogenic ¹²⁹I was successfully used as a tracer for a clarification of the iodine migration process in soils.

1 Motivation der Untersuchung

Das langlebige Radionuklid ¹²⁹I ($T_{1/2} = 15,7$ Ma) liegt als natürliches Produkt mit einem prä-nuklearen ¹²⁹I/¹²⁷I-Verhältnis in prä-nuklearen marinen Sedimenten und ozeanischem Tiefenwasser von $(1,3 \pm 0,3) \times 10^{-12}$ [1] und $(1,4 \pm 0,9) \times 10^{-12}$ [2] vor. Die prä-nuklearen ¹²⁹I/¹²⁷I-Verhältnisse sind das Ergebnis langer Mischungszeiten bei geringen Produktions- und Zerfallsraten, die zur Äquilibration beider Nuklide führten. Das natürliche ¹²⁹I-Inventar der Erde wird auf 50 Mg (327 TBq) geschätzt, mit einem „freien“ Inventar von 263 kg (1,7 TBq) [3].

Letzteres wird zwischen Umweltkompartimenten mit einer mittleren Verweilzeit < 1000 a ausgetauscht. Anthropogene ^{129}I -Freisetzungen haben das ursprüngliche $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis um Größenordnungen verändert, so dass ^{127}I und ^{129}I in den verschiedenen Umweltkompartimenten nicht mehr im Gleichgewicht vorliegen [4]. In dieser Arbeit berichten wir über die Untersuchung der Deposition und des Migrationsverhalten der Iod-Isotope in Böden aus Niedersachsen. Die hier vorgestellten Ergebnisse sind Teil eines langfristigen Projekts zur Untersuchung der Radioökologie des ^{129}I und seiner Anwendung als Tracer für Umweltprozesse. Aus früheren Untersuchungen ist bekannt, dass Niedersachsen derzeit einer kontinuierlichen ^{129}I -Deposition, mit einer jährlichen Depositionsdichte von bis zu 19 mBq/m^2 , ausgesetzt ist. Das heutige $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Niederschlag liegt bei knapp 10^{-6} . In Mitteleuropa sind die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse im Niederschlag von 1×10^{-9} (1950) bis 1986 auf ca. $1,7 \times 10^{-7}$ angestiegen. Nach einem kurzzeitigen Maximum aufgrund des Chernobyl-Fallouts beobachtet man heute einen konstanten Wert von etwa $6,5 \times 10^{-7}$. [5, 6]

2 Experimentelles

Die Probennahme erfolgte im Zusammenhang mit der Vorbereitung von Exkursionen der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft 1999 [7]. Die Bodenproben wurden an den Wänden ausgehobener Profilgruben entnommen. Der Boden wurde im Dunkeln in der Raumluft getrocknet, zerkleinert und gesiebt ($\varnothing 2 \text{ mm}$). Bei 105°C (1Std.) konnte die Restfeuchte bestimmt werden. Zur Berechnung der Depositionsdichten wurden Schüttdichten der luftgetrockneten Proben ermittelt. Alle sonstigen Daten beziehen sich auf ofentrockene Böden. Es wurde eine tracerüberwachte Iod-Matrixtrennung mit anschließender Beschleunigermassenspektrometrie (engl.: AMS; accelerator mass spectrometry) durchgeführt. Da die AMS eine zählende, relative Bestimmungsmethode ist, wurden die ^{127}I -Gehalte mittels Ionenchromatographie (IC) bestimmt, um die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse zu erhalten. Zur Iod-Matrixtrennung wurde eine Trockenveraschung unter Sauerstoffüberschuß und Auswaschen der Verbrennungsgase in alkalischer Hydrogensulfidlösung eingesetzt [3]. Dazu werden zwei ineinander verschiebbare Quarzrohre mit Zuleitungen für Sauerstoff und Stickstoff benutzt. Im Innenrohr erfolgt eine Vorverbrennung durch Schwelbrand unter Begrenzung der Verbrennungsgase. Im äußeren Rohr wird der Sauerstoffüberschuß für die Nachverbrennung erzeugt. Hierzu ragt ein Teil des Rohres in einen Röhrenofen (1120°C). Zur Erhöhung der Aufenthaltszeit der Verbrennungsgase wurde Quarzwolle benutzt. Die Nachverbrennung des Bodens wird durch Hineinschieben des Innenrohres in den Röhrenofen realisiert. Die chemische Ausbeute wurde mittels ^{125}I ermittelt. An Aliquoten der Hydrogensulfidlösung wurde die chemischen Ausbeuten und die Konzentrationen von ^{127}I und ^{129}I ermittelt. Typische Ausbeuten lagen zwischen 80 % und 96 %. Zur AMS-Messung wurde das Iod unter Zugabe von sog. Woodward-Iod mit einem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis von $(1,3 \pm 0,6) \times 10^{-14}$ [6] als Träger mit Silbernitrat gefällt und die resultierenden 2 mg bis 4 mg Silberiodid mit bis zu 20 mg Silberpulver verpresst. Die AMS-Messungen wurden an der PSI/ETH-Tandem-AMS-Anlage der ETH Höggerberg, Zürich unternommen. Die ^{127}I -Gehalte wurden mit einem IC-System DX-100 (Dionex, Sunnyvale, USA) mit AG5-/AS5-Säulen, Autosuppressor und Leitfähigkeitsdetektor bestimmt. Eine optische Methode lieferte eine Erfassungsgrenze der IC (angenähert an DIN 32 645) von 50 ng Iod/g Boden. Typische Nachweisgrenzen für die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse (DIN 25482 Teil 10) wurden mit $5 \cdot 10^{-12}$ ermittelt [6]. Die Blindwerte der Gesamtanalysen wurden mit Woodward-Iod ermittelt. Es ergaben sich maximale $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Blindwerte in den benutzten Laboratorien von $(3 \pm 0,4) \cdot 10^{-12}$ und $(5 \pm 1,5) \cdot 10^{-13}$.

3 Bodenkundliche Daten

Im Folgenden sind die Bodenmerkmale der Probestellen zusammenfassend dargestellt, da nur unter Berücksichtigung dieser Daten die Migration der Iod-Isotope interpretiert werden kann.

Acker Adenstedt: Dieser Pseudogley-Tschernosem (Grauerde) ist ab 50 cm durch Stauwasser beeinflusst, was an den gelblichgrauen Eisen- und Manganfärbungen zu erkennen ist. Ab 40 cm finden sich schwarze organische Durchsetzungen aus Vegetationsbränden. Dieser Löss (Lösslehm über Löss) besteht bis 55 cm aus stark tonigem Schluff, was ein vertikales Abfließen von überschüssigem Regenwasser (Sickerwasser) behindert; [7] S. 262-263.

Acker Barum: Der „Norm-Kolluvisol über Parabraunerde“ wird aus einer sedimentierten Schwemmlössschicht (50 cm) über Sandlöss (1 m) aufgebaut. Der Boden besitzt einen Gefügebaut, der bei Niederschlägen zu einer schnellen Entwässerung, einer schnellen Unterbrechung der Wasserleitfähigkeit in den Unterboden und einer hohen nutzbaren Feldkapazität (Menge des pflanzenverfügbaren Wassers) führt [8]. In 60 - 120 cm Tiefe ist es zu einer Tonanreicherung gekommen, die nicht zu Stauwirkungen führt. Die Abfolge ist von Flugsand und glazifluvialen Sand unterlagert (Cv-Horizont). Der Boden ist schwach sauer [7] S. 209-211.

Acker Groß Lobke: Dieser Boden ist mit dem Acker Adenstedt vergleichbar. Er hat einen mächtigeren Wurmhumus-Horizont, aber keine schwarzen Einlagerungen; [7] S. 252-254.

Acker Twenge: Dieser ursprüngliche Gley-Podsol wurde durch Auftragen von Grassoden, die zuvor als Stalleinstreu benutzt wurden beeinflusst. Hieraus hat sich ein fast 40 cm mächtiger humoser Plaggenesch-Horizont gebildet. Die stark sauren Eigenschaften entsprechen dem des Waldstandortes. Der Boden ist bis 75 cm nicht durch Stau- oder Grundwasser beeinflusst; [7] S. 334-335.

Rasen Ricklingen: Der Standort auf dem Stadtfriedhof Ricklingen ist durch die Friedhofsnutzung noch nicht verändert und zur Zeit mit einer geschlossenen Rasendecke versehen. Der Boden ist schwach sauer und als Pseudogley-Parabraunerde (Sandlöss über Fluvisand) zu bezeichnen. Bis 65 cm ist eine vertikale Tonverlagerung festzustellen (Al-Horizont). Darunter finden sich erste Anzeichen von Stauwassereinfluss; [7] S. 353-355/363-364.

Wald Eilenriede: Dieser Waldstandort liegt im weitläufigen Stadtwald von Hannover. Der Pseudogley-Gley ist mittel grundnass. Die stark sauren Eigenschaften entsprechen dem eines Waldstandortes; [7] S. 353-355/367-368.

Weide Vestrup: Diese Weide gilt bis zu einer Tiefe von 40 cm als mäßig sauer. Der Unterboden ist stark sauer. Das starke Kittgefüge, das ab 30 cm zu beobachten ist, zeigt deutlich die schlechten Abflussmöglichkeiten für Sickerwasser an. Der Boden besteht aus Geschiebedecksand über Geschiebelehm; [7] S. 191-192.

4 Ergebnisse und Diskussion

Die ^{129}I Aktivitätskonzentrationen der beprobten Böden lagen zwischen 266 ± 12 nBq/g und 1413 ± 36 nBq/g an der Oberfläche und $3,51 \pm 0,14$ nBq/g bis $0,76 \pm 0,09$ nBq/g in den tiefsten beprobten Schichten. Die ^{127}I -Konzentrationen lagen im Bereich von 2473 ± 200 ng/g bis 5636 ± 139 ng/g an der Oberfläche und $1630 \pm 1,1$ ng/g bzw. 57 ± 57 ng/g in der Tiefe. Zur Erörterung ist es sinnvoll die Daten in Form von $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen (Abb. 1) und oberflächenprojizierten ^{127}I - und ^{129}I -Gehalten (Abb. 2) darzustellen. Die Isotopenverhältnisse an den Oberflächen lagen zwischen 10^{-7} und 10^{-8} . Selbst bei maximaler Probentiefe wird das niedrigste bisher an einem prä-nuklearen Boden gemessene $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis von $(5,7 \pm 1,1) \times 10^{-12}$ [7] um mehr als eine Größenordnung überschritten.

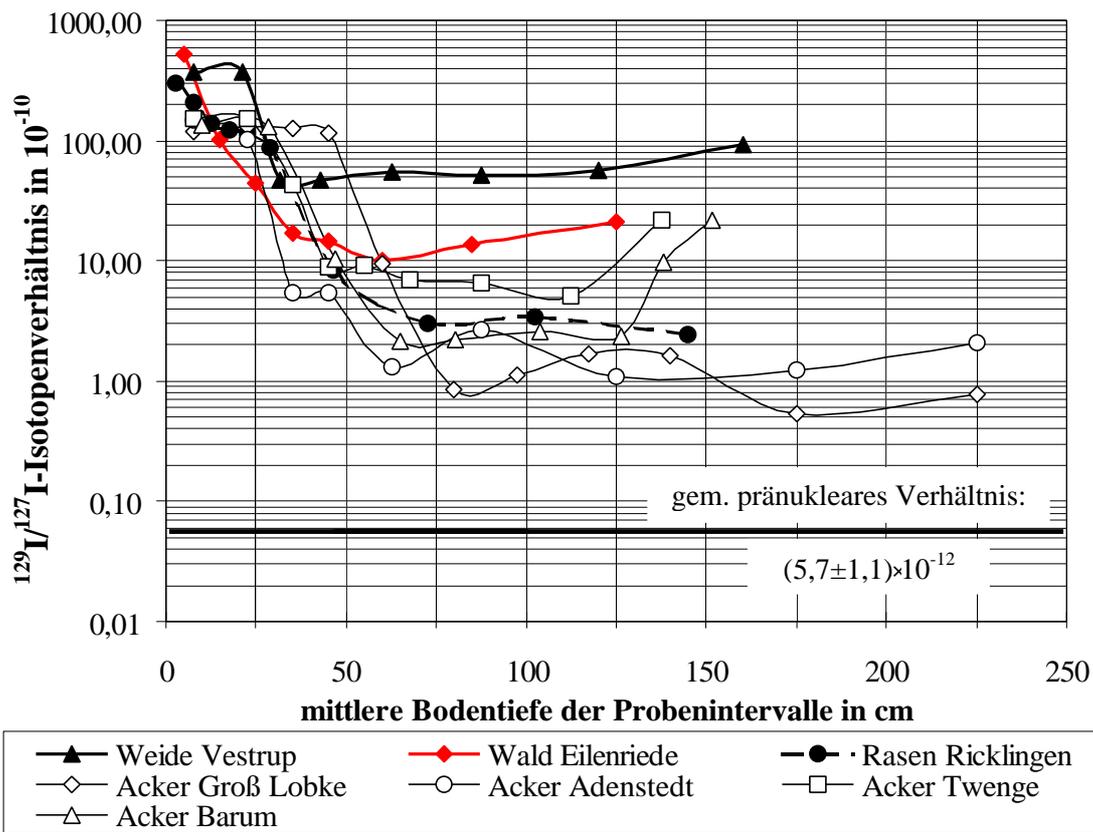


Abb. 1: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse in niedersächsischen Böden.

Eine räumliche Projektion des zeitlichen Eintrages auf die Tiefe ist nicht möglich, da Bodeneigenschaften die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse dominieren. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse in den Oberflächen sind um ein bis zwei Größenordnungen geringer als im Niederschlag, d.h. es tritt im Boden eine Veränderung der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse ein. Die Isotopenverhältnisse zeigen keine kontinuierlichen Tiefenverläufe, d.h. ^{129}I und ^{127}I unterscheiden sich in ihrem anscheinenden Migrationsverhalten. Eine Festlegung der Reihenfolge der Böden anhand der Iod-Gehalte zeigt, dass die Reihenfolge für ^{129}I nicht der für ^{127}I entspricht (Abb. 2). Dies muß ein Migrationsmodell unter Berücksichtigung der Bodeneigenschaften zu erklären im Stande sein.

Der Iod-Gehalt im Boden ist das Ergebnis des Eintrags aus nasser und trockener Deposition atmosphärischen Iods, das natürlicher Weise aus dem Meer stammt oder anthropogen über den Luft- und/oder Wasserpfad emittiert wird. Für ^{127}I hat der Eintrag am Ende einer Eiszeit begonnen, während anthropogenes ^{129}I erst seit den 1940er Jahren in nennenswertem Umfang in den Boden eingetragen wird. Damit unterscheiden sich die Eintragsfunktionen beider Nuklide um mehrere tausend Jahre. Aufgrund der Beobachtung, dass 99 % der gefundenen ^{129}I -Gehalte bis zu einer Tiefe von 47 cm - 80 cm anzutreffen sind, folgt, dass die Verweilzeit im Boden ausreicht, um ^{129}I und ^{127}I in gleiche chemische Spezies zu überführen. Damit ist der dynamische Prozeß der Migration für beide Nuklide durch ^{127}I -Konzentrationsgradienten bestimmt, die sich über Jahrtausende mit dem jetzigen Gleichgewicht eingestellt haben. Dennoch ergeben sich für ^{129}I - und ^{127}I -Gehalte unterschiedliche Tiefenverläufe.

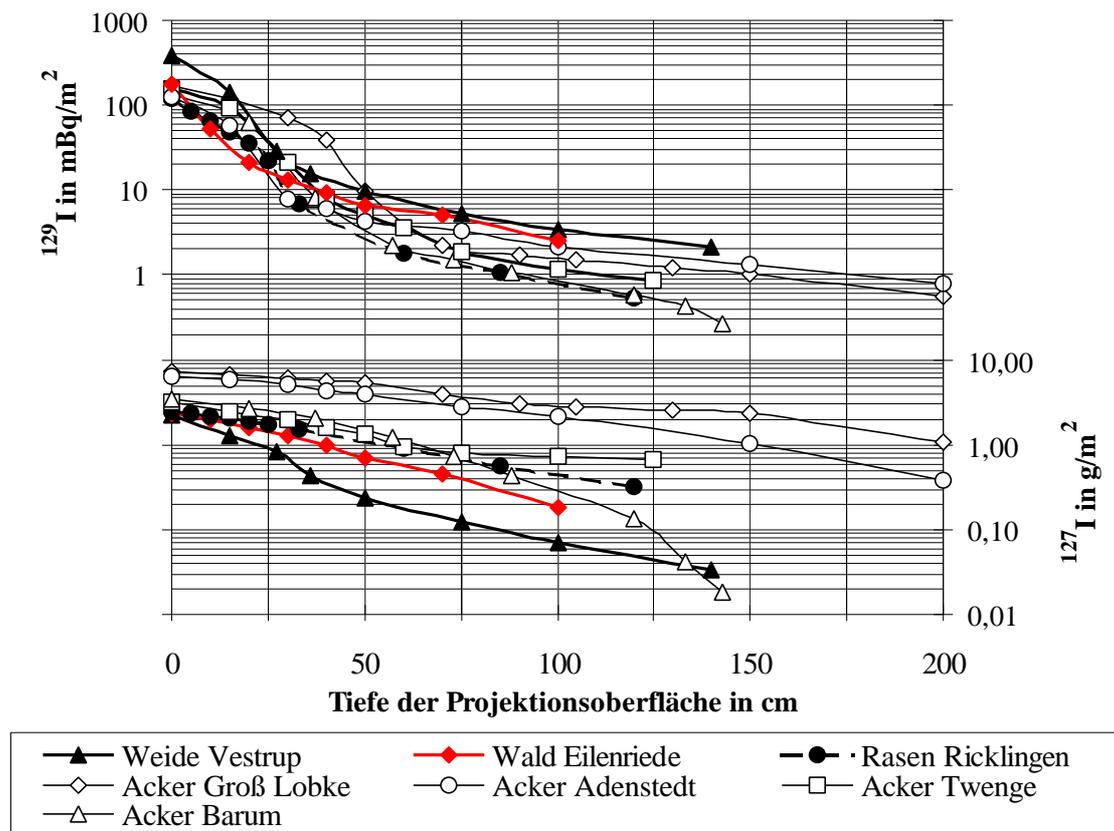


Abb. 2: Oberflächenprojizierte Iod-Gehalte in niedersächsischen Böden. ^{129}I in der oberen Hälfte; Y-Ordinate links. ^{127}I in der unteren Hälfte; Y-Ordinate rechts.

Vergleicht man die ^{127}I - und ^{129}I -Tiefenverläufe (Abb. 2), so zeigt sich nur für ^{129}I ein abweichendes Migrationsverhalten zwischen Ober- und Unterboden. Das lässt sich über unterschiedliche Adsorption/Desorption-Gleichgewichtseinstellung erklären. Aufgrund der unterschiedlichen Eintragszeiträume, hat ^{127}I bereits alle thermodynamisch günstigen Adsorptionsplätze besetzt. Das hat zur Folge, dass ^{129}I nur dann im Boden immobilisiert werden kann, wenn es gegen immobilisiertes ^{127}I ausgetauscht wird. Das ist nur dann möglich, wenn die Gleichgewichtseinstellungen dynamisch genug sind, so dass ein Austausch innerhalb des Eintragszeitraumes erfolgen kann. Die gleichmäßigeren ^{127}I -Tiefenverläufe resultieren damit aus einer höheren Anzahl an Gleichgewichtseinstellungsmöglichkeiten. Die Bereiche stark abfallender ^{129}I -Gehalte (Abb. 2) kennzeichnen die Übergänge zwischen Ober- und Unterboden. Dieser Bereich ist von der Variabilität der Wassersäule im Unterboden, dem Gehalt an organischem Material und der Infiltrationsraten von Sickerwasser abhängig.

Die plateauähnlichen Verläufe der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse (Abb. 1), im Oberboden sind nicht notwendigerweise das Ergebnis von Bodenbearbeitungen. Deutlich wird das am Acker „Groß Lobke“. Hier verläuft das Plateau ohne Störung über die übliche Pflugschartiefe hinaus. Das Plateau deckt sich dabei mit dem vorgefundenen Wurmhumus-Horizont. Ein weiterer Hinweis ist das Zwischenmaximum zwischen 30 cm und 40 cm im $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Tiefenverlauf des Ackers „Adenstedt“, das dort auftritt, wo eingelagertes organisches Material gefunden wurde.

Im Unterboden tragen vor allem die thermodynamisch stabilen Bindungen mit Tonmineralen zur Immobilisierung von Iod bei (Chemisorption ca. 60 kJ/mol bis 450 kJ/mol) [9]. Die Gleichgewichtslage der Adsorption/Desorption liegt auf Seiten der Adsorption. Damit ist es unwahrscheinlich, dass chemisorbiertes ^{127}I gegen freies ^{129}I ausgetauscht wird. Die ^{129}I -Migration im Unterboden wird somit vorwiegend über den Wasserhaushalt bestimmt. Im Unterboden treten dort höhere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse auf, wo der vertikale Abfluss von Sickerwasser gestört wird - das ist bei den Böden „Twenge“ und „Barum“ ab 120 cm Tiefe der Fall - und wo kleinere Korngrößen (Schluff statt Sand) eine größere Oberfläche zur Adsorption bereitstellen. Dies führt zu den Zwischenmaxima in den Verläufen der Böden „Groß Lobke“, „Twenge“ und „Adenstedt“ (Abb. 1). Nimmt die Korngröße weiter ab und das Korngefüge wechselt vom Einzelkorngefüge zum Kittgefüge, beobachtet man ein weiteres Ansteigen der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse wie es beim Boden „Vestrup“ durchgängig deutlich wird (Abb. 1). Im Gegensatz zu den anderen Böden tritt hier neben einer hohen ^{129}I -Immobilisierung eine effektivere ^{127}I -Migration auf, die anhand der stärkeren Neigung des ^{127}I -Tiefenverlaufs (Abb. 2) zu erkennen ist. Hier ist die Immobilisierung von Iod am Boden schwerer zu realisieren als bei Einzelkorngefüge. Ein Teil des Bodenwassers ist im Kittgefüge soweit gebunden, dass es seine Fließeigenschaften verliert. Damit ist der Stofftransport aus dem durchfließenden Wasser zum Boden stark eingeschränkt (Diffusionsgrenzschicht). Ein Teil des Iods wird mit dem durchfließenden Wasser verlagert. Ein anderer Teil verbleibt in der Diffusionsgrenzschicht. Diese Art der Immobilisierung ist thermodynamisch wenig stabil (Physisorption selten >60 kJ/mol) [9]. Somit tritt hier wie sonst nur im Oberboden die ^{129}I -Immobilisierung durch dynamischen Austausch von ^{127}I gegen ^{129}I verstärkt auf.

Im Oberboden sind die Verhältnisse anders. Das im Oberboden anzutreffende Wasser existiert als Teil der Bodenluft und in Form von Kapillar- und Haftwasseranteilen, so dass hier nur in Ausnahmefällen ein zeitlich und räumlich stationärer Wasserfluß erfolgt. Dadurch ist es möglich, Iod in Haft- und Kapillarwasser des Porenraumes über Evaporation und Transpiration anzureichern (Physisorption). Hier greift der bedeutende Einfluß von Bewuchs und Bodenbearbeitung. Die Iod-Migration ist um so schlechter je weniger es zu einem Austausch zwischen dem infiltrierten Regenwasser und dem Kapillar- und Haftwasser kommt. Die Immobilisierung von Iod durch Chemisorption an organischem Material ist im Ergebnis ähnlich obwohl die Bindungen thermodynamisch als Chemisorption betrachtet werden muß. Hier führt die ständige Umsetzung von organischem Material in anorganisches (Mineralisierung) zu einem Austausch zwischen gebundenem und ungebundenem Iod [10]. Darüber hinaus kann organisches Material durch Bodentiere verlagert werden. Bei stark saurer Reaktion findet ebenfalls eine Verlagerung von organischem Material statt, weil dann Nährstoffmangel den mikrobiellen Abbau der organischen wasserlöslichen Komplexbildner hemmt. Ein kühlfeuchtes Klima hemmt die Organismen-tätigkeit nochmals [8]. Beide Voraussetzungen sind in der „Eilenriede“ gegeben so dass hier der Übergang zwischen Ober- und Unterboden weniger scharf verläuft (Abb. 2). Insgesamt wird Iod im Oberboden unter hoher Verfügbarkeit gespeichert. Das Adsorptions-/Desorptionsgleichgewicht ist somit dynamisch genug, um nennenswerte Mengen an ^{129}I zu immobilisieren.

Das hier beschriebene Modellkonzept einer Radionuklid-Migration, welches auf Austausch beruht, ist aufgrund der besonderen Eigenschaften von Iod eindeutig. Weder die Homologen des Iods noch andere Ionen sind anhand der Ladung, Größe und der Affinität zu Wasserstoff und Sauerstoff in der Lage Iod spezifisch aus dem Boden auszutauschen. Das Konzept kann auf andere Radionuklide angewandt werden, wenn Co-Absorptionen berücksichtigt werden.

Die durch Projektion der tiefenintegrierten Iod-(Aktivitäts-)Konzentrationen auf die Bodenoberfläche erhaltenen Flächenkonzentrationen, sollten äquivalent zum Eintrag sein und damit Depositionsdichten darstellen. Dies gilt unter der Voraussetzung, dass kein Iod-Verlust im Probenraum der Tiefenprofile aufgetreten ist. Da an den untersuchten Standorten ähnliche Niederschlagsverhältnisse gegeben sind, sollten die ^{129}I -Depositionsdichten vergleichbar sein. Das ist nur bedingt der Fall. Die in Niedersachsen ermittelten ^{129}I -Depositionsdichten lagen im Bereich von 118 mBq/m² bis 390 mBq/m².

Tabelle 1: Oberflächenprojizierte tiefen-integrierte (Aktivitäts-)konzentrationen

Bodennutzung und Probenstandort	^{129}I in mBq/m ²	^{127}I in g/m ²	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopen- verhältnis
Weide Vestrup	390 ± 50	2,3 ± 0,5	2,5 · 10 ⁻⁰⁸
Wald Eilenriede	178 ± 26	2,4 ± 0,4	1,1 · 10 ⁻⁰⁸
Rasen Ricklingen	118 ± 25	2,5 ± 0,4	7,2 · 10 ⁻⁰⁹
Geometrisches Mittel geschlossener Bewuchs	201 · 1,2 ^{±1}	2,4 · 1,2 ^{±1}	1,3 · 10 ⁻⁰⁸
Acker Twenge	158 ± 20	3,1 ± 0,5	7,5 · 10 ⁻⁰⁹
Acker Barum	136 ± 16	3,5 ± 0,4	5,8 · 10 ⁻⁰⁹
Acker Adenstedt	124 ± 16	6,4 ± 1,1	2,8 · 10 ⁻⁰⁹
Acker Groß Lobke	171 ± 23	7,2 ± 0,9	3,5 · 10 ⁻⁰⁹
Geometrisches Mittel Ackerflächen	146 · 1,1 ^{±1}	4,8 · 1,2 ^{±1}	4,6 · 10 ⁻⁰⁹
Geometrisches Mittel gesamt	168 · 1,1 ^{±1}	3,5 · 1,2 ^{±1}	7,1 · 10 ⁻⁰⁹
Geometrisches Mittel gesamt ohne Weide	146 · 1,2 ^{±1}	3,8 · 1,2 ^{±1}	5,7 · 10 ⁻⁰⁹
Zhitomir Ukraine 1997 [4]	38 · 1,7 ^{±1}		
Pränuklear Rußland 1939 [4]	0,084 ± 0,017		

Aus bisher bekannten Daten für ^{129}I im Regen ergibt sich eine mittlere Depositionsdichte von etwa 100 mBq/m². Hier ist der Anteil aus trockener Deposition nicht enthalten. Das dieser Anteil bedeutend ist, zeigen die in niedersächsischen Bestandsniederschlag gegenüber Freilandregen um Faktor 3,5 bis 4,7 erhöhten ^{129}I -Aktivitätskonzentrationen [7]. Damit erscheinen die aus den Bodenprofilen ermittelten ^{129}I -Depositionsdichten als zu gering. Wie aus den Ausführungen zum Boden „Vestrup“ bereits hervorgegangen ist, muß selbst bei der hier größten ^{129}I -Depositionsdichte und geringsten ^{127}I -Depositionsdichte von einem Verlust an ^{129}I ausgegangen werden. Damit entsprechen die ermittelten „Depositionsdichten“ nicht dem Eintrag. „ ^{129}I -Depositionsdichten“ können bestenfalls unter Berücksichtigung der hydraulischen Bodenverhältnisse verglichen werden. So ist die kleinste „ ^{129}I -Depositionsdichte“ im Waldstandort „Eilenriede“ das Produkt einer Verlagerung von organischen Bodeninhaltsstoffen und einem horizontalen Iod-Abfluss über die hoch anliegende Grundnässe (Flusstal). Ein Vergleich der niedersächsischen „ ^{129}I -Depositionsdichten“ mit Böden aus der Ukraine bei Zhitomir [4] (fern ab von kerntechnischen Emittenten und nicht Chernobyl-Fallout beeinflusst) ist dennoch sinnvoll, da ein Faktor 3 bis 10 signifikant genug ist eine erhöhte ^{129}I -Kontamination der niedersächsischen Böden festzustellen.

5 Schlussfolgerungen

Anthropogenes ^{129}I wird im Oberboden akkumuliert und in das Grundwasser verlagert. Die ^{129}I -Migration kann unter Berücksichtigung von Bodenmerkmalen interpretiert werden, wenn die Gewichtung der Bodenmerkmale über die Kinetik der thermodynamischen möglichen Austauschprozesse erfolgt. ^{129}I -„Depositionsdichten“ müssen entsprechend interpretiert werden, um als Vergleichsgrößen gelten zu können. Das hier vorgestellte Modellkonzept geht über die Erkenntnisse, die mit Auslaugungs- und Beaufschlagungsexperimenten erreicht werden können, hinaus und eröffnet einen Weg zur besseren Vorhersage der ^{129}I -Migration in Böden.

6 Danksagung

Diese Arbeit wurde von der DFG gefördert.

7 Literatur

- [1] U. Fehn, G.R. Holdren, D. Elmore, T. Brunelle, R. Teng, and P.W. Kubik, Determination of natural and anthropogenic ^{129}I in marine sediments, *Geophys. Res. Lett.*, 13 (1986) 137 - 139.
- [2] D.R. Schink, P.H. Santschi, O. Corapcioglu, U. Fehn, Prospects for „iodine-129 dating„ of marine organic matter using AMS, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 99 (1995) 524 - 527.
- [3] A. Schmidt, Ch. Schnabel, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, H.-A. Synal, J.M. Lopez, M. Suter, On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography. *Sci. Total Environ.* 223 (1998) 131 - 156.
- [4] R. Michel, Th. Ernst, S. Szidat, Ch. Schnabel, H.-A. Synal, Langfristige Entwicklung von Iod-129 in der Umwelt, Klausurtagung des Radioökologieausschusses der SSK 25./26.7.2001 in Klais, Berichte der Strahlenschutzkommission (2002) im Druck.
- [5] S. Szidat, A. Schmidt, J. Handl, D. Jakob, W. Botsch, R. Michel, H.-A. Synal, C. Schnabel, M. Suter, J.M. López-Gutiérrez, W. Städe, Iodine-129: Sample preparation, quality control and analyses of pre-nuclear materials and of natural waters from Lower Saxony, Germany. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 172 (2000) 699 - 710.
- [6] S. Szidat, Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien. Dissertation, Univ. Hannover (2000). Erhältlich unter: <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e002/32217211X.pdf>.
- [7] Mitteilungen der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft, Exkursionsführer Band 90 (1999) ISSN-0343-107x, Deutsche Bodenkundliche Gesellschaft.
- [8] F. Scheffer, P. Schachtschabel et al., Lehrbuch der Bodenkunde, 14. Aufl. Ferdinand Enke Verlag Stuttgart (1998) S. 202ff / S. 389ff.
- [9] R. Kümmel, E. Worch, Adsorption aus wäßrigen Lösungen, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie Leipzig (1990) S.19.
- [10] M. Schäfer, Iod-Dynamik im Boden. Dissertation, TU München (1994). S.121-133.

T. Ernst, S. Szidat, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, Ch. Schnabel,
H.-A. Synal, F.J. Santos Arevalo, I. Benne, J. Boess, J.
Böttcher, E. Gehrt, A. Capelle, J. Schneider, W. Schäfer

^{129}I und ^{127}I in europäischen Böden

in : R. Michel, M. Täschner, A. Bayer (Hrsg.) Praxis des
Strahlenschutzes: - Messen, Modellieren, Dokumentieren -,
Tagungsband der 34. Jahrestagung des Fachverbandes für
Strahlenschutz e.V., Kloster Seeon, 21. 25. April 2002, TÜV-
Verlag, Köln (2002) 167 - 174.