

# **Langfristige Entwicklung von Iod-129 in der Umwelt**

**R. Michel, Th. Ernst, S. Szidat, Ch. Schnabel, H.-A. Synal**

**Klausurtagung des Radioökologieausschusses der SSK 2001,  
Veröffentlichungen der Strahlenschutzkommission, Band 49,  
BMU (2003), Urban & Fischer, München, 26 - 56.**

# Langfristige Entwicklung von Iod-129 in der Umwelt

R. Michel<sup>1</sup>, Th. Ernst<sup>1</sup>, S. Szidat<sup>1,2</sup>, Ch. Schnabel<sup>2,3</sup>, H.-A. Synal<sup>4</sup>

1 Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover

2 Labor für Radio- und Umweltchemie, Universität Bern, Schweiz

3 Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, Zürich, Schweiz

4 Paul Scherrer Institute, c/o Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, Zürich, Schweiz

**Zusammenfassung** Die natürlichen Vorkommen des langlebigen Radionuklids  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 15,7 \text{ Ma}$ ) wurden nachhaltig verändert durch den Fallout der oberirdischen Kernwaffenexplosionen, durch Freisetzungen aus nuklearen Unfällen und, vor allem, durch Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen. Obwohl die anthropogenen Veränderungen derzeit mit Ausnahme der nächsten Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen radiologisch nicht relevant sind, sollten diese Veränderungen doch sorgfältig verfolgt und das Potential des  $^{129}\text{I}$  als natürlicher und anthropogener Tracer für Umweltprozesse genutzt werden. Dies erfordert ein detailliertes Verständnis der prä nuklearen Vorkommen, der anthropogenen Veränderungen, der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  und der Umweltchemie des Elementes Iod. Wegen analytischer und methodischer Probleme ist die Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  nur unvollständig bekannt und systematische Untersuchungen der prä nuklearen Vorkommen und der anthropogenen Veränderungen sind notwendig. Wir berichten hier über den gegenwärtigen Stand der Ergebnisse eines langfristigen Vorhabens, in dem  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in allen relevanten Umweltkompartimenten untersucht werden. Wir berichten über die Ergebnisse der Untersuchung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag, Oberflächen und Grundwasser in Niedersachsen und in Böden von verschiedenen europäischen Standorten. Aus der Analyse von  $^{129}\text{I}$  im Niederschlag wurden jährliche  $^{129}\text{I}$  Depositionsraten für den Zeitraum 1997- 1999 bestimmt. Es zeigt sich, daß die  $^{129}\text{I}$  Depositionsraten in der Schweiz und Deutschland seit 1950 um drei Größenordnungen angestiegen sind und sich seit 1987 nur wenig verändert haben. Die unterschiedlichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse im Niederschlag und in Oberflächen- und Grundwasser erlauben es, die mittleren Aufenthaltszeiten von Iod in oberflächen-nahen Bodenzonen zu bestimmen. Aus der Analyse von Bodenprofilen wurden integrale  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten für verschiedene Standorte in Europa bestimmt. So konnten die natürliche  $^{129}\text{I}$  Gleichgewichtsdepositionsdichte und der bisherige Eintrag in West- und Osteuropa abgeschätzt bzw. bestimmt werden. Erhöhte  $^{129}\text{I}$  Vorkommen in den durch den Reaktorunfall von Chernobyl hochkontaminierten Gebieten der Ukraine erlauben es, retrospektiv den Fallout von  $^{131}\text{I}$  nach dem Unfall zu bestimmen. Die Bodenprofile aus Deutschland belegen einerseits den Einfluß der andauernden Emissionen der europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen, andererseits zeigen sie die Komplexität der Migration und Sorption von Iod in Böden. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse in der Biosphäre in Deutschland sind eine Größenordnung niedriger als im Niederschlag. Wegen des derzeitigen Ungleichgewichtes zwischen den Iod-Isotopen in den verschiedenen Umwelt-Kompartimenten sind weitere Untersuchungen der Pfade des  $^{129}\text{I}$  durch die Umwelt zum Menschen erforderlich.

## 1. Einleitung

Das langlebige Radionuklid  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 15,7 \text{ Ma}$ ) zerfällt über  $\beta$ -Zerfall mit einer  $\beta$ -Maximalenergie von 0,2 MeV unter Emission niederenergetischer  $\gamma$ -Strahlung mit einer  $\gamma$ -

Energie von 39,58 keV bei einer Emissionswahrscheinlichkeit von 7,52 %.  $^{129}\text{I}$  entsteht in der Natur durch Spontanspaltung von Uran und durch Wechselwirkung der galaktischen kosmischen Strahlung mit Xenon-Kernen der Erdatmosphäre. Wie in Schmidt et al. [1] ausführlich dargestellt, wird das gesamte  $^{129}\text{I}$  Inventar der Erde auf etwa 50 000 kg (326,8 TBq) geschätzt. Dabei ist der größte Teil in der Lithosphäre gebunden und nur 263 kg (1,7 TBq) sind als "freies" Inventar in Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre verfügbar. Die Hauptquellen für freies  $^{129}\text{I}$  sind mit jeweils etwa 45 % Freisetzungen aus Vulkanen und die Produktion durch die kosmische Strahlung. Die Verwitterung von Gesteinen trägt mit weniger als 10 % zum freien Inventar bei.  $^{129}\text{I}$  vermischt sich in der Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre mit stabilem  $^{127}\text{I}$ . Mehr als 99 % des freien  $^{127}\text{I}$ , etwa  $8 \cdot 10^{14}$  kg, befindet sich in den Ozeanen und in jungen ozeanischen Sedimenten. Die meisten Autoren sind der Ansicht, daß das  $^{127}\text{I}$  der Atmosphäre und Biosphäre hauptsächlich aus diesen Quellen stammt [2-4].

Die anthropogene Produktion von  $^{129}\text{I}$  begann mit der militärischen und zivilen Nutzung der Kernspaltung.  $^{129}\text{I}$  entsteht bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  mit Isobarenausbeuten von 0,68 % bzw. 1,6 % [5].  $^{129}\text{I}$  wurde durch oberirdische Kernwaffenexplosionen freigesetzt. Dadurch wurde das natürliche freie Inventar an  $^{129}\text{I}$  nach unterschiedlichen Schätzungen um zwischen 43 kg (0,28 TBq) und 150 kg (TBq) erhöht [6 - 9]. Die Unsicherheit dieser Schätzung beruht auf den Widersprüchen in den Angaben der Gesamtsprengkraft der oberirdischen Kernwaffenexplosionen. Die größten Anteile an anthropogenem  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt stammen jedoch aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen.

Bis zum Jahr 2000 emittierten die europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen etwa 3500 kg (23 TBq)  $^{129}\text{I}$  [10 - 15], wobei ca. 70 % der Gesamtemission auf die französische Wiederaufarbeitungsanlage La Hague entfiel. Die Emissionen beider Anlagen erfolgten überwiegend über das Abwasser: ca. 85 % in Sellafield und ca. 97 % des  $^{129}\text{I}$  in La Hague. Große Mengen an anthropogenem  $^{129}\text{I}$  befinden sich noch in abgebrannten Brennelementen: 1990 wurde dieser Anteil auf etwa 5660 kg (37 TBq) geschätzt [16]. Bisher liegen weder Informationen über die Geschichte der Emissionen aus westlichen militärischen Wiederaufarbeitungsanlagen noch allgemein über Wiederaufarbeitungsanlagen der ehemaligen UdSSR oder anderer östlicher Staaten vor.

Wie von Schmidt et al. [1] ausführlich diskutiert, ist unsere Kenntnis der Vorkommen natürlichen und anthropogenen  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt noch sehr unvollständig. Dies ist hauptsächlich darauf zurückzuführen, daß mit der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) seit 1962 für lange Jahre nur ein einziges Analysenverfahren zur Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  in Umweltproben zur Verfügung stand. Untersuchungen beschränkten sich weitgehend auf die Umgebungen von Emittenten und beschrieben bestenfalls  $^{129}\text{I}$  in sog. Hintergrundgebieten, die nach heutiger Kenntnis allerdings bereit massiv vom Menschen beeinflusst waren. Das Problem bestand darin, daß die RNAA nicht empfindlich genug ist,  $^{129}\text{I}$  in seinen natürlichen Vorkommen zu bestimmen. Die Nachweisgrenze der RNAA liegt bei  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnissen von etwa  $10^{-10}$ , ca. 2 Zehnerpotenzen höher als das natürliche Isotopenverhältnis (vgl. Kap. 2). Erst durch die Einführung der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS = accelerator mass spectrometry) wurde es möglich, die natürlichen  $^{129}\text{I}$  Vorkommen quantitativ zu erfassen. Blindwerte der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von  $< 10^{-14}$  wurden bei der AMS Messung von AgI erreicht. Die Mehrzahl der AMS Untersuchungen beschränkten sich jedoch auf die Ausnutzung von  $^{129}\text{I}$  als Tracer für Umweltprozesse und systematische Untersuchungen zur Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  fehlen weitgehend [1]. Außerdem waren die Untersuchungen von gering kontaminierten Umweltproben mittels AMS meist auf die Analyse von Wasser und marinen Materialien beschränkt.

Andere analytische Verfahren, wie  $\gamma$ -Spektrometrie, LSC und ICP-MS können zwar zum Nachweis von  $^{129}\text{I}$  in hochkontaminierten Umweltproben herangezogen werden [17, 18], sie sind aber nicht empfindlich genug,  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt fernab von Emittenten oder die prä-nuklearen Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  zu bestimmen.

In dieser Arbeit wird ein Überblick über die langfristigen Veränderungen des  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt fernab von Emittenten gegeben. Dabei werden Untersuchungen zur Bestimmung der prä-nuklearen Isotopenverhältnisse vorgestellt, die Entwicklung des  $^{129}\text{I}$  Fallouts in Deutschland und der Schweiz beschrieben, eine Bilanz der integralen Depositionsdichten in West- und Osteuropa anhand der Untersuchung von  $^{129}\text{I}$  in Bodenprofilen gegeben, Daten für  $^{129}\text{I}$  in Oberflächen- und Grundwässern in Niedersachsen dargestellt und die bisher vorliegenden Daten von  $^{129}\text{I}$  in der terrestrischen Biosphäre in Europa diskutiert.

Dabei wird weitgehend auf Untersuchungen zurückgegriffen, die am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR) der Universität Hannover durchgeführt wurden. In Hannover wurden am Niedersächsischen Institut für Radioökologie (NIR) seit Ende der 1970er Jahre Untersuchungen von  $^{129}\text{I}$  mittels RNAA durchgeführt [19 - 21]. Nach dem Zusammenschluß des NIR und der Zentraleinrichtung für Strahlenschutz der Universität Hannover zum derzeitigen ZSR im Jahre 1995 wurden diese Untersuchungen ausgedehnt und in Zusammenarbeit mit dem PSI/ETH Tandem AMS-Laboratorium an der ETH Höggerberg in Zürich auch Untersuchungen mittels AMS durchgeführt [1, 22 - 27]. Dies erforderte umfangreiche Entwicklungen von Analysenverfahren einschließlich Arbeiten zur Kontaminationskontrolle und Qualitätssicherung der Analytik von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ , die an anderem Ort beschrieben wurden [1, 22 - 25].

## 2. Prä-nukleare Vorkommen von Iod-129

Für dosimetrische Modelle der  $^{129}\text{I}$  Exposition und auch im Hinblick auf den Iod-Kreislauf in der Umwelt ist es sinnvoll, die Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  in Form der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse zu beschreiben [4]. Frühe Schätzungen des Isotopenverhältnisses im natürlichen Gleichgewicht ergaben für die marine Hydrosphäre  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse zwischen  $4 \times 10^{-14}$  und  $3 \times 10^{-12}$  [28 - 30]. In einem detaillierten Gleichgewichtsmodell schätzte Fabryka-Martin [31] ein Verhältnis von  $5,5 \times 10^{-13}$  für die marine Hydrosphäre, während sie für die kontinentale Atmosphäre, für Böden und die terrestrische Biosphäre geringfügig höhere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von etwa  $6,5 \times 10^{-13}$  voraussagte. Erst mittels AMS Messungen gelang es, die natürlichen Vorkommen an prä-nuklearen marinen Sedimenten und ozeanischen Tiefenwasser experimentell zu verifizieren. Es ergaben sich  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von  $(1,3 \pm 0,3) \times 10^{-12}$  [32] und  $(1,4 \pm 0,9) \times 10^{-12}$  [33].

Für die Atmosphäre, die terrestrische Biosphäre und die Pedosphäre konnten bisher die prä-nuklearen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse nicht experimentell verifiziert werden, hauptsächlich wegen Kontaminationsproblemen mit allgegenwärtigem, anthropogenem  $^{129}\text{I}$ . Die niedrigsten Isotopenverhältnisse, die bisher in nicht-marinen, prä-nuklearen Materialien gefunden wurden [25], sind in Tabelle 1 dargestellt.

Schilddrüsen von Schweinen und Pferden zeigten in den USA bereits im Jahr 1947  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse, die 40 bis 1000 mal höher als das prä-nukleare marine Gleichgewichts-isotopenverhältnis waren, wahrscheinlich als Folge von  $^{129}\text{I}$  Freisetzungen während des Manhattan-Projektes. Das bisher niedrigste  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnis in der Biosphäre wurde in

einem Schilddrüsen-Pulver gemessen, das die Firma Parke-Davis & Co./USA 1943 als Referenzmaterial für die chemische Iod-Analytik herstellte. Doch auch dieses Material zeigt Isotopenverhältnisse, die ca. 5 mal höher als das marine Gleichgewichtsisotopenverhältnis liegen. Zudem wurde für dies Material noch eine Variabilität der Isotopenzusammensetzung bei der Analyse verschiedener Aliquots festgestellt. In den Pferdeschilddrüsen aus 1947 sind die Isotopenverhältnisse jedoch so hoch, daß Kontamination alleine durch Lagerung unwahrscheinlich erscheint und zusätzlicher Eintrag aus dem Manhattan-Projekt naheliegt.

**Tab. 1:**  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (bezogen auf die Trockenmasse) und intrinsische  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in prä nuklearen Boden- und Schilddrüsenproben.

Material	$^{129}\text{I}$ in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	$^{127}\text{I}$ in $\text{mg kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Boden Moskau (Rußland), 1910	$0,87 \pm 0,07$	$0,79 \pm 0,02$	$1,68 \pm 0,15$
Boden Bogoroditsk (Rußland), 1909	$0,85 \pm 0,07$	$5,4 \pm 0,3$	$0,25 \pm 0,03$
Boden Lutovinovo (Rußland), 1939	$0,15 \pm 0,03$	$3,87 \pm 0,14$	$0,057 \pm 0,011$
Tierisches Schilddrüsen-Pulver (USA), 1943	140	$3\ 000^a$	$0,070 \pm 0,015$
	$91 \pm 8$	$2\ 980 \pm 90$	$0,046 \pm 0,005$
Schweine-Schilddrüsen-Pulver (USA), 1947	nicht bestimmt	nicht bestimmt	$0,58 \pm 0,20$
Pferde-Schilddrüsen-Pulver (USA), 1947	27 400	$3\ 380^a$	$12,3 \pm 1,5$
	34 300	$3\ 380^a$	$15,4 \pm 1,8$

<sup>a</sup> Angaben des Herstellers: Parke, Davis & Co., USA.

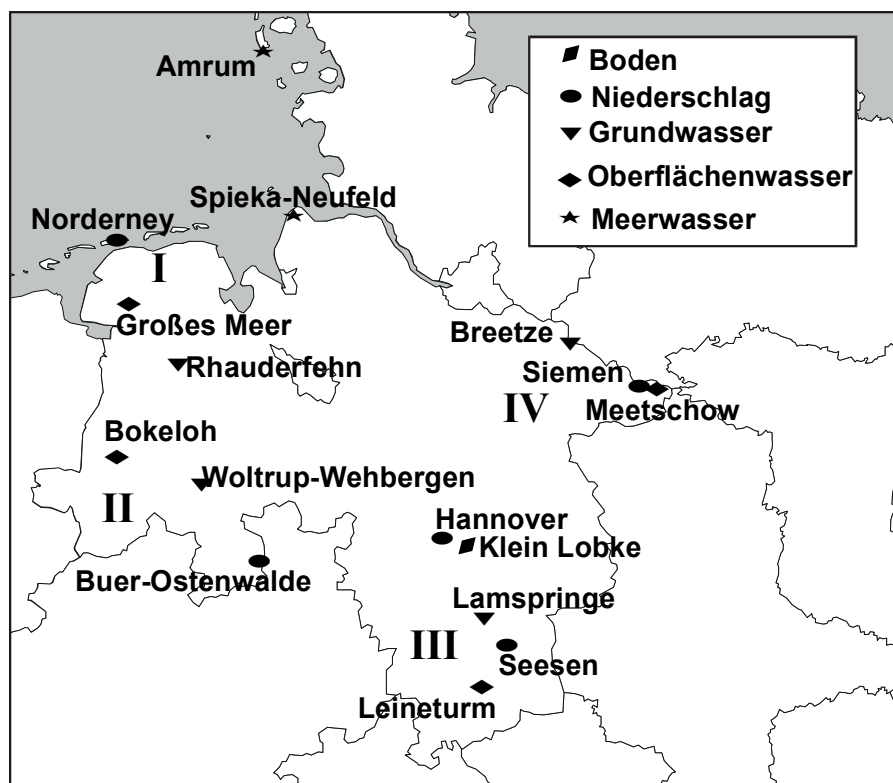
In prä nuklearen Bodenproben fanden wir  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse, die 4 bis 100 mal höher als das Gleichgewichtsisotopenverhältnis waren (Tab. 1). Wir interpretieren diese Ergebnisse, so, daß alle diese alten Bodenproben während der Lagerung mit anthropogenem  $^{129}\text{I}$  kontaminiert wurden. Kontamination während der Analytik können angesichts von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnissen  $(5 - 20) \times 10^{-14}$  in Blindmaterialien, die das vollständige Analysenverfahren durchliefen, ausschließen. Die Bodenprobe von Lutovinovo/Rußland zeigt das bisher niedrigste in Böden gemessene Isotopenverhältnis und kann daher unter der Annahme, daß die mittleren prä nuklearen  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen in der Probe ein Gleichgewicht zwischen natürlichem atmosphärischem Eintrag und der Migration in tiefere Bodenschichten darstellt, zur Berechnung einer oberen Grenze der prä nuklearen integralen  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichte herangezogen werden (vgl. Kap. 3).

## 2. Fallout von Iod-129 in Deutschland und der Schweiz

Zur systematischen Untersuchung des  $^{129}\text{I}$  Fallouts in Deutschland werden in Niedersachsen durch das ZSR seit 1997 Proben von Niederschlag an vier verschiedenen Stationen des Niedersächsischen Depositionsmeßnetzes genommen. Zusätzlich werden Oberflächen- und Grundwasser an naheliegenden Stationen des IMIS Meßnetzes beprobt. Um eine räumliche Übersicht über die  $^{129}\text{I}$  Deposition zu erhalten, wurde Niedersachsen in 4 Regionen unterteilt (Abb. 1): Küsten-nahes Gebiet an der Nordsee (Region I), das norddeutsche Tiefland (Region II), das Harzvorland (Region III) und das Elbetal in der Umgebung von Gorleben (Region IV). Niederschlagsproben wurden als Quartals-Mischproben, Proben von Oberflächen- und Grundwasser in viertel- bzw. halbjährigem Abstand einzeln genommen. In den Regionen II

und III wurde zusätzlich zum Freilandniederschlag auch durchfallender Niederschlag unter Bäumen beprobt. Außerdem wurden 1999/2000 drei Proben von Nordseewasser bei Spiekä-Neufeld und im Jahr 2000 zwei Proben bei Amrum entnommen.

*Abb. 1: Probenahmeorte natürlicher Wässer und Bodenproben in Niedersachsen.*



Die Ergebnisse der  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  Analysen der Wasserproben mittels AMS bzw. ICP-MS sind in Tabelle 2 als geometrische Mittelwerte mit den Standardabweichungen der Einzelwerte dargestellt. Die relativen Meßunsicherheiten der Einzelwerte als 95 %-Vertrauensintervalle sind typischer Weise 12 %, 18 % und 20 % für  $^{129}\text{I}$ ,  $^{127}\text{I}$  und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse. In Bezug auf die Durchführung der Analysen, die Meßunsicherheiten und Qualitätskontrolle und die ausführliche Darstellung und Diskussion der Einzelergebnisse sei auf [24, 25] verwiesen.

Sowohl die Mittelwerte der  $^{129}\text{I}$  Aktivitätskonzentrationen als auch die der  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen nehmen in der Reihenfolge der Regionen I bis IV ab. Allerdings sind nur die Werte der Region I signifikant gegenüber denen der anderen Regionen erhöht. Die höheren Werte in Küstennähe werden auf den Einfluß von Seaspray zurückgeführt.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse sind ebenfalls in der Region I leicht erhöht, unterscheiden sich aber auch nicht signifikant von den in den anderen Regionen gemessenen. Die mittleren  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse im Niederschlag lagen 1997 - 1999 bei ca.  $5 \times 10^{-7}$  (Abb. 2). Die  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen in Niedersachsen unterscheiden sich nicht signifikant von denen, die in Proben aus Dübendorf/Schweiz gefunden wurden [34, 35].

Sowohl die  $^{129}\text{I}$  Aktivitätskonzentrationen als auch die  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen sind im durchfallenden Niederschlag um den Faktor 3,5 bis 4,7 (Mittelwert 3,9) höher als die im Freilandniederschlag bei etwa gleichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnissen von ca.  $5 \times 10^{-7}$ . Die höheren Konzentrationen werden mit der Filterwirkung der Bäume als trockene Deposition von Iod-Isotopen auf den Blättern der Bäume interpretiert. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse im Freilandniederschlag und im durchfallenden Niederschlag zeigen keine signifikanten Unterschiede.

**Tab 2:**  $^{129}\text{I}$ ,  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  in Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser aus Niedersachsen für den Zeitraum 1997-1999 [24, 25] sowie in Proben von Nordseewasser aus den Jahren 1999 und 2000. Die Daten sind in Form geometrischer Mittelwerte und Standardabweichungen angegeben.

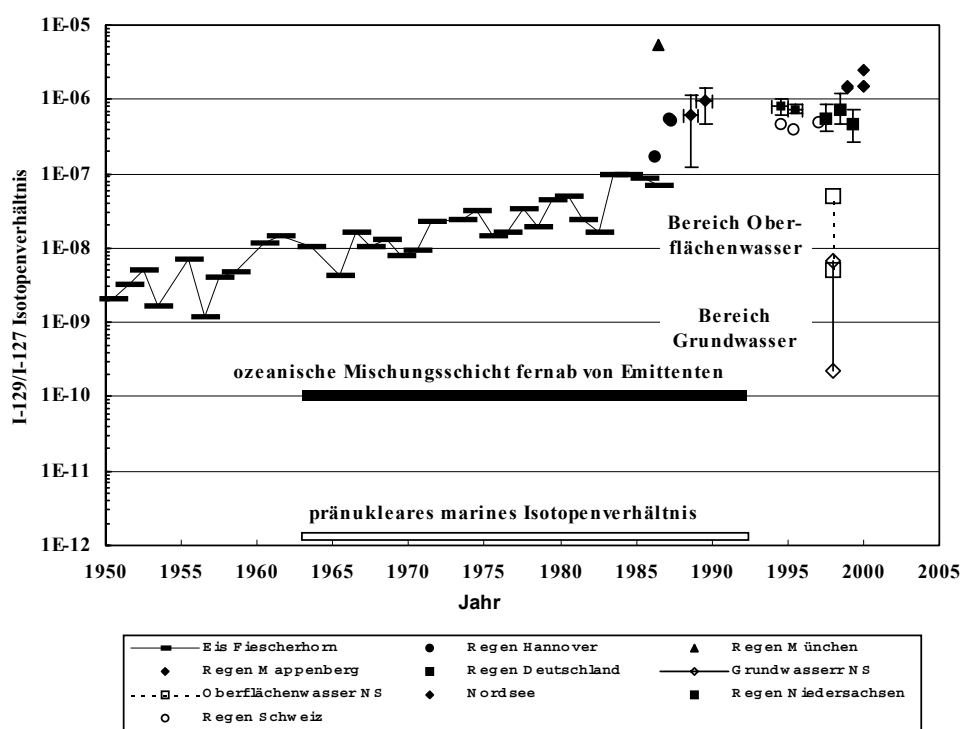
Probe	Region	<i>n</i>	$^{129}\text{I}$ in $\mu\text{Bq kg}^{-1}$	$^{127}\text{I}$ in $\mu\text{g kg}^{-1}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-10}$
Niederschlag (Freiland)	I	10	17,0 × 1,34 <sup>±1</sup>	3,10 × 1,39 <sup>±1</sup>	8.250 × 1,20 <sup>±1</sup>
	II	9	6,07 × 1,41 <sup>±1</sup>	1,48 × 1,31 <sup>±1</sup>	6.190 × 1,34 <sup>±1</sup>
	III	9	4,09 × 1,87 <sup>±1</sup>	1,33 × 2,05 <sup>±1</sup>	4.650 × 1,82 <sup>±1</sup>
	IV	9	3,57 × 1,61 <sup>±1</sup>	1,31 × 1,45 <sup>±1</sup>	3.740 × 1,59 <sup>±1</sup>
Niederschlag (durchfallend)	II	9	24,1 × 1,40 <sup>±1</sup>	6,92 × 1,31 <sup>±1</sup>	5.260 × 1,13 <sup>±1</sup>
	III	9	14,2 × 1,33 <sup>±1</sup>	5,08 × 1,23 <sup>±1</sup>	4.220 × 1,29 <sup>±1</sup>
Oberflächen- wasser	I	12	7,20 × 2,25 <sup>±1</sup>	23,6 × 1,48 <sup>±1</sup>	460 × 2,07 <sup>±1</sup>
	II	12	0,94 × 1,67 <sup>±1</sup>	6,52 × 1,25 <sup>±1</sup>	219 × 1,61 <sup>±1</sup>
	III	11	0,24 × 1,58 <sup>±1</sup>	5,74 × 1,43 <sup>±1</sup>	62,8 × 1,68 <sup>±1</sup>
	IV	12	0,67 × 2,00 <sup>±1</sup>	8,56 × 1,61 <sup>±1</sup>	118 × 2,04 <sup>±1</sup>
Grundwasser	I	3	0,283 × 1,39 <sup>±1</sup>	4,24 × 1,30 <sup>±1</sup>	99,2 × 1,51 <sup>±1</sup>
	II	4	0,560 × 1,23 <sup>±1</sup>	3,90 × 1,26 <sup>±1</sup>	222 × 1,56 <sup>±1</sup>
	III	4	0,0367 × 2,37 <sup>±1</sup>	1,83 × 4,24 <sup>±1</sup>	30,3 × 1,93 <sup>±1</sup>
	IV	5	0,0065 × 5,76 <sup>±1</sup>	4,98 × 1,21 <sup>±1</sup>	2,0 × 5,80 <sup>±1</sup>
Nordseewasser	I	5	495 × 1,73 <sup>±1</sup>	44,88 × 1,82 <sup>±1</sup>	16.500 × 1,24 <sup>±1</sup>

Die langfristige Entwicklung der Iod-Isotopenverhältnisse im Niederschlag in Westeuropa ist in Abb. 2 dargestellt. Messungen an einem Eisbohrkern vom Fiescherhorn/Schweiz belegten erstmals, daß der  $^{129}\text{I}$  Fallout nicht den charakteristischen Bomben-Peak zeigt, sondern seit den 50er Jahren bis Ende der 80er Jahre kontinuierlich anwuchs [36]. Bereits 1950 übertrafen die atmosphärischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse fernab von  $^{129}\text{I}$  Emittenten auf der Nordhalbkugel Werte von  $10^{-9}$ ; siehe [1] bzgl. einer Literaturübersicht. Wenn man die hochalpinen Proben von Beginn der 1950er Jahre bis Mitte der 1980er Jahre mit den mitteleuropäischen Flachlandproben seit 1987 vergleicht, so nahmen die Isotopenverhältnisse und die jährlichen Depositionsdichten in Europa bis Ende der 80er Jahre zu. Seitdem werden Isotopenverhältnisse von nahezu ca.  $6,5 \times 10^{-7}$  in Deutschland und der Schweiz beobachtet, die bis heute in etwa konstant geblieben sind. Der Fallout von  $^{129}\text{I}$  durch nasse Deposition aus dem Unfall von Tschernobyl war lediglich eine kurzzeitige Episode. Die höchsten dabei gemessenen Isotopenverhältnisse lagen in Westeuropa bei knapp  $10^{-5}$ .

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse von ca.  $6,5 \times 10^{-7}$  im Niederschlag stellen im Hinblick auf den Transferpfad des  $^{129}\text{I}$  ein Problem dar. Geht man davon aus, daß der Transfer des  $^{129}\text{I}$  über

Emissionen mit dem Abwasser aus den Wiederaufarbeitungsanlagen erfolgt und dann über konvektive und diffusive Prozesse unter Beteiligung biologischer Aktivitäten wie der Bildung von Methyliodid durch Mikroorganismen in den Niederschlag überführt wird, sind die beobachteten Isotopenverhältnisse im Niederschlag mit den Analyseergebnissen von Raisbeck und Yiou [10, 16] gegen Ende der 1980er bzw. zu Beginn der 1990er Jahre in der Nordsee nicht zu erklären [34].

Man geht heute davon aus, daß die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in der ozeanischen Mischungsschicht fernab von Emittenten etwa  $10^{-10}$  beträgt (Abb. 2). [32, 37, 38]. Für Küstengewässer des Ärmelkanals und der Nordsee sowie Einzelproben aus der zentralen Nordsee liegt bisher erst eine systematische Untersuchung von Yiou et al. [16] vor, bei der die Probenahme zwischen 1984 und 1992 erfolgte und in der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse zwischen  $10^{-10}$  und  $8 \times 10^{-7}$  gefunden wurden. Mit diesen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in ozeanischen Oberflächenwasser ist es nicht möglich Niederschlag mit  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse zu erklären. Die vom ZSR untersuchten Proben von Nordseewasser zeigen deutlich höhere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse von  $1,65 \times 10^{-6}$ . Es ist derzeit unklar, ob die Isotopenverhältnisse im Nordatlantik sich gegenüber den Daten von Yiou et al. [16] dramatisch geändert haben. Eine erneute systematische Beprobung des Nordatlantik und der Nordsee erscheint dringend erforderlich.

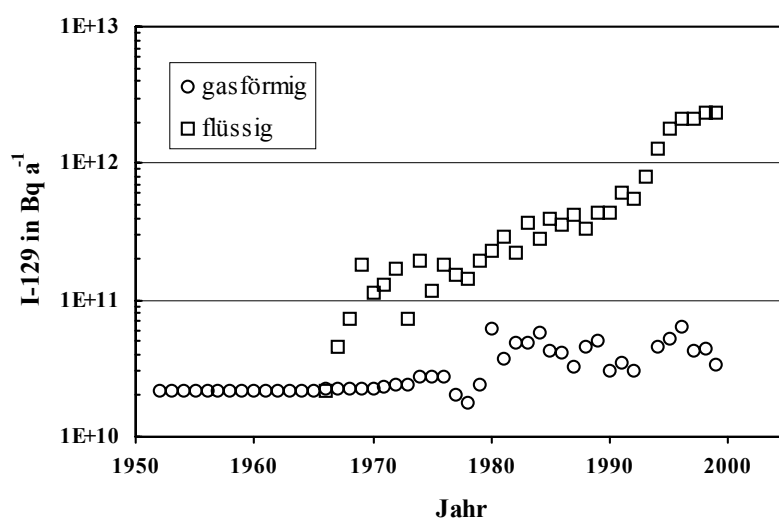


**Abb. 2:** Entwicklung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse im Niederschlag in der Schweiz und in Deutschland [25, 26, 34 - 36, 39 - 41]. Die Daten der Referenzen [34], [36], und [39] wurden unter der Annahme eines  $^{127}\text{I}$  Gehaltes von  $1,4 \mu\text{g kg}^{-1}$  berechnet. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der am ZSR untersuchten Proben von Nordseewasser, die Bereiche der in Oberflächen- und Grundwasser gemessenen Isotopenverhältnisse sowie das prä nukleare und das derzeitige  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnis in der ozeanischen Mischungsschicht angegeben.



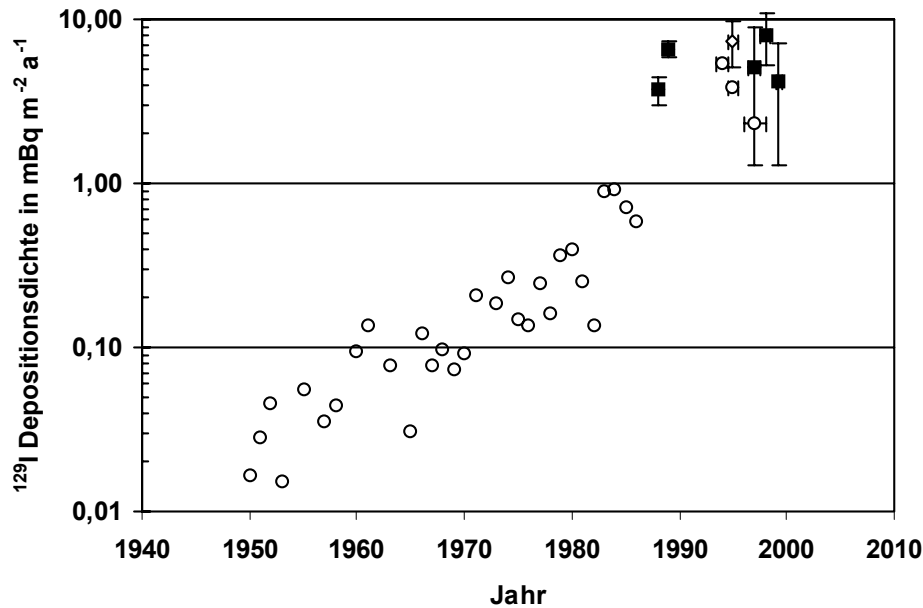
Eine andere Erklärungsmöglichkeit läge darin, daß  $^{129}\text{I}$  im Niederschlag durch Emissionen über die Abluft der Wiederaufarbeitungsanlagen dominiert wird. Zwar betragen die atmosphärischen Emissionen nur wenige Prozent der Gesamtemissionen, doch erscheint auch der Luftpfad hinreichend zur Erklärung der  $^{129}\text{I}$  Immissionen in Deutschland und der Schweiz und zu dem korreliert der zeitliche Verlauf der atmosphärischen Emissionen besser mit dem Verlauf der Immissionen als mit dem der marinen Immissionen [34, 35].

In Abbildung 3 werden die zusammengefaßten marinen und atmosphärischen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen von La Hague und Sellafield dargestellt. Von 1988 bis 1996 steigen die flüssigen Emissionen um einen Faktor 6,4 an. Hingegen bleiben die atmosphärischen Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen im beobachteten Zeitraum in etwa konstant und weisen im Jahr 1996 einen um nur 1,4 gegenüber 1988 erhöhten Wert auf. Die im Niederschlag in Mitteleuropa seit 1988 ermittelten  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen sind mit einem zeitlich konstanten Verlauf verträglich. Der zeitliche Verlauf der  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen in Mitteleuropa seit 1988 ist folglich sehr viel besser mit der Zeitabhängigkeit der atmosphärischen als mit derjenigen der marinen Emissionen vereinbar.



**Abb. 3:** Zeitlicher Verlauf der Emissionen der beiden europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague [10 - 15].

Unabhängig von der ungelösten Frage der Herkunft und der Immissionspfade des  $^{129}\text{I}$  können die vorliegenden Daten dazu genutzt werden, die jährlichen  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten aus den gemessenen  $^{129}\text{I}$  Konzentrationen im Niederschlag und den jährlichen Niederschlagsmengen abzuschätzen. Die jährlichen  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten stiegen danach in den letzten 5 Jahrzehnten von  $0,01 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  im Jahr 1950 in der Schweiz um nahezu drei Größenordnungen auf einen geometrischen Mittelwert von  $6,4 \times 2,1^{\pm 1} \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  (alle vier Regionen Niedersachsens von 1997 bis 1999) an (Abb. 4). Die gegenwärtige Deposition in Niedersachsen zeigt zeitliche und räumliche Variationen [24, 25]. In Abb. 4 sind die geometrischen Jahresmittelwerte der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse mit den Standardabweichungen der Einzelwerte aller Stationen eingetragen, in Tab. 3 sind die Bereiche der jährlichen Depositionsdichten angegeben. Obwohl die Emissionen hauptsächlich in das Meer erfolgen, ist es gegenwärtig nicht klar, ob der gegenwärtige Fallout durch die marinen oder die atmosphärischen Emissionen dominiert wird [34, 35].

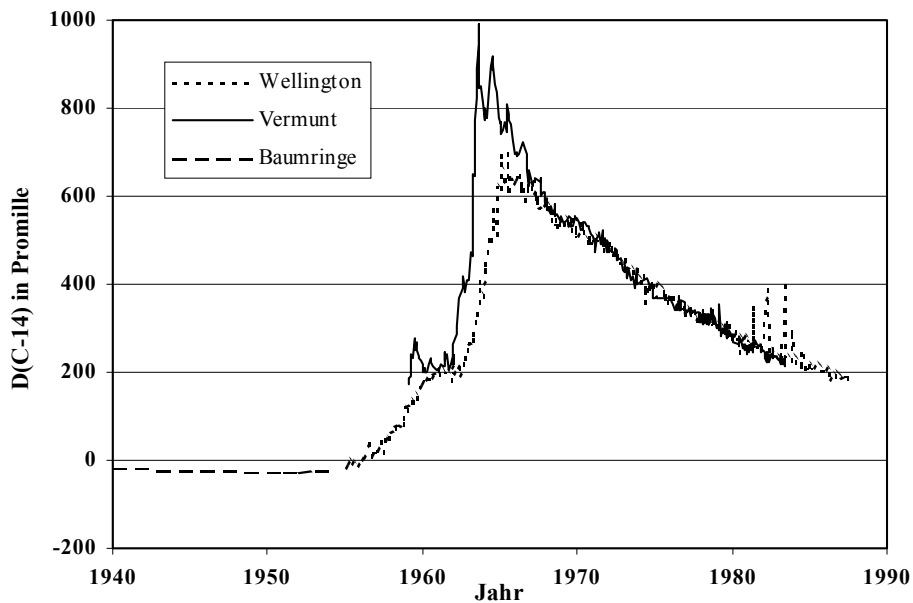
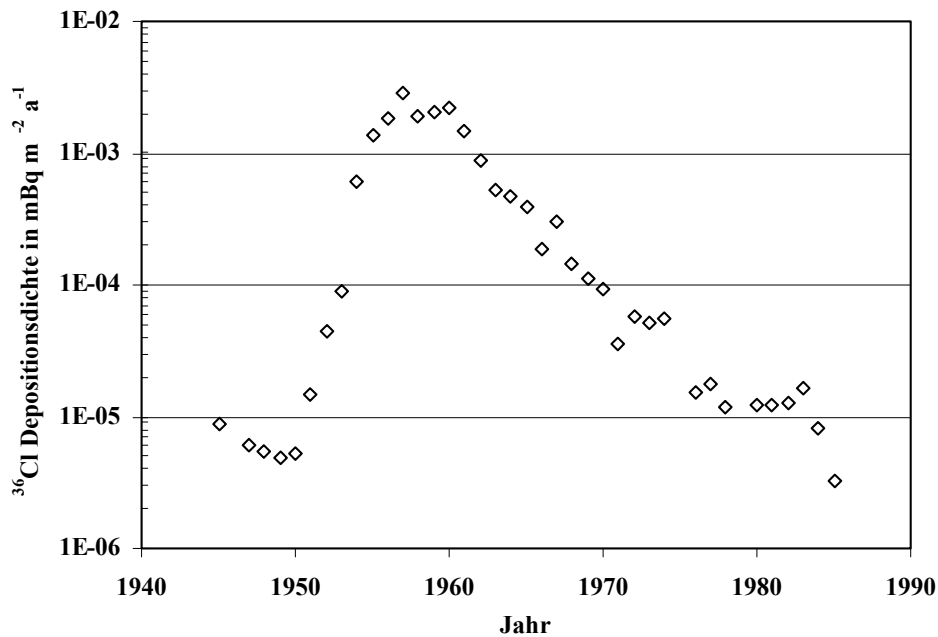


**Abb. 4:** Zeitliche Entwicklung der jährlichen Depositionsdichten von  $^{129}\text{I}$  in Deutschland (gefüllte Symbole) [25, 26, 40, 41] und der Schweiz (offene Symbole) [34, 35]. Die Fehlerbalken stellen den Zeitraum der Probennahmen und die Standardabweichungen der Einzelwerte dar.

**Tab. 3:** Jährliche Depositionsdichten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Deutschland und der Schweiz.

Ort	Material	Jahr	Ref.	$^{127}\text{I}$ in $\text{mg m}^{-2} \text{a}^{-1}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{mBq m}^{-2} \text{a}^{-1}$
Fiescherhorn, CH	Eis-Bohrkern	1950	32	-	0,014
Fiescherhorn, CH	Eis-Bohrkern	84/85	32	-	0,7 - 0,9
Mappenberg, D	Regen + Aerosol	88/89	34	-	4,0 - 6,6
D, fünf Standorte	Niederschlag	94/95	35	-	5,1 - 11
Dübendorf, CH	Niederschlag	94-97	30	-	2,3 - 5,3
NS, Region I	Regen, Freiland	97-99	19, 20	1,6 - 2,6	8,4 - 15,6
NS, Region II	Regen, Freiland	97-99	19, 20	1,0 - 1,6	3,4 - 6,6
NS, Region III	Regen, Freiland	97-99	19, 20	0,8 - 1,9	1,9 - 6,2
NS, Region IV	Regen, Freiland	97-99	19, 20	0,8 - 1,2	1,8 - 3,9
NS, Region II	Regen, durchfallend	97-99	19, 20	2,4 - 4,7	7,9 - 18,1
NS, Region III	Regen, durchfallend	97-99	19, 20	3,2 - 5,7	9,1 - 18,5

Neben  $^{129}\text{I}$  wurden auch die langlebigen Radionuklide  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} = 5,73 \text{ ka}$ ) und  $^{36}\text{Cl}$  ( $T_{1/2} = 300 \text{ ka}$ ) als Aktivierungsprodukte durch die oberirdischen Kernwaffenversuche in der Umwelt freigesetzt. Auch diese Nuklide sind wie  $^{129}\text{I}$  natürlich vorkommende, kosmogene Radionuklide, deren natürliche Häufigkeiten durch die anthropogenen Freisetzungen massiv beeinflusst wurden.



**Abb. 5:** Zeitlicher Verlauf der  $\Delta(^{14}\text{C})$ -Werte in der Atmosphäre auf der Nord- und Südhalbkugel für Vermunt ( $47^\circ\text{N}, 10^\circ\text{E}$ ) und Wellington ( $41^\circ\text{S}, 174^\circ\text{E}$ ), [42] und dort angegebene Literaturstellen, (oben) und der jährlichen  $^{36}\text{Cl}$  Depositionsdichten am Fiescherhorn [44].

Messungen von  $^{14}\text{C}/\text{C}$  in der Atmosphäre zeigen eine globale Verdopplung der spezifischen Aktivität des atmosphärischen Kohlenstoffs anfangs der 60er Jahre [42]. Die natürlichen Variationen des  $^{14}\text{C}/\text{C}$  Verhältnisses lagen demgegenüber während der letzten 12 000 a bei 15 %.

Höhere als die anthropogenen  $\Delta(^{14}\text{C})$ -Werte<sup>1</sup> wurden mit 3 600 ‰ bisher nur in 44 000 a alten Tropfsteinen gefunden [43] und sind nur durch eine außergewöhnliche Erhöhung der kosmogenen Produktion, die einher ging mit erhöhter Produktion von  $^{10}\text{Be}$  und  $^{36}\text{Cl}$ , zu erklären. Heute sind die atmosphärischen  $\Delta(^{14}\text{C})$  Werte nach Beendigung der Freisetzungen und als Folge der Pufferung durch marines  $\text{CO}_2$  mit natürlichem Isotopenverhältnis nahezu wieder zum natürlichen Pegel zurückgekehrt. Atmosphärisches  $\Delta(^{14}\text{C})$  zeigt damit den klassischen „Bomben-Peak“ (Abb. 5), der auch im Fallout von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  beobachtet wurde. Messungen auf der Nord- und Südhalbkugel zeigen den  $^{14}\text{C}$  Fallout als globales Ereignis mit lediglich geringen Unterschieden aufgrund der Transportzeit des überwiegend auf der Nordhalbkugel emittierten  $^{14}\text{C}$ .

Auch der Fallout von  $^{36}\text{Cl}$ , den man mittels AMS in Proben von Eisbohrkernen retrospektiv erfassen kann, zeigt einen ausgeprägten Bomben-Peak (Abb. 5). Der Fallout von  $^{36}\text{Cl}$  überstieg die natürlichen kosmogen bedingten Fallout anfangs der 60er Jahre um mehr als 3 Zehnerpotenzen. Messungen an Eisbohrkernen vom Fiescherhorn/Schweiz und aus Dye 3/Grönland belegen den globalen Charakter und die Gleichförmigkeit des Fallout als Folge der Freisetzungen durch oberirdische Kernwaffenexplosionen [44]. Der Vergleich der Abbildungen 2 und 4 mit Abb. 5 belegt die grundsätzlich andere Situation bei  $^{129}\text{I}$  im Vergleich zu anderen anthropogenen Radionukliden wie  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in der Umwelt.

### 3. Iod-129 in Böden

Das Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  in Böden ist aus verschiedenen Gründen von Interesse. Zum ersten kann über die Untersuchung von  $^{129}\text{I}$  in Bodenprofilen das Migrationsverhalten von I-129 im Vergleich zu dem des  $^{127}\text{I}$  untersucht werden. Zum zweiten können die integralen Depositionsdichten von  $^{129}\text{I}$  bestimmt werden. Dies ist sowohl im Hinblick auf die Bilanzierung der anthropogenen Veränderungen als auch auf die retrospektive Bestimmung der  $^{131}\text{I}$  Deposition nach dem Unfall von Tschernobyl von Interesse. Zum dritten ist die Untersuchung der Tiefenverteilung von  $^{127}\text{I}$  in Böden im Hinblick auf den Iod-Haushalt in Abhängigkeit von Bewuchs und bodenkundlichen Merkmalen von Bedeutung. Am ZSR wurden daher in den letzten Jahren intensive Untersuchungen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Böden vorgenommen.

Bisher wurden 48 Bodenprofile bis zu einer Tiefe von 40 cm in Moskau und der nördlichen Ukraine in den Jahren von 1995 bis 1997 genommen.  $^{129}\text{I}$  wurde mittels RNAA und AMS bestimmt,  $^{127}\text{I}$  mittels RNAA, IC und ICP-MS [45]. Im Jahr 1999 wurden bodenkundlich wohl charakterisierte Bodenprofile an sieben Standorten in Niedersachsen bis zu einer maximalen Tiefe von 250 cm entnommen.

Aus den  $^{129}\text{I}$  Aktivitätskonzentrationen der Proben der Profile wurden auf die Oberfläche projizierte tiefen-integrierte Aktivitätskonzentrationen  $D(d)$  nach Gleichung 1 berechnet. Diese sind unter der Voraussetzung, daß ein Fallout-Radionuklid nicht tiefer als die maximale Beprobungstiefe  $d_{\max}$  migriert ist und daß das Radionuklid weder horizontal verfrachtet wurde noch aus der Oberfläche entweicht, Depositionsdichten des Fallouts.

$$D(d) = \int_d^{d_{\max}} A_s(d') \cdot \rho(d') dd' \quad (1)$$

mit

<sup>1</sup> Die  $\Delta(^{14}\text{C})$ -Werte geben die Abweichung des  $^{14}\text{C}/\text{C}$  Verhältnisses von dem eines Standards in Promille an.

$D(d)$	Depositionsdichte als Funktion der Tiefe $d$ in $\text{Bq m}^{-2}$
$A_s(d)$	Aktivität pro Masseneinheit im Tiefenintervall $[d, d + \Delta d]$ in $\text{Bq kg}^{-1}$
$\rho(d)$	Dichte des Bodens im Tiefenintervall $[d, d + \Delta d]$ in $\text{g cm}^{-3}$
$D(d=0)$	Integrale Depositionsdichte in $\text{Bq m}^{-2}$

Für stabiles Iod wurden auf die Oberfläche projizierte tiefen-integrierte Elementkonzentrationen  $D(d)$  in analoger Weise definiert, indem in Gl. 1 die spezifischen Aktivitäten  $A_s(d)$  durch die  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen im Boden,  $C_{127}(d)$  in  $\text{g g}^{-1}$ , ersetzt wurden. Unter den oben gemachten Voraussetzungen und der Annahme, daß das stabile Iod im Boden überwiegend aus atmosphärischem Eintrag stammt, sind die auf die Oberfläche projizierten Elementkonzentrationen  $D(0)$  als integrale  $^{127}\text{I}$  Depositionsdichten anzusehen. Als Beispiel zeigen wir in Abb. 6 die Tiefenabhängigkeiten der  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  Depositionsdichten und der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in einem Bodenprofil von Klein Lobke, Niedersachsen. Mehr als 99 % des  $^{129}\text{I}$  befindet sich in den oberen 60 cm des Profils. Allerdings liegen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in größeren Tiefen noch bei  $10^{-10}$ , d.h. noch etwa zwei Größenordnungen höher als das natürliche Gleichgewichts-isotopenverhältnis in der marinen Hydrosphäre. Der Anteil an  $^{129}\text{I}$ , der bereits aus den oberen 250 cm in größere Tiefen transportiert wurde, kann aus den vorliegenden Daten nicht abgeschätzt werden.

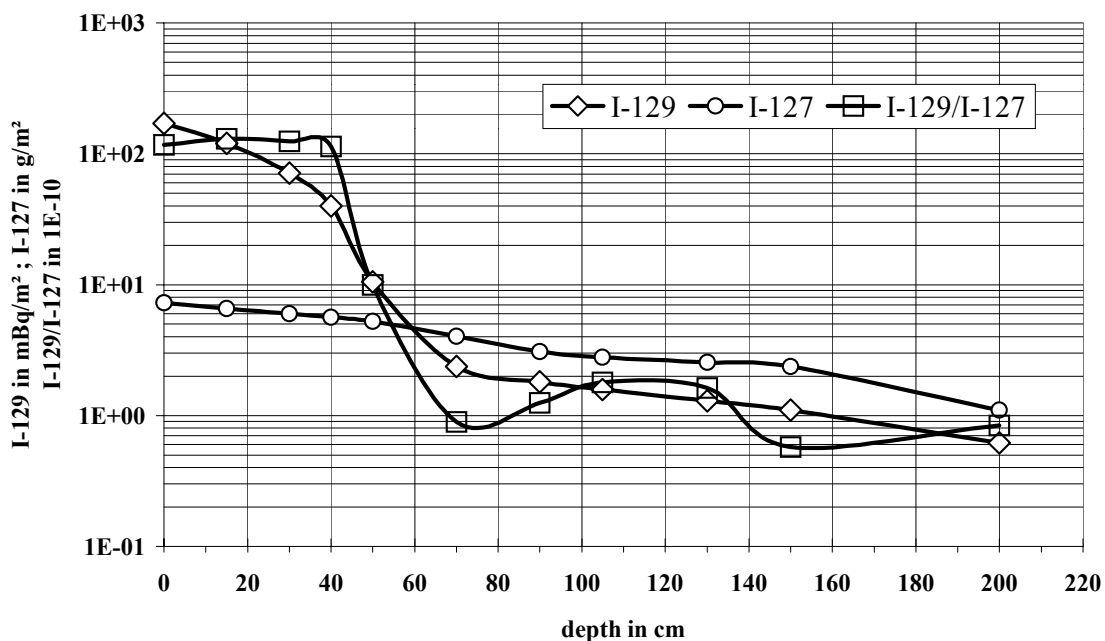


Abb. 6: Tiefenabhängigkeit der  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten und der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in einem Bodenprofil von Klein Lobke, Niedersachsen.

Betrachtet man die  $D(0)$ -Werte für  $^{127}\text{I}$  Daten in Abb. 6 als integrale  $^{127}\text{I}$  Depositionsdichten, wird ersichtlich, daß das heute im Boden vorhandene  $^{127}\text{I}$  von ca.  $4 \text{ g m}^{-2}$  bei jährlichen Depositionsdichten der Größenordnung von  $1 \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  nur über Jahrtausende in die Böden eingetragen worden sein kann. Damit kann die Annahme, daß die nach Gl. 1 auf die Oberfläche projizierten  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen als integrale Depositionsdichten aufgefaßt werden können, nicht aufrecht erhalten werden, da das System Boden über derartige Zeiträume mit Sicherheit nicht als geschlossen angesehen werden kann. Böden unterliegen einer ständigen Entwick-

lung, die bereits im Bereich von Jahrzehnten signifikante Veränderungen bewirken kann. Der Wert von ca.  $4 \text{ g m}^{-2}$  kann somit nur als untere Grenze der integralen  $^{127}\text{I}$  Depositionsdichte aufgefaßt werden.

Betrachtet man die auf die Oberfläche projizierten  $^{129}\text{I}$  Aktivitätskonzentrationen für  $d = 0$  als integrale  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten erhält man die in Tab. 4 angegebenen Ergebnisse. Die bisher niedrigsten Depositionsdichte wurde in einem Bodenprofil aus Lutovinovo, Rußland gemessen, das im Jahr 1939 genommen wurde. Dieses Profil zeigte auch das bisher niedrigste in Böden gemessene Isotopenverhältnis von  $(0,057 \pm 0,011) \times 10^{-10}$  [24, 25]. Allerdings ist auch dieses Isotopenverhältnis noch um den Faktor vier höher als das prä nukleare marine  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Gleichgewichts isotopenverhältnis von  $\sim 1,4 \times 10^{-12}$  [33]. Wegen der Gefahr der Kontamination mit modernem Iod während der Lagerung können solche prä nuklearen Bodenprofile lediglich obere Grenzen für die natürliche Gleichgewichtsdepositionsdichte geben. Kontamination während der Probenbehandlung und Analyse stellt angesichts vollständiger analytischer Blanks mit typischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse von  $2 \times 10^{-13}$  kein Problem dar.

Die integralen Depositionsdichten  $D(0)$  sind in Niedersachsen mehr als drei Größenordnungen höher als der prä nukleare Wert, der aus dem Bodenprofil von Lutovinovo, Rußland ermittelt wurde. Sie sind auch höher als die in Moskau, Rußland, oder Zhytomir, Ukraine, wo keine signifikante Kontamination durch Fallout des Tschernobyl-Unfalls stattfand. Nur in Bereichen der Ukraine die durch den Unfall stark kontaminiert wurden, beobachtet man höhere integrale Depositionsdichten als in Deutschland [45]. Tabelle 4 zeigt die geometrischen Mittelwerte und Standardabweichungen der integralen Depositionsdichten in den Kontaminationszonen II ( $^{137}\text{Cs}$  Depositionsdichte  $555 - 1480 \text{ kBq m}^{-2}$ ) und III ( $^{137}\text{Cs}$  Depositionsdichte  $185 - 555 \text{ kBq m}^{-2}$ ) der nördlichen Ukraine. Dort kann  $^{129}\text{I}$  dazu benutzt werden, retrospektiv den  $^{131}\text{I}$  Fallout des Tschernobyl Unfalls zu bestimmen. In den hochkontaminierten Gebieten der Ukraine geschah die Deposition des überwiegenden Anteils des  $^{129}\text{I}$  zu einem einzigen, wohl definierten Zeitpunkt. In der Ukraine befinden sich mehr als 99 % des  $^{129}\text{I}$  Fallouts des Tschernobyl Unfalls noch in den oberen 30 cm der Böden.

Allgemein zeigen die  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten in den Bodenprofilen aus der Ukraine und aus Moskau etwa exponentielle Tiefenabhängigkeiten bis zu Tiefen von 40 cm [1, 45]. Für größere Tiefen, die bisher nur in Böden aus Niedersachsen untersucht wurden, ist die Situation wegen der komplexen Eintragsfunktion mit kontinuierlicher, stark zeitabhängiger Deposition wesentlich komplizierter (Abb. 6). Darüber hinaus belegen die Ergebnisse aus Niedersachsen, daß die Isotope  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Böden im Ungleichgewicht vorliegen. Die  $^{129}\text{I}$ -Gehalte lassen deutlich die Übergänge zwischen Ober- und Unterböden erkennen. Dies ist für  $^{127}\text{I}$  nicht der Fall. In Unterböden mit den niedrigsten  $^{127}\text{I}$ -Gehalten wurden die vergleichsweise höchsten  $^{129}\text{I}$ -Gehalte beobachtet. Damit gehorchen die Sorption bzw. die Verfügbarkeit von Iod im Oberboden einer anderen Gesetzmäßigkeit als im Unterboden. Über  $^{129}\text{I}$ - $^{127}\text{I}$ -Austauschprozesse und den jeweiligen Wasserhaushalt läßt sich das unterschiedliche Sorptionsverhalten erklären [46].

#### 4. Iod-129 in Oberflächen- und Grundwässern in Niedersachsen

In den Oberflächenwässern sind die  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen gegenüber denen im Niederschlag erhöht, während die  $^{129}\text{I}$  Aktivitätskonzentrationen im Niederschlag höher als im Oberflächenwasser sind (Tab. 2). Auffällig hoch sind die Werte in Region I. Hierbei handelt es sich um Proben aus dem Großen Meer (Abb. 1), das deutlich durch die Nähe der Nordsee

beeinflusst ist. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser sind wesentlich geringer als im Niederschlag, wobei wieder die Proben aus dem Großen Meer deutlich gegenüber den Oberflächenwässern der anderen Regionen erhöht ist.

Die Nordsee und der Nordatlantik stellen für beide Iod-Isotope Puffer-Reservoirs dar, wobei das  $^{129}\text{I}$  hauptsächlich aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague stammt [10, 16]. Der anschließende Transfer durch die marine und kontinentale Atmosphäre findet auf einer kurzen Zeitskala von etwa zwei Wochen statt [47]. In der Atmosphäre werden die marinen Iod-Isotope mit solchen aus anderen natürlichen Quellen vermischt und auch ein direkter Einfluß der atmosphärischen Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen ist möglich. Nachdem das Iod durch nasse oder trockene Deposition auf der Erdoberfläche abgelagert wird, werden die Iod-Isotope langsam in die Oberflächen- und Grundwässer transportiert. Die letztgenannten Kompartimente haben signifikant niedrigere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse, die es ermöglichen, die Verweilzeiten des Iod in den Einzugsgebieten der Oberflächengewässer zu bestimmen. Da Iod biophil ist, können diese Verweilzeiten die biologischen Bedingungen in den jeweiligen Kompartiments widerspiegeln, wenn man sie mit den Wasser-Transportzeiten auf der Grundlage von Tritium-Verweilzeiten vergleicht.

**Tab. 4:** *Integrale  $^{129}\text{I}$  Depositionsdichten in unterschiedlich kontaminierten Bereichen Europas.*

Ort	Anzahl der Profile	Tiefe in cm	Jahr der Probenahme	Integrale $^{129}\text{I}$ Depositionsdichten in $\text{mBq m}^{-2}$
Lutovinovo, Rußland	1	35	1939	$0,084 \pm 0,017$
Moskau, Rußland	2	40	1996	$49 \times 1,5^{\pm 1}$
Zhytomir, Ukraine	12	40	1997	$38 \times 1,7^{\pm 1}$
Niedersachsen	7	250	1999	$168 \times 1,5^{\pm 1}$
Zone III, Ukraine	24	40	1995	$130 \times 1,5^{\pm 1}$
Zone II, Ukraine	7	40	1995	$848 \times 1,5^{\pm 1}$

Die Deposition atmosphärischen  $^{129}\text{I}$  ist die wesentlichste Quelle in der terrestrischen Umwelt in Europa. Benutzt man die Niederschlagsdaten aus Abb. 2 als Eintragsfunktion in einem einfachen exponentiellen Modell [48] für den Transfer von Iod vom Ort des Niederschlags zu dem der Probenahme, kann man die mittleren Iod-Verweilzeiten in den oberflächlichen Bodenzonen berechnen und diese mit den Wasser-Transferzeiten auf der Basis von Tritium Aktivitätskonzentrationen vergleichen (Tab. 5). In einem solchen Modell wird die mittlere Verweilzeit  $\tau$  nach Gleichung 2 berechnet.

$$\tau = - \frac{t}{\ln(1-H(t))} \quad (2)$$

Dabei ist  $t$  die Zeit konstanten Eintrags und  $H(t)$  der Anteil des Eintragsignals der im jeweiligen Kompartiment beobachtet wird.  $t$  charakterisiert die Zeitspanne zwischen der Probenahme und 1986, für die der Beginn des konstanten Eintrags angenommen wird.  $H(t)$  wird angenommen als das Verhältnis von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  in der jeweiligen Probe und dem Mittelwert im Nie-

derschlag von  $6,5 \times 10^{-7}$ .  $\tau$  wird für jede einzelne Probe berechnet. In Tab. 5 sind die so resultierenden geometrischen Mittelwerte mit ihren Standardabweichungen des Mittelwertes angegeben. Dieses Modell suggeriert, daß der horizontale und vertikale Iod-Transport um bis zu 3 Größenordnungen gegenüber dem Wassertransport verzögert ist. Oberflächen- und Grundwasser zeigen ähnliche Werte mit Ausnahme von Region IV, wo eine impermeable Zone über dem Ort der Grundwasser-Probenahme angenommen werden muß.

**Tab. 5:** Mittlere Transferzeiten von Iod in oberflächennahen Bodenzonen abgeleitet mit einem einfachen exponentiellen Modell und mittlere Zeitkonstanten des Wassertransfers abgeleitet aus  $^3\text{H}$  in Grundwasser mit Standardunsicherheiten [49].

Material	Region	$\tau_{\text{Iod}}$ in a	$\tau_{\text{Tritium}}$ in a
Oberflächenwasser	I	kontaminiert durch Nordseewasser	–
	II	$364 \times 1,14^{\pm 1}$	–
	III	$1290 \times 1,16^{\pm 1}$	–
	IV	$670 \times 1,24^{\pm 1}$	–
Grundwasser	I	$828 \times 1,25^{\pm 1}$	$7 \pm 5$
	II	$359 \times 1,23^{\pm 1}$	$12 \pm 1$
	III	$2670 \times 1,36^{\pm 1}$	$9 \pm 4$
	IV	$40200 \times 2,15^{\pm 1}$	$19 \pm 2$

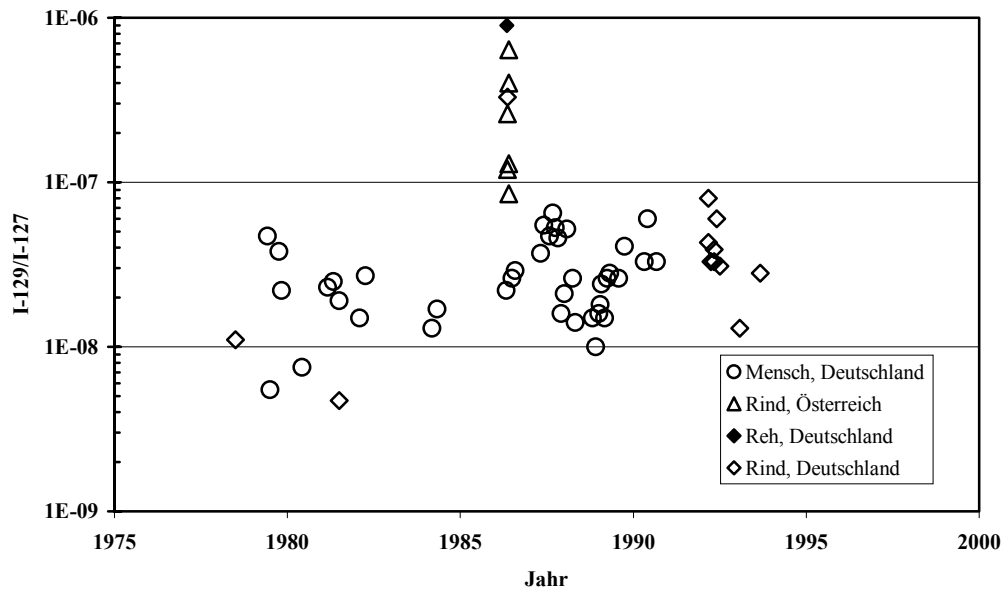
## 5. Iod-129 in der Biosphäre

Auch die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in der Biosphäre wurden gegenüber den prä nuklearen Werten drastisch verändert. Wie oben bereits erwähnt, wurde das bisher niedrigste Isotopenverhältnis in einem Schweine-Schilddrüsenpulver aus den USA, das von Parke-Davis & Co. im Jahr 1943 hergestellt wurde. Der Mittelwert von zwei Analysen von  $(0,058 \pm 0,012) \times 10^{-10}$  [1, 24] ist immer noch höher als das Isotopenverhältnis in prä nuklearen ozeanischen Sedimenten. Schilddrüsenmaterialien in den USA aus dem Jahr 1947 zeigten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse, die 4 bis 1000 mal höher als das prä nukleare, marine Gleichgewichts isotopenverhältnis und werden daher als kontaminiert durch Emissionen aus dem Manhattan-Projekt angesehen.

Die heutigen menschlichen und tierischen Schilddrüsen aus Niedersachsen, weit entfernt von  $^{129}\text{I}$  Emittenten, zeigen wesentlich höhere Isotopenverhältnisse [20, 21, 50]. In Rinderschilddrüsen wurden  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse von  $(110 \pm 10) \times 10^{-10}$ ,  $(47 \pm 5) \times 10^{-10}$ , bzw.  $(400 \pm 196) \times 10^{-10}$  in den Jahren 1978 (n = 25), 1981 (n = 22), und 1992/93 (n = 9) beobachtet [20, 21]. Der Fallout durch den Unfall von Tschernobyl verursachte in Westeuropa lediglich ein kurzzeitiges Maximum der Isotopenverhältnisse, die sich z. B. in Analysen von tierischen Schilddrüsen aus Österreich und Deutschland zeigten [51]. Schilddrüsen aus Deutschland, die vor und nach dem Tschernobyl Unfall am ZSR analysiert wurden zeigten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse von  $(216 \pm 114) \times 10^{-10}$  (n = 13) bzw.  $(320 \pm 156) \times 10^{-10}$  (n = 26). Diese  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse sind etwa eine Größenordnung höher als die in Schilddrüsen von der Südhalbkugel wie die Analysen von menschlichen und tierischen Schilddrüsen aus Chile zeigten [50]. Dies ist einerseits in Übereinstimmung mit den generellen Unterschieden, die



beim globalen Fallout aus oberirdischen Kernwaffenexplosionen zwischen der nördlichen und der südlichen Hemisphäre beobachtet wurden, andererseits ist es eine Folge des Fehlens von Wiederaufarbeitungsanlagen auf der Südhalbkugel.



**Abb. 7:** Zeitlicher Verlauf der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse in menschlichen und tierischen Schilddrüsen in Niedersachsen. Zusätzlich sind die Ergebnisse von tierischen Schilddrüsen aus Österreich und Deutschland nach dem Unfall von Chernobyl eingetragen [20, 21, 50].

Um die radiologische Signifikanz der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse zu beurteilen, kann man die durch  $^{129}\text{I}$  verursachte Strahlenexposition auf der Basis eines spezifischen Aktivitätsmodells berechnen [1]. Unter der Annahme der Daten des ICRP Referenzmenschen für den menschlichen Iod-Gehalt und die Iod-Aufnahme [52] und einen Dosisfaktor für ein 1-jähriges Kind von  $2,2 \times 10^{-7} \text{ Sv Bq}^{-1}$  [53] bewirkt ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Gleichgewichtsverhältnis von  $100 \times 10^{-10}$  eine jährliche Schilddrüsen-Dosis von  $H \approx 5 \text{ nSv a}^{-1}$  durch die Aufnahme von  $^{129}\text{I}$ . Somit sind die derzeitigen  $^{129}\text{I}$  Kontaminationen fernab von Emittenten radiologisch nicht bedeutend. Es ist allerdings anzumerken, daß diese grobe Abschätzung der  $^{129}\text{I}$  Exposition nicht für die nähere Umgebung von Emissionsquellen gilt und nicht die in der Umwelt existierenden Ungleichgewichte zwischen  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Betracht zieht.

Die bisher den 1990iger Jahren in Schilddrüsen in Deutschland gemessenen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse sind deutlich geringer als die im Niederschlag (Abb. 7). Sie liegen zwischen  $10^{-7}$  und  $10^{-8}$ . Ein Vergleich mit den in Oberböden gefundenen, im Mittel niedrigeren  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnissen von  $5 \times 10^{-8}$  bis  $5 \times 10^{-9}$  deutet darauf hin, daß die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse in Schilddrüsen nicht durch ein spezifisches Aktivitäts-Modell beschrieben werden kann. Hier muß der Transfer von stabilem und radioaktiven Iod-Isotopen, die nicht im Gleichgewicht sind, über die einzelnen Lebensmittel und den Transfer von Atmosphäre, Boden und Wasser in Mensch und Tier detailliert untersucht werden. Derartige Untersuchungen werden z.Z. durchgeführt. Unter der Annahme eines anhaltenden kontinuierlichen Eintrags von  $^{129}\text{I}$  ist ein weiterer Anstieg der biosphärischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisse zu erwarten. Aus den bisher verfügbaren Daten der letzten 20 Jahre ist ein Anstieg des biosphärischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Isotopenverhältnisses um etwa eine Größenordnung abzulesen (Abb. 7).

## 6. Schlußfolgerung

Die natürlichen Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  wurden durch den Menschen nachhaltig verändert. In Westeuropa gehen diese Veränderungen weiter. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse im Niederschlag stabilisierten sich nach einem jahrzehnte-langen Anstieg bei Werten von nahezu  $10^{-6}$ .

$^{129}\text{I}$  und stabiles Iod sind in den verschiedenen Umwelt-Kompartimenten nicht im Gleichgewicht. Die höchsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von im Mittel  $1,65 \times 10^{-6}$  wurden im küstennahen Nordseewasser gemessen. In den Regionen II - IV stellt man in Niederschlägen niedrigere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von ca.  $5 \times 10^{-7}$  fest. Oberflächenwässer haben  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse im Bereich von  $5 \times 10^{-8}$  -  $5 \times 10^{-9}$ . Den gleichen Bereich finden wir in Oberböden des Großraumes Hannover. In tieferen Bodenschichten beobachten wir dort in Tiefen zwischen 50 cm und 250 cm  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse von zwischen  $10^{-8}$  und  $10^{-10}$ , ein Bereich der die in Grundwässern der Regionen I - IV beobachteten Isotopenverhältnisse von  $2 \times 10^{-8}$  bis  $2 \times 10^{-10}$  einschließt. In Deutschland liegen die biosphärischen Iod-Isotopenverhältnisse mit  $10^{-7}$  bis  $10^{-8}$  ca. eine Größenordnung niedriger als im Niederschlag mit der Tendenz zu einer weiteren Erhöhung. Dies läßt einen weiteren Anstieg der biosphärischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  Verhältnisse erwarten.

Obwohl die gegenwärtigen globalen  $^{129}\text{I}$  Vorkommen keine nennenswerten Strahlenexpositionen bewirken, sollte die zukünftige Entwicklung doch sorgfältig beobachtet werden.  $^{129}\text{I}$  ist ein hervorragender Tracer von Umweltprozessen und bietet eine Möglichkeit zur retrospektiven Erfassung von  $^{131}\text{I}$  Immissionen. Gerade wegen des Ungleichgewichts zwischen den Iod-Isotopen ist  $^{129}\text{I}$  ein Indikator zur Quantifizierung des langfristigen menschlichen Einflusses auf die Umwelt.

## Danksagung

Diese Arbeit wurde teilweise durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) gefördert. Für die Zusammenarbeit bei der Probenahme von Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser danken wir W. Städe vom Niedersächsisches Landesamt für Ökologie in Hildesheim. Die pränuklearen Bodenprofile wurden von A. Fokin von der Timiryazev Agricultural Academy in Moskau zur Verfügung gestellt. Die Untersuchung der Bodenprofile aus Niedersachsen erfolgt in Zusammenarbeit mit I. Benne, J. Biess, E. Gehrt, A. Capelle, U. Bartsch, H. Jordan, K.H. Oelkers, J. Schneider vom Niedersächsischen Landesamt für Bodenforschung, Bodentechnologisches Institut in Bremen mit S. Dultz vom Institut für Bodenkunde der Universität Hannover, mit V. Hennings, K. Köhler, W. Duijnsveld, W. Kantor von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe in Hannover und mit E. Ahlers von der Oberfinanzdirektion Hannover. T. Parker (BNFL) danken wir für die Informationen über die Emissionen aus Sellafield für die Jahre 1993 - 2000.

## Literaturnachweis

- [1] 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.

- [2] Y. Miyake and S. Tsunogai, Evaporation of Iodine from the ocean. *J. Geophys. Res.*, 68 (1963) 3989 - 3993.
- [3] D.C. Kocher, On the long-term-behaviour of Iodine-129 in the terrestrial environment. IAEA-SM-257/56 (1981).
- [4] D.C. Whitehead, The distribution and transformations of iodine in the environment. *Environ. Int.* 10 (1984) 321 - 339.
- [5] T.R. England and B.F. Rider, Rep. LA-UR-94-3106, 1994.
- [6] A.C. Chamberlain, *Radioactive Aerosols*, Cambridge University Press, 1991.
- [7] M. Eisenbud, T. Gesell, *Environmental Radioactivity*, 4<sup>th</sup> ed., Academic Press, San Diego (1997) p. 556.
- [8] M.W. Carter, A.A. Moghissi, Three decades of nuclear testing, *Health Physics* 33 (1977) 55 - 71.
- [9] UNSCEAR report, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation reports to the General Assembly of the United Nations (1982).
- [10] G.M. Raisbeck, F. Yiou, Z.Q. Zhou, L.R. Kilius, <sup>129</sup>I from nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer. *J. Mar. Sys.* 6 (1995) 561 - 570.
- [11] J. Gray, S.R. Jones, A.D. Smith, Discharges to the environment from the Sellafield Site 1951 -1992, *J. Radiol. Prot.* 15 (1995) 99-XXX.
- [12] T. Parker (BNFL), priv. comm. with C. Schnabel, May 11, 2001.
- [13] Webmaster Cogema, priv. comm. with C. Schnabel, Feb 1, 2001.
- [14] BNFL: Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment, 1998, British Nuclear Fuel, Risley (1999).
- [15] Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires, Volume 1: Historique des rejets (in French), Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, c/o Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Fontenay-aux-Roses (1999).
- [16] F. Yiou, G.M. Raisbeck, Z.Q. Zhou, and L.R. Kilius, <sup>129</sup>I from nuclear fuel reprocessing; potential as an oceanographic tracer. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, B92 (1994) 436 - 439.
- [17] C. Fréchet, D. Calmet, P. Bouisset, D. Piccot, A. Gaudry, F. Yiou, G. Raisbeck, <sup>129</sup>I and <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I ratio determination in environmental biological samples by RNAA, AMS and direct  $\gamma$ -X spectrometric measurements; 5<sup>th</sup> International Conf. on Methods and Applications of Radioanalytical Chemistry, Kailua-Kona, 9. - 14. April 2000, Log No. 279.
- [18] C. Fréchet, Optimisation des protocoles de mesurage de <sup>129</sup>I et <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I - Établissement d'une méthodologie adaptée aux échantillons de l'environnement, Rapport CEA-R-5947 (2000) .
- [19] J. Handl and A. Pfau, Feed-milk-transfer of fission products following the Chernobyl accident. *Atomenergie Kerntechnik*, 49 (1987) 171 - 173.
- [20] J. Handl, A. Pfau, and F.W. Huth, Measurements of <sup>129</sup>I in human and bovine thyroids in Europe - transfer of <sup>129</sup>I into the food chain. *Health Phys.*, 58 (1990) 609 - 618.
- [21] J. Handl, E. Oliver, D. Jakob, K.J. Johanson, and P. Schuller, Biospheric <sup>129</sup>I concentrations in the pre-nuclear and nuclear age. *Health Phys.*, 65 (1993) 265 - 271.

- [22] S. Szidat, A. Schmidt, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, H.-A. Synal, M. Suter, Analysis of iodine-129 in environmental materials: quality assurance and applications. *J. Radioanal. Chem.* 244 (1999) 45 - 50.
- [23] S. Szidat, A. Schmidt, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, H.-A. Synal, Ch. Schnabel, M. Suter, J.M. Lopez-Gutierrez, RNAA and AMS of Iodine-129 in Environmental Materials - Comparison of Analytical Methods and Quality Assurance -. *Kerntechnik* 65 (2000) 160 - 167.
- [24] S. Szidat, Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien (in German). Ph.D. thesis, Univ. of Hannover (2000). Available at: <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e002/32217211X.pdf>.
- [25] 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.
- [26] R. Michel, S. Szidat, J. Handl, D. Jakob, H.-A. Synal, M. Suter, Status and Trends of Iodine-129 Abundances in the European Environment. Proceedings IRPA10, Hiroshima, May 14 – 19, 2000, CD (2000) P-4a-229.
- [27] R. Michel, Th. Ernst, S. Szidat, Ch. Schnabel, H.-A. Synal, Iodine-129 as a Long-Lived Tracer in the Environment, Proc. Int. Conf. on the Study of Environmental Change using Isotope Techniques, Wien 23.-27.4.2001, IAEA, im Druck.
- [28] R.R. Edwards, Iodine-129: Its occurrence in nature and its utility as a tracer. *Science*, 137 (1962) 851 - 853.
- [29] T.P. Kohman and R.R. Edwards,  $^{129}\text{I}$  as a geochemical and ecological tracer, Rep. NYO-3624-1, Dept. of Chemistry, Carnegie Inst. of Technology, 1966.
- [30] R.R. Edwards and P. Rey, Terrestrial occurrence and distribution of  $^{129}\text{I}$ , U.S. Atomic Energy Commission, NYO-3624-3 (1968).
- [31] J. Fabryka-Martin, Natural Iodine-129 as a ground-water tracer. M. DS. thesis, Arizona (1984).
- [32] U. Fehn, G.R. Holdren, D. Elmore, T. Brunelle, R. Teng, and P.W. Kubik, Determination of natural and anthropogenic  $^{129}\text{I}$  in marine sediments, *Geophys. Res. Lett.*, 13 (1986) 137 - 139.
- [33] D.R. Schink, P.H. Santschi, O. Corapcioglu, U. Fehn, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 99 (1995) 524.
- [34] Ch. Schnabel, J.M. López-Gutiérrez, S. Szidat, M. Sprenger, H. Wernli, J. Beer, H.A. Synal, On the origin of  $^{129}\text{I}$  in rain water near Zurich, *Radiochimica Acta* 89 (2001) 1 - 8.
- [35] Ch. Schnabel, J.M. Lopez-Gutierrez, S. Szidat, J. Beer und H.-A. Synal, Iod-129 in der Hydrosphäre und speziell im Niederschlag in Mitteleuropa, *Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz: Jahresbericht 2000*, Bundesamt für Gesundheit, Kapitel 7.3 (2001) .
- [36] M.J.M. Wagner, B. Dittrich-Hannen, H.-A. Synal, M. Suter, U. Schotterer, Increase of iodine-129 in the environment. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*113 (1996) 490 - 494.
- [37] L.R. Kilius, J.C. Rucklidge, and C. Soto, The dispersal of  $^{129}\text{I}$  from the Columbia River estuary. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, B92 (1994) 393 - 397.

- [38] C.-L. Tseng and J.-H. Chao, Low-level determination of  $^{129}\text{I}$  in environmental samples by neutron activation. *Appl. Rad. Isot.*, 47 (1996) 723 - 726.
- [39] M. Paul, D. Fink, G. Hollos, S.A. Kaufman, W. Kutschera, M. Magaritz, Measurement of  $^{129}\text{I}$  concentrations in the environment after the Chernobyl reactor accident. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B29* (1987) 341 - 345.
- [40] H. Bachhuber, K. Bunzl, Background levels of atmospheric deposition to ground and temporal variation of  $^{129}\text{I}$ ,  $^{127}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^7\text{Be}$  in a rural area of Germany. *J. Environ. Radioactivity* 16 (1992) 77 - 89.
- [41] G. Krupp, D.C. Aumann, Iodine-129 in rainfall over Germany. *J. Environ. Radioactivity* 46 (1999) 287 - 299.
- [42] Levin, I. and V. Hesshaimer, Radiocarbon – a unique tracer of global carbon cycle dynamics, *Radiocarbon* 42 (2000) 69 - 80.
- [43] J.W. Beck, D.A. Richards, R.L. Edwards, B.W. Silverman, P.L. Smart, D.J. Donahue, S. Herera-Osterheld, G.S. Burr, L. Calsoyas, A.J.T. Jull, D. Biddulph, Extremely large variations of atmospheric  $^{14}\text{C}$  concentration during the last glacial period, *Science* 292 (2001) 2453 - 2458.
- [44] H.-A. Synal, J. Beer, G. Bonani, M. Suter, W. Wölfli, Atmospheric transport of bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$ , *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B52* (1990) 483
- [45] J. Handl, Th. Ernst, W. Botsch, S. Szidat, A. Schmidt, D. Jakob, D. Beltz, R. Michel, L.D. Romantschuk, J. Santos, H.-A. Synal, C. Schnabel, M. Suter, Fallout and migration of  $^{129}\text{I}$  in contaminated areas in Ukraine. In preparation (2001).
- [46] Th. Ernst, Dissertation, Universität Hannover, in Vorbereitung.
- [47] J. Fabryka-Martin, H. Bentley, D. Elmore, P.L. Airley, Natural iodine-129 as an environmental tracer, *Geochim. Cosmochim. Acta* 49 (1985) 337 - 347.
- [48] A. Zuber, Mathematical models for the interpretation of environmental radioisotopes in groundwater systems, in: P. Fritz, J.C. Fontes, *Handbook of environmental isotope geochemistry*, Vol. 2B, Elsevier, Amsterdam (1986) pp. 1 - 59.
- [49] S. Szidat, T. Ernst, R. Michel, C. Schnabel, H.-A. Synal, J.M. López-Gutiérrez, Prospects of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer, *PSI Scientific Report 2000*, Vol. 1 (2001) 187.
- [50] J. Handl, Concentrations of  $^{129}\text{I}$  in the biosphere, *Radiochim. Acta* 72 (1996) 33 - 38.
- [51] L. vanMiddlesworth, and J. Handl,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in animal thyroids after the Chernobyl nuclear accident, *Health Physics* 73 (1997) 647 - 650.
- [52] ICRP, Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Report No. 23, Pergamon Press, Oxford, 1981, 1st print 1971.
- [53] European Commission (1996) 96/29/EURATOM Council Directive of 13 May 1996 laying down basic safety standards for the health protection of the general public and workers against the dangers of ionizing radiation, OJ L-159 von 29/06/96 Seite 1.