

# Ressortforschungsberichte zur kerntechnischen Sicherheit und zum Strahlenschutz

## Kartierung von Tc-99, I-129 und I-127 im Oberflächenwasser der Nordsee – Vorhaben 3605S04481

Auftragnehmer:

Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH), Hamburg <sup>1)</sup>

in Kooperation mit:

- Zentrum für Strahlenschutz and Radioökologie, Leibniz Universität Hannover <sup>2)</sup>
- Risø-National Laboratory, Roskilde, Dänemark <sup>3)</sup>
- Norwegian Radiation Protection Authority, Norwegen <sup>4)</sup>
- Ion Beam Physics, Paul Scherrer Institut und ETH Zürich, Schweiz <sup>5)</sup>

H. Nies, I. Goroncy, J. Herrmann <sup>1)</sup>

R. Michel, A. Daraoui, M. Gorny, D. Jakob, R. Sachse, L. Tosch <sup>2)</sup>

S.P. Nielsen <sup>3)</sup>

M. Dawdall, A.L. Rudjord, T. Gäfvert <sup>4)</sup>

H.-A. Synal, M. Stocker, V. Alfimov <sup>5)</sup>

Das Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) und im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) durchgeführt.

Dieser Band enthält einen Ergebnisbericht eines vom Bundesamt für Strahlenschutz im Rahmen der Ressortforschung des BMU (UFOPLAN) in Auftrag gegebenen Untersuchungsvorhabens. Verantwortlich für den Inhalt sind allein die Autoren. Das BfS übernimmt keine Gewähr für die Richtigkeit, die Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung ganz oder teilweise vervielfältigt werden.

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

**BfS-RESFOR-31/10**

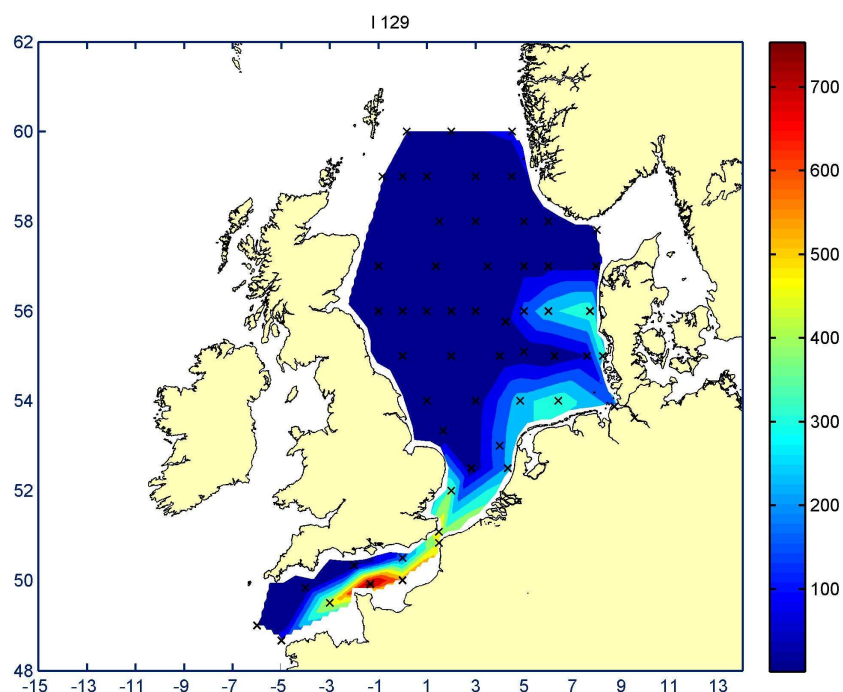
Bitte beziehen Sie sich beim Zitieren dieses Dokumentes immer auf folgende URN:  
**urn:nbn:de:0221-201008263031**

Salzgitter, August 2010

# Kartierung von Tc-99, I-129 und I-127 im Oberflächenwasser der Nordsee

**Vorhaben StSch 4481**

gefördert durch das  
**Bundesamt für Strahlenschutz**



**H. Nies, I. Goroncy, J. Herrmann**

Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH), Hamburg

**R. Michel, A. Daraoui, M. Gorny, D. Jakob, R. Sachse, L. Tosch**

Zentrum für Strahlenschutz and Radioökologie, Leibniz Universität Hannover

**Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie  
Hamburg und Rostock**

**Juli 2009**





**Vorhaben StSch 4481:**  
**Kartierung von Tc-99, I-129 und I-127  
im Oberflächenwasser der Nordsee**

Projektleiter: Dr. Hartmut Nies

H. Nies, I. Goroncy, J. Herrmann  
Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH), Hamburg, Germany

R. Michel, A. Daraoui, M. Gorny, D. Jakob, R. Sachse, L. Tosch  
Zentrum für Strahlenschutz and Radioökologie, Leibniz Universität Hannover, Ger-  
many

S.P. Nielsen  
Risø-National Laboratory, Roskilde, Danmark

M. Dawdall, A.L. Rudjord, T. Gäfvert  
Norwegian Radiation Protection Authority, Norway

H.-A. Synal, M. Stocker, V. Alfimov  
Ion Beam Physics, Paul Scherrer Institute and ETH Zurich, 8093 Zurich, Switzerland

Gefördert durch das Bundesamt für Strahlenschutz im Auftrag des  
Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit



# Inhaltsverzeichnis

<b>ZUSAMMENFASSUNG .....</b>	<b>8</b>
<b>ABSTRACT .....</b>	<b>9</b>
<b>1 EINLEITUNG .....</b>	<b>10</b>
<b>1.1 Natürliche Vorkommen von Radionukliden in der Umwelt.....</b>	<b>12</b>
1.1.1 Kosmogene Radionuklide .....	12
1.1.2 Radionuklide aus der Spontanspaltung .....	12
<b>1.2 Anthropogene Radionuklide in der Umwelt.....</b>	<b>13</b>
1.2.1 Iod-129 .....	14
1.2.2 Tc-99 .....	16
<b>Physikalische und chemische Eigenschaften des Technetiums .....</b>	<b>16</b>
<b><sup>99</sup>Tc in der Nordsee und angrenzenden Meeresgebieten.....</b>	<b>18</b>
1.2.3 Irische See.....	18
1.2.4 Nordsee .....	24
1.2.5 Nordmeer und Barentssee.....	35
<b>2 STRÖMUNGEN UND STRÖMUNGSVORHERSAGEN.....</b>	<b>38</b>
<b>2.1 Simulierte Konzentrationen .....</b>	<b>40</b>
2.1.1 Sr-90, Cs-137 .....	43
2.1.2 H-3 Tritium.....	43
2.1.3 Aktinide: Pu-238, Pu-239/240, Am-241 .....	44
<b>2.2 Emissionen aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen .....</b>	<b>44</b>
2.2.1 Iod-129 .....	44
2.2.2 Tc-99 .....	46
2.2.3 Sr-90, Cs-137 .....	47
2.2.4 Tritium .....	48
2.2.5 Aktinide: Pu-238, Pu-239/240, Am-241 .....	50
<b>2.3 Radioökologie.....</b>	<b>50</b>
2.3.1 Iod-129 .....	51
<b>2.4 Meere als Quellen und Senken von Radionukliden.....</b>	<b>55</b>
<b>3 AUFGABENSTELLUNG .....</b>	<b>56</b>
<b>4 STAND DES WISSENS.....</b>	<b>58</b>
<b>4.1 Bisherige Untersuchungen in der Nordsee und dem Nordostatlantik .....</b>	<b>58</b>
4.1.1 Stand der Untersuchungen der Nordsee .....	72
<b>4.2 Literaturdatenbank .....</b>	<b>75</b>
<b>4.3 Chemie des Iods im Meerwasser .....</b>	<b>75</b>
<b>4.4 Design der Untersuchung .....</b>	<b>76</b>
<b>5 EXPERIMENTELLES.....</b>	<b>78</b>

<b>5.1</b>	<b>Probennahme .....</b>	<b>79</b>
<b>5.2</b>	<b>Analytik .....</b>	<b>81</b>
5.2.1	Iod-129 und Iod-127 .....	81
5.2.2	Tc-99 .....	85
5.2.3	Sr-90, Cs-137 .....	85
5.2.4	Transurane: Pu-238, Pu-(239+240), Am-241, Cm-243 .....	85
5.2.5	Tritium .....	86
<b>5.3</b>	<b>Auswertung und Qualitätskontrolle.....</b>	<b>86</b>
5.3.1	Messunsicherheiten und charakteristische Grenzen .....	86
5.3.2	Blindwerte .....	86
5.3.3	Analyse von Referenzmaterialien .....	86
5.3.4	Teilnahme an Ringversuchen.....	92
5.3.5	BSH .....	93
5.3.6	RISOE/Dänemark und NRPA/Norwegen.....	94
<b>6</b>	<b>ERGEBNISSE .....</b>	<b>95</b>
<b>6.1</b>	<b>Iod-129 und Iod-127.....</b>	<b>95</b>
<b>6.2</b>	<b>Technetium-99, Tritium, Strontium-90, Caesium-137.....</b>	<b>101</b>
<b>6.3</b>	<b>Aktinide: Pu-238, Pu-239/240, Am-241 .....</b>	<b>105</b>
<b>6.4</b>	<b>Graphische Darstellung der Verteilung verschiedener Radionuklide mittels Isoplethendarstellungen.....</b>	<b>108</b>
<b>7</b>	<b>DISKUSSION .....</b>	<b>112</b>
<b>7.1</b>	<b>Iod-129 und Iod-127 in der Nordsee.....</b>	<b>112</b>
<b>7.2</b>	<b>Tc-99 in der Nordsee.....</b>	<b>122</b>
<b>7.3</b>	<b>H-3, Sr-90 und Cs-137 in der Nordsee.....</b>	<b>122</b>
<b>7.4</b>	<b>Aktinide: Pu-238, Pu-239/240 und Am-241 in der Nordsee .....</b>	<b>123</b>
<b>7.5</b>	<b>Tiefenprofile .....</b>	<b>124</b>
<b>7.6</b>	<b>Aktivitätsverhältnisse in der Nordsee.....</b>	<b>128</b>
<b>7.7</b>	<b>Transportprozesse .....</b>	<b>134</b>
7.7.1	Modellierung.....	134
<b>7.8</b>	<b>Iod-129 und Iod-127: Transport vom Meer zum Kontinent .....</b>	<b>142</b>
7.8.1	Iod-129 und Iod-127 in Norddeutschland .....	142
7.8.2	Iod-129 und Iod-127 in der Atmosphäre .....	143
7.8.3	Iod-129 und Iod-127 in der terrestrischen Hydrosphäre in Norddeutschland .....	144
7.8.4	Iod-129 und Iod-127 in Böden .....	148
7.8.5	Das <sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I-Ungleichgewicht in der Umwelt.....	150
7.8.6	Iod-129 und Iod-127 in Tieren und Menschen.....	153
<b>8</b>	<b>SCHLUSSFOLGERUNG UND AUSBLICK.....</b>	<b>156</b>
<b>8.1</b>	<b>Beantwortung der Fragen des Auftrages .....</b>	<b>156</b>
<b>9</b>	<b>OFFENE FRAGEN.....</b>	<b>157</b>

<b>10 DANKSAGUNG .....</b>	<b>158</b>
<b>ANHANG I: EMISSIONEN AUS LA HAGUE UND SELLAFIELD.....</b>	<b>159</b>
<b>ANHANG II: ZUSAMMENFASSUNG DER ANALYSENERGEBNISSE.....</b>	<b>167</b>
<b>LITERATURNACHWEIS.....</b>	<b>189</b>

"Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (Bundesamt für Strahlenschutz bzw. Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) übereinstimmen."

## Zusammenfassung

Durch oberirdische Kernwaffentests, Unfälle in kerntechnischen Anlagen und durch Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen wurden die natürlichen Vorkommen des Radionuklids  $^{129}\text{I}$  durch den Menschen nachhaltig verändert. Besonders in Westeuropa dauern diese Veränderungen aufgrund der Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague am Englischen Kanal und Sellafield an der Irischen See an.

In diesem vom Bundesumweltministerium geförderten Forschungsvorhaben wird eine Kartierung der gesamten Nordsee und des Englischen Kanals in Bezug auf  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  sowie das stabile Nuklid  $^{127}\text{I}$  für das Jahr 2005 vorgenommen. Zusätzlich wurden auch die Radionuklide  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239, 240}\text{Pu}$  erfasst. Es zeigt sich, dass im Vergleich zu früheren Arbeiten in den 1970er bis 1990er Jahren die Belastung durch  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in der Nordsee stark abgenommen haben. Dies ist in erster Linie auf eine Reduzierung der Emissionen aus La Hague und Sellafield zurückzuführen.

Dagegen steigt die Kontamination durch  $^{129}\text{I}$  weiter an. Die derzeit angetroffenen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Beprobungsgebiet liegen teilweise über  $10^{-6}$  und damit sechs Größenordnungen über dem prä nuklearen Isotopenverhältnis von  $10^{-12}$  und vier Größenordnungen über dem Isotopenverhältnis, das fernab der Emittenten infolge des globalen Fallouts erwartet wird.

Iod erweist sich im Meerwasser als ein sehr konservativer Tracer. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen variieren in der Regel nur wenig ( $40,7 \pm 6,2$  ng/g), Ausnahmen sind küstennahe Bereiche bzw. in der Umgebung von Flussmündungen in der Umgebung von Flussmündungen. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse erstrecken sich im gesamten Untersuchungsgebiet über vier Zehnerpotenzen von  $10^{-9}$  bis auf mehr als  $10^{-6}$ . Diese Variation wird durch die Beimengungen von anthropogenem  $^{129}\text{I}$  verursacht. Die wesentlichen Quellen sind die Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield.

Im Gegensatz zu  $^{129}\text{I}$  findet sich  $^{90}\text{Sr}$  mit einer gewissen Streuung nur gering über dem Bereich des globalen Fallouts in der Nordsee wieder. Die im Einflussbereich der Ostsee gefundenen erhöhten  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen können immer noch dem Reaktorunfall von Tschernobyl zugeordnet werden.

$^{99}\text{Tc}$  zeigt die größten Aktivitätskonzentrationen in der zentralen Nordsee. Sellafield war ab 1994 über etwa zehn Jahre lang der Hauptemittent von  $^{99}\text{Tc}$ . Innerhalb der zentralen Nordsee verweilen die Wassermassen relativ lange.  $^{99}\text{Tc}$  kann genutzt werden, um die Herkunft des  $^{129}\text{I}$  zu bestimmen. Der Englische Kanal sowie die Küstenregionen vor Belgien, Holland, Deutschland und Dänemark werden von den Ableitungen aus La Hague geprägt, ein großer Teil der östlichen Nordsee bis hin zum Skagerrak stellt eine Mischung der Ableitungen beider Anlagen dar.

Im äußersten Westen des Kanals lassen sich geringe Emissionen aus Sellafield nachweisen. Weitere Proben aus dem Nordostatlantik verdeutlichen, dass sich die Kontamination Richtung Norden nach Spitzbergen ausbreitet. Der Vergleich mit früheren am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR), Leibniz Universität Hannover, angefertigten Arbeiten zeigt, dass sich die Kompartimente bezüglich  $^{129}\text{I}$  in einem massiven Ungleichgewicht befinden.

Derzeit sind die Konzentrationen der in diesem Bericht behandelten Radionuklide  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239, 240}\text{Pu}$  neben  $^{129}\text{I}$  radiologisch kaum relevant, dennoch sollte gerade in Hinblick auf das  $^{129}\text{I}$  eine Überwachung erfolgen, da es bei Endlagern aufgrund seiner langen Halbwertszeit und der großen Mobilität in der Umwelt eines der kritischen Nuklide darstellt.

## Abstract

Due to former atmospheric nuclear weapon tests, accidents in nuclear facilities and emissions from nuclear reprocessing plants the natural occurrence of the radionuclide  $^{129}\text{I}$  was affected on a long term by human activities. Particularly in Western Europe, these changes will continue due to discharges from the nuclear reprocessing plants La Hague (F) into the English Channel and Sellafield (UK) into the Irish Sea.

This project, funded within the frame of the Radiation Protection Scheme by the Federal Office for Radiation Protection (BfS) under the auspices of the Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation and Nuclear Safety (BMU), reports about the mapping of  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  as well as in the entire North Sea and English Channel in summer 2005. In addition the radionuclides  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  were also monitored. It was proved that in comparison to earlier investigations carried out during the seventies up to the nineties, the contamination on  $^{90}\text{Sr}$ , and  $^{137}\text{Cs}$  has decreased significantly. This is mainly due to reductions of nuclear discharges from the reprocessing plants at La Hague and Sellafield.

However, the contamination of  $^{129}\text{I}$  continued to increase. Presently, the isotopic ratios in the sampled area were found to partly exceed  $10^{-6}$ , and are consequently, more than six orders of magnitude above the pre-nuclear isotopic ratio of about  $10^{-12}$  and four orders of magnitude above the isotopic ratio to be expected by the global fallout in distant areas from the emission source.

Iodine proved to be a very conservative tracer. The  $^{127}\text{I}$ -concentration shows only low variability ( $40.7 \pm 6.2$  ng/g) with the exception of coastal areas near to estuaries, where the  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  isotopic ratios range over more than four orders of magnitude from  $10^{-9}$  to  $10^{-6}$ . This variation is caused by supplements of anthropogenic  $^{129}\text{I}$ . The dominant sources are the reprocessing plants La Hague and Sellafield.

In contrast to  $^{129}\text{I}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  activities found in the North Sea surpass only slightly the global fallout level. In the influence of the Baltic Sea outflow, slightly elevated levels of  $^{137}\text{Cs}$  were detected; they can still be assigned to the nuclear accident at Chernobyl and the still higher levels in the Baltic Sea.

$^{99}\text{Tc}$  is found with highest levels in the southern central North Sea, because it was discharged at higher levels from 1994 for about 10 years into the Irish Sea from Sellafield. Residence time of water masses in this area is relatively high.  $^{99}\text{Tc}$  can be used for identification of the origin of  $^{129}\text{I}$ . The English Channel as well as coastal regions of Belgium, The Netherlands, Germany and Denmark are primarily influenced by the discharges from La Hague, whilst the central North Sea is mainly influenced by the Sellafield source. A mixture area is found from the eastern central North Sea up to the Skagerrak. In the most western part of the English Channel small emissions from Sellafield were detected.

Samples from the Northeast Atlantic up to Spitsbergen (Svalbard) show that the contamination is transported northwards until Spitsbergen. The comparison with investigations carried out earlier at the Leibniz University of Hanover reveals that all the compartments are in a massive disequilibrium.

The concentration levels of the radionuclides  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  as well as  $^{129}\text{I}$ , investigated in this work are presently of no radiological concern, however, monitoring  $^{129}\text{I}$  should continue, because  $^{129}\text{I}$  is critical at repository sites due to its extremely long half life and its high mobility in the environment.

# 1 Einleitung

Radionuklide in der Umwelt können natürlichen Ursprungs, aber auch aus dem Kernbrennstoffzyklus stammen und damit überwiegend anthropogen erzeugt sein. Untersuchungen auf diesem Gebiet begannen bereits in Begleitung der damaligen atmosphärischen Kernwaffenversuche, bei denen große Mengen radioaktiver Falloutprodukte über viele Jahre auf dem Land und auf den Weltmeeren deponiert wurden. So war der globale Fallout die wichtigste Quelle künstlicher Radionuklide auch im Meer bis in die 1970er Jahre. Später wurden andere Quellen an den hier untersuchten Radionukliden in den europäischen Randmeeren wichtiger.

Im geförderten Forschungsvorhaben wurden in der Nordsee einige Radionuklide untersucht, die radioökologisch aus den unterschiedlichsten Gründen interessant sind. Seit Jahrzehnten untersucht das BSH bzw. seine Vorgängerinstitution das Deutsche Hydrographische Institut (DHI) systematisch die Veränderung der Konzentrationen einiger Radionuklide in Nord- und Ostsee, aber auch in größeren zeitlichen Abständen angrenzende Meeresgebiete wie Nordatlantik, Irische See und Arktische Meere. Es existieren lange Zeitreihen der Probenahme an ausgewählten Positionen in Nord- und Ostsee an den Radionukliden Tritium, Sr-90, Cs-134 und Cs-137, Plutonium-Isotopen und Am-241. Seit Anfang der 90er Jahre wurden auch immer wieder Messungen des langlebigen Radionuklids Tc-99 in Nord- und Ostsee durchgeführt, dies zum Teil bei internationalen Messkampagnen oder durch extern geförderte Projekte.

Die Nordsee als Rand- und Schelfmeer des Nordatlantiks ist für diese Untersuchungen auch deshalb interessant, weil etliche Küstenanrainer nukleare Anlagen betreiben und ihre radioaktiven Abwässer in Flüsse oder direkt in das Meer einleiten. Herausragend als Hauptemittenten sind hierbei die nuklearen Wiederaufbereitungsanlagen COGEMA auf Cap de la Hague in Frankreich und die Anlage Sellafield an der Irischen See in Großbritannien zu nennen. Zwar leiten diese beiden genannten Anlagen ihre radioaktiven Abwässer nicht direkt in die Nordsee ein, langlebige und im Wasser lösliche Radionuklide erreichen jedoch mit den Meeresströmungen die Nordsee und angrenzende Meeresgebiete. Lang ist die Liste der Literatur, die sich mit den Radionukliden als Wassermassentracer bis in arktische Gebiete befasst, um auch ozeanographische Transportprozesse zu untersuchen. Einer der Pioniere auf diesem Gebiet war H. Kautsky im damaligen DHI<sup>1</sup>, der in einer Arbeit 1976 versuchte, Meeresströmungen in der Nordsee in ihrer Stärke und Richtung mithilfe der Messungen von Cs-137 abzuschätzen (Kautsky, 1973; Kautsky, 1976). In späteren Jahren konnten verschiedene Autoren nachweisen, dass die in die Irische See und den Kanal eingeleiteten Radionuklide nach etlichen Jahren im Arktischen Ozean bei Spitzbergen und Grönland nachgewiesen werden konnten. Der Transport kontaminierter Wassermassen aus der Irischen See bis nach Spitzbergen dauert etwa 6 bis 7 Jahre, bis in die Dänemark Straße zwischen den Küsten Südgrönlands und Islands liegt in der Größenordnung von 9 Jahren (Dahlgard, 1994b; Dahlgard, 1995).

Radiologisch im Meer sind im wesentlichen die langlebigen Radionuklide von Interesse, die eine längere Halbwertszeit als ein Jahr aufweisen und durch die Wiederaufbereitungsanlagen in die radioaktiven Abwässer gelangen. Im Verhältnis zu den Abwässern aus diesen Anlagen sind die Abwässer anderer nuklearer Anlagen wie Kernkraftwerke oder Forschungsanlagen bis auf die Tritiumaktivitäten fast vernachlässigbar. Dies gilt natürlich nur, soweit es sich um den bestimmungsgemäßen Betrieb handelt. Die Ableitungen nuklearer Anlage in das OSPAR<sup>2</sup> Meeresgebiet werden regelmäßig an das OSPAR Sekretariat übermittelt und veröffentlicht ([www.OSPAR.org](http://www.OSPAR.org)). Im Fallout nach dem Tschernobyl Unfall 1986 waren allerdings auch eine weite Palette kurzlebiger Radionuklide nachweisbar, da der Ein-

---

<sup>1</sup> DHI: Deutsches Hydrographisches Institut, seit 1990 „Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie“

<sup>2</sup> Die OSPAR Konvention ist eine Vertrag zur internationalen Kooperation zum Schutz der Meeresumwelt des Nord-Ost Atlantik.



trag in das Meer wenige Tage nach dem Unfall geschah und zahlreiche Spalt- und Aktivierungsprodukte noch vorhanden waren (Nies & Wedekind, 1987a und b). Langfristig sind jedoch der größte Teil dieser kurzlebigen Radionuklide im Meer von untergeordneter Bedeutung, da eine Anreicherung in der Nahrungskette sich nicht aufbauen konnte.

Schwerpunkt dieser Untersuchung ist das extrem langlebige Radionuklid  $^{129}\text{I}$ , auf dessen Radioökologie später noch im Detail eingegangen wird. Dieser Bericht umfasst neben den bereits genannten auch die radiökologisch wichtigen Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , Tritium und einige Transurane wie  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$ . Alle diese Nuklide werden routinemäßig in Nord- und Ostsee durch das BSH im Rahmen der jährlichen Monitoringfahrten aufgrund der Zuständigkeit des BSH durch das Strahlenschutzvorsorgegesetz überwacht und die Ergebnisse im Rahmen von IMIS berichtet. Lange Zeitreihen über die Entwicklung der Aktivitätskonzentration in den Meeresgebieten sind vorhanden. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen vervollständigen das Bild der Verteilung der schwerpunktmäßig untersuchten Isotope des  $^{129}\text{I}$  und  $^{99}\text{Tc}$ .

Tritium spielt in diesem Zusammenhang eine Sonderrolle, weil es sowohl natürlich infolge der Höhenstrahlung gebildet wird als auch über den Kernbrennstoffkreislauf in die Umwelt gelangt. Ende der 50er bis Anfang der 60er Jahre hat der globale Fallout durch die starken atmosphärischen Kernwaffentests die natürliche Produktion weit übertroffen (RIME, 1971). Der globale Fallout der verschiedenen Spaltprodukte war nicht gleichmäßig über die Breiten verteilt. Der höchste Anteil an Fallout lag etwa zwischen 40 und 50° nördlicher Breite (UNSCEAR, 2000).

## Iod-Isotope

Das Halogen Iod (Ordnungszahl  $Z = 53$ ) ist das seltenste Element der siebten Hauptgruppe und besitzt mit  $^{127}\text{I}$  nur ein stabiles Isotop. Insgesamt sind 37 Iodisotope von  $^{108}\text{I}$  bis  $^{144}\text{I}$  bekannt. Die Isotope  $^{123}\text{I}$  und  $^{125}\text{I}$  wie auch die anderen protonenreichen Iodisotope werden durch Kernreaktionen in Teilchenbeschleunigern künstlich hergestellt. Sie finden vielfältige Einsatzmöglichkeiten für Markierungszwecke bei der Aufklärung chemischer Reaktionsmechanismen sowie in der medizinischen Diagnostik und Therapie. Die neutronenreichen Iodisotope  $^{128}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}$  und  $^{131}\text{I}$  sind in der Spuren- und Traceranalytik von Bedeutung und werden auch für medizinische Anwendungen eingesetzt.  $^{129}\text{I}$  wird bei der retrospektiven Dosimetrie genutzt. Die schwereren, kurzlebigen Iodisotope  $^{132}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 2,3 \text{ h}$ ),  $^{133}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 20,8 \text{ h}$ ) und  $^{135}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 6,61 \text{ h}$ ) (Magill et al., 2007) sind lediglich im Hinblick auf die Strahlenexposition nach einem nuklearen Unfall von Relevanz (Santschi und Schwehr, 2004).

Prinzipiell können zur Bestimmung des Iod-129 massenspektrometrische Methoden oder die Zerfallseigenschaften genutzt werden. Da Iod-129 eine relativ geringe spezifische Radioaktivität besitzt (1 Bq pro 153 ng  $^{129}\text{I}$ ) und Iod-129 in Umweltproben in geringer Konzentration auftritt, sind sehr empfindliche Analysemethoden notwendig. Bis zur Entwicklung der Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) in den 1980er Jahren stand als empfindlichste Methode die radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA) zur Verfügung. Diese erlaubt die gleichzeitige Bestimmung von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$ , allerdings liegen die kleinsten bestimmbaren Isotopenverhältnisse in der Größenordnung von  $10^{-10}$ . Eine Bestimmung prä-nuklearer Isotopenverhältnisse ist daher mit der RNAA nicht möglich, dies konnte erst mit der angesprochenen Beschleunigermassenspektrometrie geschehen, die seit den 1980er Jahren zur Verfügung steht. Mit ihr können  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Bereich von  $10^{-14}$  gemessen werden und sie stellt eine sehr zuverlässige Methode zur Iodbestimmung in Umweltproben dar. Im Abschnitt 5.2 wird ausführlicher auf die Beschleunigermassenspektrometrie eingegangen.

## 1.1 Natürliches Vorkommen von Radionukliden in der Umwelt

Die natürliche Entstehung von Radionukliden lässt sich in drei Bildungsmechanismen unterteilen. Primordiale Nuklide existieren schon seit Entstehung der Erde, fissionogene Nuklide werden bei der Spontanspaltung natürlicher, radioaktiver Kerne gebildet und kosmogene Nuklide entstehen bei Wechselwirkungen von Materie mit kosmischer Strahlung. Aufgrund ihrer Halbwertszeiten liegen alle in diesem Bericht behandelten Radionuklide nicht mehr aus primordialen Quellen vor. Unter der Hintergrundkonzentration eines Radionuklids versteht man die Konzentration, die ohne das menschliche Eingreifen in ein System gemessen werden würde. Da viele Radionuklide natürliche Entstehungsmechanismen haben und zusätzlich bereits Veränderungen durch den Menschen vorgenommen wurden, sind diese Abschätzungen oftmals fehlerbehaftet.

### 1.1.1 Kosmogene Radionuklide

In der Natur entsteht das langlebige  $^{129}\text{I}$  bei der Wechselwirkung von energiereichen Teilchen der kosmischen Strahlung mit Xenon in den oberen Schichten der Erdatmosphäre. Bei diesen Spallationsreaktionen liegt die Produktionsrate nach Berechnungen von Kohman und Edwards (1966) für kosmogeneres Iod-129 bei 5 mg/a bzw. 35 kBq/a (Kohman und Edwards, 1966). Die mittlere Gleichgewichtsmenge an kosmogeneren  $^{129}\text{I}$  berechnet sich nach Multiplikation der Bildungsrate mit der mittleren Lebensdauer  $\tau$  ( $\tau = T_{1/2}/\ln 2$ ) zu etwa 120 kg (Schmidt, 1998).

Die sogenannten Hintergrundaktivitätskonzentrationen natürlicher Radionuklide aus kosmogenen und primordialen Quellen stellen eine wichtige Größe dar, um zu beurteilen, inwiefern ein System durch anthropogene Quellen beeinflusst wurde.

**Tabelle 1: Hintergrundaktivitäten einiger natürlicher Radionuklide aus kosmogenen Quellen im Oberflächenwasser (Anonymous, 1992).**

Natürliches Nuklid	Halbwertszeit in Jahren	Aktivität im Oberflächenwasser in Bq/m <sup>3</sup>
$^3\text{H}$	12,3	20 - 100
$^7\text{Be}$	0,146	1,1 - 3,4
$^{14}\text{C}$	5730	5,5 - 6,7
$^{32}\text{Si}$	172	$0,2 - 3,3 \cdot 10^{-3}$

### 1.1.2 Radionuklide aus der Spontanspaltung

Bei der Spontanspaltung von Actinoiden entstehen ebenfalls radioaktive Iodisotope, wobei nur das langlebige  $^{129}\text{I}$  von Bedeutung ist. Dessen wesentlicher Entstehungsmechanismus ist die Spontanspaltung von  $^{238}\text{U}$ . Etwa 55 % (142 kg/a) des natürlichen  $^{129}\text{I}$  entstehen bei der Spontanspaltung der Actinoide und etwa 45 % (120 kg/a) bei Spallationsreaktionen von Xenon mit kosmischer Strahlung, so dass diese beiden Entstehungsmechanismen als die beiden einzigen signifikanten Quellen aufgefasst werden können. Die natürliche Gleichgewichtsmenge von  $^{129}\text{I}$  in Atmosphäre, Hydrosphäre, Pedosphäre und Biosphäre ergibt sich demnach zu 262 kg und wird als freies  $^{129}\text{I}$ -Inventar bezeichnet (u. a. Ernst, 2003; Szidat, 2000; Buraglio, 2000; Schmidt, 1998; Whitehead, 1984; Kocher, 1981; Fabryka-Martin, 1984).

In Tabelle 2 werden die Hintergrundaktivitäten von primordialen Nukliden mit einigen ihrer wichtigsten Tochternuklide vorgestellt.

**Tabelle 2: Hintergrundaktivitäten einiger natürlicher, primordialer Radionuklide mit ihren wichtigsten Tochternukliden im oberflächlichen Meerwasser (Anonymous, 1992).**

Primordiales Nuklid	Halbwertszeit in Jahren	Aktivität im Oberflächenwasser in Bq/m <sup>3</sup>
<sup>40</sup> K	$1,28 \cdot 10^9$	11800 - 12300
<sup>87</sup> Rb	$4,80 \cdot 10^{10}$	106
<sup>232</sup> Th	$1,41 \cdot 10^{10}$	$0,4 - 29 \cdot 10^{-3}$
<sup>228</sup> Ra	5,76	0,8 - 8
<sup>228</sup> Th	1,91	0,004 - 0,3
<sup>235</sup> U	$7,04 \cdot 10^8$	1,9
<sup>238</sup> U	$4,47 \cdot 10^9$	40 - 44
<sup>234</sup> Th	0,066	0,6 - 6,8
<sup>234</sup> U	$2,45 \cdot 10^5$	47
<sup>230</sup> Th	$8,0 \cdot 10^4$	$2 - 52 \cdot 10^{-3}$
<sup>226</sup> Ra	1617	0,8 - 8
<sup>210</sup> Pb	22,3	1 - 4,5 <sup>a)</sup>
<sup>210</sup> Pb	22,3	0,4 - 2,0 <sup>b)</sup>
<sup>210</sup> Po	0,378	0,55 - 1,93

a) ozeanisch

b) in der Nordsee

## 1.2 Anthropogene Radionuklide in der Umwelt

Seit Beginn oberirdischer Kernwaffentests wurden größere Mengen künstlicher Radionuklide freigesetzt und infolge des globalen Fallouts verteilt. Um spätere Veränderungen beurteilen zu können, werden erst der sogenannte „post bomb background“ einiger Nuklide angegeben, bevor in den darauf folgenden Abschnitten auf neuere Veränderungen eingegangen wird. Tabelle 3 zeigt die Hintergrundaktivitäten einiger Radionuklide, die durch den Fallout nach atmosphärischen Kernwaffentests in das Oberflächenwasser des Atlantischen Ozeans eingetragen wurden. Die induzierte Kernspaltung stellt den wichtigsten Entstehungsmechanismus anthropogener Radionuklide dar, Kernreaktionen z. B. in Teilchenbeschleunigern sind von geringer Bedeutung.

**Tabelle 3: Hintergrundaktivitäten einiger künstlicher Radionuklide im Oberflächenwasser des Atlantischen Ozeans nach dem Fallout infolge oberirdischer Kernwaffentests. In den Daten wurde der radioaktive Zerfall bis zum Jahr 1990 berücksichtigt (Anonymus, 1992).**

Nuklid	Halbwertszeit in Jahren	Aktivität im Oberflächenwasser in Bq/m <sup>3</sup>
<sup>137</sup> Cs	30,1	2,5 - 5 <sup>a)</sup> , 0,1 - 2,0 <sup>b)</sup>
<sup>90</sup> Sr	28,8	1,6 - 3,2 <sup>a)</sup>
<sup>239,240</sup> Pu	24390	4,0 - 8,0 · 10 <sup>-3 a)</sup> , ca. 1,5 · 10 <sup>-3 b)</sup>
<sup>241</sup> Am	433	2,1 - 4,4 · 10 <sup>-3 c)</sup>

a) Nordhalbkugel

b) Südhalbkugel

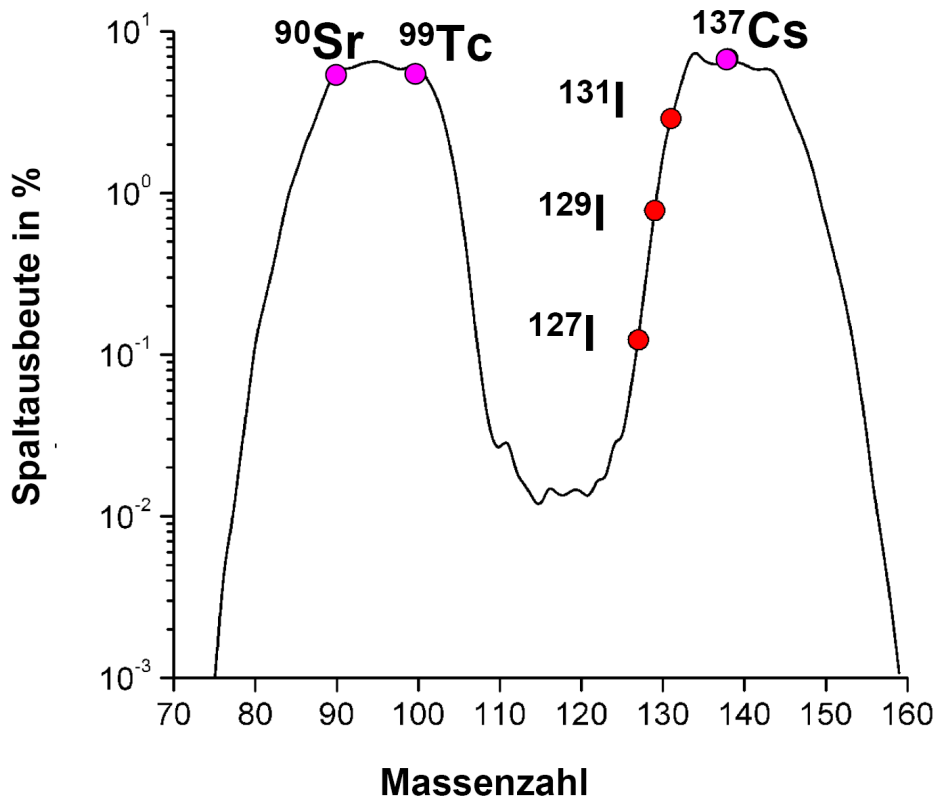
c) Nordostatlantik

Unter Einbeziehung des radioaktiven Zerfalls kann man abschätzen, dass sich die Aktivitätskonzentrationen des <sup>137</sup>Cs und des <sup>90</sup>Sr von 1990 bis zum Jahr der Probennahme in 2005 um etwa 30 % abgenommen hat. Dies berücksichtigt aber nicht den Übergang der Nuklide in Sedimente, wodurch eine weitere Abnahme der Aktivitätskonzentration im Meerwasser verursacht werden kann. Auffällig ist die große Spanne der <sup>137</sup>Cs-Kontaminationen nach dem globalen Fallout. An der südlichen Konvergenzzone liegt die <sup>137</sup>Cs-Aktivitätskonzentration zwischen 0,1 Bq/m<sup>3</sup> und 2,0 Bq/m<sup>3</sup>, während sie auf der Nordhalbkugel bis zu 5 Bq/m<sup>3</sup> erreicht. Tabelle 3 zeigt nur diese Auswahl an Radionukliden, da diese über hinreichend große Halbwertszeiten verfügen

Durch den globalen Fallout wird ein <sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr-Aktivitätsverhältnis von 1,2 bis 1,7 erwartet. Dieses Verhältnis kann in Abhängigkeit der Beeinflussung durch Tschernobyl variieren. Berechnungen lassen ein Verhältnis von 1,45 vermuten (Anonymus, 1992 und darin angegebene Literaturstellen). Das <sup>238</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu-Aktivitätsverhältnis liegt bei Proben, die hauptsächlich durch den globalen Fallout beeinflusst wurden bei 0,03.

### 1.2.1 Iod-129

Anthropogenes Iod-129 entsteht bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von <sup>235</sup>U und <sup>239</sup>Pu mit einer Spaltausbeute von 0,74 % bzw. 1,6 % (England und Rider, 1994). Abbildung 1 ist zu entnehmen, dass die Wahrscheinlichkeit für die Bildung von <sup>129</sup>I bei der neutroneninduzierten Spaltung von <sup>238</sup>U etwa um den Faktor sechs über der von <sup>127</sup>I liegt.



**Abbildung 1: Isobarenausbeuten der neutroneninduzierten Kernspaltung von  $^{235}\text{U}$ . Die Daten basieren auf England und Rider (1994).**

Seit Beginn der zivilen und militärischen Nutzung der Kernspaltung wird künstlich hergestelltes  $^{129}\text{I}$  in großen Mengen in die Umwelt freigesetzt. Somit erhöht sich kontinuierlich die Menge des  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt. Kernwaffentests setzten zwischen 43 kg und 150 kg  $^{129}\text{I}$  in die Umwelt frei. Eine genauere Abschätzung ist aufgrund fehlender Kenntnisse über die Sprengkräfte nicht möglich (Carter und Moghissi, 1977; UNSCEAR, 1982; Chamberlain, 1991; Eisenbud und Gesell, 1997). Das Reaktorunglück von Tschernobyl leistete mit etwa 2 bis 6 kg  $^{129}\text{I}$  nur einen recht geringen Beitrag (Schmidt, 1998; Aldahan et al., 2007).

Den weitaus größten Anteil an der anthropogenen  $^{129}\text{I}$ -Freisetzung bewirken jedoch die zivilen und militärisch genutzten Wiederaufarbeitungsanlagen. Insbesondere Sellafield in Großbritannien nahe der Irischen See und La Hague in Frankreich am Englischen Kanal beeinflussen die Umwelt in Westeuropa maßgeblich (siehe Abschnitt 1.5), 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 damaligen Sowjetunion.

Hanford und West Valley emittierten etwa 290 kg  $^{129}\text{I}$ , während La Hague und Sellafield bis zum Jahr 2005 4970 kg  $^{129}\text{I}$  als flüssige und gasförmige Ableitungen in die Umwelt freisetzten (Raisbeck et al., 1995; Gray et al., 1995; Parker, 2001; Webmaster Cogema, 2001; BNFL, 1999; Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999; Cogema, 2003; Areva, 2003, 2005; Environment Agency, 2005, 2006).

## 1.2.2 Tc-99

### Physikalische und chemische Eigenschaften des Technetiums

In den letzten zwei Jahrzehnten richtete sich ein großes Interesse der Öffentlichkeit als auch der Radioökologen auf das Radionuklid  $^{99}\text{Tc}$ , da Messmethoden entwickelt wurden, auch dieses langlebige Radionuklid in Meeresproben bestimmen zu können und es auch aus den Anlagen Sellafield und La Hague in größerer Aktivität über den Abwasserpfad emittiert wurde. Da alle Isotope des Technetiums radioaktiv sind, kommt es in der Natur praktisch als Element nicht vor, wenn man vom Vorkommen infolge des Spontanzerfalls aus dem Uran absieht. Erst 1961 gelang es, aus 5,3 kg Pechblende aus Katanga in Afrika ungefähr 1 ng Technetium zu isolieren und spektroskopisch nachzuweisen. Aus der Spontanspaltung von  $^{238}\text{U}$ -Kernen entsteht dabei das Element 43, wobei ein Kilogramm reines Uran etwa  $10^{-9}$  Gramm Technetium enthält (<http://de.wikipedia.org/wiki/Technetium>).

Die Stellung des Technetiums im Periodensystem ist wie folgt:

$^{23}\text{V}$ 50,95	$^{24}\text{Cr}$ 52,00	$^{25}\text{Mn}$ 54,94	$^{26}\text{Fe}$ 55,85	$^{27}\text{Co}$ 58,83
$^{41}\text{Nb}$ 92,91	$^{42}\text{Mo}$ 95,94	$^{43}\text{Tc}$ (98)	$^{44}\text{Ru}$ 101,07	$^{45}\text{Rh}$ 102,91
$^{73}\text{Ta}$ 180,95	$^{74}\text{W}$ 183,85	$^{75}\text{Re}$ 186,21	$^{76}\text{Os}$ 190,23	$^{77}\text{Ir}$ 192,22

Es steht in der siebten Nebengruppe des Periodensystems zwischen Mangan und Rhenium. Seine Toxizität dürfte sehr gering sein aufgrund der Analogie zu Mangan und Rhenium.

Technetium liegt im oxischen Meerwasser als Pertechnetat ( $\text{Tc} +7$ ) vor und weist daher eine geringe Affinität auf, an Schwebstoffe gebunden oder im Sediment abgelagert zu werden. Es verhält sich im Meer weitgehend konservativ und wird deshalb mit den Meeresströmungen über große Entfernungen verfrachtet (Karcher et. al., 2004).

Da hier das Isotop Tc-99 herausgestellt wird, wird es hier in Nachbarschaft zu anderen Radionukliden gezeigt:

$\text{Ru } 94$ 51,8 m	$\text{Ru } 95$ 1,65 h	$\text{Ru } 96$ 5,52	$\text{Ru } 97$ 2,9 d	$\text{Ru } 98$ 1,88	$\text{Ru } 99$ 12,70	$\text{Ru } 100$ 12,60	$\text{Ru } 101$ 17,00	$\text{Ru } 102$ 31,6	$\text{Ru } 103$ 39,35 d	$\text{Ru } 104$ 18,7
$\text{Tc } 93$ 43,5 m	$\text{Tc } 94$ 2,7 h	$\text{Tc } 95$ 53 m	$\text{Tc } 96$ 4,9 h	$\text{Tc } 97$ 60 d	$\text{Tc } 98$ 20 h	$\text{Tc } 99$ 52 m	$\text{Tc } 100$ 4,3 d	$\text{Tc } 101$ 92,2 d	$\text{Tc } 102$ 4,0 E 6 a	$\text{Tc } 103$ 4,2 E 6 a
$\text{Mo } 92$ 14,84	$\text{Mo } 93$ 6,9 h	$\text{Mo } 94$ 3500 a	$\text{Mo } 95$ 9,25	$\text{Mo } 96$ 15,92	$\text{Mo } 97$ 16,68	$\text{Mo } 98$ 9,55	$\text{Mo } 99$ 24,13	$\text{Mo } 100$ 66,0 h	$\text{Mo } 101$ 9,63	$\text{Mo } 102$ 14,6 m
							$\beta^-$ 1,2	$\beta^-$ 1,15	$\beta^-$	$\beta^-$
							$\gamma$ 740; 182; 778	10E19 a		

**Abbildung 2: Stellung des Tc-99 in der Nuklidkarte in der Umgebung zu seinen Nachbarnukliden.**

Neben dem Technetium-99 steht das Technetium-98 noch als sehr langlebiges Radionuklid mit 4,2 Mio Jahren Halbwertszeit. Dieses fällt allerdings kaum bei der Kernspaltung mit thermischen Neutronen an, da es über die Isobare 98 durch das stabile Mo-98 geschützt ist. Tc-99 entsteht aus dem kurzlebigen Tc-99m (6 h), das wiederum das Mo-99 (66 h) entsteht.

Tc-99m wird hauptsächlich in der Nuklearmedizin zur Tumordiagnostik eingesetzt. Die Applikationen betragen etwa 50 MBq bis 100 MBq/Patient. Die Strahlenexposition des Patienten liegt etwa in der Größenordnung von 0,1 mSv. Letztendlich gelangen aus dem nuklearmedi-

zinischen Bereich aufgrund der geringen Halbwertszeit des Tc-99m vernachlässigbare Aktivitäten über das Abwasser und die Flüsse in das Meer.

In der folgenden Tabelle sind einige Eigenschaften des Technetiums demjenigen des Cs-137 gegenübergestellt:

**Tabelle 4: Vergleich einiger radioökologischer Eigenschaften des Tc-99 mit denen des Cs-137.**

	<b>Tc-99</b>	<b>Cs-137</b>
Halbwertszeit (Jahre)	213.000	30,1
Spez. Aktivität	$636 \times 10^6$ Bq/g	$3,2 \times 10^{12}$ Bq/g
Dosisfaktor (Eff. Äquivalentfaktor)	$3,9 \times 10^{-10}$ Sv/Bq (StrlSchV) $6,4 \times 10^{-10}$ Sv/Bq (ICRP)	$1,4 \times 10^{-8}$ Sv/Bq
Chemische Form im oxischen Meerwasser	$TcO_4^-$	$Cs^+ (H_2O)_x$
Anreicherungsfaktor an Sedimente ( $K_D$ -Faktor)	100 (10 – 100)	2000 (500 – 20.000)
Anreicherung in Biota ( $C_F$ -Faktor)		
Fisch	30 (20 – 200)	100 (10 – 300)
Crustaceen	1000 (500 – 50.000)	30 (10 – 50)
Hummer	> 20.000	10 - 50
Makrophyten (Braunalgen) ( <i>Fucus vesiculosus</i> und <i>F. serratus</i> )	$1 \times 10^5$	50

Für eine Reihe von Radionukliden wird für das Jahr 2001 in der Irische See ein Vergleich der spezifischen Aktivität in Biota-Proben (Bq/kg Frischgewicht) im Jahresbericht der britischen Umweltüberwachungsbehörde (RIFE 2002) angegeben:

**Tabelle 5: Spezifische Aktivität einiger Radionuklide in Biota aus der Irischen See im Jahre 2001 (RIFE, 2002).**

<b>Radionuklid</b>	<b>Fisch</b>	<b>Crustaceen</b>	<b>Mollusken</b>
Tritium	110	155	60
C-14	98	140	120
Sr-90	0,08	0,79	0,58
Tc-99	49	1600	480
Ru-106	0,48	0,53	11
Cs-137	7,9	2,97	4,8
Pu-238	0,0055	0,078	1,5
Pu-239,240	0,029	0,39	7,5
Am-241	0,099	2,98	16

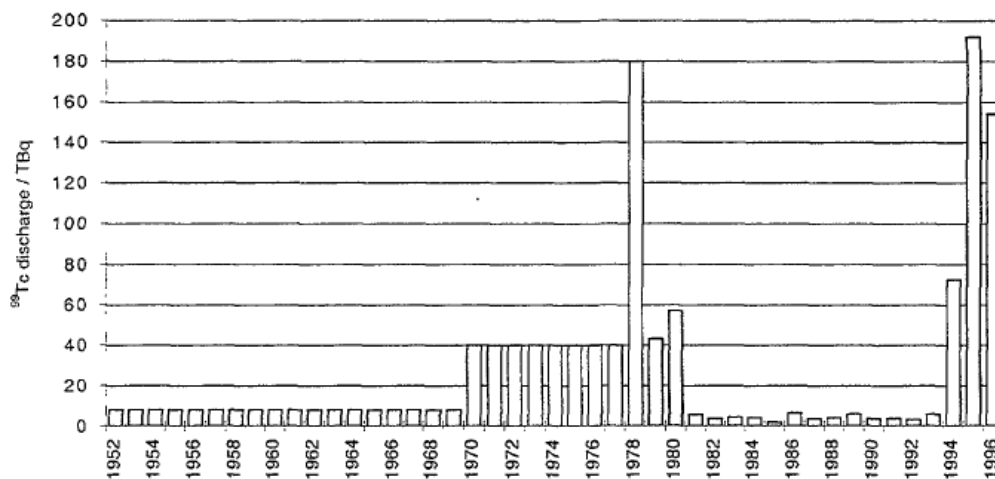
Technetium liegt im oxischen Meerwasser als Pertechetat (Tc +7) vor und weist daher eine geringe Affinität auf, an Schwebstoffe gebunden und im Sediment abgelagert zu werden. Es verhält sich daher im Meer weitgehend konservativ und wird deshalb mit den Meeresströmungen über große Entfernungen verfrachtet (Karcher et. al., 2004).

Im Folgenden wird die Literatur der Untersuchungen von Tc-99 in der Nordsee und angrenzenden Meeresgebieten referiert.

## <sup>99</sup>Tc in der Nordsee und angrenzenden Meeresgebieten

### 1.2.3 Irische See

Es wird angenommen, dass <sup>99</sup>Tc seit Betriebsbeginn der Anlage 1952 aus Sellafield bzw. zuvor Windscale in die Irische See eingeleitet wurde. Von 1952 bis 1969 werden die Einleitungen auf 8 TBq/Jahr geschätzt, von 1970-1977 werden 40 TBq /Jahr geschätzt, basierend auf den Messungen von <sup>99</sup>Tc in Meeresalgen aus der Arktis [Aarkrog et al., 1987; Holm et al., 1986], dabei wird von Aarkrog et al. eine Unsicherheit von etwa 55 % angenommen. Abbildung 3 zeigt das abgeschätzte Profil der Ableitungen von <sup>99</sup>Tc aus der Anlage Sellafield seit 1952.



**Abbildung 3: Abgeschätztes Profil der Ableitungen aus Sellafield an Tc-99 in die Irische See. Diese Zeitreihe wurde mit weiteren Tc-99-Messungen in Braunalgen aus der Irischen See bis zum Jahr 1996 ergänzt, wobei die Ableitungsdaten ab Anfang der 90er Jahre vorliegen [MCDONALD et al., 1999].**

Von McCartney und Rajendran wurde 1986 ein 1 m Sedimentkern in der Irischen See im Solway Firth genommen und untersucht [MCCARTNEY und RAJENDRAN, 1999]. Die höchsten Aktivitäten für <sup>99</sup>Tc ergaben sich dabei in einer Tiefe von 30-35 cm (entsprechend ca. 1979 unter der Annahme, dass die jährliche Ablagerung etwa 4,2 cm/Jahr beträgt) von 19,3 Bq/kg Trockenmasse sowie in einer Tiefe von 70-75 cm (entsprechend ca. 1974) von 15,5 Bq/kg Trockenmasse. Dieser hohe Wert kann allerdings auch darauf zurückzuführen sein, dass sich in diesem Bereich das Sediment verdichtet (Diagenese) [MCCARTNEY und RAJENDRAN, 1999]. Der Vergleich dieser Messwerte aus dem Sediment mit den Emissionen aus Sellafield ist in Abbildung 4 dargestellt.



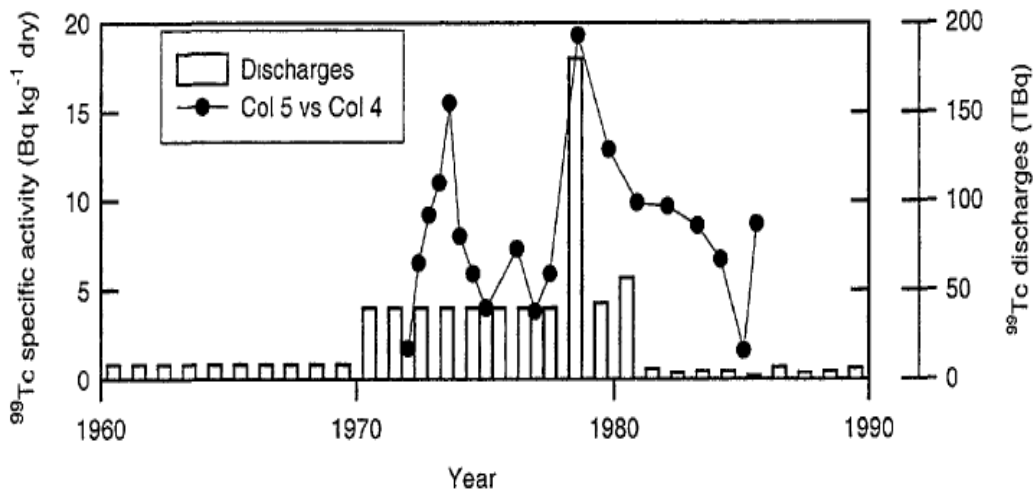


Abbildung 4: Vergleich eines Tc-99 Konzentrationsprofils (Col 5 vs Col 4) aus einem Sedimentkern mit dem Abwassermuster von Sellafield [MCCARTNEY und RAJENDRAN, 1999].

Von Masson *et al.* sind Zeitreihen für  $^{99}\text{Tc}$  in Seewasser aufgenommen worden, und zwar für folgende Orte: Gourey, F (1982-1993), Petten, NL (1987-1993), Borkumriff (1988-1992) und Elbe-1 (1988-1992) [MASSON *et al.*, 1995].

Für Gourey ist nach dem Maximum von  $55 \text{ Bq/m}^3$  im Jahr 1985/86 ein Rückgang der Aktivitätskonzentration zu sehen, der in den abnehmenden  $^{99}\text{Tc}$ -Emissionen aus La Hague resultiert. Der Bereich der  $^{99}\text{Tc}$ -Werte ist in Gourey viel größer als in Petten, das Maximum wird in Petten erst 1988 erreicht ( $5,5 \text{ Bq/m}^3$ ). Ähnliches ist bei Borkumriff zu sehen, dort beträgt das Maximum  $4,5 \text{ Bq/m}^3$  im Jahr 1988/89, danach nehmen die Werte ab [MASSON, *et al.*, 1995].

Eine fast 2-monatliche Aufschlüsselung der  $^{99}\text{Tc}$ -Werte im Seewasser bei Sellafield sowie an zwei weiteren nahe gelegenen Orten von März 1995 bis März 1997 ist von McDonald *et al.* veröffentlicht worden (Abbildung 5).

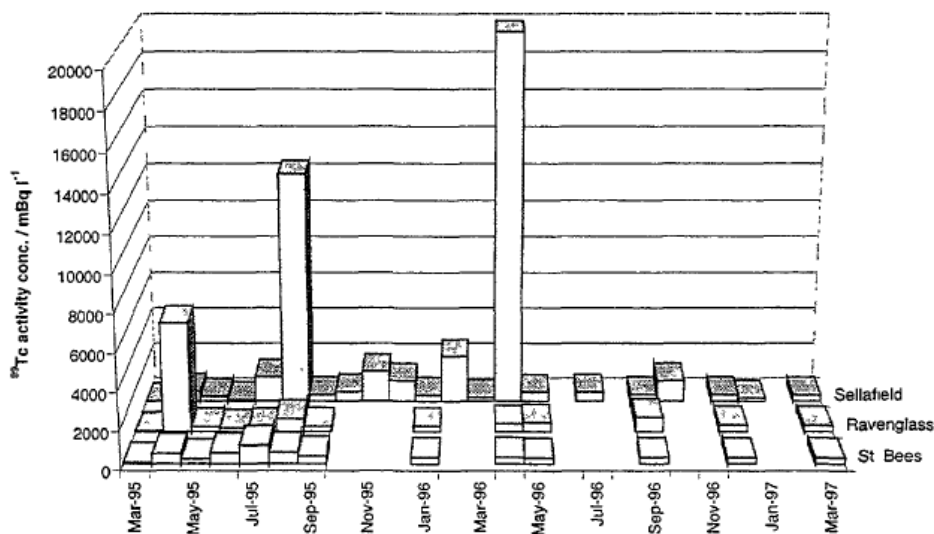


Abbildung 5: Tc-99 im Meerwasser an der Küste in Cumbria [MCDONALD, *et al.*, 1999]

Erst ab den 1990er Jahren stieg die Zahl der Messungen und Veröffentlichungen an. Leonard *et al.* veröffentlichten  $^{99}\text{Tc}$ -Gehalte in der Irischen See von Dezember 1992 bis Dezem-

ber 1995 [LEONARD et al., 1997; LEONARD et al., 1999]. Dort ist ein stetiger Anstieg der  $^{99}\text{Tc}$ -Werte um Sellafield herum zu beobachten, ebenso findet ein Anstieg der  $^{99}\text{Tc}$ -Werte in der Irischen See statt (Abbildung 6, Abbildung 7).

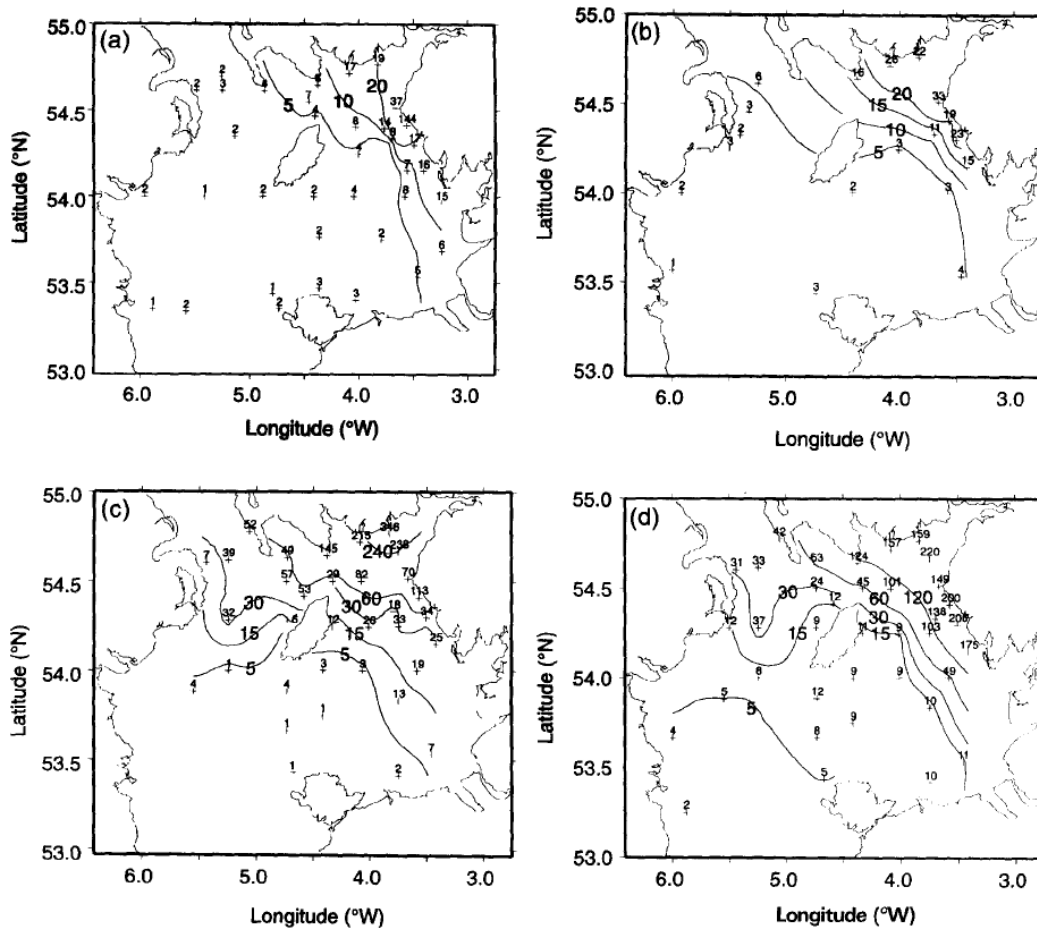


Abbildung 6: Reliefkarten der Tc-99-Verteilung in der nördlichen Irischen See zusammen mit Probeentnahmepositionen und Konzentrationen (mBq/l). (a) Pre-EARP<sup>3</sup>, Cirolana 12/92, (b) Pre-EARP, Cirolana 11/93, (c) Post-EARP, Cirolana 6/94 und (d) Post-EARP, Cirolana 12/94 [LEONARD, et al., 1997]

<sup>3</sup> EARP: Enhanced Actinide Removal Plant

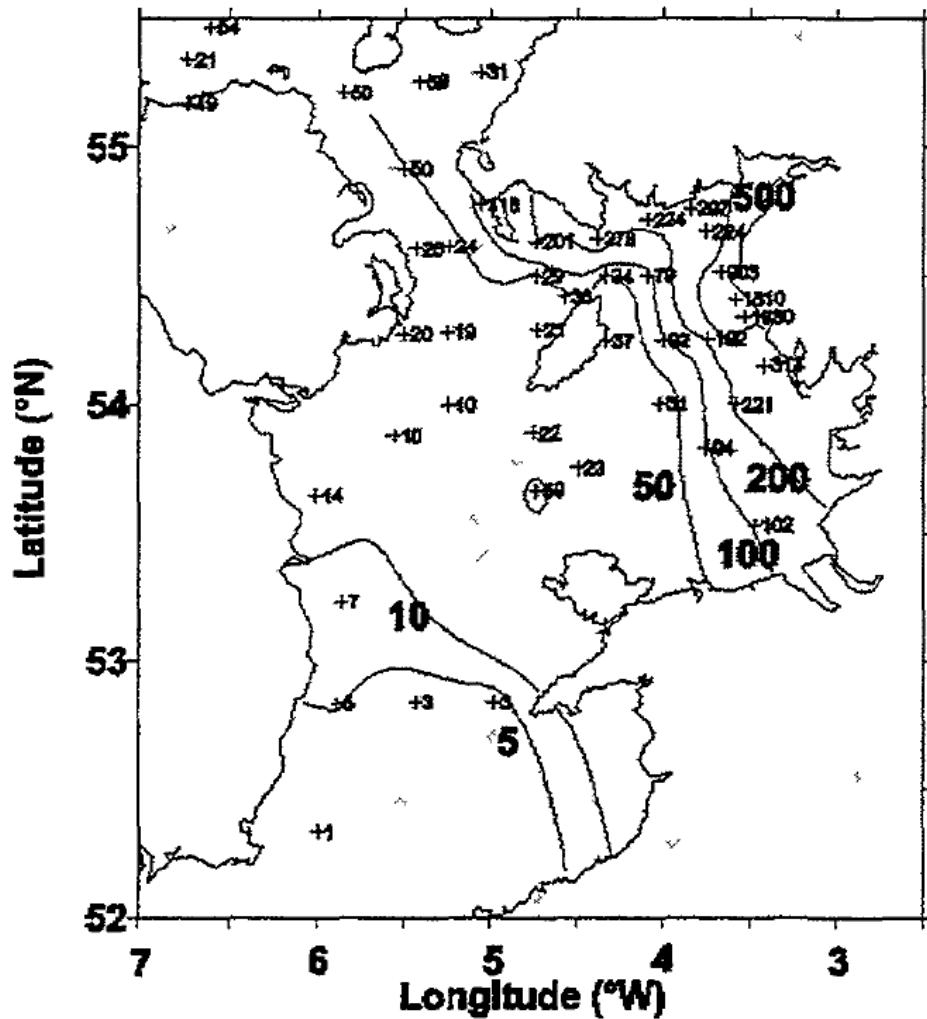


Abbildung 7: Verteilung des Tc-99 (mBq/l) im Oberflächenwasser: Dezember 1995, Irische See [LEONARD, et al., 1999]

McCubbin *et al.* veröffentlichten 2002 eine Übersicht über  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{137}\text{Cs}$  in den britischen Gewässern und den europäischen Küstengewässern [MCCUBBIN *et al.*, 2002]. Abbildung 8 zeigt die Verteilung von  $^{99}\text{Tc}$  in der Irischen See von November 1993 bis September 1998 incl. Konturlinien.

Die 100 mBq/l Kontur zog sich 1994 von der Mitte der östlichen Irischen See bis zur Isle of Man. Auch hier ist ein Anstieg der  $^{99}\text{Tc}$  Konzentration um Sellafield und Ausdehnung der  $^{99}\text{Tc}$  Konzentration bis Oktober 1995 zu beobachten. Im Zeitraum bis November 1996 stagniert die Ausdehnung, im September 1998 ist sie wieder zurückgegangen (Abbildung 8).

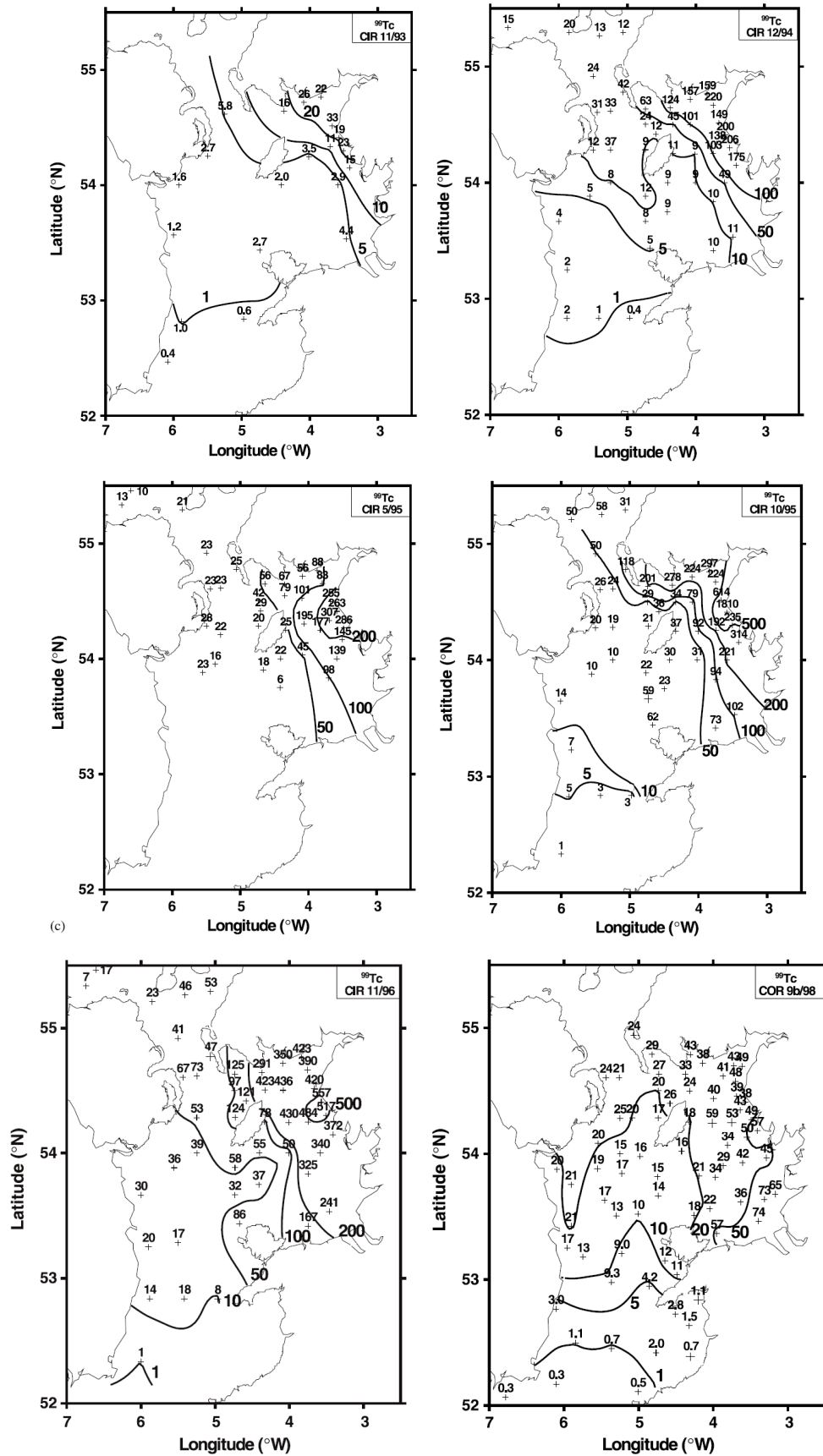


Abbildung 8 a bis f: Räumliche Verteilung der Tc-99 Konzentration (Bq/m<sup>3</sup>) in der Irischen See zwischen November 1993 und September 1998) [MCCUBBIN, et al., 2002]. Die Forschungsschiffe Cirolana (CIR) und Corystes (COR) wurden jeweils zur Probenahme eingesetzt.

Es wurden ebenfalls Oberflächensedimente in der Irischen See untersucht, und zwar von Oktober 1995 bis Juli 2002. Hier ist ein Maximum an  $^{99}\text{Tc}$  um 1998 in den Oberflächensedimenten bei Sellafield zu finden (Abbildung 9).

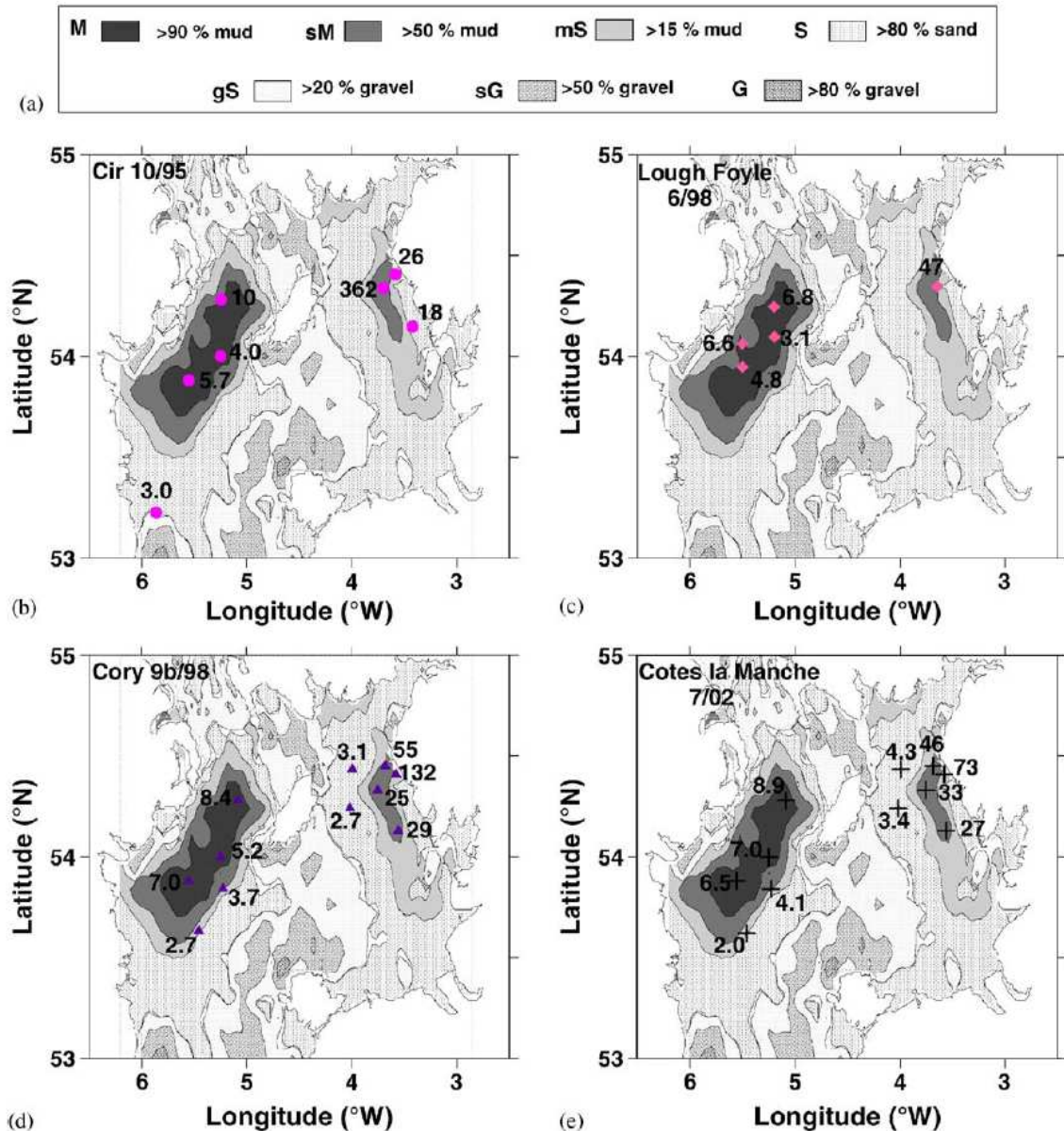


Abbildung 9: Tc-99 (Bq/kg Trockengewicht) in Oberflächensedimenten der Irischen See. Die kombinierte Unsicherheit ( $1 \sigma$ ) verknüpft mit individuellen Daten beträgt 77%. Daten für Dezember 1995 und September 1998 sind von [LEONARD et al., 2004] übernommen worden. (a) Legende für die Bodentypen in (b)-(e). Konturen leiten sich von der Körnigkeit ab (Bereitgestellt von British Geological Survey). (b) Dezember 1995 (Survey: Cirolana 10/95). (c) Juni 1998 (Survey: Lough Foyle 6/98). (d) September 1998 (Survey: Corystes 9b/98). (e) Juli 2002 (Survey: Cotes la Manche 7/02) [MCCUBBIN et al., 2006].

### 1.2.4 Nordsee

Die Konzentration von  $^{99}\text{Tc}$  in der Nordsee und im englischen Kanal wurde von Dezember 1992 bis November 1996 von verschiedenen Autoren untersucht. Leonard et al untersuchten den Zeitraum 1992-1994, in dem der starke Anstieg der  $^{99}\text{Tc}$ -Emissionen aus Sellafield liegt. In Abbildung 10 sind die  $^{99}\text{Tc}$ -Konzentrationen an Englands Küsten vor und nach dem Anstieg der Emissionen gegenübergestellt [LEONARD, et al., 1997]. Im Dezember 1992 beträgt der maximale Wert im Nordkanal 5,6  $\text{Bq/m}^3$ . Im Dezember 1995 [LEONARD, et al., 1999] ist im Nordkanal der stärkste Anstieg der  $^{99}\text{Tc}$ -Konzentrationen zu sehen (bis zu 24  $\text{Bq/m}^3$ ). Entlang der Hebriden und der Orkney-Inseln nimmt die Konzentration ab. Bis schließlich in der Nordsee Werte von weniger als 1  $\text{Bq/m}^3$  zu finden sind. In der Keltischen See sind die Messwerte stets sehr gering ( $\leq 0,2 \text{ Bq/m}^3$ )

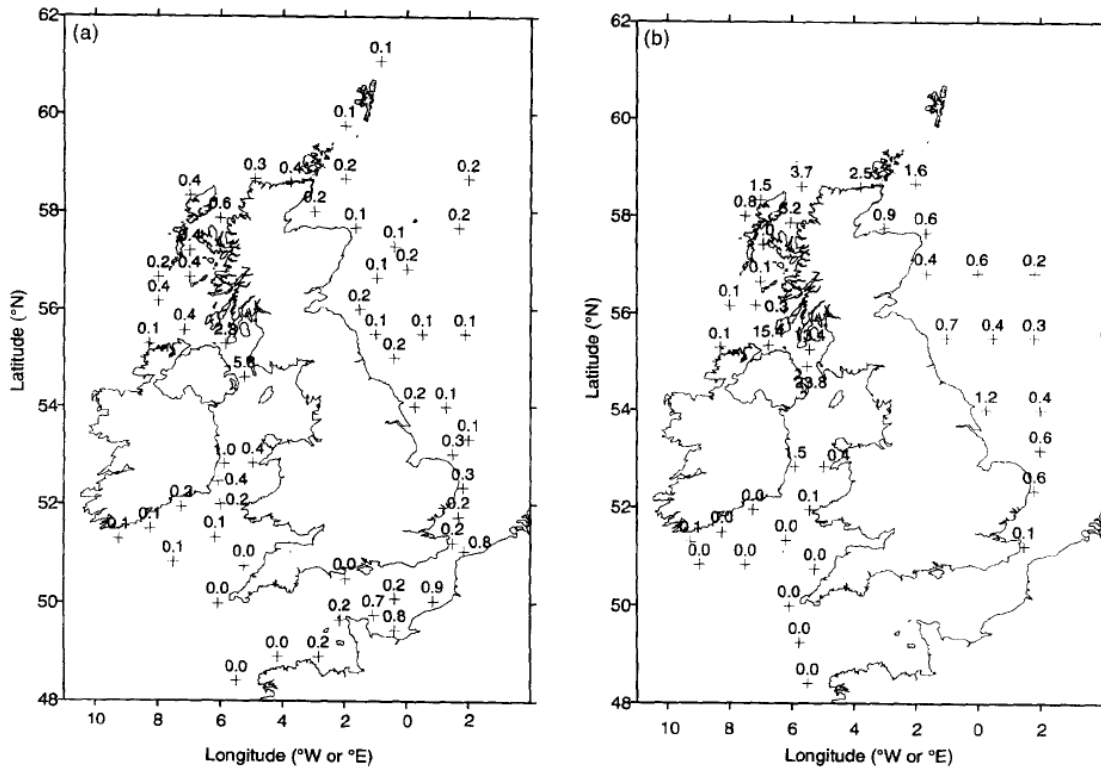


Abbildung 10: Tc-99 Konzentrationen ( $\text{Bq/m}^3$ ) außerhalb der nördlichen Irischen See. (a) Pre-EARP, Cirolana 12/92, 11/93 und (b) Post-EARP, Cirolana 12/94. [LEONARD, et al., 1997]

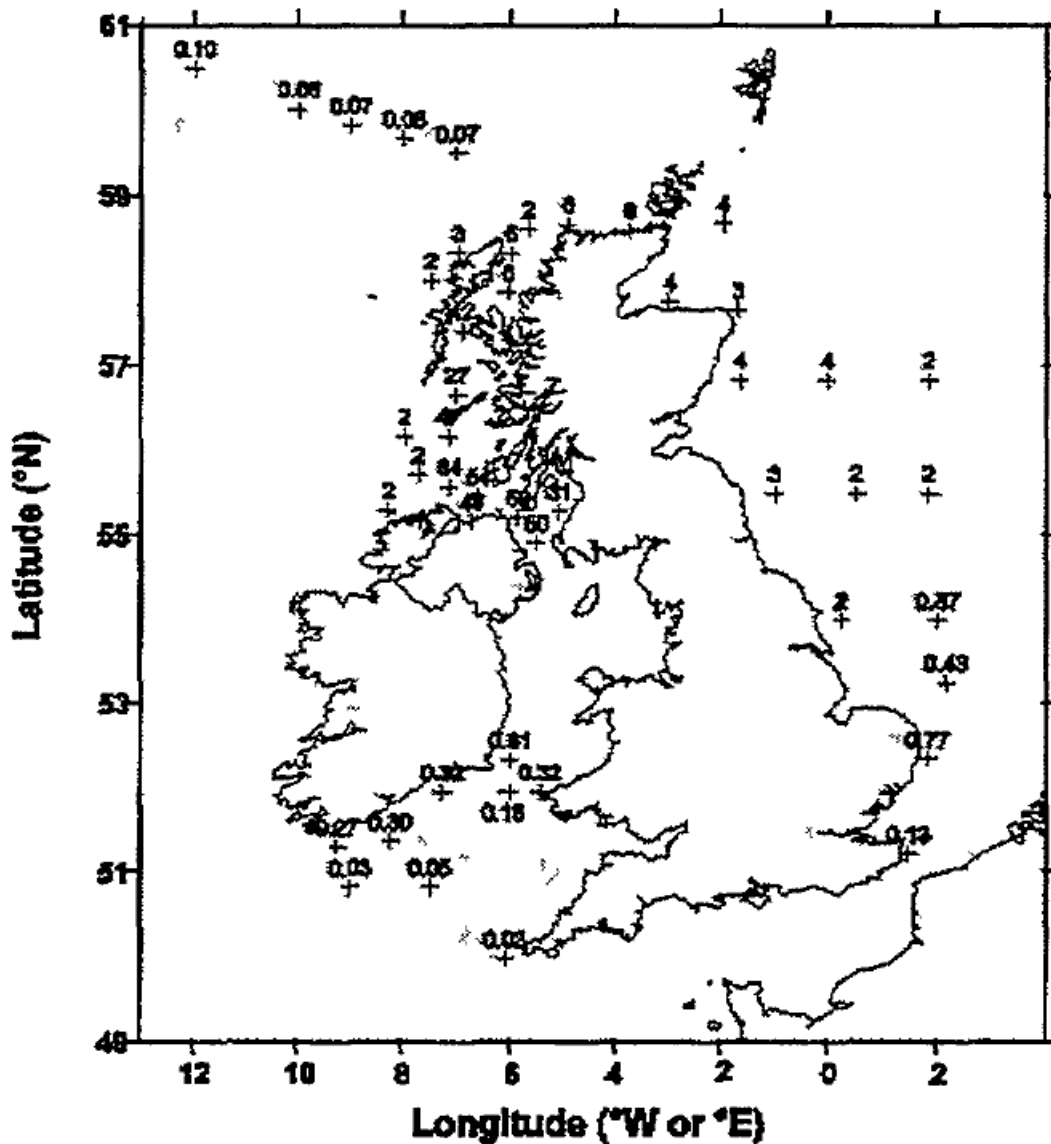


Abbildung 11: Verteilung des Tc-99 (mBq/l) im Oberflächenwasser: Dezember 1995, Irische See [LEONARD, et al., 1999]

McCubbin et al. haben ebenfalls die Konzentration von  $^{99}\text{Tc}$  an den Küsten Großbritanniens und in der Nordsee von November 1993 bis November 1996 untersucht (Abbildung 12).

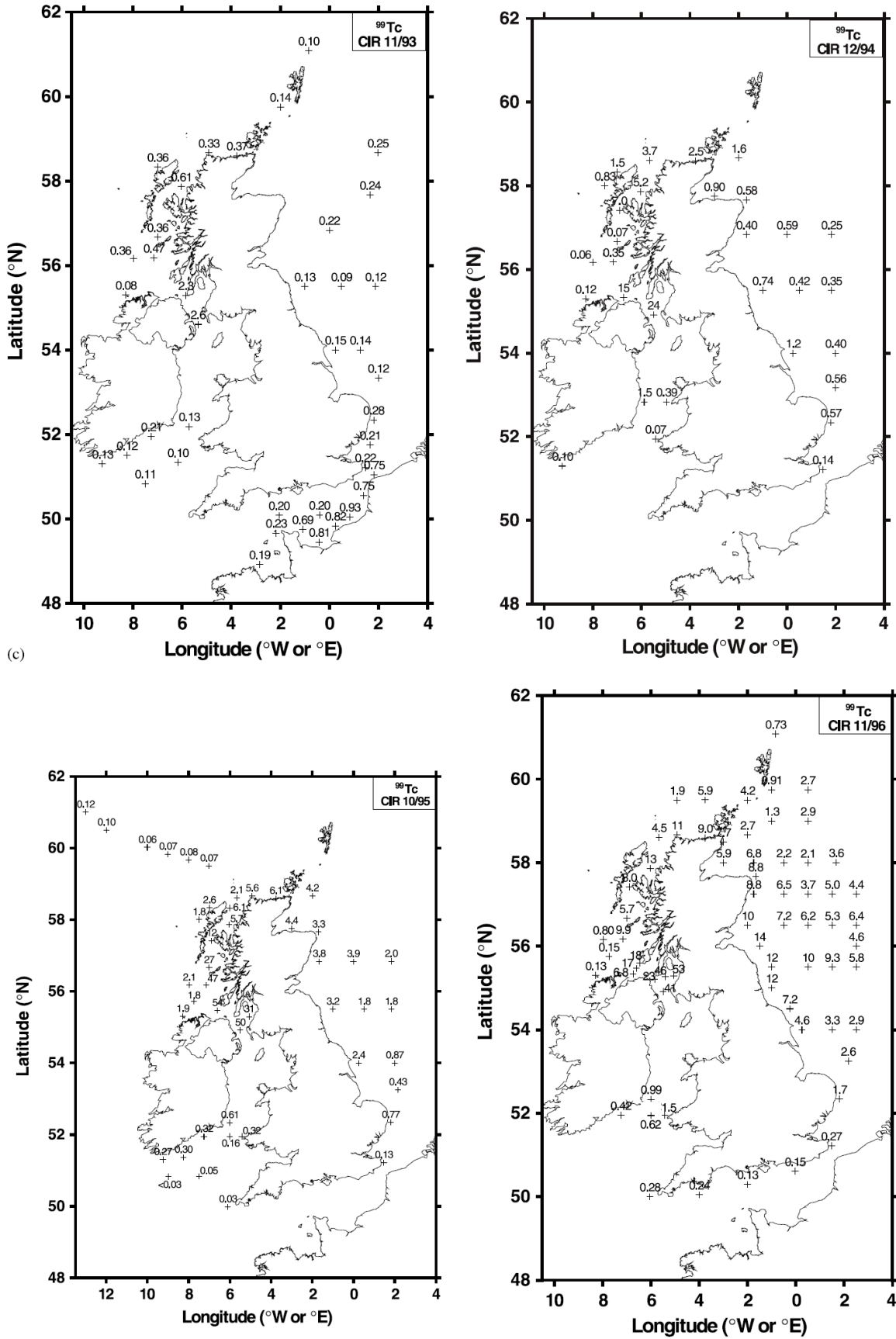


Abbildung 12: Positionskarte und Karte der Tc-99 Radionuklidkonzentrationsverteilung (mBq/l) außerhalb der Irischen See [MCCUBBIN, et al., 2002]



Im November 1995 ist die  $^{99}\text{Tc}$ -Konzentration im Nordkanal weiter angestiegen auf etwa  $50 \text{ Bq/m}^3$ , bis November 1996 stagnieren die Werte bzw. gehen leicht zurück. Die Werte an den Orkney -Inseln sowie in der Nordsee nehmen bis zum Ende des untersuchten Zeitraums zu, was sich durch die Verweilzeitverteilung (Tabelle 7) erklären lässt.

Vom BSH sind zwischen November 1990 bis August 2005 die  $^{99}\text{Tc}$ -Werte in der deutschen Bucht und z.T. in angrenzenden Gebieten (englische Ostküste, Ärmelkanal), bestimmt worden (Abbildung 13 bis Abbildung 21).

Im Kanal sind zu Beginn der Messungen die höchsten  $^{99}\text{Tc}$ -Werte zu finden, bis zu  $3,7 \text{ Bq/m}^3$  aufgrund der Ableitungen aus der Anlage Sellafield. Schon im Jahr 1993 liegen die Werte unter  $0,2 \text{ Bq/m}^3$ , im Jahr 1999 liegen unterhalb der Nachweisgrenze. Diese Werte korrelieren gut mit den abnehmenden Ableitungen aus der WAA La Hague in dieser Zeit.

Die Werte in der Deutschen Bucht sinken von November 1990 von max.  $1,2 \text{ Bq/m}^3$  bis April 1993 auf Werte  $< 0,7 \text{ Bq/m}^3$ . Bei der nächsten Messung im November 1997 liegen die Werte schon höher als im November 1990 mit steigender Tendenz bis zum Jahr 1999.

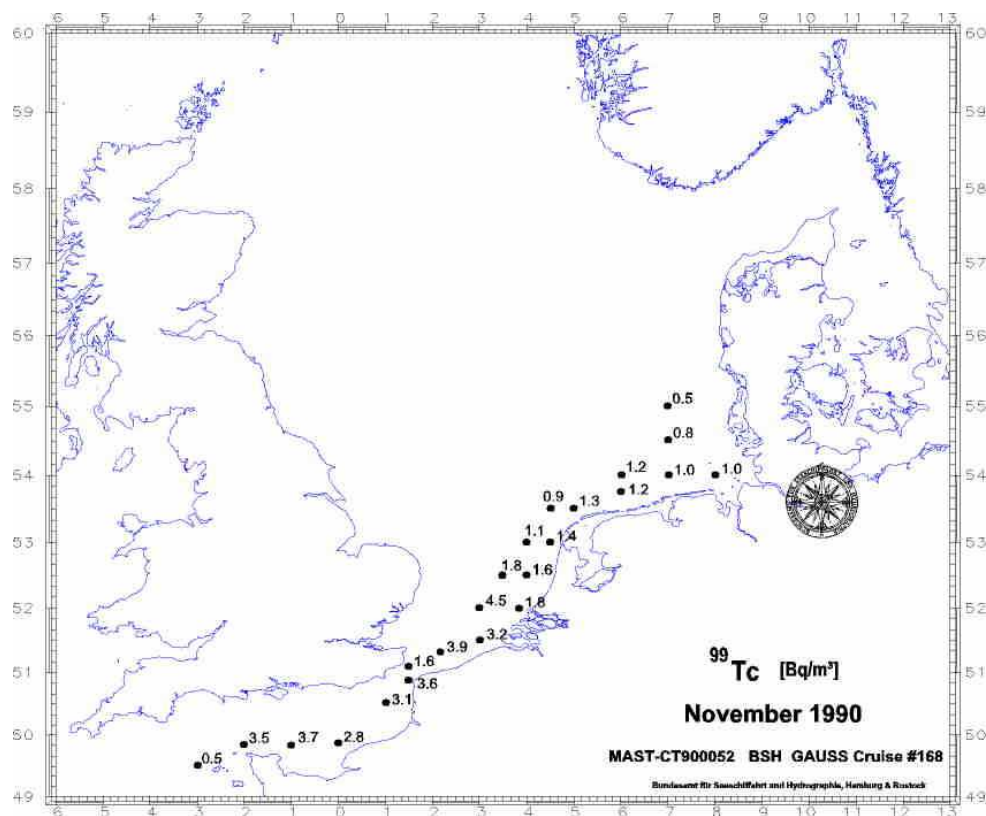


Abbildung 13: Verteilung des Tc-99 im Oberflächenwasser: November 1990 [HERRMANN, 1995]

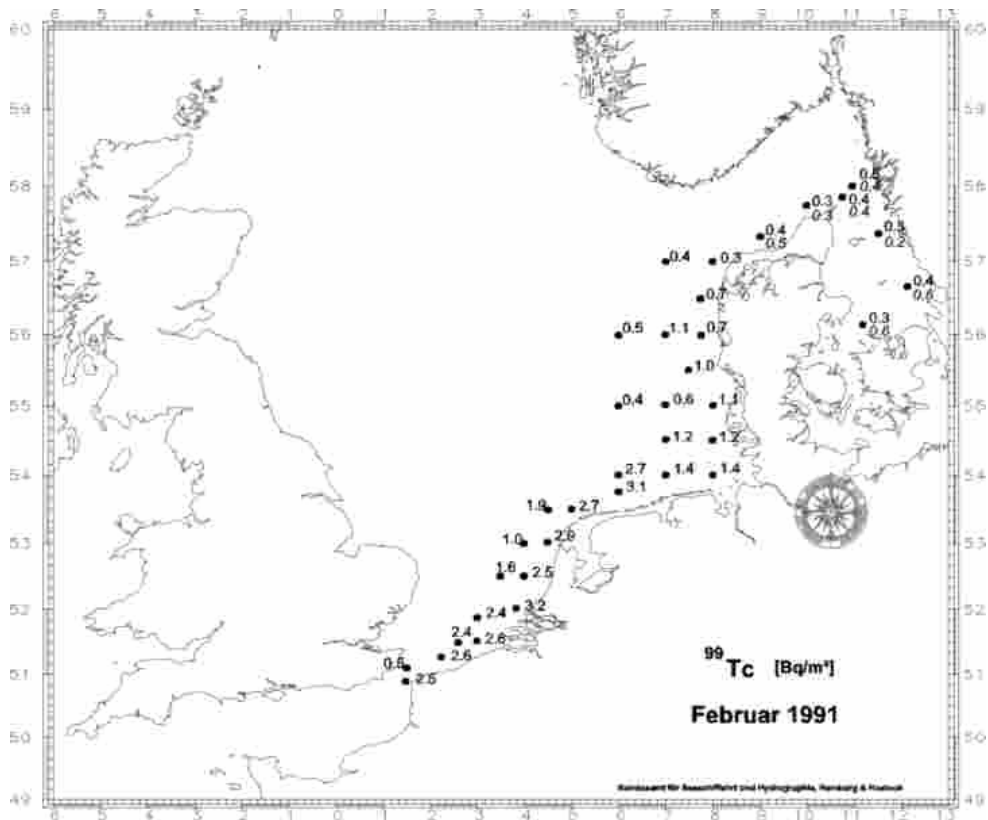


Abbildung 14: Verteilung des Tc-99 im Oberflächenwasser: Februar 1991 [HERRMANN et al., 1994]

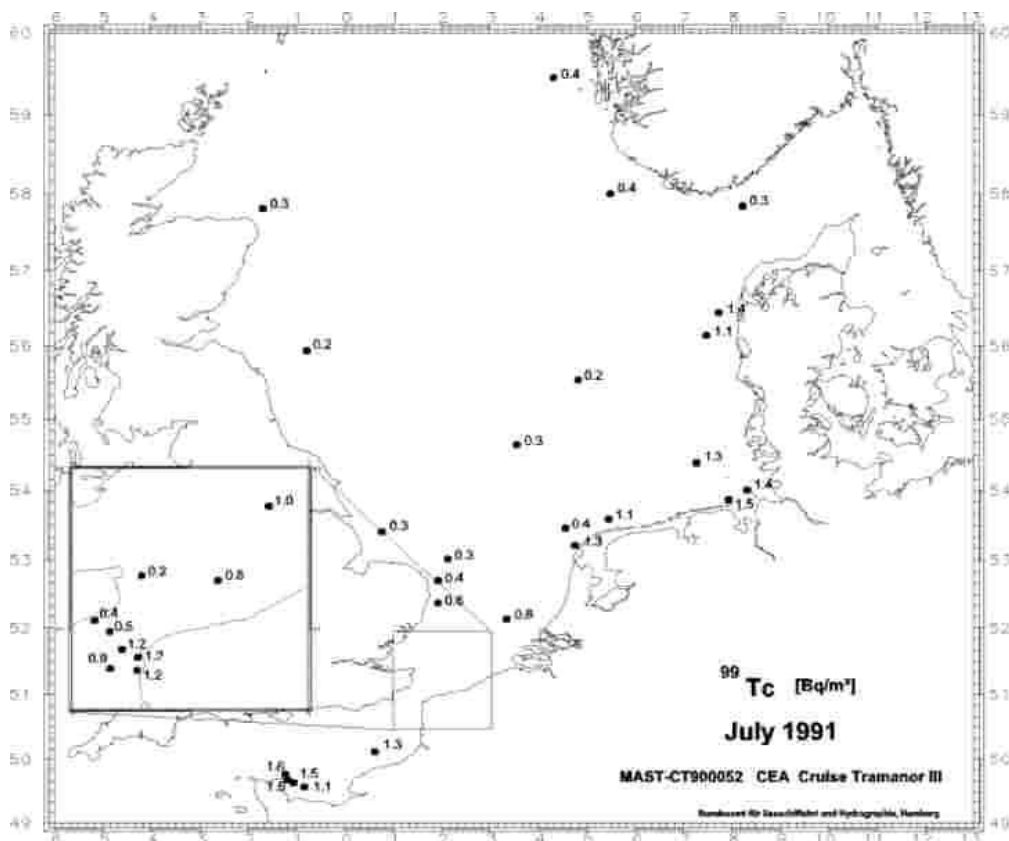


Abbildung 15: Verteilung des Tc-99 im Oberflächenwasser: Juli 1991 [HERRMANN, et al., 1994]

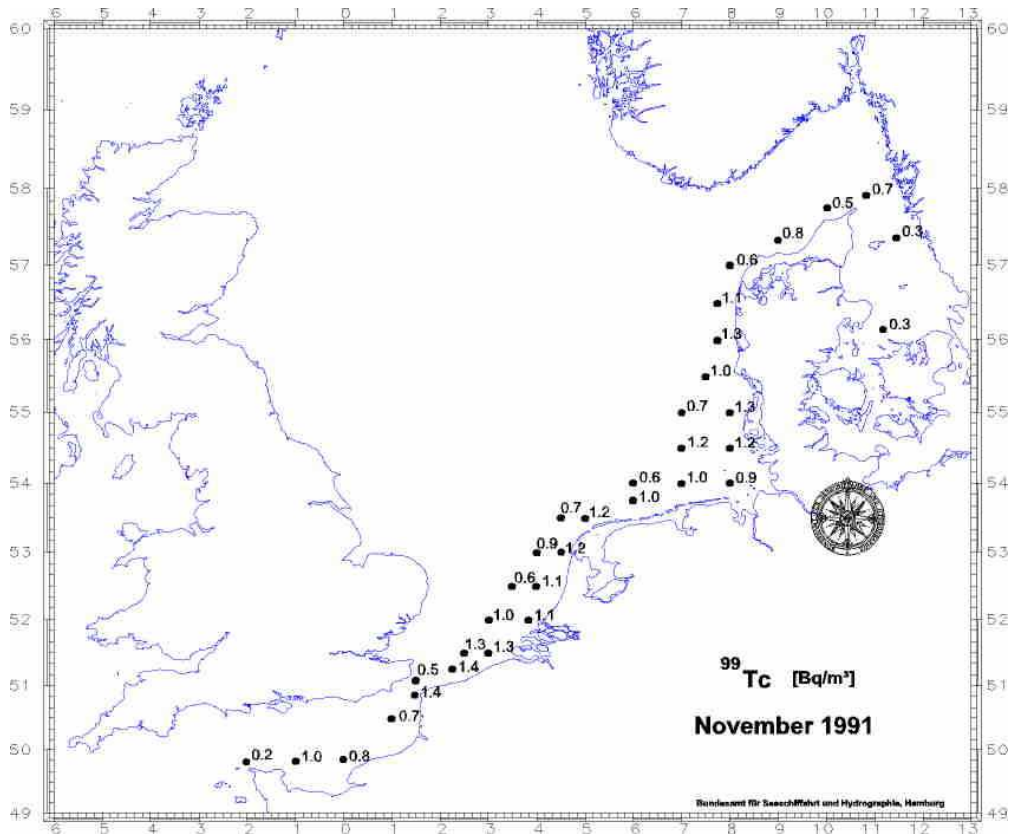


Abbildung 16: Verteilung des Tc-99 im Oberflächenwasser: November 1991 [HERRMANN, 1995]

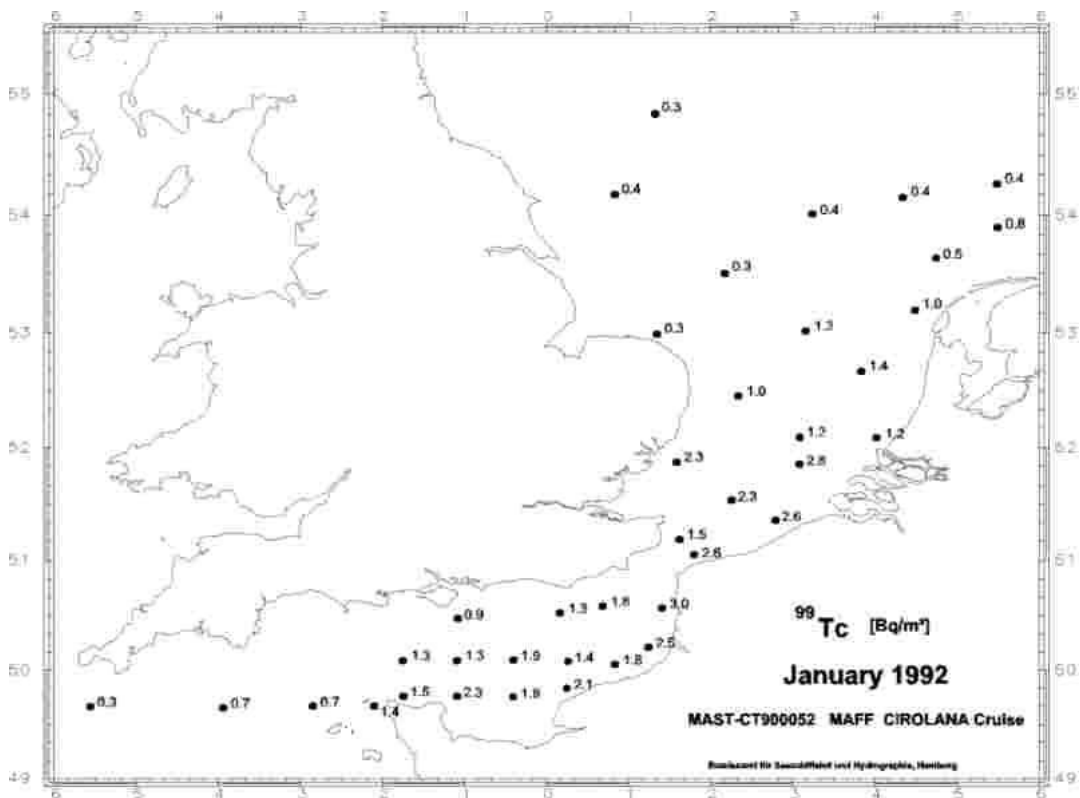


Abbildung 17: Verteilung des Tc-99 im Oberflächenwasser: Januar 1992 [HERRMANN, et al., 1994]

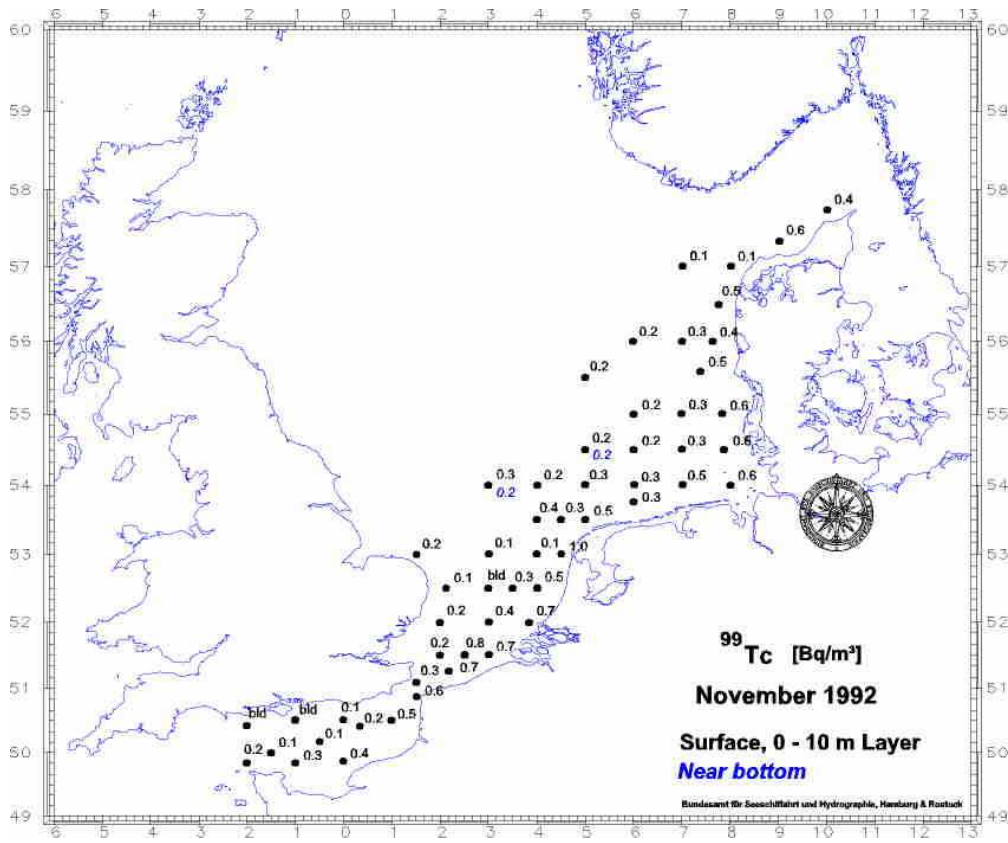


Abbildung 18: Verteilung des Tc-99 im Oberflächenwasser „(schwarz)“ und Tiefenwasser „(blau)“ November 1992 [HERRMANN, 1995], bld= (below limit of detection)

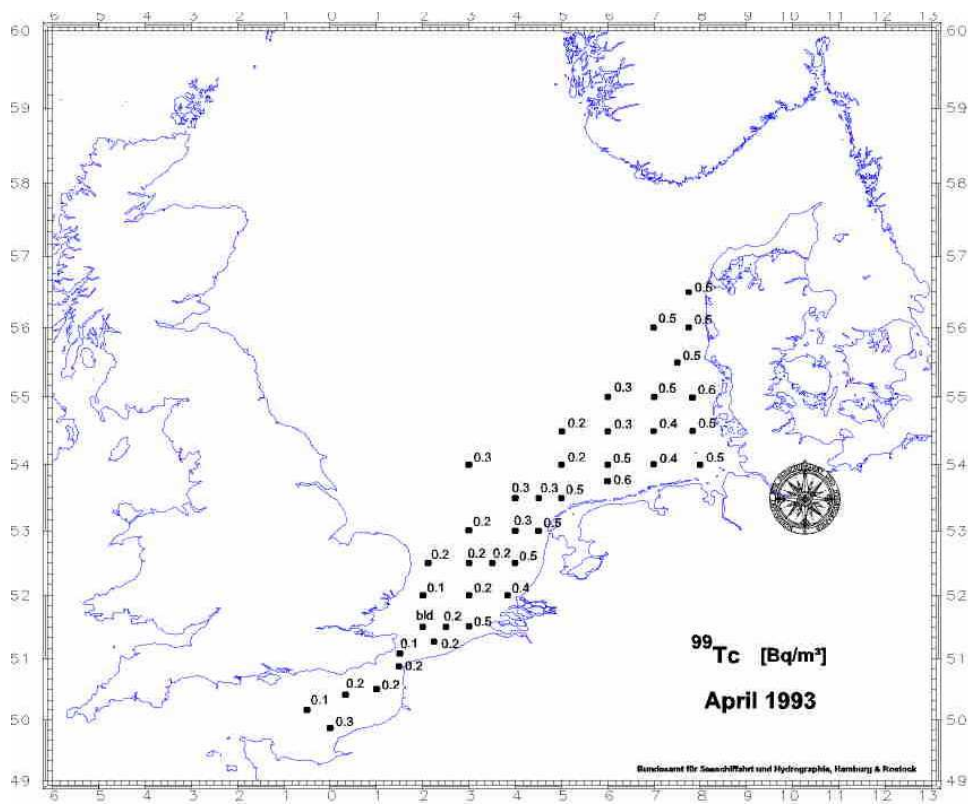


Abbildung 19: Verbreitung von Tc-99 im Oberflächenwasser: April 1993 [HERRMANN, 1995] (bld: below limit of detection)



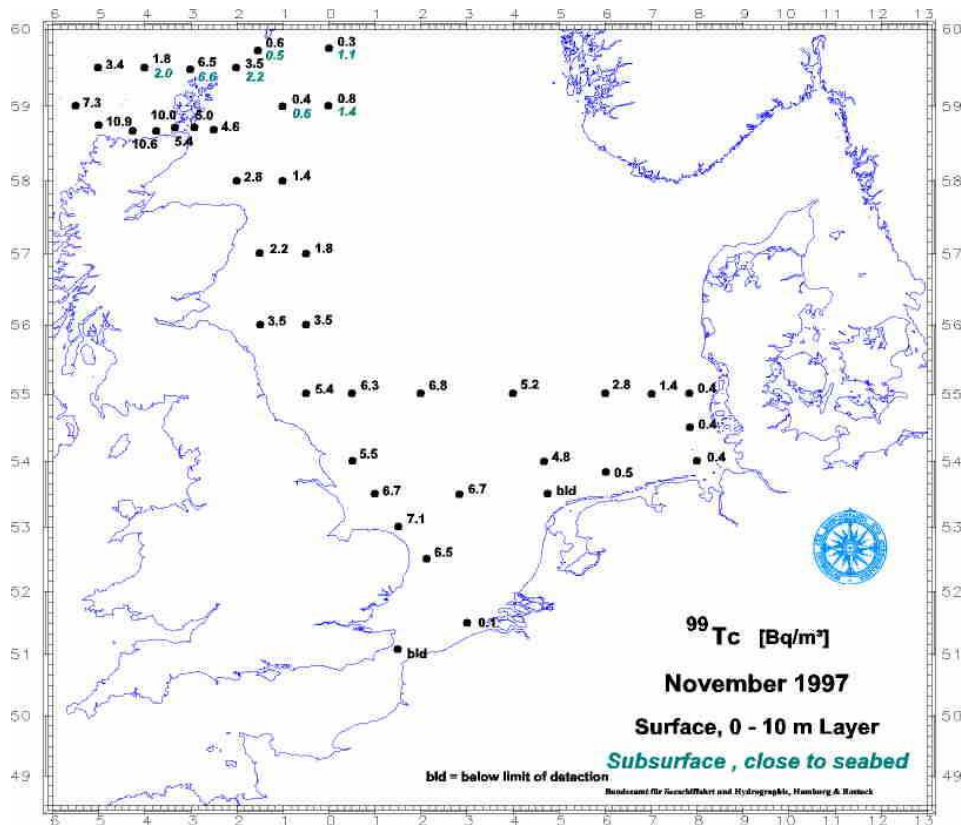


Abbildung 20: Die Aktivitätskonzentration von Tc-99 im Wasser der Nordsee im November 1997; Daten sind in Bq/m<sup>3</sup> dargestellt mit einer Unsicherheit von etwa 5 % ( $\delta$ ); R/V Gauss Reise No. 306 vom 31 Oktober bis 13 November 1997 [Nies et al., 2000]

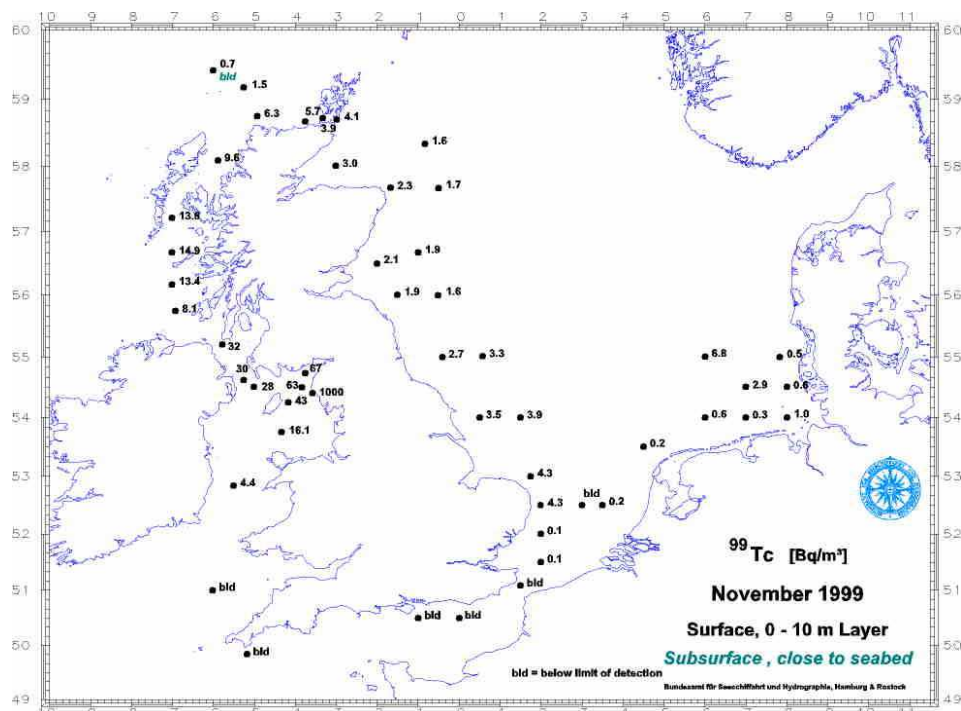


Abbildung 21: Die Aktivitätskonzentration von Tc-99 im Seewasser der Nordsee im November 1997; Daten sind in Bq/m<sup>3</sup> dargestellt mit einer Unsicherheit von etwa 5 % ( $\delta$ ); R/V Gauss Reise No. 340 vom 28 Oktober bis 22 November 1999 [Nies, et al., 2000]

Anhand der Tc-99-Konzentration vom Juli 1997 werden die Strömungsverhältnisse in der Nordsee dargestellt. (Abbildung 22) [MCCUBBIN, et al., 2002].

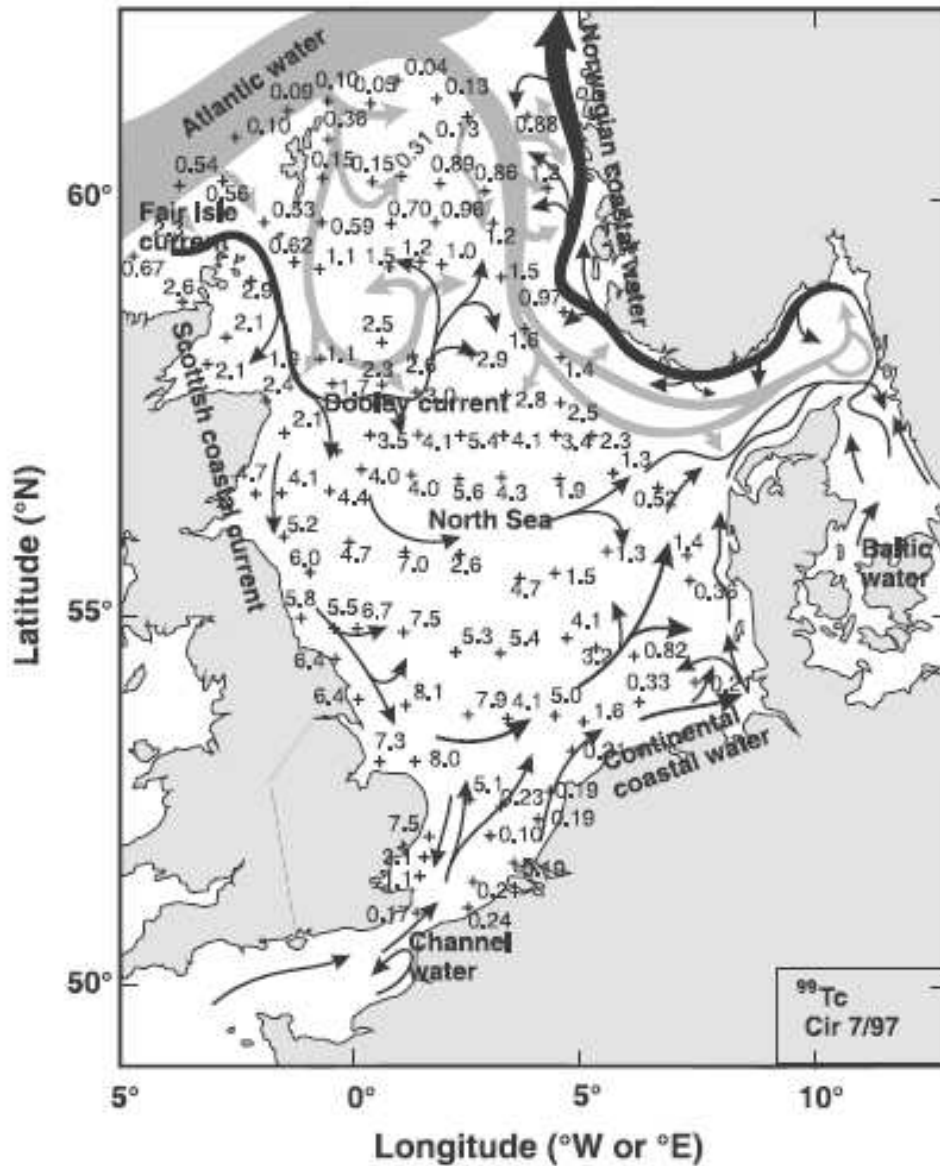


Abbildung 22: Positionskarte und Karte der Tc-99 Radionuklidkonzentration (mBq/l) außerhalb der Irischen See im Juli 1997, R/V Cirolana [MCCUBBIN, et al., 2002].

Für die Jahre 1996-1999 wurden von Karcher et al. (2004) verschiedene Messwerte, von der deutschen Bucht bis Spitzbergen, veröffentlicht. In diesen Karten sind deutlich die erhöhten Konzentrationen in der Nordsee aufgrund der erhöhten Ableitungen aus Sellafield ab 1994 zu erkennen und den Transport kontaminierten Wassers in die Arktischen Meere.

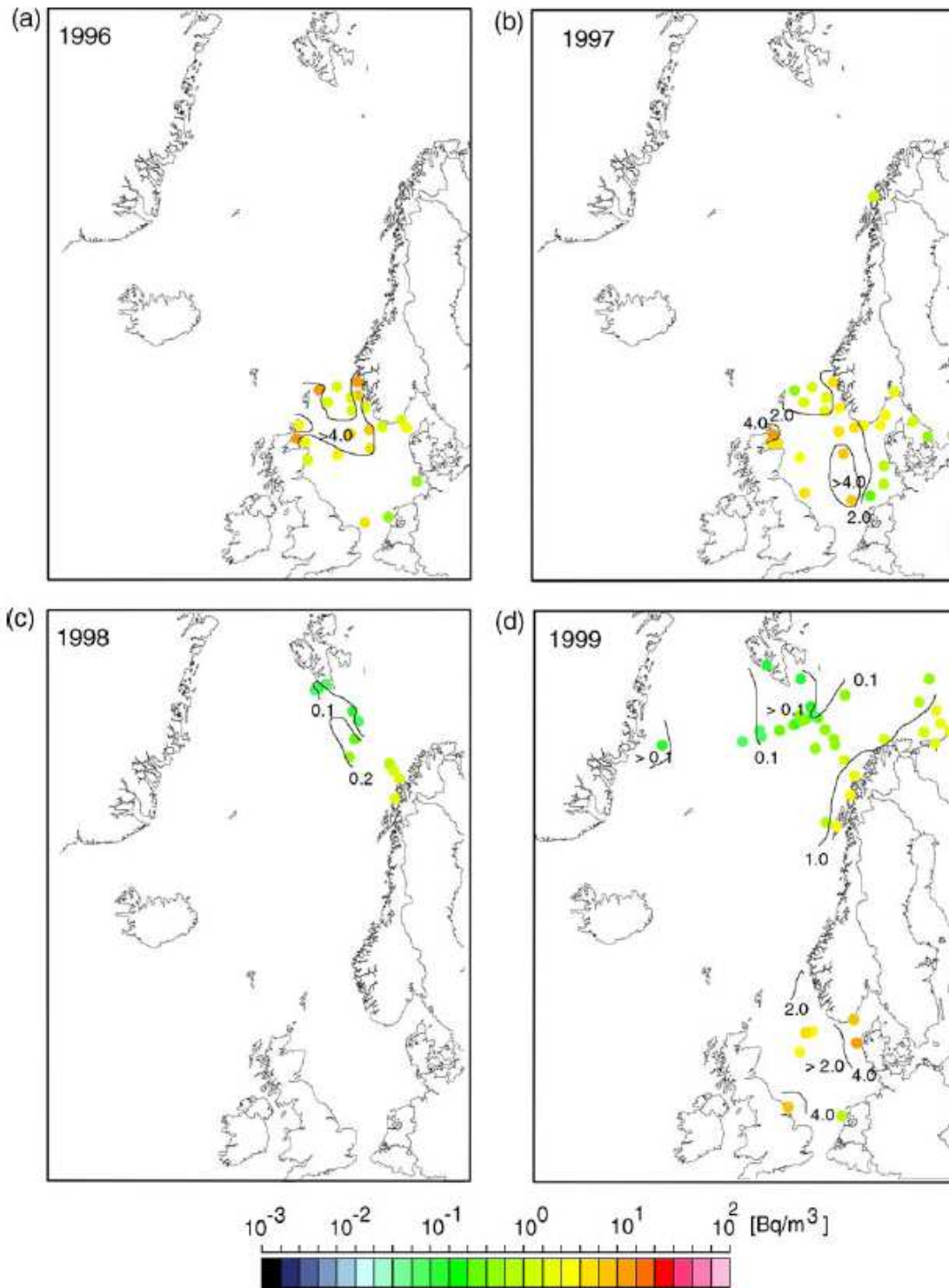


Abbildung 23: Verteilung des Tc-99 (Bq/m<sup>3</sup>) im Oberflächenwasser (a) 1996, (b) 1997, (c) 1998 und (d) 1999, aus Beobachtungen (Isolines in Bq/m<sup>3</sup>), [Karcher et al., 2004].

<sup>99</sup>Tc concentrations (Bq m<sup>-3</sup>), sampling dates, sampling locations, depths (m) and salinity

Sampling date	Latitude	Longitude	Depth (m)	Sampling depth (m)	Salinity	Temperature (°C)	<sup>99</sup> Tc (Bq m <sup>-3</sup> )	Error (%)
03.07.98	72°48'N	13°51'E	1133	5	34.776	8.444	0.28	10.5
03.07.98	73°34'N	16°07'E	452	5	35.005	7.266	0.25	7.3
04.07.98	74°21'N	18°25'E	73	5	34.616	1.406	0.08	15.8
04.07.98	74°59'N	18°18'E	94	5	34.077	3.172	0.13	10.4
05.07.98	76°20'N	16°11'E	77	5	32.647	-0.366	bd	-
06.07.98	76°55'N	12°30'E	746	5	34.371	5.233	0.08	19.7
06.07.98	76°55'N	13°30'E	101	5	32.348	2.746	0.16	9.8
06.07.98	76°58'N	15°30'E	150	5	32.626	1.567	0.06	24.9
09.07.98	71°30'N	19°48'E	236	5	34.661	9.150	0.42	5.4
09.07.98	71°00'N	19°54'E	190	5	34.462	9.897	0.65	5.0
09.07.98	70°30'N	20°00'E	126	5	33.863	10.979	0.86	4.5
09.07.98	70°30'N	20°00'E	126	30	34.554	7.161	0.80	4.5
18.06.99	68°26'N	14°01'E	110	5	33.616	8.214	1.61	4.2
18.06.99	68°51'N	12°48'E	660	5	34.912	9.245	0.52	4.9
24.06.99	74°30'N	14°37'W	267	5	32.823	-0.041	0.13	10.6
24.06.99	74°30'N	14°37'W	267	30	33.925	0.077	0.09	18.3
26.06.99	74°30'N	03°00'E	3320	5	34.738	2.164	0.09	20.6
27.06.99	74°30'N	11°00'E	2390	5	35.100	6.020	0.21	8.5
28.06.99	74°30'N	14°00'E	2106	5	35.103	6.328	0.26	6.5
28.06.99	74°30'N	16°40'E	193	5	35.090	6.927	0.25	6.4
01.07.99	70°30'N	20°00'E	146	5	33.812	9.212	1.49	4.1
01.07.99	71°30'N	19°48'E	236	5	34.663	9.431	0.93	4.4
02.07.99	73°30'N	19°20'E	480	5	35.054	6.680	0.26	7.3
02.07.99	74°15'N	19°10'E	58	5	34.920	3.605	0.22	7.5
03.07.99	76°35'N	20°00'E	205	5	33.536	1.888	0.11	13.2
28.05.00	69°29'N	10°56'E	2954	5	35.132	7.329	0.27	5.12
31.05.00	74°05'N	03°40'W	3494	5	34.835	-0.067	0.05	11.1
01.06.00	74°30'N	11°43'W	2955	5	34.327	-0.652	0.10	7.15
02.06.00	74°30'N	03°00'W	3601	5	34.842	0.487	0.05	12.4
03.06.00	74°30'N	00°00'E	3740	5	34.830	0.411	0.05	16.2
03.06.00	74°30'N	03°00'E	3354	5	34.823	1.360	0.08	10.0
04.06.00	74°30'N	11°00'E	2396	5	35.087	5.558	0.30	4.65
04.06.00	74°30'N	13°59'E	2112	5	35.074	6.012	0.39	4.50
05.06.00	74°30'N	16°30'E	252	5	35.072	5.952	0.38	4.44
05.06.00	74°30'N	18°30'E	64	5	34.628	0.392	0.22	5.40
07.06.00	75°49'N	17°35'E	247	5	34.023	0.848	0.20	5.61
07.06.00	75°43'N	15°35'E	382	5	33.690	0.538	0.22	5.02
08.06.00	75°30'N	12°00'E	1986	5	35.091	5.277	0.27	4.75
08.06.00	76°20'N	10°25'E	2168	5	35.050	4.466	0.25	4.86
08.06.00	76°20'N	16°00'E	102	5	33.858	-0.021	0.20	5.67
09.06.00	77°20'N	13°45'E	73	5	33.567	0.128	0.21	5.08
09.06.00	77°20'N	10°55'E	1076	5	34.802	4.000	0.30	4.63
10.06.00	74°15'N	19°10'E	60	5	34.697	0.224	0.19	5.27
11.06.00	72°30'N	19°34'E	389	5	35.087	6.275	0.35	4.61
12.06.00	70°30'N	20°00'E	126	5	34.464	7.101	1.19	4.09
14.06.00	71°00'N	26°30'E	279	5	33.561	6.347	0.72	4.47
14.06.00	71°10'N	26°30'E	165	5	34.553	6.232	0.63	4.49
14.06.00	71°20'N	25°00'E	301	5	34.543	6.421	0.72	4.43
14.06.00	71°10'N	25°00'E	155	5	33.759	5.774	0.69	4.45
16.06.00	71°20'N	28°00'E	412	5	33.559	6.331	0.70	4.44
16.06.00	71°10'N	28°00'E	112	5	34.106	5.546	0.71	4.48
16.06.00	70°50'N	30°00'E	381	5	33.910	5.906	0.88	4.29

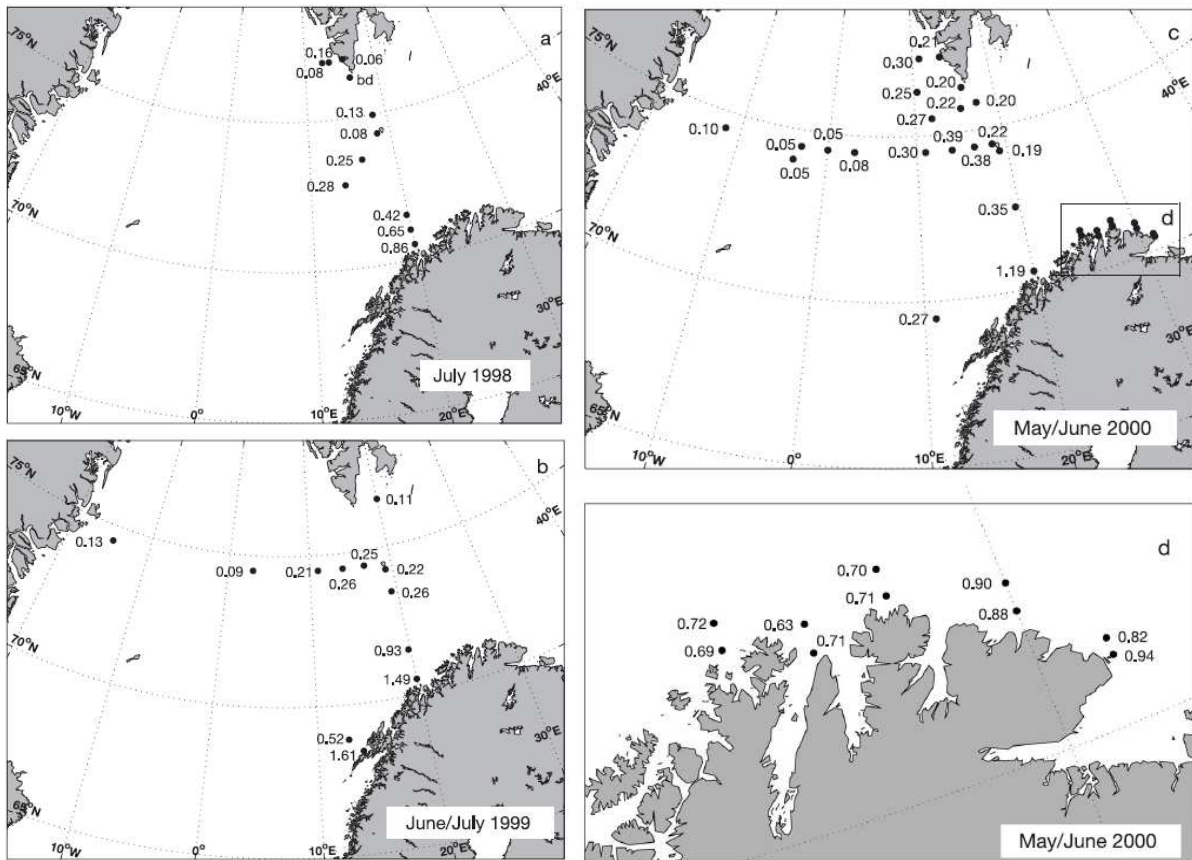
Sampling date	Latitude	Longitude	Depth (m)	Sampling depth (m)	Salinity	Temperature (°C)	<sup>99</sup> Tc (Bq m <sup>-3</sup> )	Error (%)
16.06.00	71°00'N	30°00'E	299	5	33.757	5.828	0.90	4.32
23.06.00	70°30'N	31°13'E	187	5	33.869	5.961	0.82	4.35
23.06.00	70°24'N	31°13'E	131	5	33.456	6.136	0.94	4.35

The error includes a statistical counting error and uncertainties in the chemical procedure. bd = below detection limit (0.018 Bq m<sup>-3</sup>).

**Tabelle 6: Tc-99 Konzentrationen (Bq/m<sup>3</sup>), Probenentnahmedatum, Probeentnahmeposition, Tiefe (m) und Salzgehalt [Karcher, et al., 2004] verschiedener Probeentnahmekampagnen.**



## 1.2.5 Nordmeer und Barentssee



**Abbildung 24: Konzentration von Tc-99 im Oberflächenwasser (Bq/m³): (a) Juli, 1998, (b) Juni/Juli, 1999, (c) and (d) Mai/Juni, 2000 [Kershaw et al., 2004]**

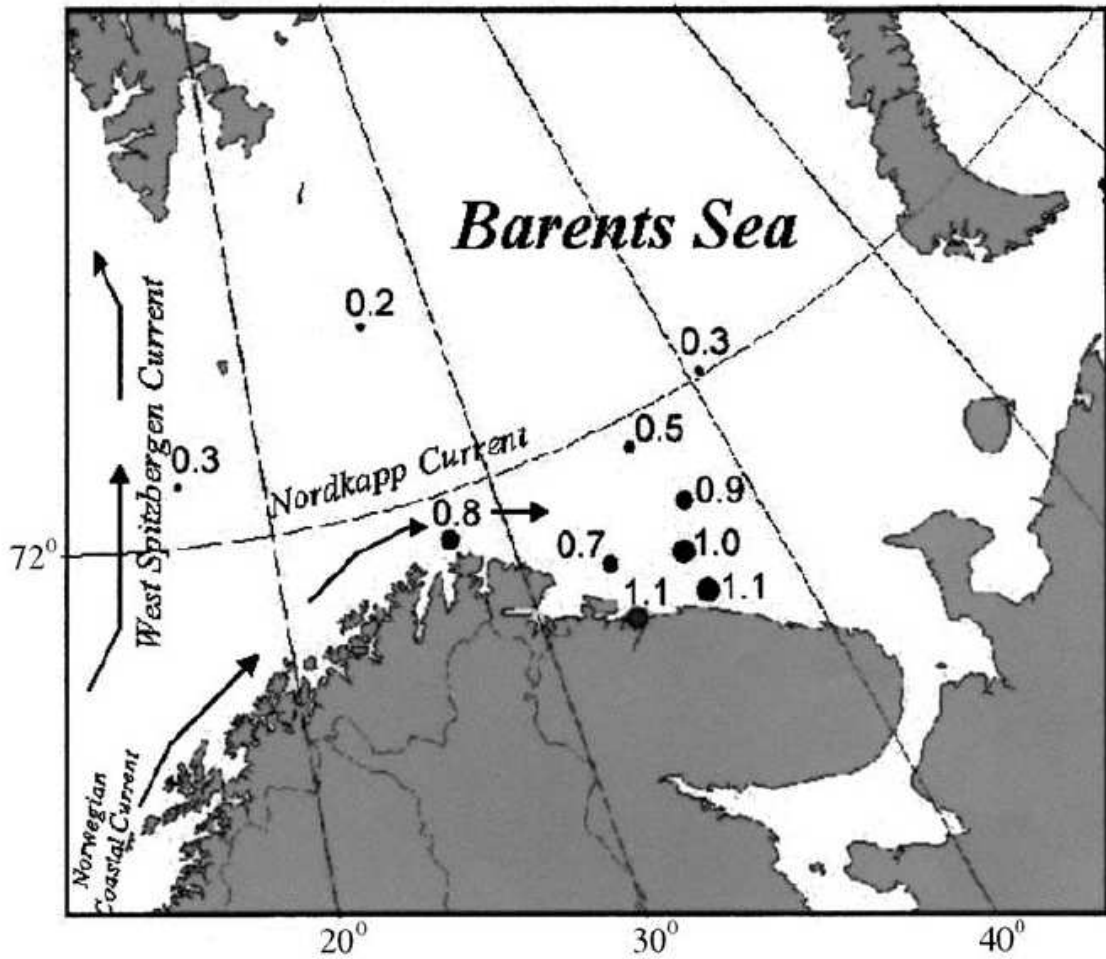


Abbildung 25: Konzentration von Tc-99 ( $\text{Bq/m}^3$ ) in der Barentssee im Oberflächenwasser im Februar 1999. Die Gesamtmessunsicherheit beträgt ca. 8 % ( $1 \sigma$ ). Die Pfeile geben die Hauptrichtung des Wassermassentransportes der durch die Ableitungen von Sellafield kontaminierten Wasserkörper in die Arktischen Gebiete an [Brown et al., 2002].

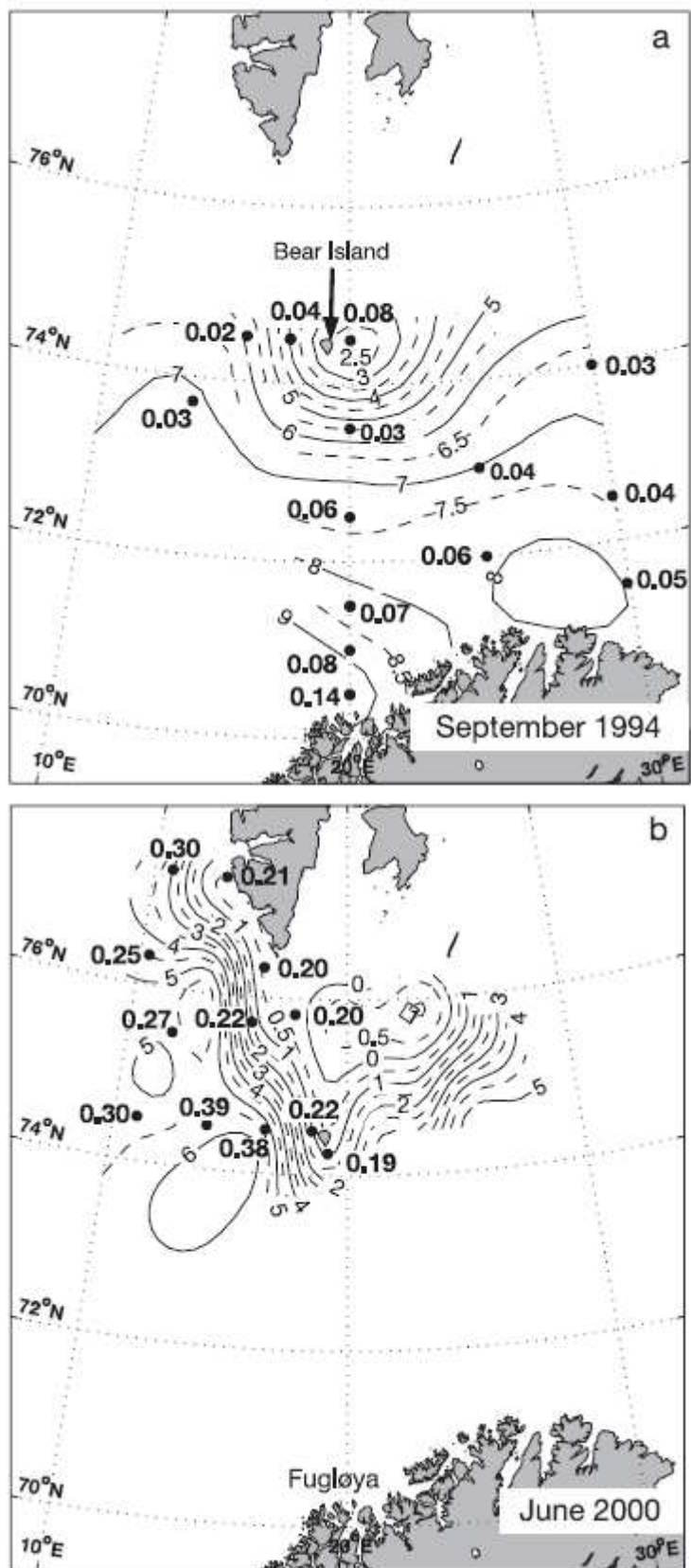


Abbildung 26: Verteilung und Konzentrationskonturen Tc-99 (Bq/m<sup>3</sup>) im Oberflächenwasser : (a) September/Oktober, 1994, (b) Mai/ Juni, 2000. [Kershaw, et al., 2004]

## 2 Strömungen und Strömungsvorhersagen

Die mittlere Verweilzeit für  $^{99}\text{Tc}$  in der Irischen See beträgt etwa 0.9 Jahre, der Transport bis an die Ostküste Großbritanniens dauert 9-24 Monate [MCCUBBIN, et al., 2002]. Die Verteilung des  $^{99}\text{Tc}$  lässt sich anhand der Strömungsverhältnisse in der Irischen See vorhersagen (Abbildung 27).

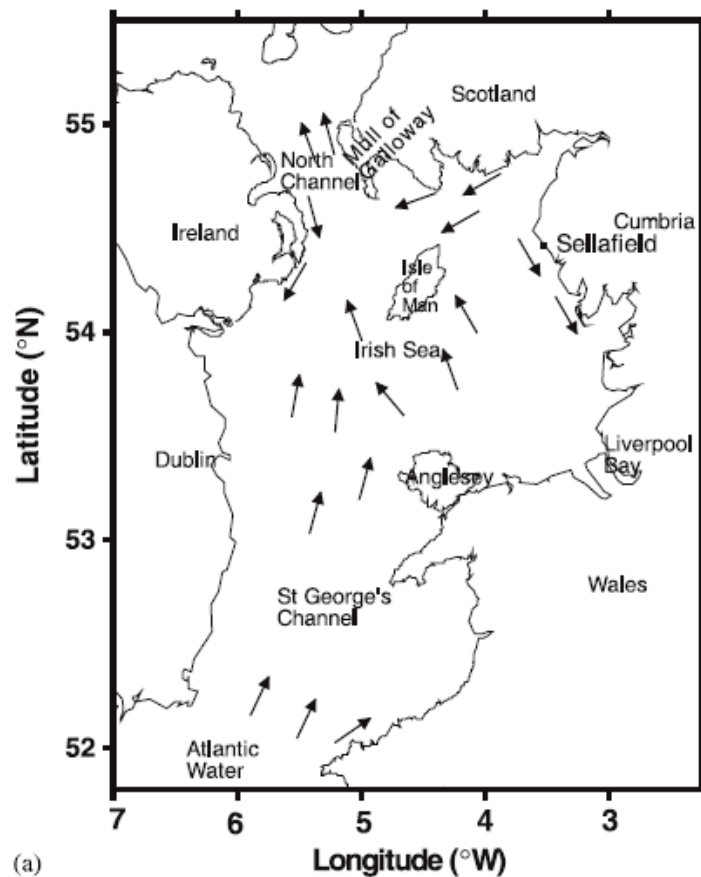


Abbildung 27: Mittlere Oberflächenrestströme in der Irischen See. (nach Dickson, 1987) [MCCUBBIN, et al., 2002]

Kershaw et al. haben die Transportzeiten von  $^{99}\text{Tc}$  aus Sellafield bis an verschiedene Untersuchungsstellen in der Nordsee anhand der maximalen Emission im Jahr 1994 bzw. 1995 analysiert (Tabelle 5) [Kershaw, et al., 2004]. Demnach dauert der Transport kontaminierter Wassermassen aus der Irischen See bis zum Eintritt in die Nordsee weniger als 1 Jahr, bis in die südliche Nordsee und zum Skagerrak ca. 2,5 Jahre und bis in das Seegebiet um Spitzbergen nur 4,5 Jahre.

Box	EARP signal observed	Approximate transport time	References
North Channel	May 1994	≤ 3 months	1,2
Pentlands	December 1994	< 9 months	1,2
NE Coast	December 1994	≤ 9 months	1,2
East Anglia	December 1996	≤ 2.5 years	1,2,3
NwCC-Utsira	November 1996	≤ 2.5 years	4,5
Skagerrak	November 1996	≤ 2.5 years	4
Hillesøy	July 1997	≤ 3.5 years	6
Ingøy-shoreline	August 1997	≤ 3.5 years	7
<i>Fucus</i>			
Fugløya	July 1998	≤ 4.5 years	8,9
WSC-Bear Island	July 1998	≤ 4.5 years	8,9
WSC-Spitsbergen	July 1998	≤ 4.5 years	8,9

References: (1) Leonard et al. (1997); (2) McCubbin et al. (2002); (3) Herrmann et al. (1995); (4) Brown et al. (1998); (5) Kershaw et al., 1999a; (6) Kolstad and Lind, 2002; (7) G Christensen pers comm.; (8) NRPA, 2001; (9) this study.

Tabelle 7: Erstes beobachtetes Auftauchen des EARP-zuordnenbaren Tc-99 in einer Serie von Meeresgebieten (Box) und implizierten Transportzeiten [Kershaw, et al., 2004].

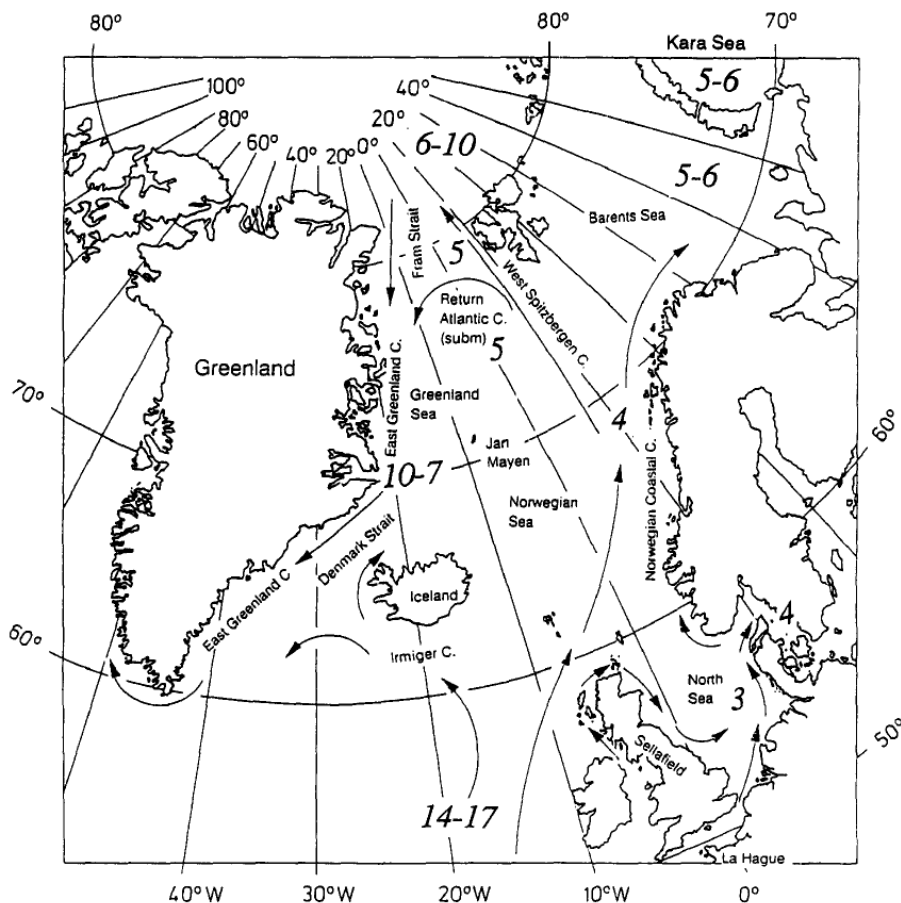


Abbildung 28: Wichtigste Oberflächenströmungen und Transportzeiten (in Jahren) aus der Anlage Sellafeld bis in die verschiedenen Meeresgebiete des Nordostatlantiks und Arktischer Gebiete. Die angezeigte Transportzeit (14-17 Jahre) für den Nordwest-Atlantischen Strom ist nach Dickson et al. (1988) abgeleitet relativ zum Polarwasser aus dem Ostgrönlandstrom (EGC) aus der Fram Straße bis in die Dänemarkstraße. Die Transportzeiten aus den Ableitungen aus der Anlage La Hague wären entsprechend zwei Jahre kürzer (Dahlgard, 1995).



## 2.1 Simulierte Konzentrationen

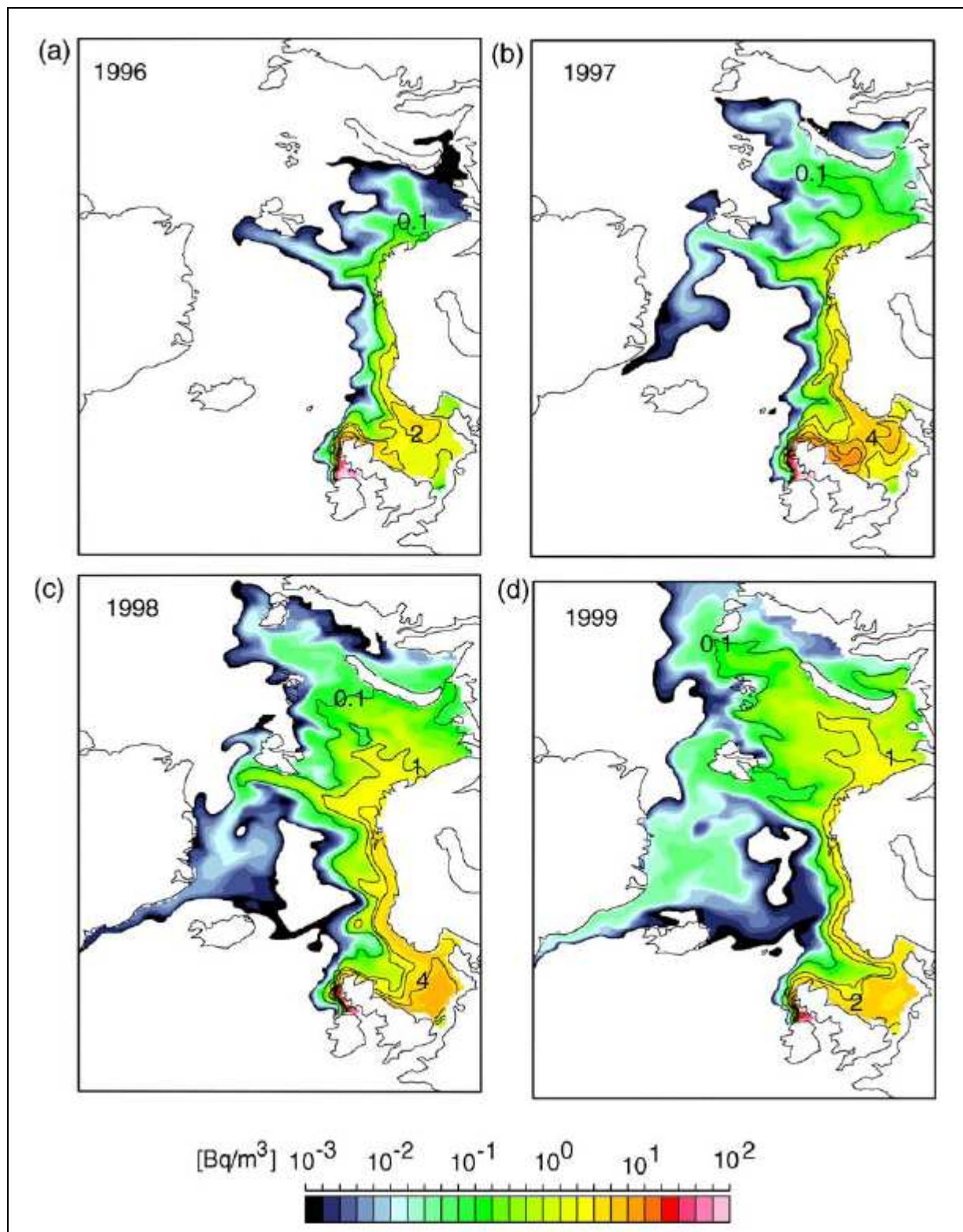
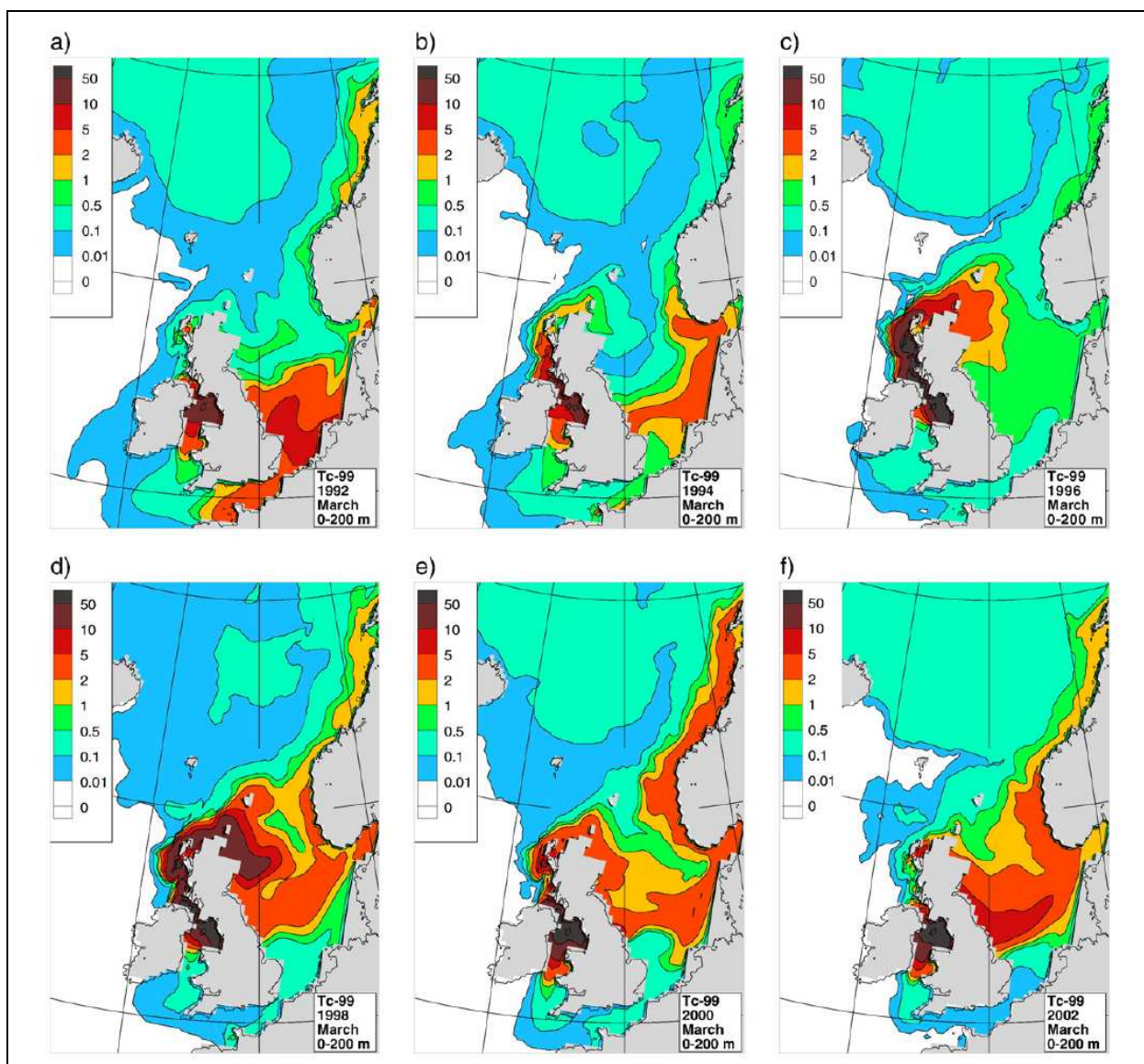


Abbildung 29: Simulierte Verteilung der Konzentration von Tc-99 ( $Bq/m^3$ ) im Oberflächenwasser für September (a) 1996, (b) 1997, (c) 1998 and (d) 1999, aus Modellierungsergebnissen (die Isolinien geben 0,1, 1,0, 2,0 und alle 2,0  $Bq/m^3$  an) [Karcher, et al., 2004].

Aufgrund früherer Beobachtungen und Modellresultaten kann davon ausgegangen werden, dass das Wasser, das  $^{99}\text{Tc}$  des EARP<sup>4</sup> enthält, im Arktischen Becken für die nächsten 15-30 Jahre in mittlerer Tiefe zirkulieren wird [Karcher, et al., 2004].

Für die obersten 200 m der Wassersäule ist von Orre et al. die Ausbreitung des  $^{99}\text{Tc}$  aus Sellafield und La Hague simuliert worden [ORRE et al., 2007]. Zu Beginn der Simulation im Jahr 1992 geht die stärkste Kontamination von La Hague entlang des Ärmelkanals bis zur Deutschen Bucht aus. Danach ist zu beobachten, wie die Emissionen aus Sellafield (Beginn der THORP-Anlage<sup>5</sup> im Verlauf der Jahre um die Nordspitze Englands herum an die Ostküste verbreiten und schließlich, dank der Strömung aus dem Ärmelkanal, entlang der Norwegischen Küste und Richtung Skagerrak verteilt werden (Abbildung 30).



**Abbildung 30: Simulierte Konzentrationen des Tc-99 (Bq/m<sup>3</sup>) im Oberflächenwasser aus den Ableitungen von Sellafield und La Hague, (a) März 1992, (b) März 1994, (c) März 1996, (d) März 1998, (e) März 2000, und (f) März 2002 [ORRE, et al., 2007].**

<sup>4</sup> EARP: Enhanced Actinide Removal Plant in der Anlage Sellafield

<sup>5</sup> THORP: Thermal Oxide Reprocessing Plant in der Anlage Sellafield



Orre et al. haben ebenfalls die Emissionen aus Sellafield im Vergleich zu denen aus La Hague dargestellt (Abbildung 31). So stammt zu Beginn der Simulation nur knapp 30 % der  $^{99}\text{Tc}$  in der Deutschen Bucht und der norwegischen Küste aus Sellafield, im weiteren Verlauf dominieren jedoch die Ableitungen aus Sellafield, nur im direkten Bereich um La Hague haben die dortigen Einleitungen noch einen Beitrag.

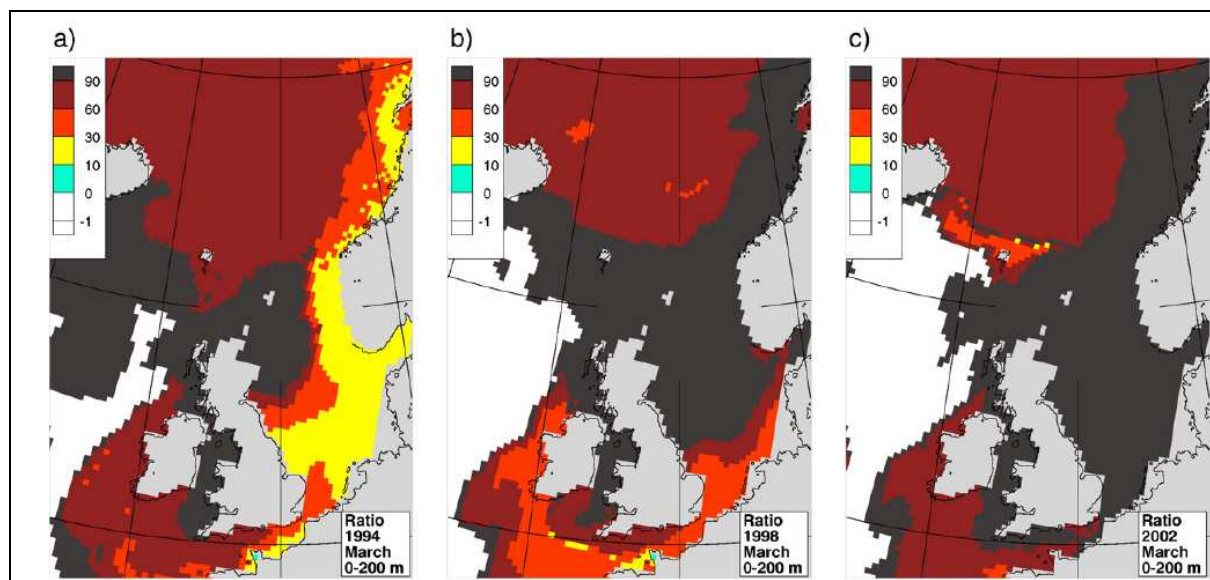


Abbildung 31: Anteil (in Prozent) der simulierten Konzentration des Tc-99 von Sellafield an der gesamten Konzentration (Sellafield + La Hague) im Oberflächenwasser, (a) März 1994, (b) März 1998 und (c) März 2002. Weiße Flächen zeigen eine geringe Totalkonzentration an, weniger als  $0.001 \text{ Bq/m}^3$  (-1 auf der Legende) [ORRE, et al., 2007].

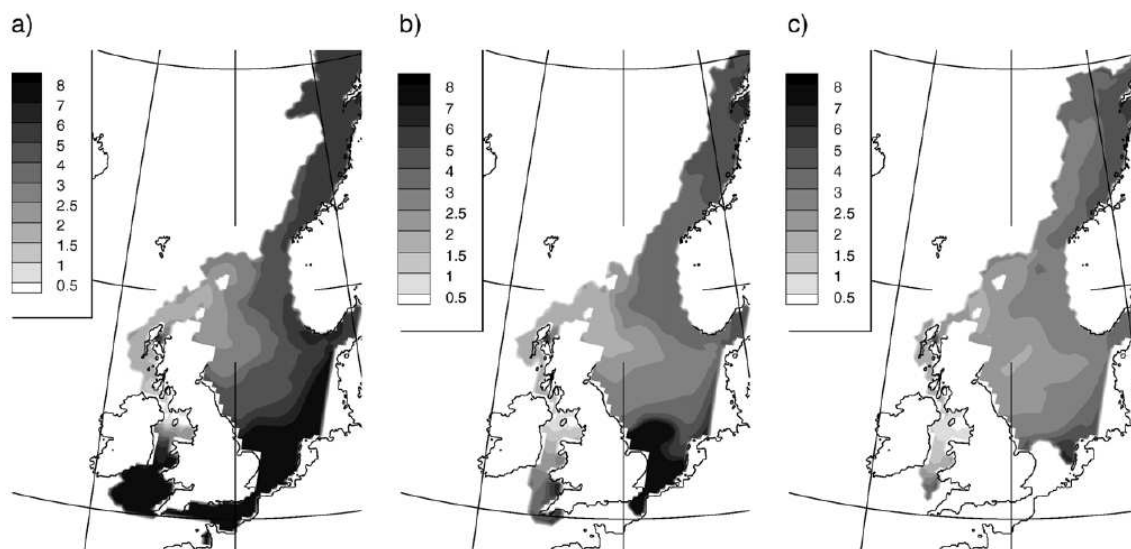


Abbildung 32: Simulierte Altersfelder (in Jahren) in der Wasseroberfläche eines idealisierten Wassertracers aus Sellafield, (a) März 1998, (b) März 2000 und (c) März 2002 [ORRE, et al., 2007].



### 2.1.1 Sr-90, Cs-137

Strontium besitzt neben vier stabilen ( $^{84}\text{Sr}$ ,  $^{86}\text{Sr}$ ,  $^{87}\text{Sr}$  und  $^{88}\text{Sr}$ ) 16 instabile Isotope, das wichtigste ist davon  $^{90}\text{Sr}$  mit einer Halbwertszeit von 28,8 Jahren. Es ist einer der energiereichsten Betastrahler. Es kann durch die spontane Spaltung von  $^{238}\text{U}$  gebildet werden und entsteht in relativ hoher Ausbeute in Kernreaktoren. Aufgrund des relativ hohen Strontiumgehaltes des Meerwassers von etwa 8,2 mg/L und dadurch gute Trägerung des radioaktiven  $^{90}\text{Sr}$ , besitzt dieses Radionuklid im Meer nur geringe Affinität, an Feststoffe gebunden oder in der Nahrungskette angereichert zu werden. Es wird daher in Biota auch kaum in nationalen oder internationalen Monitoringprogrammen überwacht.

Caesium besitzt nur ein stabiles Isotop ( $^{133}\text{Cs}$ ), alle anderen sind instabil und können nur künstlich erzeugt werden. Die Konzentration des Elementes Caesium im ozeanischen Meerwasser liegt um 0,4  $\mu\text{g/L}$  und ist daher erheblich geringer als diejenige von Strontium und wird deshalb weniger geträgert und dadurch stärker an Partikel gebunden oder in Biota angereichert. Der Anreicherungsfaktor  $C_F$  in Meeresfisch ist etwa 50 bis 100 (L/Kg).

Sowohl  $^{90}\text{Sr}$  als auch  $^{137}\text{Cs}$  wurden durch atmosphärische Kernwaffentests freigesetzt, ihr Aktivitätsverhältnis im globalen "Fallout" der atmosphärischen Kernwaffentests beträgt etwa  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  1,5. Da die Halbwertszeit mit 30,1 bzw. 28,8 Jahren recht ähnlich sind würde sich das Aktivitätsverhältnis in der Umwelt kaum ändern, wenn nicht geochemische Fraktionierungsprozesse das Verhältnis verschieben würden. Aus dem Fallout wird das  $^{90}\text{Sr}$  stärker über Flüsse in das Meer eingebracht als das  $^{137}\text{Cs}$  aus dem Fallout, da letzteres stärker an Tonminerale gebunden wird.

Das typische Verhältnis früherer Sellafield-Einleitungen für  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  lag vor 1985 über 5,9 und im Jahre 1976 sogar bei 11,3. Während der Jahre 1989 bis 1992 lag dieses Verhältnis ebenfalls deutlich über 3,0 (OSPARCOM, 1997; MAFF, 1995), das Aktivitätsverhältnis der Einleitungen aus La Hague hingegen liegt heutzutage meist bei unter 0,2.

Eine Trennung des  $^{137}\text{Cs}$  vom „fallout“ aus dem Tschernobyl-Unfall von den atmosphärischen Kernwaffentests war ebenfalls möglich, da das Isotop  $^{134}\text{Cs}$  gebildet wird. Das Verhältnis  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  beträgt 1:2, allerdings hat  $^{134}\text{Cs}$  eine Halbwertszeit von nur ca. 2 Jahren. Somit sind die von atmosphärischen Kernwaffentests der 50er und 60er Jahre des 20. Jahrhunderts erzeugten Anteils an  $^{134}\text{Cs}$ -Isotope schon vollständig zerfallen, aber auch das  $^{134}\text{Cs}$  aus dem Tschernobyl Unfall ist inzwischen in der Ostsee nicht mehr nachweisbar.

### 2.1.2 H-3 Tritium

Wie bereits oben erwähnt ist Tritium sowohl ein natürlich ständig nachgebildetes Radionuklid als auch eines, das in der Kerntechnik künstlich gebildet wird. Die Spaltausbeute liegt etwa bei 0,01 % bei Uranspaltung mit thermischen Neutronen, so dass es auch im abgebrannten Abfall auftritt und aus Wiederaufbereitungsanlagen emittiert wird. Höhere Emissionen erfolgen aus Schwerwasserreaktoren. Es besitzt eine Halbwertszeit von 12,34 Jahren. Eine Anreicherung findet im Meer normalerweise nicht statt, da es fast ausschließlich als tritiiertes Wasser vorliegt. Tritium - zum Teil in Kombination mit Freon-Verbindungen - dient in der Meeresforschung auch dazu, die Tiefenventilation der Wassermassen zu studieren (vgl. Sültenfuß, 1998). Das natürliche Inventar wurde durch die atmosphärischen Nukleartests um etwa einen Faktor 100 erhöht. Tritium wird häufig auch durch massenspektroskopisch über sein stabiles Zerfallsprodukt Helium-3 bestimmt. Der Eintrag von Tritium in das Meer erfolgt über den Süßwasserkreislauf aus der Atmosphäre oder über die Flüsse, so dass sich beispielsweise in Nord- und Ostsee eine deutliche Abhängigkeit der Konzentration vom Süßwasseranteil ergibt. Als Maßeinheit für die Konzentration dient auch häufig die Einheit TU (Tritium Units). Eine TU entspricht dabei der Anteil von einem Tritium Isotop auf  $10^{18}$  Wasserstoffatome, wobei gilt: 1 TU = 0,118 Bq.

### 2.1.3 Aktinide: Pu-238, Pu-239/240, Am-241

Im Rahmen der jährlichen Monitoringaufnahmen des BSH in Nord- und Ostsee werden ebenfalls eine Reihe von Transuranen bestimmt. Als wichtigste Transurane sind hierbei die Plutoniumisotope 238, 239, 240 und 241 zu nennen.  $^{241}\text{Pu}$  zerfällt mit einer Halbwertszeit von 14,4 Jahren über einen Beta-Zerfall in das Transuran  $^{241}\text{Am}$ . Plutonium und Americium werden im BSH alpha-spektrometrisch bestimmt nach chemischer Anreicherung und Elektroplattierung. Die Alpha-Energien des  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{240}\text{Pu}$  der emittierten Alpha-Teilchen liegen beide sehr nahe beieinander (5,24 und 5,25 MeV), so dass sie alpha-spektrometrisch nicht zu unterscheiden sind. Das Ergebnis wird daher immer als Summe  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  angegeben.  $^{238}\text{Pu}$  weist eine Halbwertszeit von 87 Jahren auf,  $^{239}\text{Pu}$  eine von 24100 Jahren und  $^{240}\text{Pu}$  eine von 6564 Jahren. Plutonium gehört zu den mehr reaktiven Elementen in der Meeresumwelt, so dass es eine hohe Affinität besitzt, an Partikel anzulagern und im Sediment gebunden zu werden. Plutonium liegt überwiegend im oxischen Meerwasser als Pu (V) oder Pu (VI) vor.

Das Radionuklid  $^{241}\text{Am}$  zerfällt zum  $^{237}\text{Np}$  und besitzt eine Halbwertszeit von 433 Jahren. Neben der Emission an Alpha-Teilchen werden auch Gamma-Quanten emittiert, so dass häufig auch versucht wird,  $^{241}\text{Am}$  in Umweltproben mittels der Linie bei 60 keV zu bestimmen. Dies kann jedoch problematisch sein, da bei 59 keV auch Zerfallsprodukte des Urans Linien aufweisen.

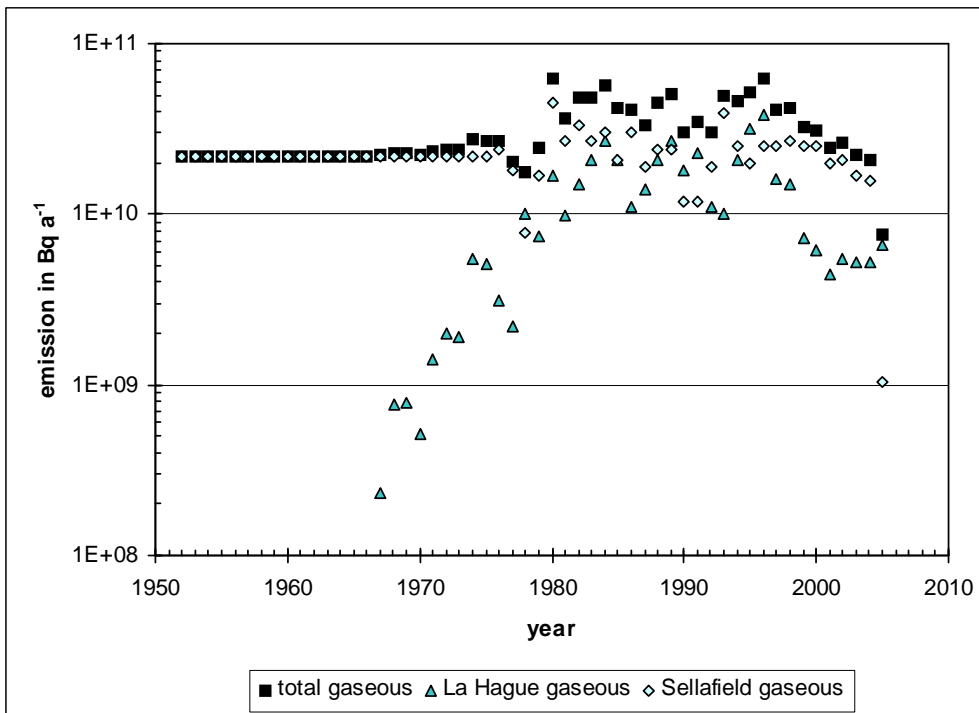
Im globalen Fallout geht man bei den Plutonium-Isotopen von einem Aktivitätsverhältnis von etwa 0,04 zwischen  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  aus, so dass hierüber andere Quellen zu erkennen sind. Zwischen  $^{241}\text{Am}$  und  $^{239,240}\text{Pu}$  ist das Verhältnis etwa 0,3. Im Einflussbereich der Wiederaufbereitungsanlagen wurden jedoch auch vollständig andere Verhältnisse bestimmt. Der Anteil an  $^{238}\text{Pu}$  lag zum Teil über dem des  $^{239,240}\text{Pu}$ , so dass auch hieraus die Quelle erkannt werden kann. Von der Anlage Sellafield wurde ca. 600 kg Plutonium insgesamt emittiert, wovon ein beträchtlicher Teil im feinkörnigen Sediment der Irischen See deponiert ist.

Messdaten in der Nordsee dieser Transuranisotope dienen der Vervollständigung der vorliegenden Untersuchung.

## 2.2 Emissionen aus den europäischen Wiederaufbereitungsanlagen

### 2.2.1 Iod-129

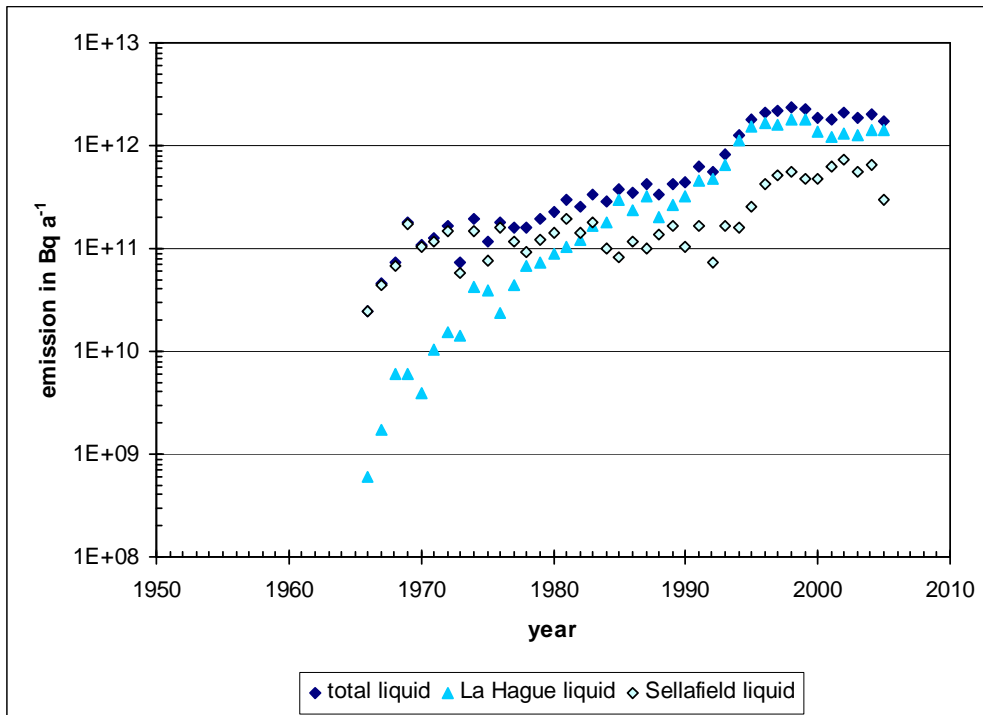
Wie im Abschnitt 1.2 bereits angesprochen, stellen die europäischen Wiederaufbereitungsanlagen in La Hague und Sellafield die Hauptquellen von anthropogenen  $^{129}\text{I}$  dar. Die Abbildung 33 und Abbildung 34 zeigen den zeitlichen Verlauf der Emissionen



**Abbildung 33: Luftgetragene  $^{129}\text{I}$ -Ableitungen aus La Hague und Sellafield in Bq pro Jahr (Raisbeck und Yiou, 1995; Gray et al., 1995; Parker, 2001; Webmaster Cogema, 2001; BNFL, 1999; Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999; Cogema, 2003; Areva, 2003 und 2005; Environment Agency, 2005 und 2006).**

Die Emissionsmuster der beiden Anlagen unterscheiden sich in Hinblick auf den Emissionspfad und Menge des abgeleiteten  $^{129}\text{I}$  (s. Abbildung 33 und Abbildung 34). Etwa 70 % der gesamten  $^{129}\text{I}$ -Emissionen stammen aus La Hague. 85 % der aus Sellafield und 97 % der aus La Hague stammenden Emissionen wurden in flüssiger Form abgeleitet, luftgetragene Emissionen leisten einen geringeren Beitrag. Während sich die luftgetragenen Freisetzungen aus Sellafield seit 1952 nahezu konstant innerhalb einer Größenordnung hielten, stiegen die aus La Hague in dem Zeitraum von 1966 bis 1996 um mehr als zwei Größenordnungen an, nahmen danach wieder um eine Größenordnung ab und liegen heute unter denen aus Sellafield.

Die flüssigen Emissionen aus La Hague stiegen von 1966 bis 1995 nahezu gleichmäßig an, stagnierten dann und nahmen seit dem Jahr 2000 geringfügig ab. Zu Beginn der Freisetzungen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen leistete Sellafield einen größeren Beitrag, 1983 zog La Hague gleich und seit dem liegt La Hague bezüglich der flüssigen Emissionsmengen deutlich über denen aus Sellafield.



**Abbildung 34: Flüssige <sup>129</sup>I-Ableitungen aus La Hague und Sellafield in Bq pro Jahr (Raisbeck and Yiou, 1995; Gray et al., 1995; Parker, 2001; Webmaster Cogema, 2001; BNFL, 1999; Groupe Radioécologie Nord-Cotentin, 1999; Cogema, 2003; Areva, 2003 und 2005; Environment Agency, 2005 und 2006).**

Betrachtet man die summierten luftgetragenen Emissionen aus La Hague und Sellafield, so sind diese bis 1979 mit etwa 20 GBq pro Jahr relativ konstant. Später stiegen sie mit starken zeitlichen Schwankungen auf über 60 GBq pro Jahr an. Im Jahr 1997 wurden die luftgetragenen Emissionen aus La Hague deutlich reduziert. Auch Sellafield reduzierte die Ableitungen, so dass die Summe der luftgetragenen Ableitungen seit dem Maximum im Jahr 1996 (63 GBq) abnahm und seit dem Jahr 2000 unter 31 GBq pro Jahr liegen. Bis zum Jahr 2005 ist eine weitere Reduzierung dieser Emissionen zu beobachten.

Diese anthropogenen Einflüsse ändern die Häufigkeit des in der Umwelt auftretenden <sup>129</sup>I. Es vermischt sich mit dem stabilen <sup>127</sup>I. Da die <sup>127</sup>I-Vorkommen in der Umwelt sehr unterschiedlich sind, hat es sich bewährt, das Stoffmengenverhältnis  $n(^{129}\text{I})/n(^{127}\text{I})$ , welches im Allgemeinen auch Isotopenverhältnis genannt wird, zu diskutieren. Im Gegensatz zu Aktivitätskonzentrationen oder weiteren gebräuchlichen Einheiten lässt sich mit dem Isotopenverhältnis sofort das Ausmaß der Beeinflussung durch den Menschen erfassen (Klipsch, 2005).

### 2.2.2 Tc-99

Wie bereits oben ausgeführt, liegt das Technetium im oxischen Meerwasser hauptsächlich als Perotechnetat ( $\text{TcO}_4^-$ ) vor (Beasley, T.M. and Lorz, H.V., 1984). Es wird deshalb kaum an Partikel angereichert. Auch die Anreicherung in Fisch ist mit einem  $C_F$  von 10 bis 30 relativ gering. Ein sehr hoher Anreicherungsgrad findet jedoch in Braunalgen wie Blasentang (*Fucus vesiculosus*) oder Sägezähntang (*Fucus serratus*) mit Anreicherungs-faktoren über  $10^5$  statt (IAEA, 1985; Beasley, T.M. and Lorz, H.V., 1984). Aus diesen Tangarten wurde früher Jod gewonnen. Das Technetium wird hierbei offensichtlich als Analogon zum Iod aufgenommen. Die Anreicherung in diesen Arten wurde auch benutzt, um den Transport von mit <sup>99</sup>Tc kontaminierten Wassermassen in andere europäische Gewässer zu studieren (Holm et al., 1984; Holm, 1986). Seit Jahren ist auch bekannt, dass Technetium in Hummer stark angereichert wird (Knowles et al., 1998; Smith et al.; Smith et al., 2003). Der Konzentrationsfak-

tor liegt bei deutlich über 1000. Die Anreicherung erfolgt überwiegend im Hepatopankreasstrakt und viszerale Organen (bis zu 10.000), aber weniger im Fleisch. Die Anreicherung im Hummer scheint jedoch eine Ausnahme zu sein, da bei anderen Krustentieren eine hohe Akkumulation nicht beobachtet wurde. In den neunziger Jahren wurden spezifische Aktivitäten in den inneren Organen von Hummer aus der Irischen See von bis zu 20 kBq/kg gemessen, gemittelt über den Körper lagen die Werte bei 13 kBq/kg. Dies entspricht einem Gehalt von etwa 20 ng/g oder 20 ppb.

Die Ableitungen von  $^{99}\text{Tc}$  seit 1990 aus der Anlage Sellafield in die Irische See sind in Tabelle 8 aufgeführt (OSPAR), wobei die Ableitungen auch einmal als Masse angegeben wird:

**Tabelle 8: Jährliche Ableitungen von  $^{99}\text{Tc}$  aus der Wiederaufbereitungsanlage Sellafield in die Irische See. Angaben in TBq/Jahr bzw. in kg/Jahr. Datenquelle OSPAR.**

Jahr	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998
Ableitung in TBq/a	3,8	3,9	3,2	6,1	72	190	150	84	53
Ableitung in kg/a	6,08	6,24	5,12	9,77	115	304	240	134	84,8
Jahr	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007
Ableitung in TBq/a	69	44	79	85	37	14	7	6	-
Ableitung in kg/a	110	70,4	126	136	59,2	22,4	11,2	9,61	-

Mit den deutlich erhöhten Ableitungen aus der Anlage Sellafield ab 1994 wurde damit auch ein Eintrag über mehrere Jahre verursacht, so dass der Wassermassentransport aufgrund der sehr langen Halbwertszeit von 214.000 Jahren über viele Jahrzehnte im Weltozean verfolgt werden kann. Als Vergleich ist die Ableitung jeweils noch in kg angegeben. 1 TBq entspricht hierbei 1600 g  $^{99}\text{Tc}$ . Es ist nicht bekannt, dass Technetium als Element toxische Eigenschaften hat, da es sich chemisch ähnlich dem Mn oder dem höheren Homologen Rhenium verhält.

### 2.2.3 Sr-90, Cs-137

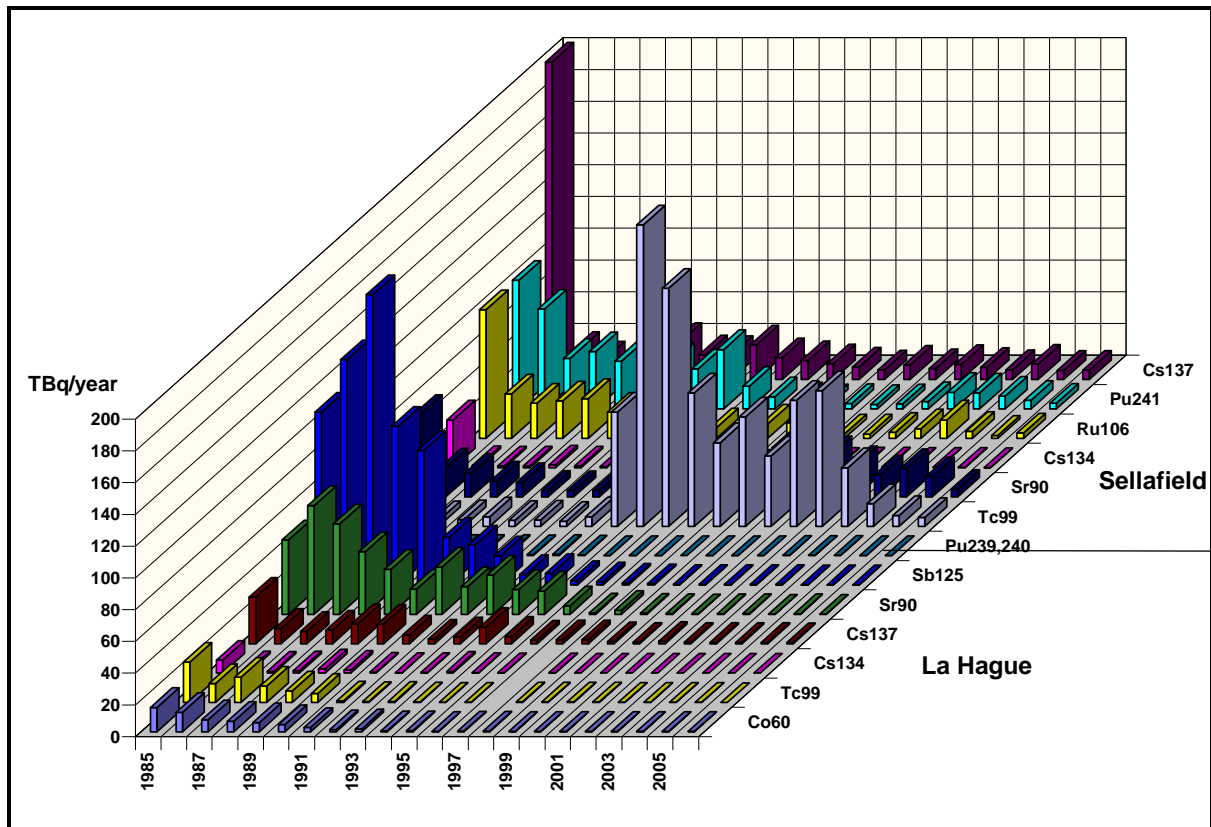
Die Literatur über diese beiden Radionuklide in der Umwelt ist unzählig. Dies liegt einerseits an der relativ hohen Spaltausbeute und dem daraus resultierenden Vorkommen in der Umwelt als auch daran, dass diese beiden Radionuklide für eine Dosis durch Ingestion mit die wichtigsten Nuklide sind, die längerfristig zur Exposition des Menschen beitragen. Beide Radionuklide gelangten weltweit durch die atmosphärischen Kernwaffentests in die Umwelt. In der Nordsee waren sie seit vielen Jahrzehnten infolge der radioaktiven flüssigen Ableitungen aus den Wiederaufbereitungsanlagen Sellafield und La Hague nachzuweisen. In den letzten Jahren wurden diese Einträge aber deutlich reduziert, so dass der dominierende Anteil heute in der Nordsee der globale Fallout ist.

$^{137}\text{Cs}$  zusammen mit dem  $^{134}\text{Cs}$  wurde nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl im April 1986 in einem charakteristischen Aktivitätsverhältnis für  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  von etwa 0,54 freigesetzt, so dass einige Jahre die Quelle der Kontamination in diesem Unfall identifiziert werden konnte. Die Halbwertszeit von  $^{134}\text{Cs}$  beträgt 2,06 Jahre, so dass aus dem Fallout von Tschernobyl heute dieses Isotop in Nord- und Ostsee nicht mehr nachweisbar ist.  $^{90}\text{Sr}$  war im Fallout von Tschernobyl nur im Nahbereich relevant. In den vergleichsweise hohen Kontaminationen in der Ostsee 1986 und 1987 lag der Anteil an  $^{90}\text{Sr}$  etwa bei 0,01 im Verhältnis zu  $^{137}\text{Cs}$ .

In früheren Jahren unterschieden sich die Ableitungen der Anlagen Sellafield und La Hague – damals auf einem wesentlich höheren Niveau als heute – sehr stark in dem Aktivitätsver-

hältnis von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$ . Die Anlage La Hague emittierte relativ mehr  $^{90}\text{Sr}$  als  $^{137}\text{Cs}$ , bei der Anlage Sellafield überstieg der Anteil an  $^{137}\text{Cs}$  deutlich den Aktivitätsanteil an  $^{90}\text{Sr}$ . Das Aktivitätsverhältnis ermöglichte die Unterscheidung der Kontaminationsquelle in der Nordsee. Erst im Seegebiet des Skagerraks vermischten sich die beiden Wassermassen.

In Abbildung 35 sind die aquatischen Ableitungen einiger Radionuklide zwischen den Anlagen Sellafield und La Hague seit 1985 dargestellt. Die Ableitungen Mitte der 70er Jahre von Sellafield (damals noch Windscale) waren noch erheblich höher. Für  $^{137}\text{Cs}$  lagen sie bei 5200 TBq im Jahr 1975. Ein Teil dieser Radiocaesiumnuklide wurden im Sediment der Irischen See gebunden. Resuspendiertes Material aus dem Sediment ist heute die Hauptquelle der Caesiumkontamination der Irischen See und der Nordsee, da die Ableitungen inzwischen ein sehr niedriges Niveau erreicht haben. In dieser Abbildung werden neben den in dieser Arbeit schwerpunktmäßig betrachteten Radionuklide I-129, Tc-99, Cs-137, Sr-90 auch noch die Ableitungen von Co-60, Sb-125 aus La Hague und Ru-106 und Pu-241 aus Sellafield dargestellt, weil sie im Nuklidvektor früherer Jahre wesentlich waren. Zum Teil wurden auch diese Radionuklide mit den Meeresströmungen bis in die Deutsche Bucht verfrachtet und waren hier nachzuweisen. Sie spielen aufgrund der kürzeren Halbwertszeit und geringer radiologischer Relevanz jedoch kaum eine Rolle.

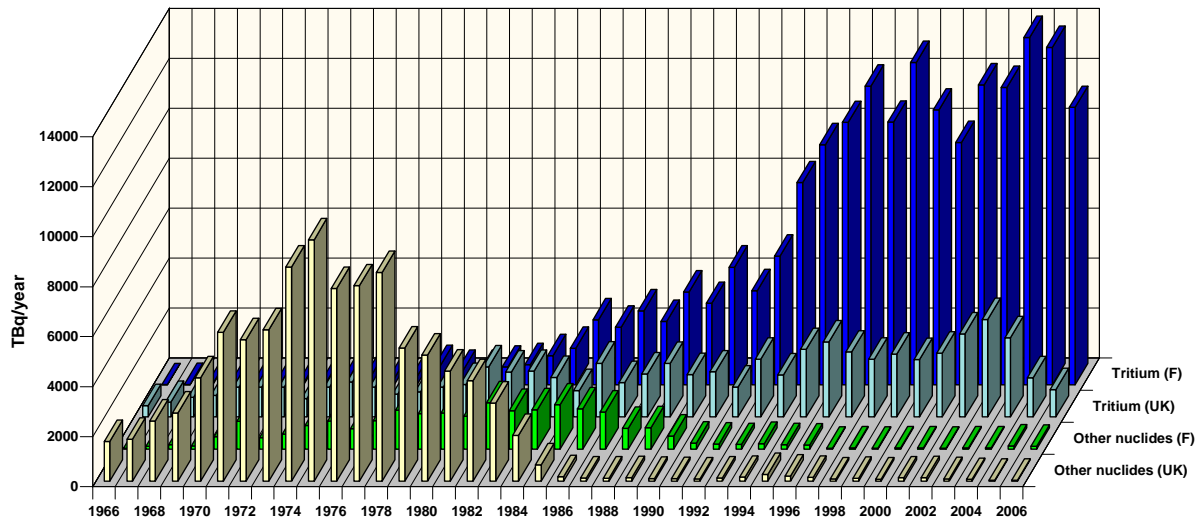


**Abbildung 35: Aquatische Ableitungen relevanter Radionuklide seit 1985 aus den Wiederaufbereitungsanlagen Sellafield und La Hague. Angaben in TBq/Jahr.**

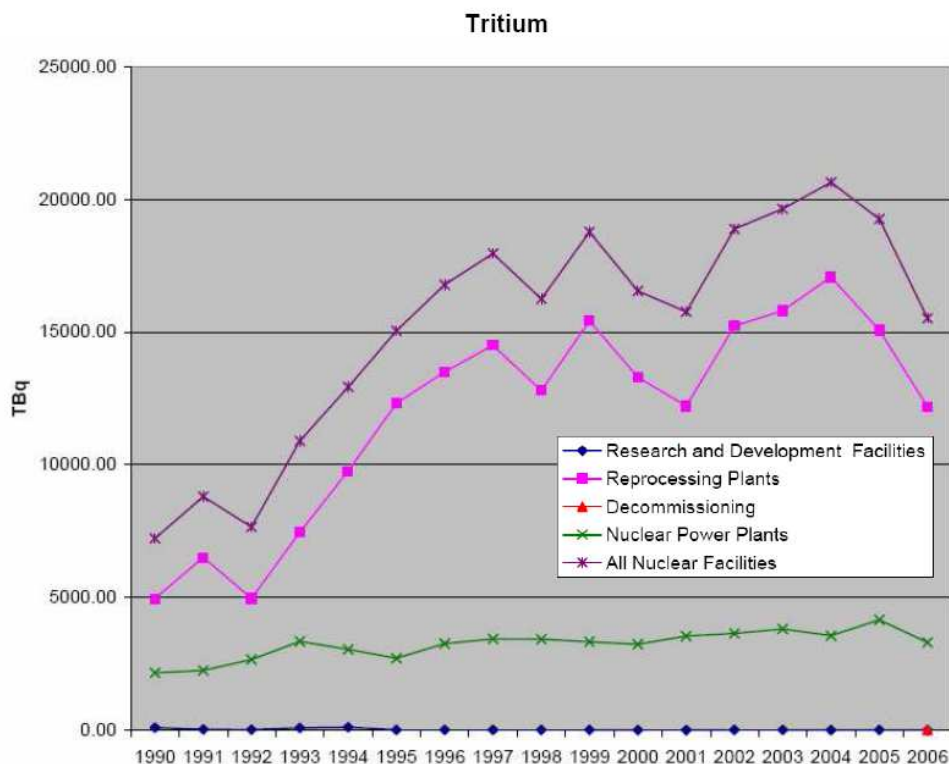
## 2.2.4 Tritium

Flüssige Emissionen von Tritium sind auch aus anderen kerntechnischen Einrichtungen in der Nordsee nachweisbar. In Abbildung 36 sind die Ableitungen aus den Anlagen Sellafield und La Hague für Tritium im Vergleich zu anderen Radionukliden dargestellt (OSPAR RSC, 2008). Es wird deutlich, dass die Ableitungen aus der Anlage La Hague seit mehr als zehn Jahren diejenigen der Anlage Sellafield übertreffen, wobei die Ableitungen stark schwankend

sind. Tritium ist bezüglich der Aktivität das dominierende Nuklid. Dies war Mitte der siebziger Jahre anders, als damals das dominierende Nuklid  $^{137}\text{Cs}$  war. Abbildung 37 vergleicht die Ableitungen an Tritium auch aus anderen nuklearen Quellen im OSPAR Meeresgebiet. Hier wird deutlich, dass die aquatischen Ableitungen aus Kernkraftwerken erheblich geringer sind. Aus Abbildung 37 wird ersichtlich, dass die Tritium-Ableitungen aus Forschungs- und Entwicklungszentren keinen signifikanten Beitrag leisten.



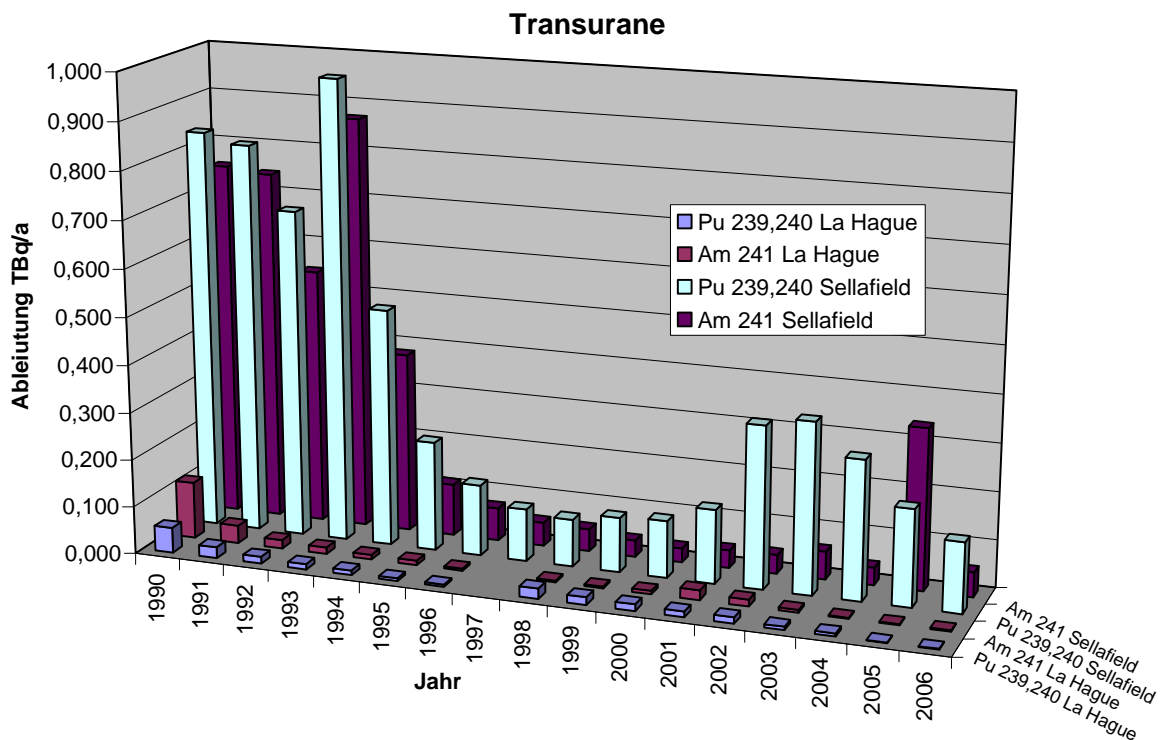
**Abbildung 36: Flüssige Ableitungen von Tritium und anderen Radionukliden aus den Wiederaufbereitungsanlagen Sellafield (UK) und La Hague (F) seit 1966.**



**Abbildung 37: Flüssige Ableitungen von Tritium aus allen kerntechnischen Einrichtungen in das OSPAR Kommissionsgebiet im Nordatlantik seit 1990 bis 2006 (Datenquelle: OSPAR, Radioactive Substance Committee, 2008).**

## 2.2.5 Aktinide: Pu-238, Pu-239/240, Am-241

In Abbildung 38 sind die flüssigen Ableitungen an Transuranen aus den Anlagen Sellafield und La Hague in die Irische See bzw. den Kanal dargestellt. Die Abbildung macht deutlich, dass die Ableitungen aus der Anlage La Hague gegenüber denjenigen aus Sellafield nur eine untergeordnete Rolle spielen. Das Aktivitätsverhältnis der Ableitungen weist eine große Variabilität auf, so dass kaum ein Rückschluss auf die Quelle möglich ist. Die Verhältnisse (hier nicht dargestellt) zwischen den Plutonium-Isotopen 238 und 239,240 sind jedoch vollständig andere als im globalen Fallout, so dass zumindest bei den Messungen in der Nordsee diese Quelle keine Rolle spielt. Überwiegend werden Transurane aus den Wiederaufbereitungsanlagen nachgewiesen.



**Abbildung 38: Jährliche flüssige Ableitungen aus den Anlagen Sellafield und La Hague der Transurane  $^{239,240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  in TBq/a seit 1990 (OSPAR RSC, 2008).**

## 2.3 Radioökologie

Die Radioökologie befasst sich mit den Eigenschaften und dem Verhalten von radioaktiven Stoffen in der Umwelt. Dabei werden die für den Menschen kritischen Expositionspfade ermittelt und die resultierende Strahlenexposition abgeschätzt. Weitreichende radioökologische Kenntnisse sind Bewertungsgrundlage von Kontaminationen in der Umwelt. So können im Falle unfallbedingter Freisetzungen die Folgen abgeschätzt und Vorschläge für Maßnahmen erarbeitet werden. Radioökologische Kenntnisse dienen auch als Grundlage bei der Ableitung von Referenzwerten für Abluft, Abwasser und Abfälle aber auch für Nahrungsmittel.

Im folgenden Abschnitt wird die Radioökologie des Iod-129 und des Tc-99 ausführlich besprochen, die wesentlichen Eigenschaften der anderen Nuklide wurden in den Abschnitten 1.2 und 2.2 vorgestellt.



### 2.3.1 Iod-129

Es gibt bereits eine Fülle von Untersuchungen, die sich mit der Radioökologie des  $^{129}\text{I}$  beschäftigen. Ein Überblick über diese Arbeiten können dem Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben StSch 4285 (Michel et al., 2004b) entnommen werden. Künstliches und natürliches  $^{129}\text{I}$  begeben sich in der Umwelt ins Gleichgewicht mit dem stabilen  $^{127}\text{I}$ . Es findet eine Vermischung statt, daher sind die Wege des  $^{129}\text{I}$  durch die Umwelt und letztendlich auch zum Menschen nur bei genauer Kenntnis über das Verhalten des  $^{127}\text{I}$  möglich. Etliche Modelle stellen den globalen Iodkreislauf dar (u. a. Fabryka-Martin, 1984; Bonka, 1982). Das komplexe Verhalten kann dabei nicht vollständig beschrieben werden, aber es ist möglich einen ersten Überblick und ein grundlegendes Verständnis über Transportvorgänge in der Umwelt zu erhalten.

Man unterscheidet die freien und gebundenen Inventare des Iods in der Umwelt. Das freie Iodinventar tauscht zwischen Atmo-, Hydro-, Pedo- und Biosphäre aus. Das gebundene Inventar ist z. B. im Erdinneren oder in Gesteinen so fixiert, dass es nicht am globalen Iodaustausch teilnimmt. Für den Menschen sind besonders die terrestrische Biosphäre und die Pedosphäre bei Ermittlung der Strahlenexposition relevant. Eine ausführliche Betrachtung ist der terrestrischen Biosphäre im Abschlussbericht des Forschungsvorhabens StSch 4285 (Michel et al., 2004b und weitere dort angegebene Literaturstellen) zu finden. In diesem Bericht kommt dem Transportweg des Iods aus dem Meer über die Atmosphäre zum Festland besondere Bedeutung zu.

Wie im Abschnitt 2.4 ausführlicher beschrieben wird, sind Iodverbindungen in der Lage, die Meere an der Phasengrenzfläche flüssig / gasförmig zu verlassen. Die in die Atmosphäre übergegangenen Iodverbindungen werden z. B. durch Wind ins Landesinnere transportiert. Die Chemie des Iods in der Atmosphäre ist sehr kompliziert. Um ein Verständnis über die Umweltchemie zu erhalten, sind umfangreiche Speziationsbestimmungen notwendig. In der Atmosphäre tritt es als anorganisches Gas (z. B.  $\text{HI}$ ,  $\text{HOI}$ , oder  $\text{I}_2$ ), organisches Gas (Alkylhalogenide und komplexere Verbindungen), als Aerosol und an Partikeln gebunden auf. Photochemische Reaktionen lassen die Iodspezies in andere Verbindungen umwandeln. Die Verweilzeiten der unterschiedlichen Iodspezies in der Atmosphäre liegen zwischen 10 Tagen für anorganisches Iod, 14 Tagen für partikulär gebundenes Iod und für organisch gebundenes Iod bei 18 Tagen. Die relativ lange Verweilzeit der Alkyliodide in der Atmosphäre können durch die größere Stabilität der Verbindungen erklärt werden (Rahn et al., 1976). Die lange Verweilzeit des Iods in der Atmosphäre erlaubt dessen globale Verteilung über die Kontinente.

Durch nasse und trockene Deposition wird das Iod auf Pflanzen und Böden abgeschieden. Bei der nassen Deposition durch Regen ist als allgemeiner Trend zu beobachten, dass die Iodgehalte im Regenwasser, die üblicherweise zwischen 0,2 ng/g und 15 ng/g liegen, mit zunehmendem Abstand zum Meer und steigender Höhe abnehmen. Da trockene Deposition ebenfalls mit wachsendem Abstand zu Meer an Bedeutung verliert, sinken die Iodgehalte der Böden in Richtung des Landesinneren (Fabryka-Martin, 1984). Die Verweilzeit des Iods in der Atmosphäre ist groß genug, um einen Transport in alle kontinentalen Gegenden zu ermöglichen. Trockene und nasse Deposition werden im Abschnitt 2.4 ausführlicher beschrieben. Durch Regenwasser kann auf der Pedo- und Biosphäre deponiertes Iod wieder weggespült werden. Es wird über Flüsse ins Meer transportiert. Die Iodkonzentrationen im Flusswasser reichen von 0,1 ng/g bis 40 ng/g, dabei scheint Iodid die am häufigsten vorkommende Iodspezies zu sein. In Böden ist Iod im Vergleich zu den anderen Kompartimenten um etwa einen Faktor 1000 angereichert. Die relativ hohen Iodkonzentrationen von 1 bis 50  $\mu\text{g/g}$  wurden in der Vergangenheit häufig mit der schweren Löslichkeit der Produkte aus der Gesteinsverwitterung erklärt, inzwischen besteht aber weitestgehend darin Einigkeit, dass das Meer bzw. die Seeluft Quelle des Iods auf dem Festland ist. Begründet werden kann dieses mit mehreren analytischen Befunden: die Iodgehalte in Böden nehmen mit zunehmendem Abstand zum Meer, mit größer werdender Tiefe und mit abnehmender Niederschlagsintensität ab (Fabryka-Martin, 1984 und dort angegebene Literaturstellen). Bodenkol-

loide können das Iod aus der Atmosphäre an sich binden. Dabei sind nicht nur physikalische Absorption und Ionenaustausch von Bedeutung, es finden auch chemische Reaktionen statt. Iod aus Gesteinsverwitterung kann, wenn es sich um lösliche Verbindungen handelt, vom Regenwasser fortgespült und in Flüsse eingetragen werden. Nach dieser Mobilisierung kann es sich den Weg zurück ins Meer bahnen, alternativ kann ein vertikaler Transport zum Grundwasser stattfinden. Die Mobilität des Iods in Böden und dessen Chemie wird widersprüchlich diskutiert und ist mit großen Unsicherheiten behaftet. Die Mobilität bestimmt u. a. Wasserlöslichkeit und Wanderungsgeschwindigkeiten des Iods in Böden, was sich wiederum darauf auswirkt, ob sich das Iod in Flüsse oder in Richtung Grundwasser bewegt.

In Gesteinen ist aufgrund des relativ großen Ionenradius des Iodids (220 pm) nicht mit einem Austausch von Fluorid-, Chlorid- und Hydroxidionen zu rechnen, deren Ionenradien bei 1,25 pm, 1,72 pm und 1,32 pm liegen. Interessanterweise sind in gesteinsbildenden Mineralien und Eruptivgestein die Iodgehalte ähnlich denen der anderen Halogene und liegen im Bereich zwischen 0,1 µg/g und 0,5 µg/g. Die Löslichkeit des Iods in Granitblöcken liegt zwischen 60 % und 100 %, scheinbar ist nur ein kleiner Anteil des Iods fest ins Gesteinsgitter eingebaut. Ein Großteil liegt als flüssiger oder fester Einschluss vor. Diese Vermutung wird durch die schnelle Verarmung von Gesteinen an Iod während deren Verwitterung untermauert.

Sedimentgestein zeigt größere Variationen in den Iodgehalten als Eruptivgestein. Sehr hohe Iodgehalte werden mit 72 µg/g in Ölschiefer beobachtet.

Einige terrestrische Evaporite, damit bezeichnet man ein Verdampfungs- oder Eindunstungsgestein, sind mit bis zu 1700 µg/g äußerst iodreich. Ein bekanntes Beispiel dafür ist der große Iodatgehalt in Chilesalpeter.

Auch in ozeanischen Sedimenten ist Iod stark angereichert, dort erstrecken sich die Iodkonzentrationen von 2 µg/g bei grobkörnigem Sand bis zu 2000 µg/g in der obersten Schicht, die reich an organischen Bestandteilen ist. Die Anreicherung des Iods in den Sedimenten korreliert mit dem Kohlenstoffanteil. Innerhalb der oberen Schicht zwischen 0,1 m und 1,0 m nehmen der Kohlenstoffgehalt und damit auch der Iodanteil exponentiell ab. Typische Iodgehalte liegen bei etwa 1 m Tiefe in den Sedimenten zwischen 15 und 200 µg/g. Aber im Gegenzug dazu nimmt der Iodanteil im Porenwasser der Sedimente mit der Tiefe zu und liegt zwischen ein und zwei Größenordnungen über dem Iodgehalt im Meerwasser. Das Porenwasser wird bei der schwerkraftbedingten Verdichtung tieferliegender Sedimente freigesetzt, es enthält 1 bis 38 % des gesamten Iods der ozeanischen Sedimente.

Wie im Abschnitt 2.4 ausführlich dargestellt, wird Iod in Seetang, Plankton, Algen und anderen Meeresorganismen angereichert und nach deren Absterben auf dem Meeresboden deponiert. Das Iod der organischen Sedimente ist überwiegend nicht mobil. Bei beginnender Zersetzung wird das Iod wieder mobilisiert, ein Teil geht in Porenflüssigkeit über, ein anderer Teil wird von organischen Komponenten erneut aufgenommen. Durch das Absterben und Sedimentieren der iodtragenden organischen Materie wird Iod aus dem aktiven hydrologischen Kreislauf entfernt. Typische Iodkonzentrationen können mit 50 µg/g Iod in den Sedimenten und mit etwa 1 µg/g in der Porenflüssigkeit der Sedimente angenommen werden. Darauf basierend kann der jährliche Transfer aus den Ozeanen durch die marine Sedimentation in die Lithosphäre auf etwa  $7 \cdot 10^{10}$  g Iod pro Jahr berechnet werden. Der jährliche Übergang aus den Ozeanen in die Atmosphäre kann mit netto  $2,0 \cdot 10^{11}$  g Iod pro Jahr angegeben werden (Fabryka-Martin, 1984).

Das in die Lithosphäre übergegangene Iod kann auf verschiedene Arten wieder mobilisiert werden. Die Diagenese setzt etwa 85 % des Iods wieder in die Hydrosphäre frei. Unter Diagenese versteht man in der Geologie die Gesteinsbildung aus lockeren Sedimenten. Unter dem herrschenden Druck wird die Porosität der Materie verringert, gleichzeitig wird Iod wieder freigesetzt. Der Iodgehalt nimmt in der festen Materie von etwa 50 µg/g auf 8 µg/g ab. Die Menge des mobilisierten Iods hängt unter anderem von Temperatur, Alter der Sedimente, Druck, Tiefe und der Bindungssituation des Iods ab. Durchdringt Grundwasser die Sedimentschicht, transportiert es das frei gewordene Iod in die Hydrosphäre.

Eine der größten Unsicherheiten bei der Betrachtung des globalen Iodkreislaufs stellen die vulkanischen Aktivitäten dar. Zwischen  $2 \cdot 10^9$  und  $3 \cdot 10^9$  Tonnen vulkanischen Materials werden auf diese Weise an die Erdoberfläche befördert. Während Lava und grobkörnige Asche nur eine begrenzte räumliche Verteilung erlangen, können feinkörnige Asche und Gase in der Atmosphäre global verteilt werden. Abschätzungen zu den so freigesetzten Iodmengen sind in der Literatur kaum zu finden.

Der Iodaustausch wird anschaulich in einem Kompartiment-Modell von Fabryka-Martin (1984) dargestellt, darin sind in Boxen die Iodgehalte der Kompartimente angegeben und Pfeile kennzeichnen die Iodflüsse zwischen den Kompartimenten (s. Abbildung 39). Innerhalb der Boxen wird eine ideale Durchmischung angenommen. Außerdem werden Transferaten als zeitlich nicht variabel betrachtet. Diese Modelle lassen sich, je nach dem wie weit Atmo-, Hydro-, Pedo-, Bio- und Lithosphäre unterteilt werden, beliebig kompliziert gestalten. Es soll hier im Wesentlichen ein grundlegendes Verständnis des Zusammenspiels der Kompartimente erlangt werden, die Berechnungsgrundlagen von Verweilzeiten etc. sind hier nicht Gegenstand der Diskussion. Ein Wissen über die Quellen, Senken und Transferfunktionen ist bei der Verwendung von  $^{129}\text{I}$  als Umweltracer notwendig. Bei Annahme eines stationären Zustandes, das heißt die Kompartimente befinden sich im Gleichgewicht zueinander, können solche Kompartimentmodelle genutzt werden, um die Verteilung und des  $^{129}\text{I}$  in der Geosphäre und die Änderung des globalen Gleichgewichts-Isotopenverhältnisses abzuschätzen.

Muramatsu und Wedepohl (1998) beschäftigten sich mit der Verteilung des Iods in der Erdkruste. Auch werden Vergleiche zum homologen Chlor gezogen, welches wesentlich langsamer aus dem Meerwasser in die Atmosphäre übergeht. Muramatsu und Wedepohl (1998) stellen fest, dass der Kreislauf des Iods durch Seewasser und Sedimente biologisch kontrolliert ist, in terrestrischer organischer Materie sind die Iodgehalte jedoch wesentlich geringer. Die Autoren berechneten die durchschnittlichen Iodkonzentrationen für die kontinentale Erdkruste, der ozeanischen Kruste (inklusive Meerwasser) und der gesamten Erdkruste auf 119 ng/g, 777 ng/g und 300 ng/g. Muramatsu und Wedepohl (1998) gehen davon aus, dass etwa 70 % des gesamten Iods in ozeanischen Sedimenten gebunden sind. Die berechneten Cl/I-Verhältnisse lagen bei 3800, 4500 und 4300 für die kontinentale Kruste, die ozeanische Kruste (inkl. Seewasser) und der gesamten Erdkruste. Neben den Iod- und Chlorgehalten einiger Kompartimente berechneten Wedepohl und Muramatsu (1998) die jährlichen Transportraten zwischen den Kompartimenten. Der jährliche Fluss in die Tiefseesedimente wird mit mehr als  $1 \cdot 10^4$  Tonnen Iod beziffert, der Transfer in die Sedimente der flachen See beträgt  $2 \cdot 10^5$  Tonnen Iod pro Jahr. Der jährliche Eintrag in die Meere über Flüsse liegt bei  $1,1 \cdot 10^5$  Tonnen Iod pro Jahr, der Übergang in die Atmosphäre liegt nach Muramatsu und Wedepohl (1998) bei  $2,4 \cdot 10^5$  Tonnen Iod pro Jahr. Das durch die genannten Übergänge im Meerwasser entstehende Defizit an Iod wird durch hydrothermale Einflüsse und anderen Quellen (z. B. Zersetzung organischer Materie) ausgeglichen, so dass ein stationärer Zustand erreicht wird. Muramatsu und Wedepohl (1998) weisen allerdings darauf hin, dass es nicht möglich ist, die weltweite Beeinflussung durch hydrothermale Einflüsse zu berechnen.

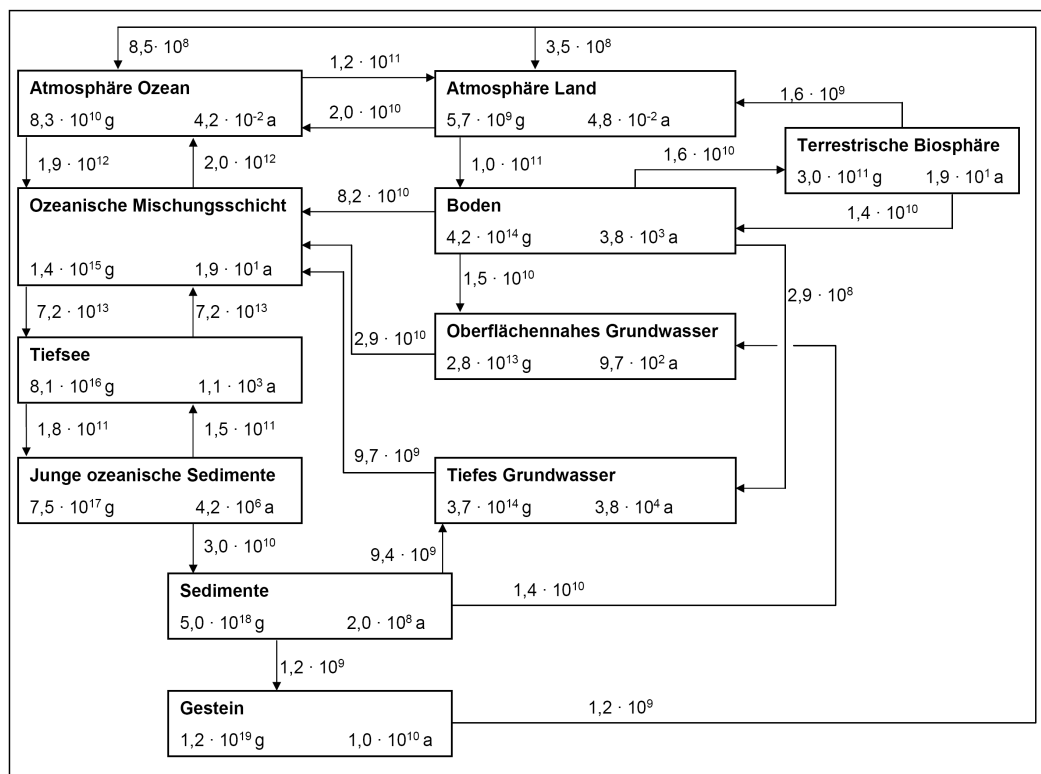
## Pränukleare $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse

Unter dem natürlichen Isotopenverhältnis versteht man das Verhältnis von  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  welches in der Natur vorlag, bevor der Mensch durch seine Aktivitäten in den  $^{129}\text{I}$ -Haushalt eingegriffen hat. Zur Bestimmung dieses natürlichen Isotopenverhältnisses stehen prinzipiell zwei Möglichkeiten zur Verfügung. Zum einen ist es möglich mit Modellrechnungen, die unterschiedlichen Parameter, die zum Beispiel die Produktions- und Zerfallsraten oder Verweilzeiten des Iods in den Kompartimenten einbeziehen, zu berechnen. Zum anderen kann eine experimentelle Bestimmung an sogenannten prä-nuklearen Proben erfolgen. Damit sind Proben gemeint, die genommen und konserviert wurden, bevor es zu Freisetzungen von anthropogenem  $^{129}\text{I}$  kam. Alternativ ist es auch möglich rezente Proben heranzuziehen, die nicht am globalen Iodaustausch teilgenommen haben.

Verschiedene Modellrechnungen ergaben natürliche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $4 \cdot 10^{-14}$  bis  $3 \cdot 10^{-13}$  (u. a.: Edwards 1962; Edwards und Rey, 1968; Kohman und Edwards, 1966; Fabryka-Martin, 1984).

Die prä nuklearen Proben unterliegen immer der Gefahr der Kontamination durch anthropogenes  $^{129}\text{I}$ , so dass die auf diese Weise ermittelten Isotopenverhältnisse stets nur eine Obergrenze des natürlichen Isotopenverhältnisses darstellen (Michel et al., 2006).

Die experimentelle Untersuchung des natürlichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses konnte erst in den 1980er Jahren mit Erfindung der Beschleunigermassenspektrometrie (kurz: AMS = accelerator mass spectrometry) beginnen, mit der es möglich wurde,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Größenordnung von  $10^{-14}$  zu bestimmen. Medizinische Iodpräparate aus den Jahren 1918 und 1935 zeigten Isotopenverhältnisse von etwa  $2 \cdot 10^{-13}$  (Ernst, 2003), während das Isotopenverhältnis der ozeanischen Mischungsschicht nach Untersuchungen an Sedimentkernen mit etwa  $(1,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-12}$  (Fehn et al., 1986) und  $(1,4 \pm 0,9) \cdot 10^{-12}$  (Schink et al., 1995b) angegeben wird. Als natürliche Isotopenverhältnisse werden heute  $2 \cdot 10^{-13}$  für die terrestrische Biosphäre und  $1,5 \cdot 10^{-12}$  für die marine Hydrosphäre angenommen (Ernst, 2003; Schink et al., 1995b) und stellen eine wichtige Größe dar, um zu beurteilen, wie stark Systeme durch den Menschen beeinflusst wurden. Für die maritime Umwelt sind keine neueren Daten erhältlich, die Diskussion über die kontinentalen Verhältnisse soll an dieser Stelle nicht weiter ausgeführt werden und kann in Michel et al. (2004b) nachgelesen werden.



**Abbildung 39: Globales Kompartimentmodell für stabiles Iod nach Fabryka-Martin (1984). An den Pfeilen sind die Stoffflüsse (in Gramm pro Jahr) und innerhalb der Boxen die Iodgehalte in Gramm sowie mittlere Verweilzeiten in Jahren angegeben. Der Transfer vom Gestein in die Tiefsee wurde nicht berechnet.**

Anthropogenes  $^{129}\text{I}$  wird durch kerntechnische Anlagen, Kernwaffenexplosionen und nukleare Unfälle in die Umwelt freigesetzt. Es tritt dem globalen Iodzyklus bei und führt zu zeitlichen wie auch räumlichen Veränderungen der Iodverhältnisse. Das gesamte, natürliche  $^{129}\text{I}$ -

Inventar der Erde beträgt etwa 50.000 kg, nur etwa 263 kg  $^{129}\text{I}$  tauschen aktiv mit Hydro-, Pedo-, Atmo- und Biosphäre aus. Das künstliche  $^{129}\text{I}$  vermischt sich mit dem natürlichen  $^{129}\text{I}$  und dem  $^{127}\text{I}$ , dabei kann davon ausgegangen werden, dass keine Fraktionierung zwischen den Isotopen stattfindet. Für Deutschland besteht der wesentliche Pfad des Eintrags von  $^{129}\text{I}$  aus dem Übergang des Iods aus dem Meer in die Atmosphäre und der anschließenden trockenen sowie nassen Deposition.

## 2.4 Meere als Quellen und Senken von Radionukliden

Die Mischungsschicht der Ozeane und Meere stellen das größte mit der terrestrischen Biosphäre austauschende Iodreservoir dar (Fabryka-Martin, 1984; Muramatsu und Wedepohl, 1998). Der globale Kreislauf beinhaltet den intensiven Austausch der marinen Mischungsschicht mit der Atmosphäre. Der Phasenübergang des Iods aus dem Meerwasser in die Atmosphäre verläuft im Wesentlichen über die direkte Emission von Iod oder Iodverbindungen aus dem Wasser. Molekulares Iod ( $\text{I}_2$ ) verlässt z. B. beim Zerplatzen kleiner Bläschen nahe der Oberfläche oder beim Transport kleiner Tröpfchen durch den Wind die Wasseroberfläche. Gleichzeitig verdampfen flüchtige, halogenierte organische Komponenten. Auch an Partikel gebundene Iodide und Plankton können so einen Phasenübergang ausführen. Gasförmiges Iod ( $\text{I}_2$ ) lagert sich, sobald es das Wasser verlassen hat, leicht an Partikel oder Aerosole an, die klein genug sind, um längerer Zeit in der Luft zu verweilen (Fabryka-Martin, 1984; Leblanc et al., 2006).

Das Ausmaß des Iodübergangs in die Atmosphäre ist stark temperaturabhängig, er kann in bezug auf den globalen Iodkreislauf auf etwa netto  $2,0 \cdot 10^{11}$  g pro Jahr angenommen werden (Fabryka-Martin, 1984; s. auch Abbildung 39). Muramatsu und Wedepohl (1998) beziffern diesen Übergang auf  $2,4 \cdot 10^{11}$  g pro Jahr (s. auch Abschnitt 2.3). Das Meer stellt die signifikante Quelle für das Iod auf dem Festland dar. Durch trockene und nasse Deposition wird Iod aus der Atmosphäre wieder in die Meere aber auch auf das Festland eingetragen. Unter trockener Deposition versteht man das Absinken von Iod tragenden Partikeln und die Absorption von gasförmigen Iodverbindungen an Pflanzen und Böden.

Die nasse Deposition wird in Washout und Rainout unterteilt. Der Rainout-Prozess findet innerhalb der Wolkenschicht durch Kondensation von Wasser an den Iod tragenden Aerosolen statt. Partikel mit einem Radius von mehr als  $0,2 \mu\text{m}$  werden besonders effektiv durch „Rainout“ aus der Atmosphäre entfernt. Beim Washout werden Aerosolpartikel, deren Radius über  $1 \mu\text{m}$  liegt, durch herabfallende Regentropfen zu Boden befördert. Mit Ausnahme der küstennahen Gegenden und über den Ozeanen ist der Rainout-Prozess vernachlässigbar, da die großen Partikel nicht weit ins Landesinnere eindringen und vorher sedimentieren (trockene Deposition). Rainout und Washout sind nicht in der Lage gasförmige Iodverbindungen effizient aus der Atmosphäre zu entfernen, es sei denn diese sind an Partikel absorbiert, was im Wesentlichen auf  $\text{I}_2$  zutrifft (Fabryka-Martin, 1984).

In Böden oder Oberflächenwasser findet eine Verdünnung des Iods aus dem Fallout mit dem stabilen  $^{127}\text{I}$  aus dem Oberboden statt. Iod kann sich zum einen in Richtung Grundwasser bewegen, zum anderen ist ein Abtransport mit dem Oberflächenwasser zurück in die Meere möglich, so dass diese als Senke fungieren. Der Eintrag von Iod über die Flüsse in die Meere berechneten Muramatsu und Wedepohl (1998) auf  $1,1 \cdot 10^{11}$  g (s. auch Abschnitt 2.3).

### 3 Aufgabenstellung

#### Auftrags- und Projektbeschreibung:

Es sollen in diesem Forschungsvorhaben StSch 4481 „Kartierung von  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Oberflächenwasser der Nordsee“ aktuelle  $^{99}\text{Tc}$ -Gehalte sowie die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Wasserproben an mindestens 50 unterschiedlichen Positionen der Nordsee bestimmt werden. Zusätzlich sind weitere Proben aus der Irischen See und dem Nordatlantik im Rahmen bestehender Kooperationen zu beschaffen und zu analysieren, so dass ein Eindruck über den Zustand der benachbarten Meere erhalten wird. Dabei wird das Ausmaß der Kontamination an den jeweiligen Probenahmeorten ermittelt und soweit es möglich ist die wesentliche Quelle dieser Kontamination bestimmt. Von jeder Probe werden die Begleitparameter (Salinität und Temperatur) aufgenommen. Das Forschungsvorhaben soll die Voraussetzung dafür schaffen, dass durch spätere Datenerhebungen Aufschlüsse über Ausbreitungs- und Austauschprozesse in der Nordsee gewonnen werden. Das langfristige Verhalten von  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{129}\text{I}$  in der Nordsee soll zuverlässiger prognostizierbar sein. Der zu erstellende Datensatz soll die Basis für nachfolgende Messungen und ein Maß für die künftigen vom Menschen verursachten Veränderungen sein.

Die vom BSH verwendeten Drift- und Ausbreitungsmodellierungen sollen mit den experimentellen Daten verglichen werden. Es ist zu klären, ob Veränderungen der Aktivitätsverhältnisse der anthropogenen Radionuklide Rückschlüsse auf die unterschiedlichen Emittenten und die relevanten Transportwege zulassen.

Aktuelle und frühere Messwerte betreffend  $^{129}\text{I}$  und  $^{99}\text{Tc}$  werden nach einer Literaturrecherche gesammelt und in einer zeitlichen und räumlichen Auswertung zusammengestellt. Die Literaturdatenbank wird mit EndNote 9.0 angelegt.

In vorliegenden kleinen Zeitreihen ist auf mögliche Veränderungen der Isotopenverhältnisse und Aktivitätskonzentrationen an den jeweiligen Probenahmeorten zu achten. Abschließend sollen Vorschläge für Probenahmepunkte gemacht werden, die im Rahmen von Routinefahrten regelmäßig angelaufen werden, um die langfristige Entwicklung der Kontamination zu verfolgen. Durch dieses Projekt wird ein weitreichender Datensatz geschaffen, der die vom Menschen verursachten Veränderungen erfasst und es erlaubt, spätere Veränderungen zu bewerten.

#### Motivation:

Im Forschungsvorhaben StSch 4285 „Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129“ (Michel et al., 2004b) drängte sich die Frage nach der aktuellen Kontamination durch  $^{129}\text{I}$  der Nordsee auf. Es wurde die Aufnahme von Iod-129 in die langfristige Überwachung von Meerwasser, Luft, Niederschlag, Oberflächenwasser, Trinkwasser und Boden gefordert. Es zeigte sich die Komplexität des Iodkreislaufes, allerdings waren für einige Kompartimente nur wenige Daten vorhanden. Ohne ein detailliertes Wissen über das aktuelle Ausmaß der Kontamination durch  $^{129}\text{I}$  ist eine Beurteilung späterer anthropogener Veränderungen nicht möglich. Obwohl derzeit das  $^{129}\text{I}$  mit Ausnahme der direkten Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlagen noch nicht radiologisch relevant ist, wurden die Überwachung der anthropogenen Veränderungen und deren Dokumentation in bezug auf  $^{129}\text{I}$  empfohlen. Des Weiteren konnte nicht abschließend geklärt werden, inwiefern luftgetragene Ableitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen eine Quelle für  $^{129}\text{I}$  im Regenwasser darstellen.

Ein weiterer wesentlicher Grund für die Erfassung des Zustandes der Nordsee war eine starke Änderung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Nordseewasserproben aus den 1990er Jahren bis Anfang dieses Jahrzehnts. Eine Nordseewasserprobe aus dem Jahr 1992, die Yiu et al. (1994) untersuchten, zeigte ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $4,6 \cdot 10^{-8}$  und lag damit bereits mehr als zwei Größenordnungen über dem Isotopenverhältnis von  $10^{-10}$ , das fernab der Emittenten beobachtet wurde (Yiu et al., 1994). Weitere Nordseeproben, die im

Rahmen des Vorhabens StSch 4285 zwischen 1999 und 2002 an der deutschen und dänischen Küste entnommen wurden, wiesen ein geometrisches Mittel der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $1,5 \cdot 10^{-6}$  (geometrische Standardabweichung 1,4) auf und waren damit deutlich höher kontaminiert, als die Proben von Yiou et al. aus dem Jahr 1992 (Michel et al., 2004b; Szidat, 2000; Ernst, 2003; Yiou et al., 1994). Diese Proben stellten aber nur Einzelproben dar und erlaubten keinen Überblick über den Zustand der gesamten Nordsee (s. Abschnitt 4.1).

## 4 Stand des Wissens

Um die in dieser Arbeit erhaltenen Ergebnisse in ihrer Bedeutung einschätzen zu können, ist ein Überblick über bisherige Messungen betreffend  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  essentiell. Leider sind die Darstellungen der Ergebnisse in verschiedenen Arbeiten nicht einheitlich, aus diesem Grund werden zuerst die verknüpfenden Faktoren der gebräuchlichen Einheiten angegeben.

Für Iod-129 (Halbwertszeit  $1,57 \cdot 10^7$  a) gilt:

$$1 \text{ g/g} = 6,535 \cdot 10^6 \text{ Bq/g} = 4,668 \cdot 10^{21} \text{ Atome/g}$$

$$1 \text{ Bq/g} = 1,530 \cdot 10^{-7} \text{ g/g} = 7,143 \cdot 10^{14} \text{ Atome/g}$$

$$1 \text{ mol} = 129 \text{ g} = 8,430 \cdot 10^8 \text{ Bq} = 6,022 \cdot 10^{23} \text{ Atome}$$

Für Technetium-99 (Halbwertszeit  $2,1 \cdot 10^5$  a) gilt:

$$1 \text{ g/g} = 6,367 \cdot 10^8 \text{ Bq/g} = 6,083 \cdot 10^{21} \text{ Atome/g}$$

$$1 \text{ Bq/g} = 1,571 \cdot 10^{-9} \text{ g/g} = 9,554 \cdot 10^{12} \text{ Atome/g}$$

$$1 \text{ mol} = 99 \text{ g} = 6,303 \cdot 10^{10} \text{ Bq} = 6,022 \cdot 10^{23} \text{ Atome}$$

Darüber hinaus werden die üblichen SI-Präfixe verwendet.

### 4.1 Bisherige Untersuchungen in der Nordsee und dem Nordostatlantik

Im Forschungsvorhaben StSch 4285 (Michel et al., 2004) wurden in der Zeit von 1999 bis 2002 am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover einige Proben aus der Nordsee von der deutschen und dänischen Küste untersucht. Neun Wasserproben wurden bei Spika-Neufeld, Vejers, Neßmersiel und Amrum entnommen. Der geometrische Mittelwert der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Proben lag bei  $1,45 \cdot 10^{-6}$  mit einer geometrischen Standardabweichung von 1,4.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der untersuchten Wasserproben lagen bereits sechs Größenordnungen über dem natürlichen Isotopenverhältnis, das für marine Hydrosphäre mit  $1,5 \cdot 10^{-12}$  angenommen wird. Die Isotopenverhältnisse liegen damit fast vier Zehnerpotenzen über dem Isotopenverhältnis von  $10^{-10}$ , das in der ozeanischen Mischungsschicht fernab der Emittenten erwartet wird und auch als mariner Hintergrund bezeichnet werden kann (Yiou et al., 1994).

Das größte gemessene  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis wurde im Juli 2000 mit  $2,71 \cdot 10^{-6}$  an der Meerseite Amrums beobachtet, das kleinste Isotopenverhältnis wurde im Dezember 2001 in einer Probe aus Neßmersiel bestimmt. Auffällig sind weiterhin die Unterschiede zwischen den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen auf Meer- und Wattseite. Auf der Wattseite sind aufgrund der erhöhten biologischen Aktivität größere  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen zu finden als auf der Meerseite. Im Sommer nimmt diese biologische Aktivität im Vergleich zu kälteren Jahreszeiten anscheinend zu.



**Tabelle 9: Überblick über die am ZSR untersuchten Nordseewasserproben. Weiterreichende Informationen können der in der Tabelle angegebenen Literatur sowie Michel et al. (2004) entnommen werden.**

Ort	Datum	$^{127}\text{I}$ in ng/g	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in $10^{-6}$	Quelle
Vejers	Juni 1999	$37 \pm 8$	$1,41 \pm 0,30$	Szidat, 2000
Spika-Neufeld	Juli 1999	$53 \pm 11$	$1,53 \pm 0,33$	Szidat, 2000
Spika-Neufeld	Januar 2000	$28 \pm 11$	$1,54 \pm 0,60$	Szidat, 2000
Amrum Meerseite	Juli 2000	$25 \pm 5$	$2,71 \pm 0,58$	Ernst, 2003
Amrum Wattseite	Juli 2000	$102 \pm 16$	$1,82 \pm 0,32$	Ernst, 2003
Neßmersiel	Dezember 2001	45 <sup>a)</sup>	$0,92 \pm 0,11$	Ernst, 2003
Neßmersiel	März 2002	50 <sup>a)</sup>	$1,18 \pm 0,14$	Ernst, 2003
Amrum Meerseite	April 2002	$34 \pm 4$	$0,99 \pm 0,11$	Ernst, 2003
Amrum Wattseite	April 2002	$65 \pm 7$	$1,55 \pm 0,19$	Ernst, 2003

a) keine Unsicherheiten angegeben

Der Vergleich mit Proben, die im Zeitraum von 1990 bis 1992 aus der Nordsee genommen und von Yiou et al. untersucht wurden, zeigt eine Zunahme des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses um etwa Faktor acht (Tabelle 10). Allerdings ist zu beachten, dass die Proben nur bedingt miteinander zu vergleichen sind, da sie von unterschiedlichen Orten stammen als die von Ernst und Szidat untersuchten Wasserproben (Yiou et al., 1994; Ernst, 2003; Szidat, 2000; Michel et al., 2004).

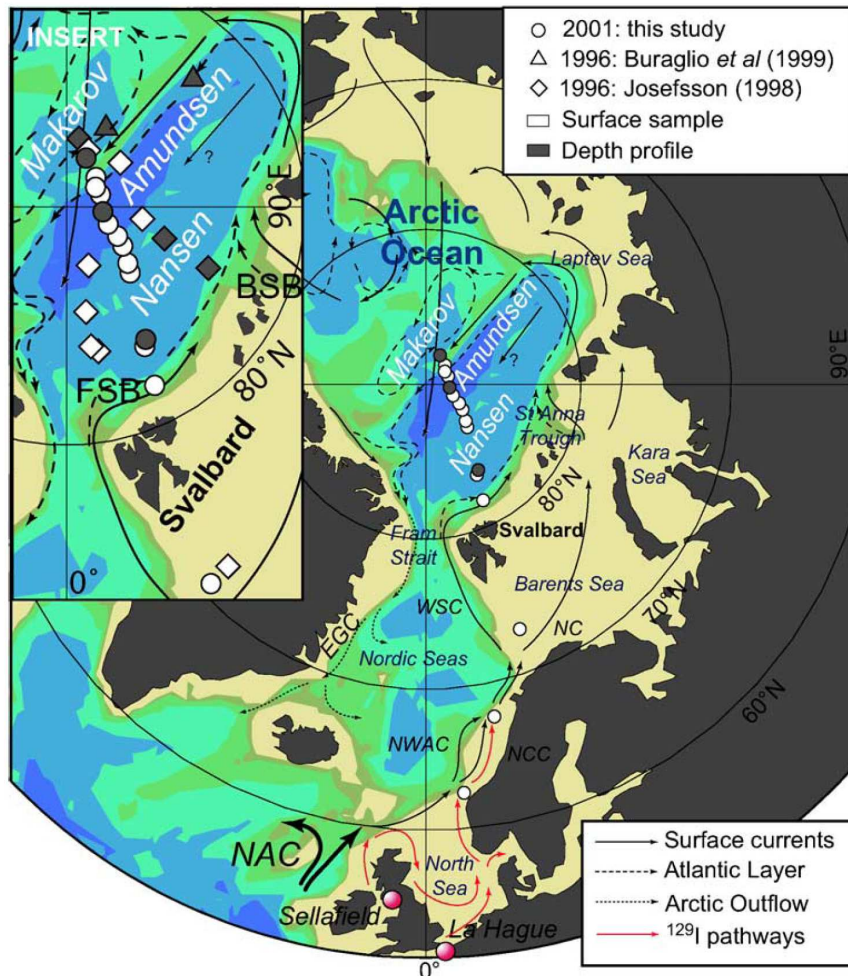
Südlich der Färöer Inseln wurden mit  $3,1 \cdot 10^{-10}$  die kleinsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse angetroffen, etwas weiter nördlich lagen die Verhältnisse um den Faktor drei höher. Bei Doélan im südwestlichen Küstenbereich der Bretagne im östlichen Atlantik wurde ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $1,2 \cdot 10^{-9}$  angetroffen und liegt damit bereits eine Größenordnung über dem Isotopenverhältnis, welches fernab der Emittenten erwartet wird. An der nördlichsten Küste Norwegens in der Nähe des Nordkaps lagen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse schon im Bereich von  $10^{-8}$  und in der zentralen Nordsee wurden  $4,9 \cdot 10^{-8}$  beobachtet. Der norwegische Küstenstrom transportierte scheinbar stärker kontaminiertes Wasser entlang der norwegischen Küste, so dass der Einfluss noch im nördlichsten Bereich Norwegens zu sehen ist. Auffallend ist die starke Kontamination der Irischen See. Die flüssigen Emissionen aus Sellafield führten zu Isotopenverhältnissen von  $5,1 \cdot 10^{-7}$  bzw.  $8,9 \cdot 10^{-7}$ .

**Tabelle 10: Ergebnisse der von Yiou et al. untersuchten Wasserproben. Weiterführende Informationen können der Originalliteratur (Yiou et al., 1994) entnommen werden.**

Ort	Lage	Tiefe in m	Datum	<sup>127</sup> I in ng/g	<sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I in 10 <sup>-10</sup>
49°52'N, 00°00'E	Englischer Kanal, östl. von La Hague	0	01.12.91	55,5 ± 2,8	4900 ± 600
Lowestoft	Nähe südl. Ostküste Englands	0	20.03.92	46,5 ± 2,3	430 ± 60
56°00'N, 06°00'E	zentrale Nordsee	0	27.11.91	52,8 ± 2,6	460 ± 60
Lossimouth	nordöstliches Schottland	0	07.04.92	57,8 ± 2,9	160 ± 20
Heysham	Irische See, südl. Sellafield	0	05.04.92	36,5 ± 1,8	8900 ± 1200
Maryport	Irische See, nördl. Sellafield	0	05.04.92	36,2 ± 1,8	5100 ± 600
61°20'N, 7°53'W	südl. der Färöer Inseln	200	20.08.90	58,0 ± 2,9	3,1 ± 0,4
63°50'N, 6°05'W	nördl. der Färöer Inseln	50	19.08.90	52,9 ± 2,7	9,3 ± 1,1
		200	19.08.90	52,8 ± 2,6	7,4 ± 1,3
		1000	19.08.90	58,9 ± 3,0	8,4 ± 1,0
70°23'N, 31°31'E	Nähe Nordkap	0	09.09.92	48,7 ± 2,5	110 ± 12
Doélan	südwestlich der Bretagne, Atlantik	0	01.12.91	120 ± 6,0	12,3 ± 1,8
		0	01.03.92	52,1 ± 2,6	12,7 ± 2,1

Yiou et al. (1994) bestimmten ferner die <sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs-Isotopenverhältnisse der Wasserproben. Diese lagen zwischen 20 und 70 und damit zwei Größenordnungen über dem <sup>129</sup>I/<sup>137</sup>Cs-Isotopenverhältnis, das für den Fallout aus Tschernobyl erwartet wurde. Die Autoren schließen daraus, dass weniger als 1 % des <sup>129</sup>I im Meerwasser aus Tschernobyl stammt. Dies ist konsistent mit der Vorstellung, dass die Kontamination in Westeuropa im Wesentlichen durch die Wiederaufarbeitungsanlagen verursacht wird (Yiou et al., 1994).

Alfimov et al. (2004b) untersuchten <sup>129</sup>I-Konzentrationen in Oberflächenwasserproben, die im Juli 2001 ausgehend vom westlichen Teil Norwegens bis hin zum Nordpol genommen wurden.



**Abbildung 40: Probeentnahmeorte von Oberflächenwasser und Tiefenprofilen im Jahr 2001 (aus: Alfimov et al., 2004b). Die weißen Kreise kennzeichnen Oberflächenwasserproben, bei grau unterlegten Orten wurden Tiefenprofile entnommen. NAC steht für North Atlantic Current (nordatlantischer Strom), NWAC für North-West Atlantic Current und NCC steht für Norwegian Coastal Current (Norwegischer Küstenstrom). Weiterführende Informationen können der Originalliteratur (Alfimov et al., 2004b; Alfimov, 2005) entnommen werden.**

Es wurde eine starke Abnahme der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen vom Norwegischen Küstenstrom entlang der Barentssee bis zum Arktischen Ozean beobachtet (Alfimov et al., 2004b; Alfimov, 2005). Ausgehend von etwa  $3 \cdot 10^{10}$   $^{129}\text{I}$ -Atomen pro Liter im Oberflächenwasser nördlich des westlichen Teils Norwegens nahmen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen bis zum Arktischen Ozean etwa um den Faktor 20 auf  $1,2 \cdot 10^9$  bis  $1,9 \cdot 10^9$   $^{129}\text{I}$ -Atome pro Liter ab.

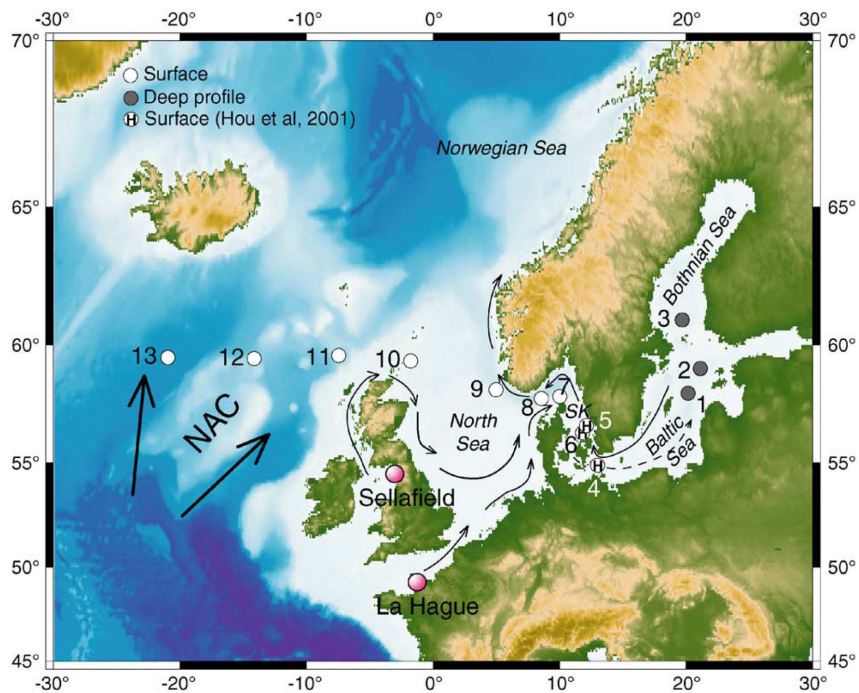
Erklärt werden diese Befunde von den Autoren mit drei einflussnehmenden Faktoren. Die zeitliche Verzögerung des  $^{129}\text{I}$ -Transports von der norwegischen Küste bis in den zentralen Arktischen Ozean wird eine Transportzeit von etwa sechs Jahren angenommen. Weiteren Einfluss könnten Verdünnungseffekte durch den Eintrag von  $^{129}\text{I}$ -armen Wasser ausüben. Ein weiterer Faktor könnte das Absinken der  $^{129}\text{I}$ -reichen Wassermassen in größere Tiefen sein. Im Arktischen Ozean herrschen komplexe Strömungsverhältnisse, die noch nicht vollständig verstanden werden. Die Transportzeiten des  $^{129}\text{I}$  aus Sellafield bis zum zentralen Arktischen Ozean werden auf sechs Jahre (Dahlgard, 1995) und zehn bis elf Jahre (Smith et al., 1999; Buraglio et al., 1999) abgeschätzt, der Transport aus La Hague nimmt etwa zwei Jahre weniger in Anspruch (s. Abbildung 28). Mit dem Beginn des 21. Jahrhunderts erreichen demzufolge die Anfang der 1990er Jahre stark angestiegenen Emissionen der europäischen Wie-

deraufarbeitungsanlagen den zentralen Arktischen Ozean (Alfimov et al., 2004b; Alfimov, 2005).

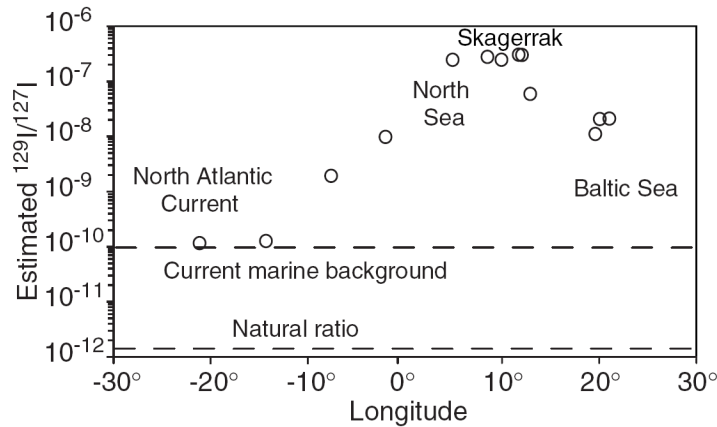
Drei Tiefenprofile im zentralen Arktischen Ozean aus dem Nansen-, Makarov- und Amundsenbecken zeigen im Oberflächenwasser die stärkste Kontamination, während mit zunehmender Tiefe die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen abnehmen. Dieses Verhalten wurde bei allen Profilen gleichermaßen beobachtet.

Die Diskussionen wurden in erster Linie in Hinblick auf die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen geführt, oftmals ist es aber aufschlussreicher die Isotopenverhältnisse zu betrachten. Im Meerwasser sind die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen jedoch weitgehend konstant, so dass auch die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen aussagekräftig sind.

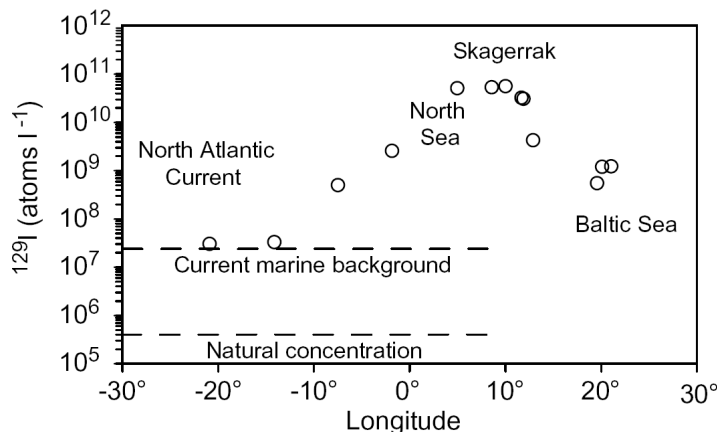
In einer weiteren Arbeit untersuchten Alfimov et al. (2004 a) Wasserproben, die im Juni 1999 auf einer Linie entlang des 60ten Breitengrades vom Nordatlantik bis in die Nordsee entnommen wurden (s. Abbildung 41). Daneben wurden Proben aus dem Skagerrak und Tiefenprofile aus der Ostsee sowie dem Bottnischen Meerbusen analysiert (Alfimov et al., 2004 a).



**Abbildung 41: Beprobung des Nordatlantiks, der Nordsee, des Skagerraks, der Ostsee und des Bottnischen Meerbusens im Jahr 1999 aus Alfimov et al., 2004 a. Ausgefüllte Kreise kennzeichnen Tiefenprofile, weiße Kreise stehen für Oberflächenwasser. Mit „H“ beschriftete Proben wurden von Hou et al. untersucht (Hou et al., 2001). NAC steht für „North Atlantic Current“, durchgezogene Pfeile geben die Strömungsrichtung des Oberflächenwassers und die gestrichelten die Strömungsrichtung des Tiefenwassers an. Weiterführende Informationen sind der Originalliteratur (Alfimov et al., 2004 a) zu entnehmen.**



**Abbildung 42: Berechnete  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser beginnend im Nordatlantik bis zur Ostsee (s. Abbildung 41) (aus Alfimov et al., 2004 a). Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen basieren auf Daten von Truesdale et al. (Truesdale et al., 2000; Truesdale et al., 2001). Das natürliche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis wurde aus Moran et al. (1998) verwendet. Weiterführende Informationen sind der Originalliteratur (Alfimov et al., 2004 a) zu entnehmen.**



**Abbildung 43 :  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Oberflächenwasser der nach Abbildung 40 genommenen Wasserproben beginnend im Nordatlantik bis zur Ostsee (aus Alfimov et al., 2004 a). Die natürliche  $^{129}\text{I}$ -Konzentration wurde nach Moran et al. (1998) berechnet. Weiterführende Informationen sind der Originalliteratur (Alfimov et al., 2004 a) zu entnehmen.**

Die prä nuklearen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (Abbildung 43) werden zu  $4 \cdot 10^5$   $^{129}\text{I}$ -Atomen pro Liter berechnet, der sogenannte „post-bomb background“ beläuft sich auf etwas mehr als  $2 \cdot 10^9$   $^{129}\text{I}$ -Atome pro Liter basierend auf  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen von  $1,5 \cdot 10^{-12}$  (prä nuklear) und  $10^{-10}$  (mariner Hintergrund, s. Abbildung 42 und Abbildung 43).

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen erstrecken sich über etwa vier Zehnerpotenzen. Mit etwa  $3 \cdot 10^7$  bis  $5 \cdot 10^7$   $^{129}\text{I}$ -Atomen pro Liter werden im westlichen Teil des Nordatlantikstromes die kleinsten Konzentrationen beobachtet. Diese liegen etwas über der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration, die als mariner Hintergrund angenommen wird. Weiter östlich in Richtung Nordsee und Skagerrak nehmen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration auf  $5,6 \cdot 10^{10}$  zu, nehmen aber dann in weiterer östlicher Richtung zum Bottnischen Meerbusen hin wieder ab (Abbildung 43). Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser zeigen die gleiche Systematik, wie die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (s. Abbildung 42 und Abbildung 43). Die höchsten Kontaminationen werden mit mehr als  $5 \cdot 10^{10}$   $^{129}\text{I}$ -Atomen pro Liter im Skagerrak und in der Nordsee (s.

Abbildung 43, Stationen 7 – 9) beobachtet, das entspricht einem berechneten Isotopenverhältnis von etwa  $3 \cdot 10^{-7}$  (s. Abbildung 42).

Die starken Kontaminationen im Skagerrak und der Nordsee werden von den Autoren durch den Beitrag aus Sellafield erklärt. In Abbildung 41 kennzeichnen die durchgezogenen Pfeile die Strömungsrichtung des Oberflächenwassers. Die aus Sellafield kommende Strömung fließt in Richtung Norden an Schottland vorbei in die Nordsee und verlässt diese an der südwestlichen Küste Norwegens.

Die untersuchten Tiefenprofile der Stationen 1 bis 3 weisen mit zunehmender Tiefe größere Kontaminationen auf und in Richtung des Bottnischen Meerbusens nimmt die Kontamination ab. Die Befunde sind konsistent mit der Vorstellung des in der Tiefe in die Ostsee eindringenden Nordseewassers, welches eine größere Kontamination in sich trägt. Im Bottnischen Meerbusen, der bereits süßwasser geprägt ist und weniger Wasser mit der zentralen Ostsee austauscht, sind die geringsten  $^{129}\text{I}$ -Gehalte beobachtet worden (Alfimov et al., 2004 a).

Schnabel et al. (2007) untersuchten Oberflächenwasserproben, die nahe der schottischen Küste von Juni 2003 bis Juli 2005 genommen wurden. Einige Punkte wurden innerhalb dieser Zeit mehrfach beprobt, so dass kleine Zeitreihen entstanden.

Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen lagen mit 21 ng/g und 52 ng/g unter den durchschnittlichen Werten für Meerwasser, die in anderen Arbeiten (u. a. Raisbeck et al., 1995; Ernst, 2003) bestimmt wurden. Als eine mögliche Ursache wird das Ausfallen eines Niederschlags nach Zugabe von NaOH genannt, daher werden die in dieser Arbeit (Schnabel et al., 2007) erhaltenen  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen als die unteren Grenzen der tatsächlichen Gehalte bezeichnet.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden in dieser Arbeit (Schnabel et al., 2007) anschaulich entlang der schottischen Küstelinie beschrieben. Anschließend werden zeitliche Veränderungen von 2003 bis 2005 diskutiert und Veränderungen im Vergleich zu vorangegangenen Arbeiten angesprochen. Schnabel et al. (2007) führen die Diskussion mit den aussagekräftigeren  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen und nicht den ebenfalls gebräuchlichen  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen oder der Angabe in  $^{129}\text{I}$ -Atome pro Liter.

Die an der Oberfläche des küstenahen Meerwassers angetroffenen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse liegen zwischen  $7,1 \cdot 10^{-8}$  und  $3,3 \cdot 10^{-6}$  (Schnabel et al., 2007). Die kleinsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden an der Ostküste der Orkneyinseln (South Ronaldsay und Orkney Mainland NE) und bei Dornoch im Nordosten Schottlands angetroffen und liegen zwischen  $7,1 \cdot 10^{-8}$  und  $7,3 \cdot 10^{-8}$ . Die größten Isotopenverhältnisse werden mit  $1,1 \cdot 10^{-6}$  (bei Troon) und  $3,3 \cdot 10^{-6}$  (bei Garlieston) nördlich von Sellafield an der schottischen Küste beobachtet. In weiterer nördlicher Richtung nimmt das Isotopenverhältnis ab. Überraschenderweise wird an der Westküste Schottlands etwa das gleiche Isotopenverhältnis beobachtet, wie an der Ostküste (in der Nordsee), obwohl gleichzeitig die  $^{99}\text{Tc}$ -Konzentration um eine Größenordnung abnimmt. Dieses Verhalten wird von den Autoren nicht mit dem Eintrag von  $^{129}\text{I}$  aus La Hague erklärt, da nur eine begrenzte Anzahl an Proben vorlag. Sellafield stellt im Vergleich zu La Hague die wesentlich größere Quelle von  $^{99}\text{Tc}$  dar, so dass mit Hilfe des  $^{99}\text{Tc}$ -Anteils eine Unterscheidung nach Herkunft des  $^{129}\text{I}$  möglich ist, bzw. welche dieser beiden Quellen den  $^{129}\text{I}$ -Gehalt dominiert.

Der Vergleich mit Proben, die Yiou et al. (1994) untersuchten zeigt eine Zunahme des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses in der Zeit von 1992 bis 2003 um den Faktor sechs. Im Nordosten Schottlands bei Lossiemouth betrug im April 1992 das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis  $(1,6 \pm 2) \cdot 10^{-8}$  (Yiou et al., 1994) während es im Januar 2003 ganz in der Nähe (Aberdour Bay) bei  $(9,0 \pm 45) \cdot 10^{-8}$  (Schnabel et al., 2007) lag. Im Südwesten Schottlands nahm das Isotopenverhältnis auf  $3 \cdot 10^{-6}$  zu, das entspricht einer Steigerung um den Faktor vier gegenüber dem, was Yiou et al. 1992 in der Irischen See angetroffen hat (Yiou et al., 1994), aber liegt wiederum um den Faktor drei unter dem Isotopenverhältnis, das 2004 von Atarashi-Andoh in der Irischen See gemessen wurde (Atarashi-Andoh et al., 2007). Im Zeitraum von 2003 bis 2005 ist kein starker, einheitlicher Trend der Isotopenverhältnisse in schottischen Küstengewässern zu beobachten. Dies wird mit dem Fehlen von starken Variationen der flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Emissionen aus Sellafield begründet. Proben, die in örtlicher und zeitlicher Nä-



he zueinander genommen wurden, weisen in den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen bessere Übereinstimmungen auf als in den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen, da die Isotopenverhältnisse sich beim Eintrag von Süßwasser (z. B. aus Flüssen) nicht ändern.

In Zeitreihen von Proben, die jeweils im Juli 2003, 2004 und 2005 bei Gruinard Bay und Dornoch entnommen wurden, zeigt sich eine starke Abnahme von Juli 2003 nach 2004, die einer starken Verminderung der  $^{129}\text{I}$ -Emissionen aus Sellafield im Jahr 2003 gegenüber 2002 folgt. Die Daten der Emissionen beziehen sich auf López-Gutiérrez et al. (2004) und Atarashi-Andoh et al. (2007). Bei Gruinard Bay verringerte sich das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $1,3 \cdot 10^{-6}$  auf  $8,1 \cdot 10^{-7}$ , bei Dornoch nahm es von  $1,1 \cdot 10^{-6}$  auf  $8,1 \cdot 10^{-7}$  ab. Diese Ergebnisse sind konsistent mit der Annahme, dass die Transportzeit der Wassermassen von Sellafield bis zu diesen Orten bei etwa einem Jahr liegt. Schnabel et al. (2007) diskutieren auch die Transportzeiten zwischen einigen anderen Probeentnahmeorten, dies soll hier aber nicht weiter vertieft werden und kann der entsprechenden Originalliteratur (Schnabel et al., 2007) entnommen werden. Schnabel et al. (2007) schlagen die erhaltenen  $^{129}\text{I}$ -Ergebnisse als Eingabedaten für Modellierungen des Transfers von  $^{129}\text{I}$  aus dem Meer ins Landesinnere vor.

Atarashi-Andoh et al. (2007) untersuchten Proben von Oberflächenwasser aus dem „English Lake District“, dem südlichen Schottland und der Umgebung von Sellafield. Das wesentliche Ziel war es bei der Untersuchung von Fluss-, See- und Meerwasser einen Überblick über die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Süßwasserproben aus der direkten Umgebung von Sellafield, einen der Hauptemittenten von anthropogenem  $^{129}\text{I}$ , zu erhalten. Darüber hinaus sollten die relativen Beiträge von flüssigen und gasförmigen Emissionen zur gesamten  $^{129}\text{I}$ -Deposition beurteilt werden. Es wurden im März, November und Dezember 2004 sowie im Juni 2005 zuerst Seen und Flüsse im Binnenland nahe Sellafield beprobt. Danach wurden weitere Gewässer im Landesinneren und die Irische See entlang der Küstenlinie beprobt. Hier soll in erster Linie auf die Ergebnisse der vier Proben aus der Irischen See eingegangen werden (Tabelle 11).

Die von Atarashi-Andoh et al. (2007) gemessenen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen liegen zwischen 25 ng/g und 34 ng/g. Atarashi-Andoh et al. (2007) erklären die für Meerwasser relativ geringen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen mit dem Süßwassereintrag aus Flüssen, da die Proben in der Nähe von Flussmündungen genommen wurden. Die  $^{127}\text{I}$ -Befunde sind ähnlich zu denen, die Yiou et al. (1994) in der Irischen See gemacht haben. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aus der Irischen See liegen alle über  $10^{-6}$ , die „heißesten“ Proben besitzen ein Isotopenverhältnis von mehr als  $8 \cdot 10^{-6}$ . Auffallend ist auch die Zunahme des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses um etwa eine Größenordnung im Vergleich zu den Verhältnissen, die bei Proben aus dem Jahr 1992 beobachtet wurden (Yiou et al., 1994). In 15 km Entfernung zu Brighthouse Bay bei Garlieston gemessenes  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis lag mit  $3,6 \cdot 10^{-6}$  (Schnabel et al., 2007) recht dicht bei dem von Atarashi-Andoh gefundenen Isotopenverhältnis von  $2,78 \cdot 10^{-6}$  (Atarashi-Andoh et al., 2007, s. Tabelle 11).

**Tabelle 11:**  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Oberflächenwasserproben aus der Irischen See nach Atarashi-Andoh et al. (2007). Zwecks besserer Vergleichbarkeit wurden Daten von Yiou et al. (1994) hinzugefügt, s. Tabelle 10. Weiterführende Informationen können der Originalliteratur (Atarashi-Andoh et al., 2007; Yiou et al., 1994) entnommen werden.

Ort	Datum	$^{127}\text{I}$ in ng/g	$^{129}\text{I}$ -Konzentration in $^{129}\text{I}$ -Atome/kg	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
Brighthouse Bay	Dez. 04	$25,1 \pm 1,7$	$(3,31 \pm 0,24) \cdot 10^{11}$	$(2,78 \pm 0,07) \cdot 10^{-6}$
Parton	März 04	$33,5 \pm 1,9$	$(1,28 \pm 0,26) \cdot 10^{12}$	$(8,08 \pm 1,56) \cdot 10^{-6}$
Millom	Juni 05	$32,7 \pm 1,3$	$(8,75 \pm 0,18) \cdot 10^{11}$	$(5,64 \pm 0,25) \cdot 10^{-6}$
Heysham	Dez. 04	$26,5 \pm 2,0$	$(1,03 \pm 0,08) \cdot 10^{12}$	$(8,20 \pm 0,19) \cdot 10^{-6}$
	April 92a)	$36,5 \pm 1,8$	$(1,54 \pm 0,22) \cdot 10^{11}$	$(8,90 \pm 1,20) \cdot 10^{-7}$
Maryport	April 92a)	$36,2 \pm 1,8$	$(8,75 \pm 1,12) \cdot 10^{10}$	$(5,10 \pm 0,60) \cdot 10^{-7}$

a) Daten aus Yiou et al. (1994).

Eine Wasserprobe aus dem Landesinneren, die im November Loch Ken entnommen wurde, wies ein  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $2,5 \cdot 10^{-7}$  auf. Das ist nur eine Zehnerpotenz weniger, als das bei der nächstgelegenen Meerwasserprobe (Brighthouse Bay) angetroffene Verhältnis. Loch Ken liegt etwa 25 km von der Küste und 74 km von Sellafeld entfernt. Luftgetragene Emissionen haben bei dieser Entfernung nur einen geringen Einfluss. Die Autoren erklären das große Isotopenverhältnis mit dem Eintrag von Seaspray und der Deposition flüchtiger Iodverbindungen aus der Atmosphäre. Partikulär gebundenes Iod hat in der Atmosphäre eine Verweilzeit von etwa 14 Tagen, gasförmiges, anorganisches Iod etwa 10 Tage und bei gasförmigen, organisch gebundenen Iod liegt die Verweilzeit bei etwa bei 18 Tagen (Atarashi-Andoh et al., 2007 und dort angegebene Literatur). Schnabel et al. (2007) machten bei im Landesinneren liegenden Seen die gleichen Beobachtungen. Die angegebenen Verweilzeiten reichen aus, um das Iod über weite Strecken zu transportieren.

Fréchu und Calmet (2003) untersuchten unter Zuhilfenahme der  $\gamma$ -X-Spektrometrie marine und terrestrische Proben entlang der französischen Küste aus dem nördlichen Teil Cotentins. Cotentin ist eine Halbinsel im Norden Frankreichs auf der sich die Wiederaufarbeitungsanlage befindet. Bei der  $\gamma$ -X-Spektrometrie werden neben der gamma-Linie bei 39,6 keV auch die Röntgenlinien (X-ray-Linien) zur Detektion verwendet. Näheres zu diesem Analyseverfahren und der notwendigen Korrektur der Selbstabsorption der Röntgenstrahlung durch die Probenmatrix können der Originalliteratur (Fréchu und Calmet, 2003) und den darin angegebenen Quellen entnommen werden.

Verschiedene Seetangspezies wurden entlang des Englischen Kanals in den Jahren 1998 und 1999 entnommen. Auch wurden Flechten untersucht, welche als Bioindikator für die atmosphärische Kontamination gelten, da sie Radionuklide aus der Luft anreichern. Damit sollte sowohl der Transfer des  $^{129}\text{I}$  von der See zum Land und schließlich auch zum Menschen als auch die räumliche Variabilität des  $^{129}\text{I}$  untersucht werden.

Zufällig ausgewählte Proben wurden aliquotiert und für RNAA, AMS und  $\gamma$ -X-Spektrometrie vorbereitet. Es wurden keine signifikanten Unterschiede dieser Analysemethoden festgestellt. Die Nachweisgrenze, die mit der  $\gamma$ -X-Spektrometrie für  $^{129}\text{I}$  erreicht wurde, lag bei 0,5 Bq/kg Trockenmasse. Die Isotopenverhältnisse von Seetangproben bei Goury erstreckten sich von  $7 \cdot 10^{-7}$  bis  $3 \cdot 10^{-5}$ . Die spezifischen Aktivitäten lagen zwischen 4,4 und 316,2 Bq/kg Trockenmasse. Goury befindet sich stromabwärts von La Hague und unterliegt der Beeinflussung durch die flüssigen Emissionen. Auch bei Flamanville wurden mit



$1,2 \cdot 10^{-5}$  relativ große  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnissen angetroffen. Weitere Proben bei Granville, Carteret, Luc sur Mer und Saint Valery waren weniger stark kontaminiert, diese lieferten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von  $1,2 \cdot 10^{-6}$  bis  $8,5 \cdot 10^{-6}$ . Fréchu und Calmet (2003) beobachten eine starke Verdünnung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in der direkten Umgebung von La Hague während anschließend nahezu konstante Aktivitätskonzentrationen im Seetang der Strömung in die Nordsee folgen. Verschiedene Isotopenverhältnisse einiger Seetangspezies, die an gleicher Stelle entnommen wurden, erklären Fréchu und Calmet (2003) mit den ungleichen Stoffwechseleigenschaften der unterschiedlichen Seetangspezies. Als allgemeiner Trend wurde festgestellt, dass die Isotopenverhältnisse im Seetang mit kürzer werdendem Abstand zu der Emissionsstelle ansteigen. Daher werden in Luc sur Mer, St Valery und Wimerieux die kleinsten Isotopenverhältnisse angetroffen, sie liegen jedoch alle über  $10^{-6}$ . Fréchu und Calmet (2003) sehen in der Analyse von Seetangproben auch die Möglichkeit, Zirkulationsmuster des Wassers innerhalb der Nordsee zu ergründen und die Daten für Simulationsrechnungen zu verwenden.

Die spezifischen  $^{129}\text{I}$ -Aktivitäten der untersuchten Flechten vom Festland lagen mindestens eine Größenordnung unter denen, die im Seetang in direkter Nähe und zu gleicher Zeit angetroffen wurden. Dagegen lagen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der gleichen Größenordnung wie die der Seetangproben und zeigten wie der Seetang eine Abnahme mit zunehmendem Abstand zur Wiederaufarbeitungsanlage. Die ähnlichen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Seetang und Flechten erklären Fréchu und Calmet (2003, siehe auch dortige Literaturstellen) mit dem permanenten Transfer von  $^{129}\text{I}$  vom Meer zum Land durch Seaspray. Dessen Zusammensetzung repräsentiert die oberste Schicht des Meerwassers wodurch das terrestrische Ökosystem entlang der Küste und im Landesinneren kontaminiert wird. Eine schnelle Abnahme der Beeinflussung durch Seaspray ins Landesinnere und damit auch eine geringere Beeinflussung durch die flüssigen Emissionen erklären die geringere Kontamination im Binnenland (Fréchu und Calmet, 2003).

Die direkte Umgebung der Wiederaufarbeitungsanlage wird durch die luftgetragenen Emissionen beeinflusst, besonders wenn diese in der vorherrschenden Windrichtung liegt. Diese Beobachtung wurde gemacht, obwohl die Anteile der luftgetragenen Emissionen gegenüber den flüssigen Ableitungen von etwa 10 % ab 1966 bis 1997 auf 1 % in den Jahren 1998 und 1999 abgenommen haben. Terrestrische Proben in unmittelbarer Nähe zur Wiederaufarbeitungsanlage zeigten größere Isotopenverhältnisse als Proben, die von der Küste entnommen wurden. Einen verstärkenden Effekt sehen die Autoren in der abnehmenden Konzentration des stabilen Iods in Richtung des Landesinneren. In der marinen Umwelt findet eine stärkere Verdünnung des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses statt als in der terrestrischen Umwelt.

Der Transfer zum Menschen ließ sich nicht über die Nahrungskette direkt bestimmen, da für die lokal erzeugten Nahrungsmittel die Erkennungsgrenze der  $\gamma$ -X-Spektrometrie nicht ausreichte. Anhaltspunkte für diesen Transfer können Schilddrüsen von Säugetieren liefern, die ähnlich wie bei Menschen sowohl radioaktives als auch stabiles Iod in der Schilddrüse anreichern (Fréchu et al., 2002).

Fréchu et al. (2002) untersuchten eine größere Anzahl von Rinderschilddrüsen. Bei Säugetieren reichert sich das Iod in der Schilddrüse an und ist für die Hormonbildung und den Stoffwechsel von Bedeutung. Daher sehen Fréchu et al. (2002) bei der Schilddrüsenanalyse eine gute Möglichkeit die räumliche und zeitliche Beeinflussung durch die luftgetragenen Emissionen zu überwachen. Eine weitere Anwendung besteht in der Abschätzung der Strahlenexposition des Menschen, der durch Inhalation und Ingestion dem radioaktiven  $^{129}\text{I}$  ausgesetzt ist. In der Arbeit (Fréchu et al., 2002) werden Schilddrüsen aus dem Norden der Halbinsel Cotentin in direkter Umgebung zur Wiederaufarbeitungsanlage untersucht. Es wurden sowohl archivierte Proben aus den 1970er und 1980er Jahren als auch aktuelle Schilddrüsen herangezogen. Die Proben wurden aliquotiert und ein Aliquot zwecks Bestimmung der  $^{129}\text{I}$ -Aktivität der  $\gamma$ -X-Spektrometrie zugeführt. Das andere Aliquot wurde zur Quantifizierung des stabilen  $^{127}\text{I}$  mittels instrumenteller Neutronenaktivierungsanalyse verwendet. Die exakte experimentelle Vorgehensweise kann der Originalliteratur (Fréchu et al., 2002) entnommen werden.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von Rinderschilddrüsen aus den 1980er Jahren streuten um den Faktor 20 von  $1,00 \cdot 10^{-6}$  bis  $21,4 \cdot 10^{-6}$ . Proben aus dem Jahr 1999 zeigten eine Streuung um mehr als zwei Größenordnungen ( $0,91 \cdot 10^{-6}$  bis  $251 \cdot 10^{-6}$ ) und liegen damit deutlich über dem, was 1975 mit  $0,13 \cdot 10^{-6}$  (Gros et al., 1975) in einer Schilddrüse angetroffen wurde. Die heißeste Schilddrüse mit einem Isotopenverhältnis von mehr als  $10^{-4}$  wurde im März 1999 bei einem Rind aus der Ortschaft Digulleville angetroffen, der Ort liegt etwa 3 km nordöstlich von der Wiederaufarbeitungsanlage. Dieses extrem hohe Isotopenverhältnis erklären Fréchet et al. (2002) mit dem Einfluss der luftgetragenen Emissionen. Digulleville liegt sowohl für regnerische als auch für trockene Witterungsbedingungen in der Hauptwindrichtung des Fortluftschornsteins. Ein weiterer verstärkender Einfluss wird darin gesehen, dass sich die Weidetiere fast das ganze Jahr im Freien aufhalten und so stark exponiert werden. Schilddrüsenproben aus den 1980er Jahren zeigten bezüglich der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und der spezifischen Aktivität dieselben räumlichen Tendenzen wie bei den Schilddrüsen aus dem Jahre 1999. Bei diesen archivierten Proben wurden ebenfalls bei Digulleville die höchsten Kontaminationen beobachtet.

Die Autoren stellten außerdem fest, dass die Isotopenverhältnisse von 1973 bis 1999 in den Schilddrüsen aus Digulleville den luftgetragenen Emissionen folgen (Fréchet et al., 2002). Diese Beobachtung konnte bisher nur in der unmittelbaren Umgebung von Wiederaufarbeitungsanlagen gemacht werden, so stieg das Isotopenverhältnis von 1980 bis 1999 um eine Größenordnung. Schilddrüsen, die von Rindern in größerer Entfernung gewonnen wurden, zeigten keine so deutliche Beeinflussung durch die Fortluft aus La Hague. Es wurde ein geringerer Anstieg des Isotopenverhältnisses und der spezifischen Aktivität beobachtet als bei Digulleville. Zwischen 1973 und 1980 stieg das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in Proben aus Flamanville, Héauville und Flottenmanville um den Faktor 6,3, in den darauf folgenden 19 Jahren um den Faktor 2,3. Diese Faktoren in den zwei Zeiträumen werden auch in der Entwicklung der gasförmigen Emissionen angetroffen, wenn man den von Fréchet et al. (2002) als gleitender Mittelwert bezeichneten Wert über jeweils 4 Jahre heranzieht. Dabei werden die Emissionen in den Zeiträumen 1973 – 1976, 1974 – 1977, 1975 – 1976 usw. gemittelt. Fréchet et al. (2002) sehen deshalb in den Messergebnissen der Schilddrüsen eine Möglichkeit, die Emissionen längerer Zeiträume über die langfristige Akkumulation in Schilddrüsen zu überwachen.

Hou et al. (2000 a) untersuchten Seetang auf  $^{129}\text{I}$ . Es wurden Zeitreihen archivierter Proben aufgearbeitet, um Transportzeiten des  $^{129}\text{I}$  aus den Wiederaufarbeitungsanlagen und dessen Transferfaktoren abzuschätzen. Die Arbeit (Hou et al., 2000 a) umfasst mehrere, relativ große Datensätze. Von Klint auf der Insel Seeland am Kattegat wurden von 1986 bis 1999 zwei bis vier Seetangproben pro Jahr entnommen, so dass insgesamt 39 Proben zur Verfügung standen. Weitere Zeitreihen wurden aus Utsira in Norwegen (1980 – 1995), Bornholm in Dänemark an der Ostsee (1995 – 1999), dem Roskildejord auf Seeland (1995 - 1998) und von der Nordwestküste Dänemarks (1997) auf  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  untersucht. Die Quantifizierungen erfolgten mittels radiochemischer Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA). Die Details der experimentellen Vorgehensweise können der Originalliteratur (Hou et al., 2000 a) entnommen werden.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind bei Klint am Kattegat ähnlich denen, die bei Utsira an der norwegischen Küste angetroffen werden. Hou et al. (2000 a) vermuten deshalb ein etwa gleichzeitiges Erreichen des kontaminierten Wassers an den genannten Orten. In dem Zeitraum von 1986 bis 1999 stieg das Isotopenverhältnis bei Klint um eine Größenordnung von etwa  $4 \cdot 10^{-8}$  auf  $3,7 \cdot 10^{-7}$  an, in Utsira von etwa  $2 \cdot 10^{-8}$  auf  $1,8 \cdot 10^{-7}$ .

Bornholm in der Ostsee ist deutlich geringer kontaminiert als Klint und Utsira, erst 1999 werden dort die Isotopenverhältnisse angetroffen, die bereits 1985 und 1986 bei Klint beobachtet wurden. Allerdings liegen die Messwerte bei Bornholm mit  $5 \cdot 10^{-8}$  (1999) immer noch deutlich über dem postnuklearen Hintergrund, der mit etwa  $10^{-10}$  angenommen wird und zeigen eine steigende Tendenz. Hou et al. (2000 a) gehen bezugnehmend auf Andersson und Rydberg (1988) davon aus, dass nur wenig des kontaminierten Wassers aus von der Nord-

see den Weg durch den Kattegat in die Ostsee findet und ein Großteil wieder zurück in die Nordsee fließt. Quelle der Kontamination ist aber trotzdem die Nordsee.

Bei Seetangproben im Roskildefjord liegen die Isotopenverhältnisse mit etwa  $8 \cdot 10^{-8}$  etwa um den Faktor zwei bis Faktor fünf unter denen, die bei Klint im Kattegat gemessen wurden. In dem Beprobungszeitraum von 1995 bis 1998 sind die Schwankungen der Messergebnisse vernachlässigbar. Hou et al. (2000 a) erklären die kleinen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse mit der Zusammensetzung des Flusswassers. Der überwiegende Teil ist Regenwasser und es findet nur ein geringer Austausch mit dem Meerwasser aus dem Kattegat statt.

An der Küste Grönlands werden die kleinsten Isotopenverhältnisse beobachtet, diese liegen im Bereich von  $8,2 \cdot 10^{-10}$  bis  $1,3 \cdot 10^{-9}$  etwa zwei Größenordnungen unter denen, die bei Klint im Roskildefjord oder bei Utsira angetroffen wurden.

In dem zweiten Teil der Arbeit widmen sich Hou et al. (2000 a) den Transportzeiten. Damit ist der Zeitabschnitt zwischen einem Emissionsereignis und dem Erreichen des maximalen Beitrages an einem bestimmten, stromabwärts gelegenen Punkt gemeint. Bei bekannter Eintragsfunktion (Nuklid, Zeitpunkt, Menge) und den gemessenen Konzentrationen des Nuklids an der Beprobungsstelle kann die Transportzeit abgeschätzt werden. Mit Hilfe der so genannten Kreuzkorrelationsfunktion werden zwei zeitverschobene Signale (Eintrag der Nuklide und gemessenes Isotopenverhältnis) ausgewertet. Mehrere Faktoren schwächen jedoch diese Vorgehensweise. Die Eintragsfunktion ist zeitlich nicht besonders gut aufgelöst (jährliche Emissionsdaten), die Distanz von La Hague bis Utsira ist relativ kurz und der Eintrag von La Hague ist wesentlich größer als der von Sellafield.

Die von Hou et al. (2000 a) ermittelten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Seetang bei Utsira und Klint folgen den Emissionen mit ein- bis zweijähriger Verzögerung. Dem zugrunde liegen die kombinierten Emissionen aus La Hague und Sellafield mit der Annahme, dass die Emissionen aus Sellafield zwei Jahre früher als die aus La Hague an diesen Orten eintreffen. Unter Einbeziehung der  $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$ -Isotopenverhältnisse schätzen Hou et al. (2000 a) die Transportzeit von La Hague nach Utsira auf etwa 1,5 Jahre. Der Vorteil bei der Nutzung des  $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$ -Isotopenverhältnisses liegt in der größeren zeitlichen Variation der Emissionen. Ein starkes Ansteigen der  $^{99}\text{Tc}$ -Emissionen im Jahre 1999 wird etwa 1,5 Jahre später in Utsira angetroffen.

Ein weitere Abschnitt der Arbeit (Hou et al., 2000 a) beschäftigt sich mit der Berechnung von Transferfaktoren und Modellierungen. Darauf soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden und es kann in der angegebenen Literaturstelle nachgelesen werden.

In einer weiteren Arbeit nahmen Hou et al. (2001) eine Speziesanalyse des Iods in Meerwasser vor. Dabei wurden die  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  Iodid- und Iodatspezies bestimmt. Wie im Abschnitt 3.3 beschrieben, stellt Iodat die thermodynamisch stabilste Form des Iods dar, die Oxidation des Iodids zum Iodat ist aber kinetisch gehemmt (Wong, 1991). Nach Verbesserung der Trennwirkung des Anionenaustausches war es möglich,  $^{129}\text{I}$ - und  $^{129}\text{IO}_3^-$  im Bereich von  $3 \cdot 10^8$   $^{129}\text{I}$ -Atomen/Liter zu bestimmen.  $^{125}\text{I}$  wurde als Ausbeutetracer genutzt, dieser wurde in Form des Iodids und des Iodats verwendet. Die genaue experimentelle Vorgehensweise und Abtrennung kann Hou et al. (2001) entnommen werden und ist hier nicht Gegenstand der Diskussion. Die Quantifizierung von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  erfolgte über NAA. An drei Probenahmeorten (zwei im Kattegat und einer in der Ostsee) wurden im Juni sowohl Tiefen- als auch Oberflächenwasserproben entnommen. Bei Hesselø im Kattegat ( $56^{\circ}10' \text{ N}$ ,  $11^{\circ}47' \text{ E}$ , nördlich von Seeland) wurden Wasserproben aus 2 m und 24 m Tiefe, im Kattegat nordöstlich von Hesselø ( $56^{\circ}40' \text{ N}$ ,  $12^{\circ}07' \text{ E}$ ) bei 2 m und 40 m und bei Møn ( $54^{\circ}57' \text{ N}$ ,  $12^{\circ}41' \text{ E}$ ) in der Ostsee wurden Proben bei 2 m und 23 m Tiefe entnommen. Diese Wasserproben wurden auf die Iodide und Iodate von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  untersucht.

Allen Proben gemein ist, dass die Salinitäten in den tieferen Wasserschichten größer sind, als an der Oberfläche. Bei Hesselø lagen die Salinitäten bei 15,3 PSU und 34,8 PSU (2 m bzw. 24 m), im Kattegat bei 15,8 PSU und 34,0 PSU (2 m bzw. 40 m) und bei Møn in der Ostsee wurden 7,5 PSU (2 m) und 7,8 PSU (23 m) angetroffen. Die Iodid-127-Konzentrationen waren an der Oberfläche mit etwa  $0,11 \mu\text{mol/l}$  bei allen drei Statio-

nen relativ konstant. Iodid-129 im Oberflächenwasser war dagegen in der Ostsee mit  $0,005 \cdot 10^{-13}$  mol/l deutlich weniger stark vertreten als in den beiden anderen Proben im Kattegat mit  $0,298 \cdot 10^{-13}$  mol/l bzw.  $0,279 \cdot 10^{-13}$  mol/l bei Hesselø. Weiterhin ist zu erkennen, dass die Kontamination mit der tiefliegenden Wasserschicht aus der Nordsee kommend in die Ostsee transportiert wird, daher werden bei Møn in der Ostsee die kleinsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse angetroffen. Diese liegen mit  $5 \cdot 10^{-8}$  etwa zwei Größenordnungen über dem globalen Hintergrund, der durch Kernwaffentests verursacht wurde. Dennoch liegen die Verhältnisse um etwa den Faktor fünf deutlich unter den Verhältnissen, die im Kattegat gemessen wurden. Als wesentliche Quelle des Iod-129 in der Ostsee werden die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield genannt, der Einfluss nuklearer Anlagen in der damaligen Sowjetunion kann vernachlässigt werden. Außerdem ist zu beobachten, dass in der Tiefe mehr Iodid-129 vorliegt, als an der Oberfläche. Im Ostseewasser sind keine nennenswerten Unterschiede im Oberflächen- und Tiefenwasser bezüglich Iodid und Iodat für  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  zu erkennen, etwa 7 % des Iods liegen in Form des Iodats vor. Im Gegensatz zum Ostseewasser stellt in der Tiefe des Kattegats Iodat die vorherrschende Form des Iods dar. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse für Iodat in der Ostsee sind wesentlich größer als für Iodid und liegen dicht bei denen aus dem Kattegat. Die Autoren (Hou et al., 2001) schlussfolgern daraus, dass sowohl Iodat-127 als auch das Iodat-129 in der Ostsee aus dem Kattegat stammen. Die geringeren  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in der Ostsee werden mit Verdünnungseffekten begründet. Außerdem erklären Hou et al. (2001) die geringeren Konzentrationen von 127-Iodat, 129-Iodid und 129-Iodat im Oberflächenwasser des Kattegats mit der Vermischung von Nordseewasser mit Ostseewasser. Aufgrund der Befunde sehen die Autoren mit Speziesanalyse von Iodid und Iodat kombiniert mit  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Quantifizierungen eine gute Möglichkeit, den Transport, die Verteilung und Mischungsprozesse von Wassermassen zu untersuchen.

Hou et al. (2002b) analysierten Wasserproben von der dänischen Küste, aus dem Skagerrak, dem Kattegat und der Ostsee, die von November 1999 bis März 2000 genommen wurden. Einige Orte wurden an der Oberfläche und in der Tiefe beprobt. Zusätzlich wurden einige Wasserproben aus Binnenseen des angrenzenden Festlands herangezogen. Allerdings werden lediglich die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und Salinitäten in den Ergebnistabellen angeführt,  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen fehlen ebenso, wie die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Wie zu erwarten, nimmt die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration von der Nordsee in Richtung der Ostsee stark ab. In Bornholm werden nur noch  $6 \cdot 10^{-13}$  g  $^{129}\text{I}$  pro Liter angetroffen, das sind zwei Größenordnungen weniger als in der Nordsee und entspricht einem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $5 \cdot 10^{-8}$ . Binnengewässer zeigten auch eine wesentlich geringere Kontamination, als das jeweils in der Nähe entnommene Meerwasser aus dem Kattegat oder der Ostsee. Im Wesentlichen stehen die Ergebnisse von Hou et al. (2002b) mit denen von Hou et al. (2001) im Einklang. Es wird das Eindringen des kontaminierten Wassers aufgrund der größeren Salinität und Dichte in den tieferen Wasserschichten beobachtet während das Ostseewasser an der Oberfläche verbleibt. So wurden im November 1999 im Fehmarnbelt (54°57' N, 11°04' E) beispielsweise  $5,15 \cdot 10^{-12}$  g  $^{129}\text{I}$  pro Liter bei einer Salinität von 14,0 PSU an der Oberfläche gemessen. Die Salinität in der Tiefe lag bei 23,0 PSU und die Iod-129-Konzentration bei  $9,7 \cdot 10^{-12}$  g  $^{129}\text{I}$  pro Liter. Weitere Ergebnisse der untersuchten Wasserproben können in der Originalliteratur (Hou et al., 2002b) nachgelesen werden.

Neben den Messergebnissen diskutieren Hou et al. (2002b) auch die Herkunft des Iod-129 in dem beprobten Gebiet. Nach deren Berechnungen sind etwa 0,02 % des Iod-129 natürlicher Herkunft, der atmosphärische Beitrag liegt bei knapp unter 4 % im nördlichen Ostseeraum und bei weniger als 1 % im südlichen Ostseeraum.

Nach Berechnungen von Paul et al. (1987) beläuft sich die  $^{129}\text{I}$ -Freisetzung aus dem Reaktorunfall in Tschernobyl auf 1,3 kg. Hou et al. (2002b) gehen in ihrer Abschätzung von annähernd gleichen Verhalten des  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{129}\text{I}$  bei der Deposition und ihren Transport in die Ostsee aus. Basierend auf einem  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses von 0,18 aus dem Tschernobylunglück und Auswertung vorangegangener  $^{137}\text{Cs}$ -Bestimmungen (Hou et al., 2002b und darin angegebene Literaturstellen) kann das aus Tschernobyl stammende  $^{129}\text{I}$  auf  $5 \cdot 10^{-15}$  g/l berechnet werden. Dies beinhaltet sowohl die direkte Deposition als auch den Eintrag aus

der Umgebung nach Deposition auf dem Kontinent. Demnach sind 4 % des  $^{129}\text{I}$  in dem nördlichen Ostseeraum, 1 % des im südlichen Ostseeraum und 0,1 % des Iod-129 im Kattegat der Herkunft Tschernobyls zuzurechnen. Zusammenfassend stellen Hou et al. (2002b) fest, dass sowohl der atmosphärische Fallout durch Kernwaffentests als auch der Reaktorunfall von Tschernobyl bei Betrachtung der gesamten Kontamination des Ostseeraumes nur eine untergeordnete Rolle spielen. Ein Beitrag der umliegenden Kernkraftwerke in Schweden, Russland, Finnland und Litauen wird als nicht signifikant bezeichnet.

Unter der Annahme, dass die Kontamination in den Binnenseen den Eintrag über den Luftpfad in diesen Gegenden repräsentiert, kann angenommen werden, dass mehr als 30 % im nördlichen, 7-66 % im südlichen Ostseeraum und weniger als 7 % im Kattegat über die Atmosphäre aus der Nordsee und dem direkten Eintrag der luftgetragenen Emissionen stammen. Der Beitrag der flüssigen Emissionen aus den Wiederaufarbeitungsanlagen über den Transport mit den Wassermassen wird aus 30 % in der südlichen Ostsee und auf mehr als 93 % im Kattegat beziffert.

Hou et al. (2007) untersuchten einen Teil der Wasserproben, die auch in diesem Bericht Gegenstand der Analyse sind. Die Arbeit beinhaltet eine Speziesanalyse (Iodat und Iodid) sowie Bestimmungen der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Gehalte. Ziel war es, die Quellen des Iodids im küstennahen Wasser und die Umwandlungsprozesse von Iodid zum Iodat zu klären. Außerdem sollte der Transport der verschiedenen Spezies des  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  im Oberflächenwasser der Nordsee untersucht werden.

Die größten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse werden in der Arbeit mit  $1,6 \cdot 10^{-6}$  im östlichen Teil des Englischen Kanals beobachtet, die kleinsten mit  $1,0 \cdot 10^{-8}$  im westlichen Teil nahe des Atlantiks. Die Ergebnisse der Iod-129-Bestimmungen decken sich weitgehend mit denen in diesem Bericht. An dieser Stelle soll auf die Ergebnisse der Speziesanalyse eingegangen werden, der Vergleich der  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse erfolgt in Abschnitt 5.3.3. Iod-127 kommt im Meerwasser überwiegend als Iodat vor (Wong, 1991), das gemessene Verhältnis auf offener See von Iodid zu Iodat lag unter 0,3 (Hou et al., 2007). Ein großer Iodidanteil wurde entlang der niederländischen Küste und der Deutschen Bucht festgestellt, die  $^{127}\text{I}/^{127}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse lagen zwischen 0,9 und 3,8. Die  $^{129}\text{I}/^{129}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse in allen untersuchten Seewasserproben liegen über den  $^{127}\text{I}/^{127}\text{IO}_3^-$ -Verhältnissen. Dies betrifft insbesondere den Englischen Kanal. Die Autoren (Hou et al., 2007) begründen die unterschiedlichen Iodid/Iodat-Verhältnisse mit den unterschiedlichen Quellen des  $^{127}\text{I}$  und des  $^{129}\text{I}$ . Die Spezies bei der Freisetzung des anthropogenen Iod-129 aus dem Abflussrohr spielt eine wichtige Rolle. Proben aus der direkten Umgebung des Abflussrohres wurden von Hou et al. (2007) nicht untersucht. Im Englischen Kanal lagen die  $^{129}\text{I}/^{129}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse zwischen 0,51 und 0,77. Dagegen sind die  $^{127}\text{I}/^{127}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse mit 0,1 bis 0,2 relativ gering.

Die nicht signifikante Variation des  $^{129}\text{I}/^{129}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse im Kanal und im südlichen, küstenfernen Bereich der Nordsee bedeutet nach Ansicht der Autoren, dass sich Anteile des ursprünglichen (so wie es freigesetzt wurde)  $^{129}\text{I}$  in dem angesprochenen Bereich ausgeprägt wieder finden. Das  $^{129}\text{I}/^{129}\text{IO}_3^-$ -Verhältnis von 0,51 bis 0,77 dürfte somit das Verhältnis zum Zeitpunkt der Emission repräsentieren.

Bei einem Bestimmtheitsmaß ( $R^2$ ) von 0,5 sehen Hou et al (2007) eine Korrelation der  $^{127}\text{I}/^{127}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse mit denen der  $^{129}\text{I}$ -Verhältnisse. Ähnlich wie beim  $^{127}\text{I}$  wird ein Ansteigen des  $^{129}\text{I}/^{129}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisses im Wasser entlang der dänischen Küste und in der Deutschen Bucht beobachtet, dort liegen diese zwischen 0,9 und 1,6. Die  $^{129}\text{I}/^{129}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse im küstenfernen Wasser und in der zentralen Nordsee sind denen im Küstengebiet der nördlichen Nordsee ähnlich. Dagegen sind die  $^{127}\text{I}/^{127}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse in der zentralen Nordsee und küstenfernen Bereichen wesentlich geringer und ähneln denen im Englischen Kanal. Die Autoren (Hou et al., 2007) erklären diesen Befund mit einem Ansteigen der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration aufgrund der Reduktion von Iodat-129 in Küstenregionen und dem anschließendem Transport in die nördlichere Nordsee. Die nördlichere Nordsee wäre ansonsten durch geringere  $^{127}\text{I}/^{127}\text{IO}_3^-$ -Verhältnisse geprägt.

Bei Betrachtung der Salinität sehen Hou et al. (2007) signifikante, positive Korrelation zwischen den Salinitäten und den Gesamtjodgehalten sowie den Iodatgehalten mit einem  $R^2$  von 0,82, bzw. 0,73. In der Nordsee, besonders in küstennahen Gegenden werden die Iodgehalte und auch die Salinitäten durch den Eintrag von Süßwasser aus den Flüssen herabgesetzt. Bezüglich der Iodidkonzentrationen und den Salinitäten wurde keine Korrelation beobachtet. Dies bekräftigt die Annahme, dass Iodid durch Reduktion des Iodats im küstennahen Wasser gebildet wird. Die Autoren gehen davon aus, dass sowohl die Reduktion des Iodats zum Iodid als auch die entgegengesetzte Oxidation auf offener See relativ schleppend verlaufen. Allerdings wird das Iodat-129 bei Erreichen der niederländischen Küste relativ zügig zum Iodid-129 reduziert. Im Mündungsbereich der Elbe finden Hou et al. (2007) äußerst große Iodid/Iodat-Verhältnisse beider Isotopen, sie gehen von einem schnellen Reduktionsprozess im Mündungsbereich aus. Allerdings erklärt dies nicht Iodid/Iodat-Verhältnisse von 68,21 für stabiles Iod und 70,39 für Iod-129 in der Elbe und von 3,75, bzw. 3,56 im Mündungsbereich. Die nicht untersuchten biologischen Aktivitäten oder auch Konzentrationen von Bakterien könnten in der Lage sein, das Reduktionsverhalten maßgeblich zu beeinflussen.

#### 4.1.1 Stand der Untersuchungen der Nordsee

Das BSH hat die gesetzliche Aufgabe, die Meeresumwelt auf Schadstoffe, darunter auch radioaktive Stoffe zu überwachen. Diese Aufgabe wird inzwischen seit 50 Jahren durchgeführt. Standen in den sechziger Jahren die Untersuchungen auf den globalen Fallout im Vordergrund, überwogen später die Untersuchungen in der Nordsee, um die Kontamination aus den nuklearen Wiederaufbereitungsanlagen Sellafield (damals Windscale) und La Hague zu verfolgen. Wie bereits weiter oben ausgeführt, war es möglich, die Kontamination von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  über weite Strecken zu verfolgen und daraus Transportzeiten der Wassermassen zu bestimmen. Das Radionuklid  $^{99}\text{Tc}$  geriet Anfang der 90er Jahre in das Blickfeld der Untersuchungen, um auch hiermit Transportwege und -zeiten in der Nordsee verfolgen zu können. Nach dem Unfall von Tschernobyl 1986 stand auch die Ostsee im Fokus, weil hier erheblich größere Aktivitäten deponiert wurden.

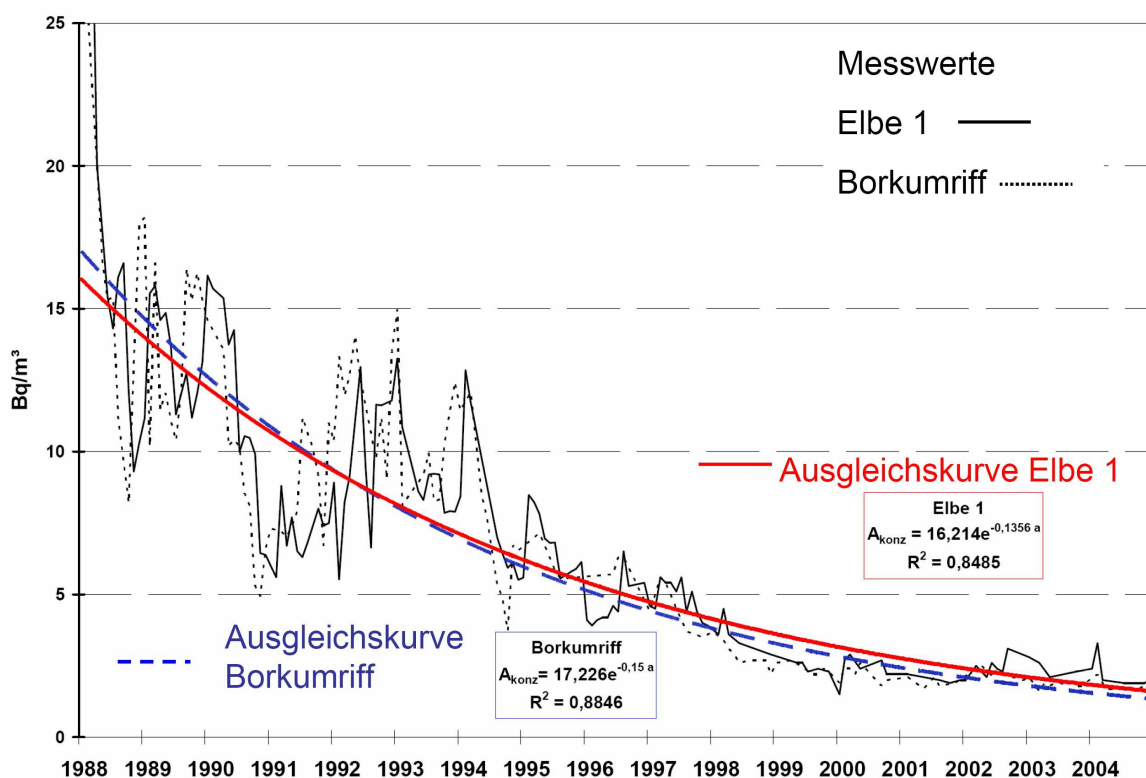
Wiederholt untersuchte das DHI bzw. BSH auch Wasserproben aus dem Atlantik, die in Zusammenhang mit der Versenkung schwach-radioaktiver Abfälle in Wassertiefen von mehr als 4000 m standen. Diese Untersuchungen wiesen nach, dass derartige Quellen keinen Einfluss auf die generelle Belastung der Nordsee ausüben, weil das Inventar vergleichsweise gering ist. Diese Untersuchungen waren aber Grundlage, um die Vorbelastung des Oberflächenwassers (bis 500 m Tiefe) des Nordatlantik für den Eintrag in die Nordsee zu bestimmen. Es zeigte sich auch, dass zur Beurteilung der Daten in der Nordsee wiederholte Messungen der Vorbelastung des Nordatlantiks notwendig sind.  $^{137}\text{Cs}$  wird zum geringen Teil in der euphotischen Deckschicht des Ozeans in organischer Materie gebunden und im Sediment deponiert. Hierdurch liegt die effektive Halbwertszeit des  $^{137}\text{Cs}$  im Atlantik bei nur etwa 14 bis 16 Jahren. Die Vorbelastung im Oberflächenwasser im Kanal durch den globalen Fallout beträgt derzeit etwa 1 bis 1,5 Bq/m<sup>3</sup> für  $^{137}\text{Cs}$  und bis zu 1 Bq/m<sup>3</sup> für  $^{90}\text{Sr}$ . Die Vorbelastung für  $^{99}\text{Tc}$  wurde in einer Arbeit von Dahlgaard et al. (1995) mit etwa 0,05 Bq/m<sup>3</sup> bestimmt (Dahlgaard et al., 1995).

Die Überwachungsergebnisse des BSH in Nord- und Ostsee wurden regelmäßig in den Jahresberichten des BMU „Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung“ und anderen Veröffentlichungen dargestellt (BSH, 2005; Nies und Kanisch, 2002). Insgesamt liegen die Aktivitätskonzentrationen von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  inzwischen nur noch gering über dem Fallout-Level, da die Einleitungen aus La Hague und Sellafield sehr klein im Verhältnis zu früher (70er und 80er Jahre) geworden sind (Dahlgaard et al., 1995).

Das Monitoringprogramm im Rahmen der Überwachung nach Strahlenschutzvorsorgegesetz des BSH umfasste schwerpunktmäßig hauptsächlich die Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , Tritium und die Transuranisotope  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$ . Im Einflussbereich der Anlage La Hague kann auch  $^{243}\text{Cm}$  nachgewiesen werden. Dementsprechend liegen für diese Nuklide auch an etlichen Stationen in Nord- und Ostsee Zeitreihen vor, an denen die langjährigen Verände-

runge der Aktivitätskonzentration beobachtet werden kann. Sofern ausreichend Kapazität vorhanden war, wurde auch zeitweise das Radionuklid  $^{99}\text{Tc}$  bestimmt. Konzentrationsdaten für den Beta-Strahler  $^{241}\text{Pu}$  (HWZ = 14,4 Jahre) werden über die Tochter  $^{241}\text{Am}$  mittels alpha-spektrometrischer Bestimmung ermittelt, wobei das Anwachsen der Zerfallsrate des Tochter-nuklids nach etwa 5 Jahren auf dem elektroplattierten Präparat bei 5,6 MeV nachgemessen wird. Bei etwa der gleichen Alpha-Energie wird auch das  $^{238}\text{Pu}$  bestimmt, so dass dessen Beitrag zur Aktivität dementsprechend zu berücksichtigen ist. Eine Unterscheidung der Plutoniumisotope 239 und 240 ist alpha-spektrometrisch nicht möglich; diese müssten massenspektrometrisch unterschieden werden. Die folgenden Abbildungen geben die zeitliche Entwicklung der Aktivitätskonzentration einiger Radionuklide in der Deutschen Bucht wider.

### Zeitlicher Verlauf der Sr-90 Konzentration in der Deutschen Bucht



**Abbildung 44: Zeitliche Entwicklung der Aktivitätskonzentration von Sr-90 an zwei Positionen in der Deutschen Bucht seit 1988 mit exponentiell angepassten Trendlinien.**

Aus der Abnahme der Sr-90- und Cs-137-Konzentration an den beiden Stationen in der Deutschen Bucht lässt sich näherungsweise eine effektive Halbwertszeit berechnen. Sie ergibt sich für  $^{90}\text{Sr}$  bei Borkumriff zu 4,6 und an der Station bei Elbe 1 zu 5,1 Jahren. Für  $^{137}\text{Cs}$  ergibt sich entsprechend eine leicht längere Zeit der Abnahme auf jeweils die halbe Konzentration mit 7,5 Jahren bzw. 6,7 Jahren bei Borkumriff bzw. Elbe 1 (Abbildung 45). Zu erwarten wäre eigentlich eine längere scheinbare Halbwertszeit für  $^{137}\text{Cs}$  bei Elbe 1, da eventuell noch Radiocaesium aus dem Tschernobyl-Unfall aus der Elbe nachgeliefert werden könnte. Ein solcher Effekt ist allerdings nur bis Ende der achtziger Jahre zu sehen, so dass das Konzentrationsniveau dort höher war und damit die Konzentration auch schneller auf vergleichbare Werte wie bei Borkumriff abnahm und damit eine scheinbare kurze Wassererneuerungszeit andeutet.

Zeitlicher Verlauf der Caesium-137 Konzentration in der Deutschen Bucht

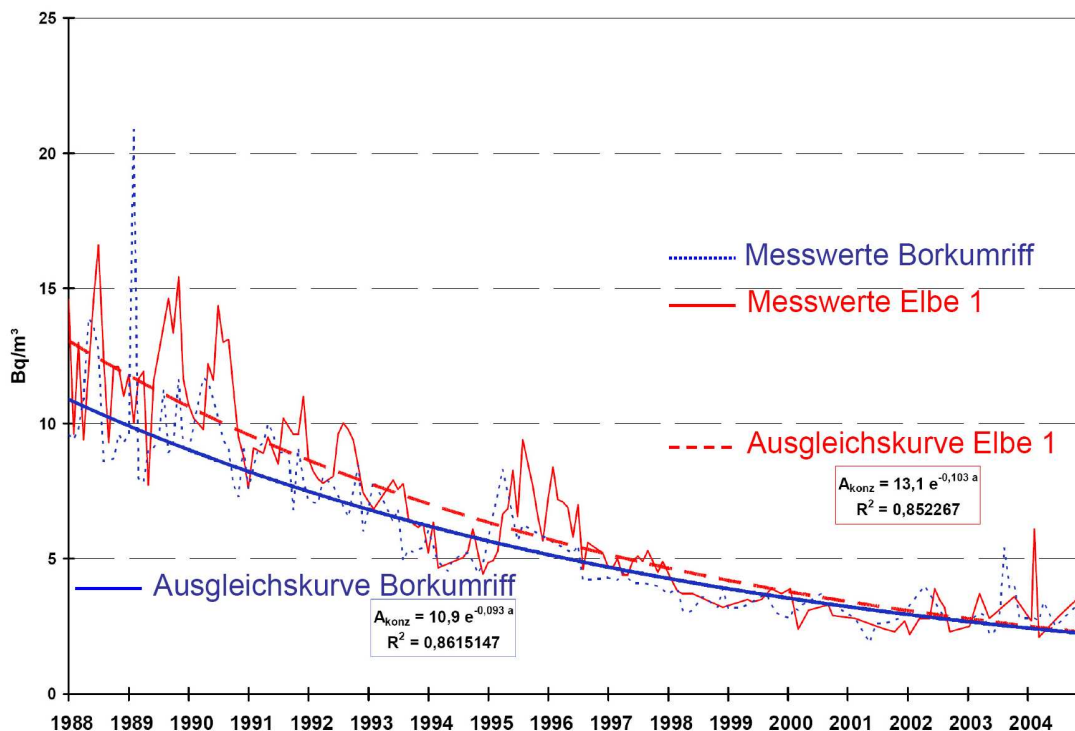


Abbildung 45: Zeitliche Entwicklung der Aktivitätskonzentration von Cs-137 an zwei Positionen in der Deutschen Bucht seit 1988 und exponentiell angepassten Trendlinien

Tritium  
Mittelwerte von 4 Stationen in der westlichen Ostsee  
und 9 Stationen in der Deutschen Bucht

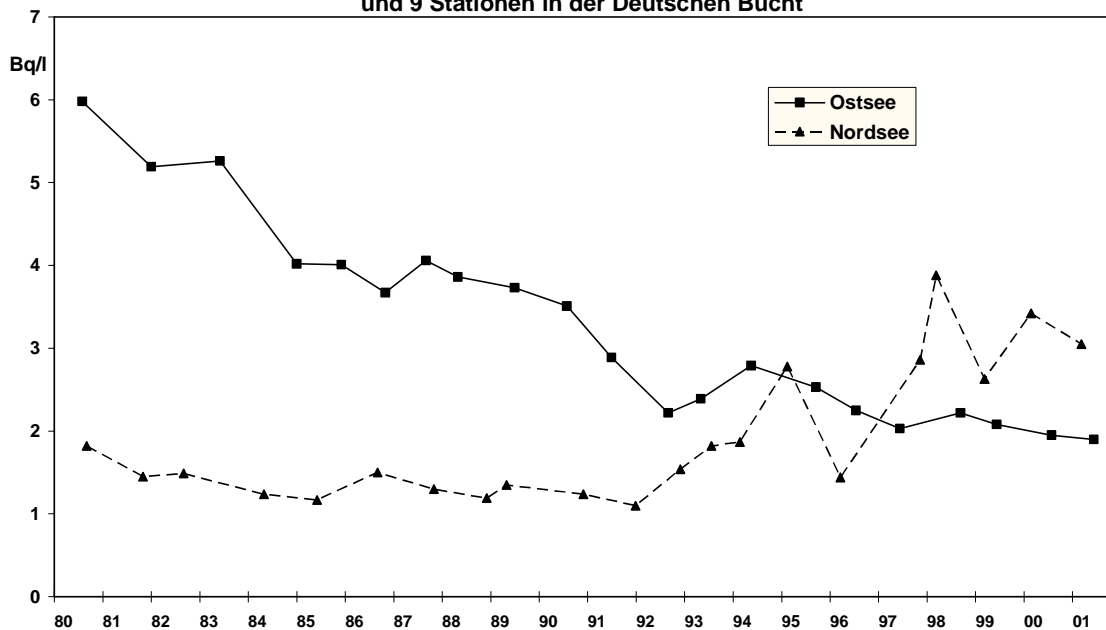


Abbildung 46: Langjähriger Trend der Tritium-Aktivitätskonzentration an vier Stationen in der westlichen Ostsee und an neun Stationen in der Deutschen Bucht



## 4.2 Literaturdatenbank

Es wurde eine Literaturdatenbank zu den Arbeiten angelegt, die sich mit Radionukliden im Meerwasser beschäftigen. Diese Datenbank wird ständig aktualisiert um mit neu erscheinenden Artikeln ergänzt (EndNote).

## 4.3 Chemie des Iods im Meerwasser

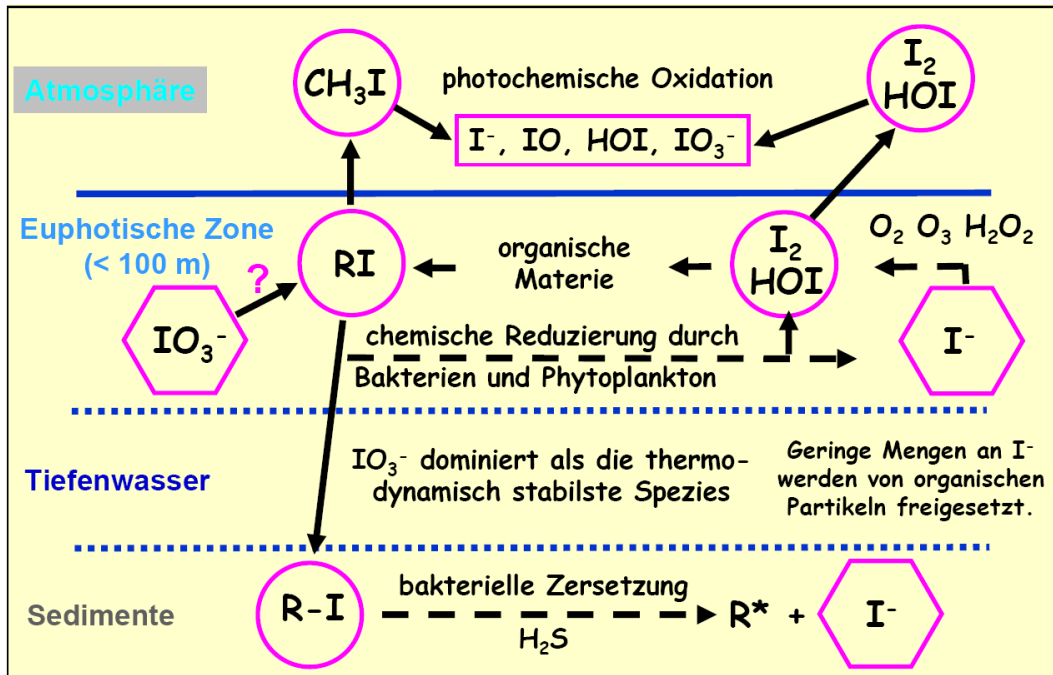
Iod kommt in der Natur aufgrund seiner Reaktivität nur gebunden und nicht gediegen vor. Es tritt u. a. in Meeren, Seen, Mineralwässern und Gesteinen auf, dabei sind aber meist nur geringe Konzentrationen zu beobachten. In Solwässern und in Seetang ist es jedoch bisweilen stark angereichert, ferner sind größere Anteile Lautarits  $\text{Ca}(\text{IO}_3)_2$  im Chilesalpeter anzutreffen. Ein wesentlicher Unterschied zum Chlor ist, dass nur ein kleiner Teil (weniger als 1 %) des in der Erdkruste auftretenden Iods im Meerwasser gelöst ist, der überwiegende Teil des Iods ist in marinen Sedimenten und sedimentären Gestein gebunden (Muramatsu und Wedepohl, 1998). Es verhält sich weitgehend konservativ und folgt den Strömungen der Ozeane.

Iod geht in der Umwelt eine großen Anzahl von Verbindungen ein, dabei kann es relativ viele Oxidationsstufen (-1, 0, +1, +5 und +7) durchlaufen. Die wichtigsten Verbindungen des Iods sind bei Betrachtung der Chemie im Meerwasser Iodid ( $\text{I}^-$ ), Iodat ( $\text{IO}_3^-$ ), Periodat ( $\text{IO}_4^-$ ), elementares Iod ( $\text{I}_2$ ) und Methyljodid ( $\text{CH}_3\text{I}$ ). Hypiodid ( $\text{IO}^-$ ) ist nur in alkalischen Lösungen stabil und ist daher weniger bedeutsam. Darüber hinaus gibt es noch eine Vielzahl weiterer, organischer Iodverbindungen. Iod wird als biophil bezeichnet, da es sich in organischen Materialien wie Seetang, Algen oder anderen Meeresorganismen bis zum Faktor  $10^5$  anreichert.

Zwischen den verschiedenen Iodverbindungen herrschen Gleichgewichtsreaktionen. Es finden kontinuierlich Oxidationen und Reduktionen statt. Im Meerwasser unterscheiden sich diese Reaktionen nach Nähe zur Wasseroberfläche oder Nähe zum Meeresboden. Innerhalb einer Wassersäule kann nicht davon ausgegangen werden, dass eine homogene Verteilung der unterschiedlichen Iodverbindungen herrscht, vielmehr ist anzunehmen, dass sich erhebliche Konzentrationsunterschiede und Konzentrationsgradienten beobachten lassen. Der durchschnittliche Gesamtjodgehalt kann im Meerwasser mit etwa 50 ng/g an der Oberfläche und etwa 60 ng/g im Tiefenwasser abgeschätzt werden (Fabryka-Martin, 1984 und dort angegebene Literaturstellen).

In aquatischen Systemen tritt Iod am häufigsten als Iodid und Iodat auf, elementares Iod und organische Iodide, z. B. Alkyljodide, kommen nur in geringen Konzentrationen vor (Muramatsu und Ohomo, 1988). Die vorliegende Form des Iods ist deshalb von großer Bedeutung, weil sie einerseits die Richtung des Phasenübergangs beeinflusst und andererseits die Verweildauer des Iods in den verschiedenen Kompartimenten maßgeblich bestimmt. Auch bei der Aufnahme durch Pflanzen oder Lebewesen ist die chemische Form des Iods entscheidend (Muramatsu und Ohomo, 1988).

Iodat ist die thermodynamisch stabilste Form des Iods im Meerwasser, ein signifikanter Teil (bis zu 22 %) Iodid ist aber auch stets zugegen. Zum einen ist die Oxidation des Iodids zum Iodat im wässrigen Medium kinetisch gehemmt, Sauerstoff stellt in wässrigen Systemen ein nicht besonders effektives Oxidationsmittel dar. Zum anderen wird Iodid laufend bei der enzymatischen Reduktion von Iodat durch Meeresbakterien nachgebildet. Von Plankton, Algen und anderen Meeresorganismen wird Iod in Form des Iodids aufgenommen. Typische Iodidkonzentrationen liegen nahe der Oberfläche im Bereich von 10 ng/g, diese Konzentration nimmt mit zunehmender Tiefe auf etwa 2 ng/g ab. Am Meeresboden kehrt sich der Trend um und es wird ein auf etwa 5 ng/g ansteigende Iodidkonzentration beobachtet. Erklärt wird dies mit einer möglichen anaeroben Zersetzung von organisch geprägten Sedimenten, von denen Iodid in die untere Wasserschicht diffundiert (Fabryka-Martin, 1984 und dort angegebene Literaturstellen; Santschi und Schwehr, 2004; Muramatsu und Ohomo, 1988).



**Abbildung 47: Vereinfachtes Schema der Chemie des Iods im Meerwasser nach Santschi und Schwehr (2004) und Muramatsu und Ohomo (1988).**

Iodverbindungen können in die Atmosphäre übergehen und weitere Reaktionen eingehen. Gleichzeitig können Iodverbindungen auch aus der Luft ins Wasser eintreten, so dass ein kontinuierlicher Austausch zwischen mariner Hydrosphäre und Atmosphäre stattfindet.

Wie oben bereits angesprochen, wird Iod überwiegend in Form von Iodid durch Meeresorganismen aufgenommen, dabei reichert sich das Iod in manchen Algen und Tieren um mehr als den Faktor  $10^5$  an, nicht selten werden in manchen Algen  $1000 \mu\text{g/g}$  Iod und mehr angetroffen (Fabryka-Martin, 1984; Schink et al., 1995a; Santschi und Schwehr, 2004; Wong und Cheng, 1998; Wong, 1991). Iod ist in Seetang überwiegend an Proteine gebunden. Das Absterben und zu Boden Sinken ist ein grundlegender und wichtiger Mechanismus zur Entfernung des Iods aus dem Meerwasser.

Das durch Meeresorganismen nahe der Wasseroberfläche gebildete Iodid kann durch Einwirkung von Sonnenlicht photooxidiert werden, das dabei entstehende  $\text{I}_2$  ist in der Lage, die Phasengrenzfläche zwischen Wasser und Luft relativ leicht zu passieren. Diese Schicht wird euphotische Zone genannt, darunter versteht man die obere, vom Sonnenlicht durchdrungene Schicht des Wassers, in der eine effektive Photosynthese möglich ist (Leblanc et al., 2006). Wong (1991) lieferte in eine Übersicht über die Eigenschaften des Iods im Meerwasser, weitere ausführliche Beschreibungen können auch anderen Literaturstellen (Muramatsu und Ohomo, 1988; Wong, 1991 und dort angegebene Literaturstellen; Wong und Cheng, 1998; Santschi und Schwehr, 2004; Leblanc et al., 2006) entnommen werden.

#### 4.4 Design der Untersuchung

Es wurde eine Untersuchung vorgenommen, die den gesamten Bereich der Nordsee und des Englischen Kanals in Hinblick auf die Kontamination durch anthropogene Radioisotope erfasst. Neben den Oberflächenwasserproben liegen auch einige Tiefenprofile (u. a. aus dem Englischen Kanal und dem Skagerrak) vor. Damit kann die Verteilung der Isotope im Abstrom von La Hague und der Einfluss der Ostsee beurteilt werden. Proben aus der Deutschen Bucht, die seit 2005 als Zeitreihen vorliegen, können Veränderungen der Kontaminati-

on im zeitlichen Verlauf offen legen und als Startpunkt für eine langfristige Überwachung gesehen werden.

Weitere Proben aus der Irischen See und von der Westküste Schottlands lassen eine Einschätzung der Verdünnung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Abstrom von Sellafield zu. Darüber hinaus liefern exotische Wasserproben fernab der Emittenten Vergleichswerte, die das Ausmaß der Kontamination in Westeuropa erkennen lassen.

Neben  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$ -Daten spielen auch die übrigen, routinemäßig vom BSH überwachten Radionuklide eine wichtige Rolle, die abschließend zu einer Gesamtschau zusammengestellt werden und somit einen weitreichenden Überblick über den Zustand der Nordsee und den angrenzenden Meeren gewährleisten. Zusätzlich werden auch Nährstoffgehalte, Salinitäten und Temperaturen ermittelt, die als ergänzende Daten zu den Proben zur Verfügung stehen (s. Abschnitt 4).

## 5 Experimentelles

In diesem Abschnitt werden die experimentellen Arbeiten von der Probennahme über die Aufarbeitung bis zum Auswertegang besprochen. Bei der Iodanalytik umfasst die Quantifizierung zwei Teilaspekte: die  $^{129}\text{I}$ -Bestimmung mittels Beschleunigermassenspektrometrie und die  $^{127}\text{I}$ -Bestimmung mit Hilfe der ICP-MS.

Das Herzstück dieser Arbeit stellen die auf der großen Nordseereise im Jahr 2005 erhaltenen Proben dar (s. Stationsnetz der Fahrt, Abbildung 48). Während dieser Reise wird eine ozeanographisch-chemische-radiologische Gesamtaufnahme der Deutschen Bucht, des Englischen Kanals und der Nordsee mit Hilfe eines geschleppten CTD-Systems durchgeführt.

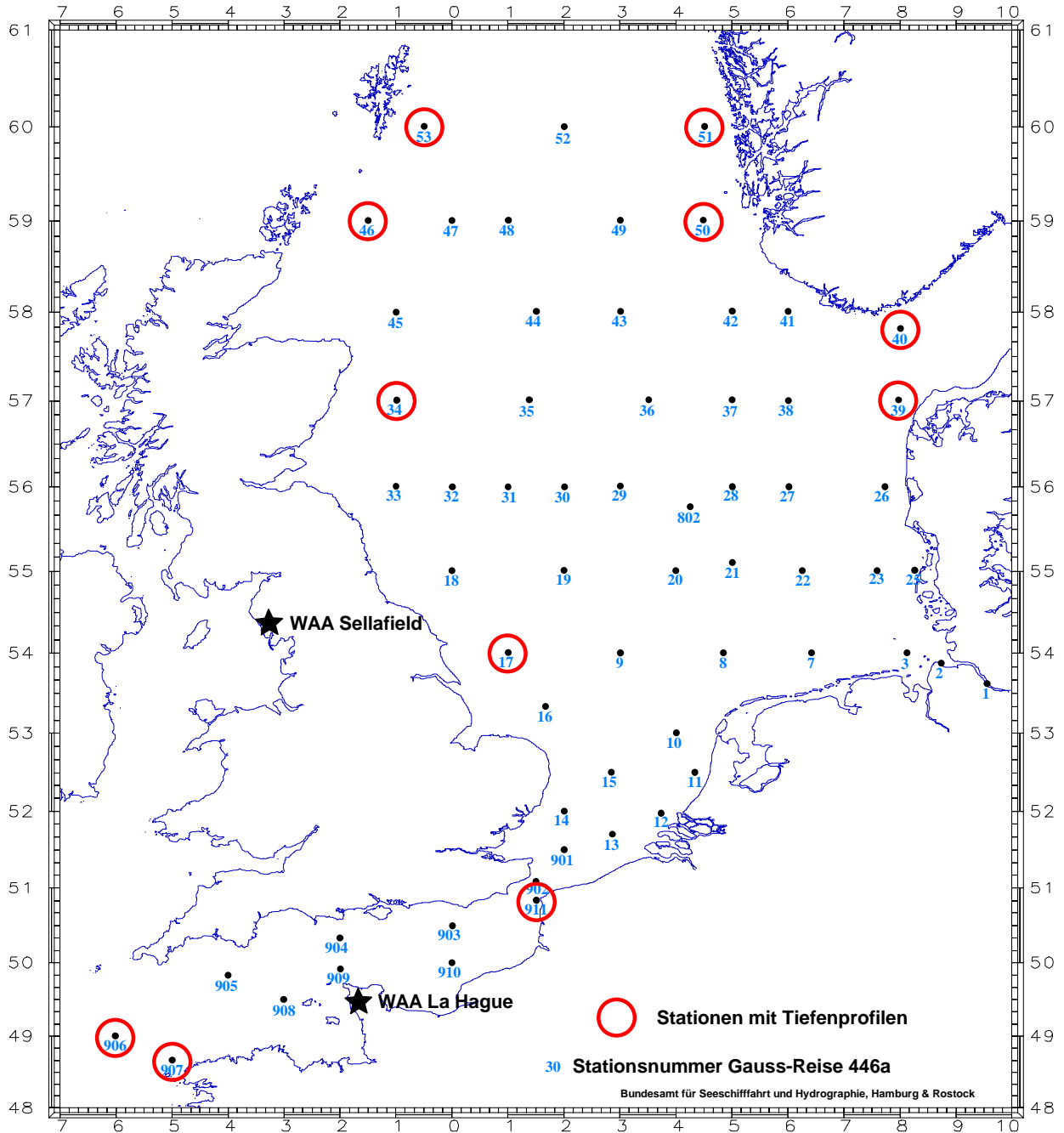
Folgende für die Iodanalytik relevanten Geräte wurden bei der Augustreise 2005 des FS Gauß verwendet:

- CTD/Rosette (Seabird SBE 19 mit Sauerstoffsensoren und Fluorometer, 12poliger Kranzwasserschöpfer mit 10 l Schöpfern)
- Delphin (Standardversion mit CTD, Fluorometer, AMT-Sauerstoff-Sensor)
- Thermosalinograph Seabird mit Trübungs- und Gelbstoffsensor

Die Untersuchung umfasst neben den Radionukliden auch umfangreiche Nährstoffanalysen. Orthophosphat-, Silikat-, Nitrat-, Nitrit- und Ammoniumgehalte wurden in einem für die Nährstoffanalyse hergerichteten BSH-Container, der an die Strom- und Wasserversorgung der Gauß angeschlossen war, photometrisch bestimmt. Diese Messungen erfolgten parallel an einem SFAS (Segmented Flow Analysis System). Es sind routinemäßig Sauerstoffgehalte, Temperatur und Salinität bei jeder Station ermittelt worden. Bei nahezu allen Tiefenprofilen stehen die Werte auch für die entsprechenden Tiefen zur Verfügung, so dass ein sehr großer Datensatz vorhanden war, bevor mit den eigentlichen Arbeiten der Iodanalytik begonnen wurde. Ein Thermosalinograph lieferte Temperatur und Salinität der Proben.

Die Ergebnisse der Iodanalysen werden nicht in Hinblick auf die Nährstoffgehalte und der organischen Schadstoffanalytik diskutiert, daher wird hier auf deren Ergebnisse nicht näher eingegangen. Neben den allgemeinen Probenparametern wie Datum, Ort (Stationsname oder -nummer, Koordinaten) und Zeit werden Temperatur, Salinität,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse,  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen,  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen in den zusammenfassenden Ergebnistabellen im Anhang angegeben.

Die anderen Probenahmekampagnen in der Deutschen Bucht, Irischen See, Ostsee und dem Nordatlantik liefern weitere, ergänzende Ergebnisse.



**Abbildung 48: Stationsnetz der großen Nordseereise vom 10.08.2005 bis 29.08.2005 (Reise 446a). Die roten Kreise kennzeichnen die Stationen, bei denen Tiefenprofile entnommen wurden.**

### 5.1 Probennahme

Die zu untersuchenden Wasserproben wurden während mehrerer Beprobungsfahrten der „Gauß“, der „Polarstern“ und der „Endeavour“ sowie einer gesonderten Probennahmekampagne durch das ZSR gewonnen. In der Augustreise wurde die gesamte Nordsee und der Englische Kanal beprobt. Diese Fahrt stellt den überwiegenden Teil des zu analysierenden Probenmaterials. Seit 2005 wurden immer wieder Proben aus der Deutschen Bucht ans ZSR verbracht, die bei Routinefahrten des FS GAUSS entnommen wurden. So existieren von einigen Punkten kleine Zeitreihen.

**Tabelle 12: Zusammenstellung der verschiedenen Beprobungen**

Reise	Zeitraum	Beprobungsgebiet	Forschungsschiff, Fahrnummer
1	25.05. - 05.06.2005	Deutsche Bucht	Gauß, 440
2	10.08. - 28.08.2005	Nordsee, Englischer Kanal	Gauß, 446a
3	29.08. - 05.09.2005	Deutsche Bucht	Gauß, 446b
4	16.08. – 16.09.2005	Nordostatlantik/Nordmeer	Polarstern
5	18.11 – 28.11.2005	Deutsche Bucht	Gauß, 451
6	23.06. -25.06.2006	Irische See	Endeavour 13/06
7	30.07. – 06.08.2006	Irische See, schottische Küste	a)

a) Probennahme durch das ZSR in Ufernähe

Zusätzlich liegen zwei weitere Proben aus der Ostsee (Gauß, 461) vor. Im Normalfall wurden die Wasserproben mit einem Schöpfer direkt an der Wasseroberfläche entnommen. Einige Proben wurden auch aus der Bordseewasserleitung (BSWL) gewonnen, dies entspricht einer Entnahmetiefe von 5 m unter der Wasseroberfläche. Sowohl aus der Deutschen Bucht als auch aus der Nordsee stehen einige Tiefenprofile zur Verfügung. Die Profile wurden an demselben Ort bei unterschiedlichen Tiefen mit einem Kranzwasserschöpfer (s. Abbildung 49) genommen. Der Kranzwasserschöpfer wurde in die gewünschte Tiefe herabgelassen. Dieser trägt Rohre mit sich, die vom Wasser durchströmt werden. Ist die zu beprobende Tiefe erreicht, werden die Rohre verschlossen und der Schöpfer wieder an die Wasseroberfläche gebracht. Für die Iodanalytik wurde 1 l Probenwasser in Polyethylenflaschen gefüllt und dieses zur Stabilisierung des Iods mit 2 NaOH-Plätzchen versetzt. Die Proben wurden ans ZSR verbracht und gekühlt unter Lichtausschluss aufbewahrt.



**Abbildung 49: Zur Probennahme verwendeter Kranzwasserschöpfer.**

## **5.2 Analytik**

### **5.2.1 Iod-129 und Iod-127**

Die Analysen wurden bezüglich  $^{129}\text{I}$  mit Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) am Institut für Ionenstrahlphysik der ETH Zürich, Standort Höggerberg, durchgeführt. Die  $^{127}\text{I}$ -Gehalte wurden unter Zuhilfenahme der Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) am Institut für Anorganische Chemie, Lehrgebiet Analytische Chemie, der Leibniz Universität Hannover bestimmt. Die Beschleunigermassenspektrometrie liefert die Isotopenverhältnisse aus denen nach Bestimmung der  $^{127}\text{I}$ -Gehalte an der ICP-MS die Konzentrationen des  $^{129}\text{I}$  berechnet werden.

Nachfolgend werden kurz die wesentlichen Merkmale und Prinzipien der Beschleuniger-massenspektrometrie (AMS) vorgestellt. Bezüglich des ICP-MS erfolgt hier lediglich eine Gerätebeschreibung, der detaillierte Aufbau und die Funktionsweise sind den gängigen Lehrbüchern der analytischen Chemie zu entnehmen. Die bisher am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR) angefertigten Arbeiten (Klipsch, 2004; Ernst, 2003; Szidat, 2000; Michel et al., 2004b) liefern ebenfalls weiterführende Informationen.

- **ICP-MS**

Ein Massenspektrometer besteht prinzipiell aus einem Probeneinlasssystem, Ionisator, Massenseparator und einem Detektor. Bei dem verwendeten Gerät Thermo X7 vom Hersteller Thermo Electron Corp. wird die Probe über eine peristaltische Pumpe in einen Meinhardt-Zerstäuber überführt. Die verwendete Plasmaleistung lag bei 1200 Watt. Die Massentrennung erfolgt mit einem Quadrupolmassenfilter und die Detektion mittels eines Kanalelektronenvervielfachers.

- **Probenvorbereitung und Messung am ICP-MS**

Die Vorbereitung zur ICP-MS-Analyse beschränkt sich auf das Filtern der Wasserprobe durch einen Zellulosenitratfilter. Vor der Messung wurden die Proben üblicherweise 1:10 verdünnt und eine NaOH-Konzentration von 0,01 mol/l eingestellt, um eine Hydrolyse der organischen Komponenten zu erreichen. Die Ionisierung im Plasma ist nur im sehr geringen Ausmaß durch Matrixeffekte beeinflusst. Die Spezies des vorliegenden Iods (Iodid, Iodat, organisch oder anorganisch gebunden) hat keinen signifikanten Einfluss auf das Ergebnis der ICP-MS Messung (Ernst, 2003), so dass keine Matrixabtrennung nötig ist. Die Probenzuführung ist im Gegensatz zur Ionisierung im Plasma nicht weitgehend frei von Matrixeffekten. Die Nachweiswahrscheinlichkeit eines Analyten beschreibt den Anteil der aus der Probe zum Detektor gelangenden Analytionen. Um die Nachweiswahrscheinlichkeit zu verbessern, werden bei Beginn eines Messtages die Geräteparameter beim sogenannten Tuning optimiert. Dabei werden die Einstellungen u. a. an den Cones und Ionenlinsen so variiert, dass eine  $^9\text{Be}$ ,  $^{115}\text{In}$  und  $^{238}\text{U}$  enthaltende Tuninglösung möglichst hohe Zählraten liefert.

Oft nimmt im Laufe eines Messtages die Nachweiswahrscheinlichkeit ab, da sich im Probenzuführungssystem, insbesondere auf den Cones, Ablagerungen bilden. Der Änderung der Nachweiswahrscheinlichkeit wird durch Einsatz eines internen Standards Rechnung getragen. Als interner Standard wurde das im Argon des Plasmas vorhandene  $^{129}\text{Xe}$  verwendet. Unter Annahme einer gleichen Nachweiswahrscheinlichkeit für  $m/z = 127$  und  $m/z = 129$  ändert sich das Verhältnis der  $^{127}\text{I}$ -Zählraten gegenüber den  $^{129}\text{Xe}$ -Zählraten auch bei nachlassender Nachweiswahrscheinlichkeiten bei derselben Probe im Laufe eines Messtages nicht. In den untersuchten Wasserproben ist im Vergleich zum  $^{127}\text{I}$  nur sehr wenig  $^{129}\text{I}$  zugegen. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass bei der Bildung des Zählratenverhältnisses von  $m/z = 127$  und  $m/z = 129$  keine signifikanten Störungen durch  $^{129}\text{I}$  auftreten. Im Gegensatz dazu ist die Bestimmung des  $^{129}\text{I}$  mittels ICP-MS derzeit in Umweltproben noch nicht möglich, da das  $^{129}\text{Xe}$  im großen Überschuss vorliegt und auch im hochauflösenden ICP-MS keine hinreichende Trennung möglich ist.

Nach jeweils vier Messungen wurde ein Iodstandard (5 ng/g) gemessen, um ein mögliches Gerätedriften zu korrigieren. Die zu messenden Proben lagen nach der Verdünnung bei knapp unter 5 ng/g. Die Kalibrationslösungen wurden zur Matrixanpassung in 0,01 molarer Natronlauge angesetzt. Der Kalibrationsbereich lag üblicherweise zwischen 0,5 und 20 ng/g. Nach jeder Messung wurde mit verdünnter  $\text{HNO}_3$  und 0,01 molarer Natronlauge gespült, bis kein nennenswertes Detektorsignal mehr gemessen wurde. Der beim Spülen mit NaOH vorhandene Untergrund wurde bei der anschließenden Messung (Probe oder Standard) abgezogen. Bei jeder Probe wurden sechs Runs mit einer Dwell-time von 3 ms aufgenommen. Der Gang der Auswertung und Qualitätskontrolle wird im Abschnitt 5.3 beschrieben. Ausführ-

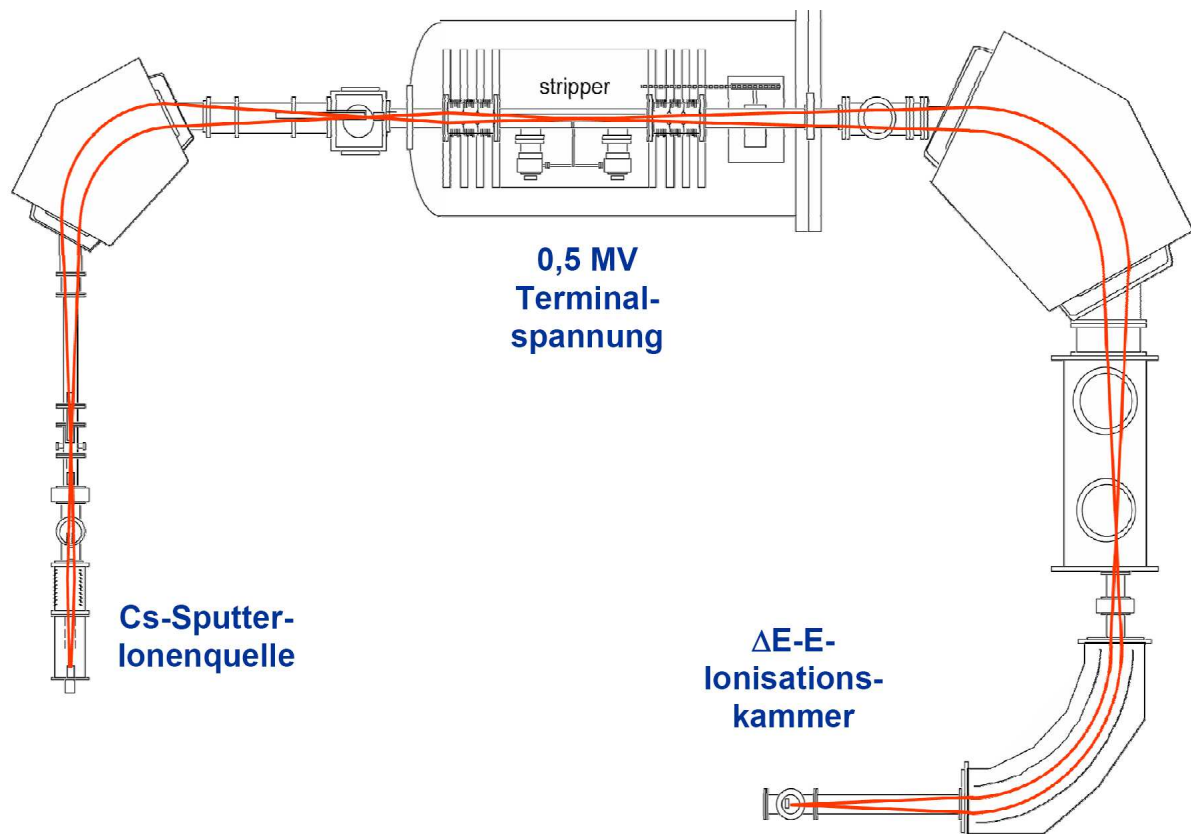


liche Erläuterungen können Ernst (2003), Klipsch (2005) und Michel et al. (2004b) entnommen werden.

- **AMS**

Die Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) stellt eine besondere Form der Massenspektrometrie dar. Erst seit Anfang der 1980er Jahre steht diese sehr aufwendige Technik zur Verfügung. Bauartbedingt lassen sich mit der AMS nur die Verhältnisse von Isotopen zueinander messen, oftmals werden ein stabiles Isotop und ein langlebiges Isotop nebeneinander gemessen. Dabei liegt meistens ein Isotop im großen Überschuss neben dem zweiten Isotop vor. Eine besondere Art der Ionisierung, Unterdrückung der Molekülinterferenzen und Detektion werden in der AMS genutzt. An dieser Stelle wird ein Überblick über die wesentlichen Bauteile der AMS und die zugrundeliegenden Prinzipien gegeben.

Die an der ETH Zürich genutzte AMS-Anlage besteht aus einer Ionenquelle, Niederenergiemassenspektrometer, Tandembeschleuniger mit Stripper, Hochenergiemassenspektrometer und einem Detektorsystem. Die Anlage wird in Niederenergie- und Hochenergiebereich unterteilt.



**Abbildung 50: Schematischer Aufbau der AMS-Anlage an der ETH Zürich, Standort Höggerberg.**

Von einer Caesium-Sputterionenquelle treten einfach positiv geladene Caesiumionen aus, werden beschleunigt und treffen auf die Proben targets. Dort werden  $1^-$ -Teilchen herausgelöst und mittels elektrostatischer Linsen in Richtung des ersten Massenfilters gelenkt. Diese Art der Ionisierung trennt alle Atome ab, die keine stabilen negativen Ionen bilden. Eine zweite Separierung erfolgt im Niederenergiemassenspektrometer. Alle Ionen, deren  $m/z$ -Verhältnisse einen vorgegebenen Bereich über- oder unterschreiten werden herausgefil-

tert. Der Ionenstrahl wird danach gepulst und es wird der Strom des  $^{127}\text{I}$  in einem Faradaybecher auf der Niederenergieseite gemessen. In dem Tandembeschleuniger erfolgt eine zweifache Beschleunigung der Teilchen. Die angelegte Potentialdifferenz betrug 0,5 MV, die einfach negativ geladenen Ionen werden in Richtung des positiven Potentials (Terminal) beschleunigt und treffen mit einer Energie von 0,5 MeV auf den sogenannten Stripper. Dabei handelt es sich hier um einen mit Argongas gefüllten Bereich, der Elektronen von der äußeren Atomhülle abstreift. Durch die Ladungsumkehr werden die Ionen vom positiven Potential weg beschleunigt. An dieser Stelle entschied man sich für die Detektion den Ladungszustand des Iods auf + 4 festzulegen. Möglich sind auch Detektionen von  $\text{I}^{3+}$  und  $\text{I}^{5+}$ ,  $\text{I}^{4+}$  lieferte aber stabilere Signale und die Molybdänstörung konnte effektiver unterdrückt werden. Es reduziert sich damit die Nachweiswahrscheinlichkeit, da nur ein Ladungszustand für die Detektion genutzt werden kann und die Teilchen anderer Ladung nicht detektiert werden. Die  $\text{I}^{4+}$ -Teilchen besitzen nach dem Verlassen des Tandembeschleunigers eine Gesamtenergie von 2,5 MeV ( $0,5 \text{ MeV} + 4 \cdot 0,5 \text{ MeV}$ ). Der Stripper arbeitet nach dem Prinzip eines van de Graaf-Beschleunigers, allerdings wird in diesem System kein Gummiband, sondern eine Kette verwendet, die außen aus Metall und innen aus Plastik besteht. Diese rotierende Kette transportiert die positiven Ladungsträger zum Terminal. Im Stripper fragmentieren eine Vielzahl störender Molekülionen. Die großen Energien sind zur weiteren Massenauftrennung und Detektion im Hochenergiebereich nötig. Nach dem Durchlaufen des Tandem-Beschleunigers trifft der Ionenstrahl auf eine elektrostatische Ablenkeinheit und ein magnetisches Massenspektrometer. Danach wird der Strom des  $^{127}\text{I}^{4+}$  mit einem Faradaybecher gemessen, um die Transmission zu ermitteln. Die Transmission liegt bei wenigen Prozenten.

Das Detektorsystem besteht aus einem Time of Flight Detektor (TOF) und einem Gasionisationsdetektor (GID). Der Time of Flight Detektor unterscheidet die Ionen nach der Flugzeit, die für eine bestimmte Strecke benötigt wird. Da Ladungszustand und Beschleunigungsspannung bekannt sind, lassen sich Ionen mit verschiedener Masse oder Ladung unterscheiden. Zusätzlich wird ein Gasionisationsdetektor (GID) genutzt, der den Energieverlust der Teilchen in einer mit Gas gefüllten Kammer ermittelt, deren Innenwand mit Elektroden ausgekleidet ist. In der Kammer wird Energie durch Ionisation an die Gasteilchen abgegeben, die ionisierten Teilchen wandern zur Katode des elektrischen Feldes und werden dann als Strom detektiert, dessen Stärke ein Maß für die abgegebene Energie ist. Mehrere Elektroden in dieser Ionisationskammer erlauben eine Bestimmung des Energieverlusts über eine gegebene Strecke. Am Ende des Detektors wird die Restenergie des Teilchens detektiert. Trägt man den Energieverlusts gegen die Gesamtenergie auf, erlaubt dies eine Unterscheidung der Ionen mit unterschiedlicher Ladung, die ein ähnliches  $m/z$ -Verhältnis besitzen.

- **Probenvorbereitung AMS**

Die Vorbereitung zur AMS-Analyse ist wegen der notwendigen Matrixabtrennung aufwendiger. Üblicherweise wurden von den Seewasserproben 50-100 ml eingesetzt. 100  $\mu\text{l}$  einer Woodwardiodlösung wurden als Trägeriodid und zur Verringerung des Isotopenverhältnisses zugegeben.  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Bereich von etwa  $10^{-11}$  lassen sich in der AMS-Anlage relativ gut messen. Die Isotopenverhältnisse der Proben dürfen nicht über  $10^{-10}$  liegen, da sonst der Detektor nicht mehr zuverlässig arbeitet und eine Kontamination der Anlage einsetzt.

Das gesamte Iod (Woodwardiod und Iod der Probe) wurde mit Calciumhypochlorit ( $\text{Ca}(\text{OCl})_2$ ) zu Iodat oxidiert. Die anschließende Reduktion geschah mit Natriumhydrogensulfit ( $\text{NaHSO}_3$ ) und Hydroxylammoniumchlorid ( $\text{NH}_3\text{OHCl}$ ). Bevor man die Probe auf eine Ionenaustauschersäule gab, wurde mit Natronlauge der pH-Wert auf 5-6 eingestellt. 5 g Ionenaustauscherharz (DOWEX® 1X8, analytical grade) waren mit 25 ml 0,5 M Kaliumnitratlösung zu beladen. Nach Aufbringen der Probe auf die Säule eluierte man mit zunächst 20 ml Reinstwasser, 50 ml  $\text{KNO}_3$ -Lösung (0,5 M) und 10 ml gesättigte  $\text{KNO}_3$ -Lösung (2,25 M). Anschließend wurde in jeweils 10 ml-Schritten gesättigte Kaliumnitratlösung auf die Säule gegeben und die Fraktionen in Zentrifugengläsern aufgefangen, in denen 100  $\mu\text{l}$  konzentrierte

Salpetersäure und 200 µl 0,5 M Silbernitratlösung vorgelegt waren. Dabei fiel grünelbliches Silberiodid aus. Nach dem Vereinigen der augenscheinlich reinen Silberiodid tragenden Fraktionen zentrifugierte man das Silberiodid ab. Der Überstand wurde dekantiert und der Niederschlag mit Hilfe eines Hahn'schen Trichters und einem Zellosenitratfilter (Porengröße 0,8 µm) abgesogen und gründlich mit Reinstwasser gewaschen. Die Trocknung der auf diese Weise erhaltenen Silberiodidproben erfolgte im Trockenschrank, die anschließende Lagerung unter Lichtausschluss.

Zur Vorbereitung der Messung an der AMS wurden die Silberiodidproben zur Erhöhung der Leitfähigkeit mit etwa der fünffachen Menge Silberpulver versetzt und mit einem Achatmörser innig verrieben. Das erhaltene Pulver war in einen kleinen Titanbecher, auch Target genannt, zu pressen. Die Targets setzte man in Probenräder ein, welche dann zur Messung in die AMS-Anlage gelangten. In jedem Probenrad befanden sich vier Standards mit definiertem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis und vier Woodwardiodproben. Letztere wurden zur Ermittlung des Maschinenblindwertes benötigt. Die Maschinenblindwerte liefern den Untergrund der Anlage, diese Blanks sind von den Blindwerten zu unterscheiden, die bei der Aufarbeitung der Wasserproben angefertigt werden.

Die Messung der Proben geschah im 0,5 MV Tandembeschleuniger „Tandy“ der ETH Zürich. Der zur Detektion herangezogene Ladungszustand war +4, dies entspricht einer Gesamtenergie der Teilchen von 2,5 MV (Stocker et al., 2005). Die Interferenzen des  $^{129}\text{I}$  mit dem störenden  $^{97}\text{Mo}^{3+}$  konnten im  $\Delta E$ -E-Detektor weitgehend separiert werden, nur wenige Ergebnisse mussten aufgrund der Molybdänstörung verworfen werden.

#### 5.2.2 Tc-99

Die Bestimmung von  $^{99}\text{Tc}$  erfolgt durch Zugabe einer definierten Aktivität von  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  zu 50 l bzw. 100 l Seewasser. Das kurzlebige Tc-99m (HWZ = 6 h) wird aus einem frisch eluierten kommerziell verfügbaren Generator gewonnen. Anschließend wird das Technetium über einen Anionenaustauscher abgetrennt. Das Technetium wird vom Ionenaustauscher mit 14,4 M  $\text{HNO}_3$  eluiert, radiochemisch gereinigt und auf einem Edelstahlplättchen elektrolytisch abgeschieden. Die chemische Ausbeute des Verfahrens wird gamma-spektrometrisch aufgrund der verbliebenen Aktivität des  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  bestimmt. Das Präparat wird in einem low-level Beta-Counter nach ca. einer Woche gemessen. Der Wirkungsgrad des Zählers wurde mittels international rückführbarer Normalien bestimmt.

#### 5.2.3 Sr-90, Cs-137

Die Bestimmung von  $^{137}\text{Cs}$  erfolgt durch Abtrennung an  $\text{K}_2\text{Co}(\text{Fe}(\text{CN})_6)$  aus 100 l Seewasser und anschließende Gammaskopie. Der Wirkungsgrad der Detektoren wurde mittels international rückführbarer Normalien bestimmt.

Die Bestimmung von  $^{90}\text{Sr}$  erfolgt durch Abtrennung des Tochternuklids  $^{90}\text{Y}$  aus 45 l Seewasser mittels Flüssig-flüssig-Extraktion mit DEHP (Diisooctyl-hydrogenphosphat), radiochemischer Reinigung und anschließender Oxalatfällung. Das Yttriumoxalat wird thermisch zersetzt und der Aktivitätsabfall in einem low-level Beta-Counter gemessen. Der Wirkungsgrad des Zählers wurde mittels international rückführbarer Normalien bestimmt.

#### 5.2.4 Transurane: Pu-238, Pu-(239+240), Am-241, Cm-243

Die Bestimmung der Transurane erfolgt aus 100 l bzw. 200 l ungefiltertem Seewasser. Nach Zugabe von definierten Mengen Pu-242 bzw. Am-243 (als innerer Standard) werden Plutonium, Americium und Curium an Eisenhydroxid mitgefällt und in mehreren Trennungs- und Reinigungsstufen nuklidspezifisch isoliert. Die Plutoniumnuklide einerseits und Americium und Curium andererseits werden separat auf Edelstahlplättchen elektrolytisch abgeschieden und anschließend mit einem Oberflächensperrschichtdetektor alphaspektrometrisch be-

stimmt. Der Wirkungsgrad der Detektoren wurde mittels international rückführbarer Normalien bestimmt.

### 5.2.5 Tritium

Die Bestimmung von Tritium erfolgt durch Messung der Betaaktivität in einem Low-Level-Flüssigszintillationszähler (Quantulus). Die Probe mit einem Volumen von 500 ml wird zuvor durch Destillation von der Salzmatrix getrennt und elektrolytisch angereichert. Der Wirkungsgrad des Zählers wurde mittels international rückführbarer Normalien bestimmt.

## 5.3 Auswertung und Qualitätskontrolle

### 5.3.1 Messunsicherheiten und charakteristische Grenzen

Alle angegebenen Unsicherheiten sind Standardunsicherheiten nach „ISO Guide for the Expression of Uncertainty in Measurement“ (ISO, 1995) bzw. DIN 1319, wonach alle bekannten Unsicherheiten gemäß dem Fehlerfortpflanzungsgesetz berechnet werden. Die charakteristischen Grenzen (Nachweisgrenze, Konfidenzintervall und Erkennungsgrenze) werden nach ISO 11929-7 (ISO, 2005) berechnet. Die Fehler erster und zweiter Art wurden für die Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen gleich  $\alpha = \beta = 0,05$  gewählt. Soweit Konfidenzintervalle zu berechnen waren, wurde das Vertrauensniveau auf  $\gamma = 0,95$  festgelegt. Ausführliche Erläuterungen sind u. a. in den bisher am ZSR angefertigten Dissertationen zu finden (Schmidt, 1998; Szidat, 2000; Ernst, 2003; Klipsch, 2005).

### 5.3.2 Blindwerte

Jede Messung muss unter genauer Beobachtung der Blindwerte ausgewertet werden. Darunter ist der Beitrag eines Messsignals zu verstehen, der ohne eine gewollte Zugabe des Analyten detektiert wird. Der Blindwert wird von dem Messwert des Analyten abgezogen.

Es werden die  $^{127}\text{I}$ -Blindwerte (für die ICP-MS) und die Beschleunigermassenspektrometrie betreffenden  $^{129}\text{I}$  Blindwerte unterschieden. Bei der ICP-MS beschränkt sich die Blindwertkorrektur auf das Abziehen des Messsignals einer 0,01 M Natronlauge von der darauf folgenden Messung. Sowohl in den verdünnten Proben als auch in den Standards wurde ein Hydroxidionkonzentration von 0,01 mol pro Liter eingestellt.

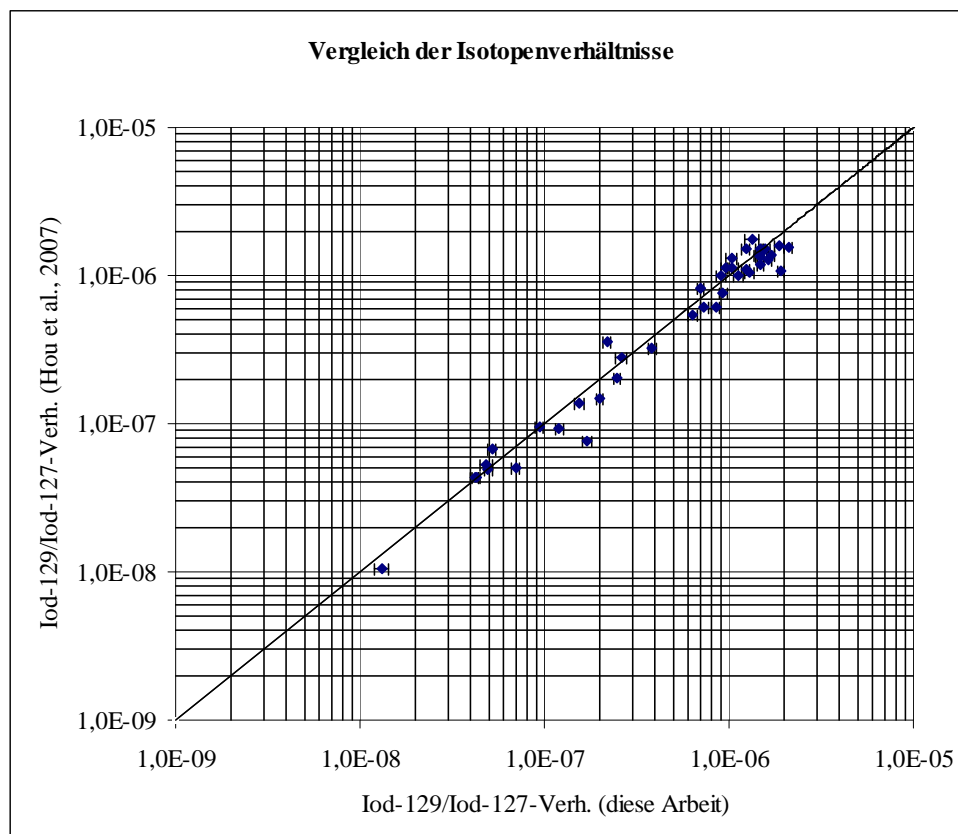
Die Blindwerte bezüglich  $^{129}\text{I}$  werden nach der Aufarbeitung einer Reinstwasserprobe erhalten. Diese Aufarbeitung entspricht der einer Meerwasserprobe (Zugabe von Woodwardiod, Oxidation, Reduktion, Matrixabtrennung mittels Säulenchromatographie und anschließende Fällung als AgI). Die AMS Blindwerte wurden in regelmäßigen Abständen und nach dem Verwenden neuer Chemikalien aufgenommen. Die Blindwerte durchlaufen damit den kompletten Analysegang und erfassen so Kontaminationen durch Chemikalien, Glasgeräte usw. Da die Mehrzahl der untersuchten Wasserproben sehr heiß (stark kontaminiert) waren, wirkte sich die Blindwertkorrektur nicht signifikant auf die am Ende des Auswertegangs erhaltenen Ergebnisse aus, lediglich die Unsicherheiten vergrößerten sich leicht. Kreuzkontaminationen bei gleichzeitiger Aufarbeitung und Trocknung von Blindwerten und heißen Proben wurden nicht beobachtet.

### 5.3.3 Analyse von Referenzmaterialien

Da es für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Meerwasser noch keine Referenzmaterialien gibt, konnten noch keine vergleichenden Untersuchungen stattfinden. In dem vorangegangenen Strahlenschutzbericht (Michel et al., 2004b) wurde auf diese Problematik bereits hingewiesen. Die Richtigkeit der Analysen wurden mit wiederkehrenden Untersuchungen gleicher Proben und eines Bodenstandards (IAEA soil-375) untermauert. Dabei muss jedoch beachtet werden, dass sowohl bei den am ZSR untersuchten Proben als auch bei den Standards relativ große

Unsicherheiten vorhanden sind. Die Unsicherheiten bezüglich der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration lagen bei 13 % (ZSR) und bei 11 % (Referenz). Bei Untersuchung des Standardreferenzmaterials 2709, San Joaquin soil, wurde eine gute Übereinstimmung mit den  $^{127}\text{I}$ -Gehalten beobachtet. Bezüglich der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen gab es aufgrund der geringen  $^{129}\text{I}$ -Gehalte keine zufriedenstellenden Übereinstimmungen. Weitere Referenzmaterialien, die jedoch nur die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen betrafen (BCR-279 sea lettuce und Standardreferenzmaterial 1648 urban particulate matter) zeigten gute Übereinstimmungen bei der Bestimmung mittels Ionenchromatographie und ICP-MS. Wie bereits in Abschnitt 5.2.1 angesprochen, erfolgte die  $^{127}\text{I}$ -Bestimmung mittels ICP-MS.

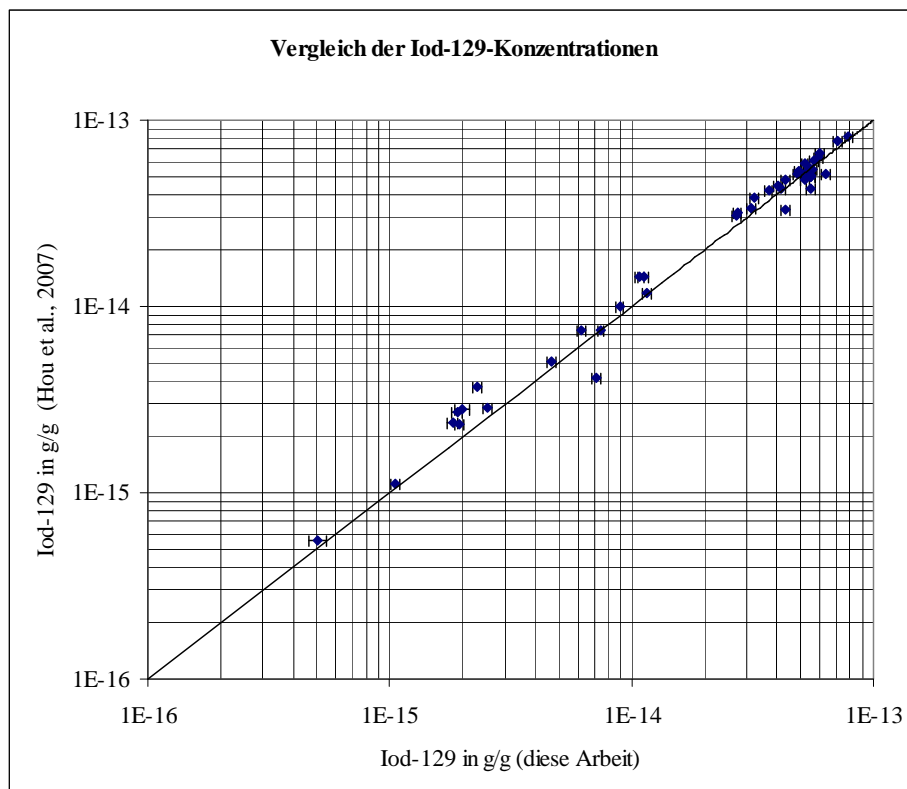
Als Vergleichsmöglichkeit der Wasserproben können von Hou et al. (2007) unabhängig untersuchte Proben herangezogen werden. Wie im Abschnitt 3.1 angesprochen, untersuchten Hou et al. (2007) einen Teil der Proben aus dem Englischen Kanal und dem südlichen Nordseeraum. Auf die durchgeführte Speziesanalyse soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden, vielmehr sollen die Ergebnisse der Isotopenverhältnisse sowie der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Bestimmungen verglichen werden. Die hier verglichenen Proben wurden an den gleichen Orten entnommen, es handelt sich jedoch nicht um identische Proben. Diese Unterscheidung ist wichtig, da die in diesem Bericht analysierten Proben mit NaOH versetzt wurden und in 1 l Polyethylenflaschen gekühlt und unter Lichtausschluss aufbewahrt wurden. Die von Hou untersuchten Proben wurden nach der Probennahme mit einem  $45\ \mu\text{m}$  Membranfilter filtriert und unter normalen Laborbedingungen aufbewahrt. Die in diesem Bericht analysierten Proben wurden nur für die  $^{127}\text{I}$ -Bestimmung gefiltert. Die Analyse des Isotopenverhältnisses wurde mit ungefiltertem Wasser vorgenommen. Hou wiederum verwendete Wasser, das aus einigen Metern Tiefe entnommen wurde und nicht mit weiteren Chemikalien versetzt wurde.



**Abbildung 51: Auftragung der von Hou et al. (2007) gefundenen Isotopenverhältnisse gegen die in dieser Arbeit ermittelten Isotopenverhältnisse.**

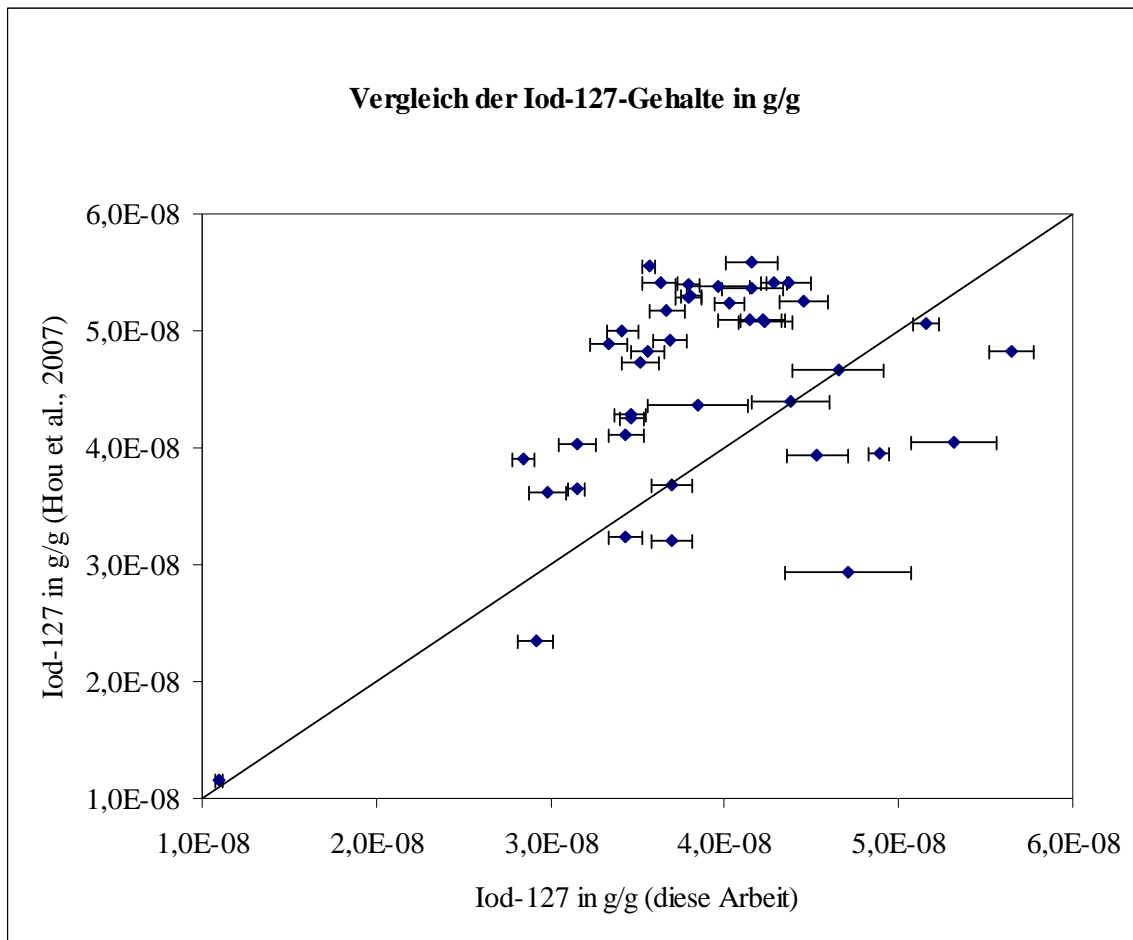
Eine gute Übereinstimmung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aus dieser Arbeit mit denen aus Hou et al. (2007) ist zu beobachten (s. Abbildung 51). Die Verhältnisse streuen nicht stark um die Gerade, die eine optimale Übereinstimmung darstellt. Setzt man die Ergebnisse dieses Berichts ins Verhältnis mit denen von Hou, ergibt sich ein Mittelwert von 1,11 bei einer relativen Standardabweichung von 25 %. Dieser Wert erscheint aufgrund des relativ großen Messbereichs als annehmbar, die Isotopenverhältnisse erstrecken sich immerhin über vier Zehnerpotenzen.

Ein etwas anderes Bild zeigt der Vergleich der Iod-129-Konzentrationen. Die Mehrzahl der Punkte liegen über der angesprochenen Geraden (s. Abbildung 51). In dieser Arbeit werden bei vielen Proben geringere Iod-129-Konzentrationen beobachtet, als bei denen, die von Hou et al. (2007) untersucht wurden. Konsequenterweise liegt das Verhältnis der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen aus diesem Bericht zu denen aus Hou et al. (2007) bei 0,95, die relative Standardabweichung beträgt 19,8%.



**Abbildung 52: Auftragung der Iod-129-Konzentrationen nach Hou et al. (2007) gegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen dieser Arbeit.**

Die Mehrzahl der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen dieses Berichts zeigen geringere  $^{127}\text{I}$ -Gehalte. Die Unsicherheiten wurden von Hou et al. (2007) auf 3 - 7 % beziffert, die relativen Unsicherheiten dieses Berichts lagen bei 1 - 7 %. Das Verhältnis der  $^{127}\text{I}$ -Gehalte aus diesem Bericht zu denen von Hou et al. (2007) betrug 0,88, die relative Standardabweichung war 23,6%. Aufgrund dieser signifikanten Unterschiede veranlasste das ZSR einen Austausch von Wasserproben mit dem Institut in Risø. Dieser Vergleich wird später besprochen.



**Abbildung 53: Auftragung der von Hou et al. (2007) gefundenen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen gegen die in dieser Arbeit ermittelten  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen.**

Die Minderbefunde bezüglich des Iod-127 in diesem Bericht spiegeln sich auch in den Auftragungen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ - bzw.  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen wieder (s. Abbildung 54 und Abbildung 55). Nach Messung des Isotopenverhältnisses und der  $^{127}\text{I}$ -Konzentration wird der  $^{129}\text{I}$ -Gehalt berechnet, so dass sich die Minderbefunde fortpflanzen. Die Auftragung der Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen zeigt ein komplexes Verhalten.

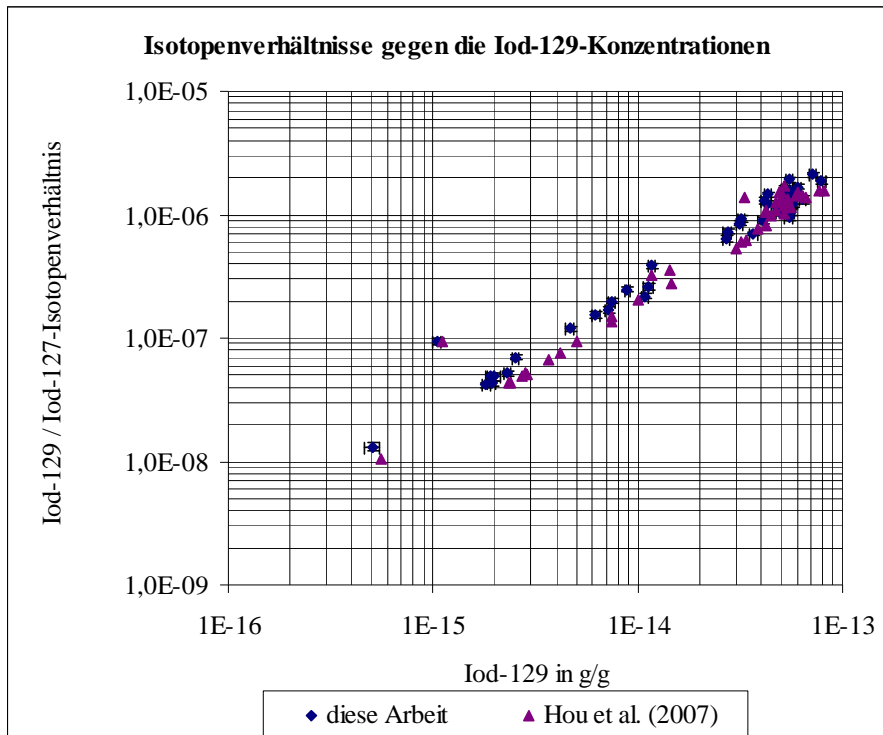


Abbildung 54: Auftragung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen nach Hou et al. (2007) und der in diesem Bericht gefundenen Ergebnisse.

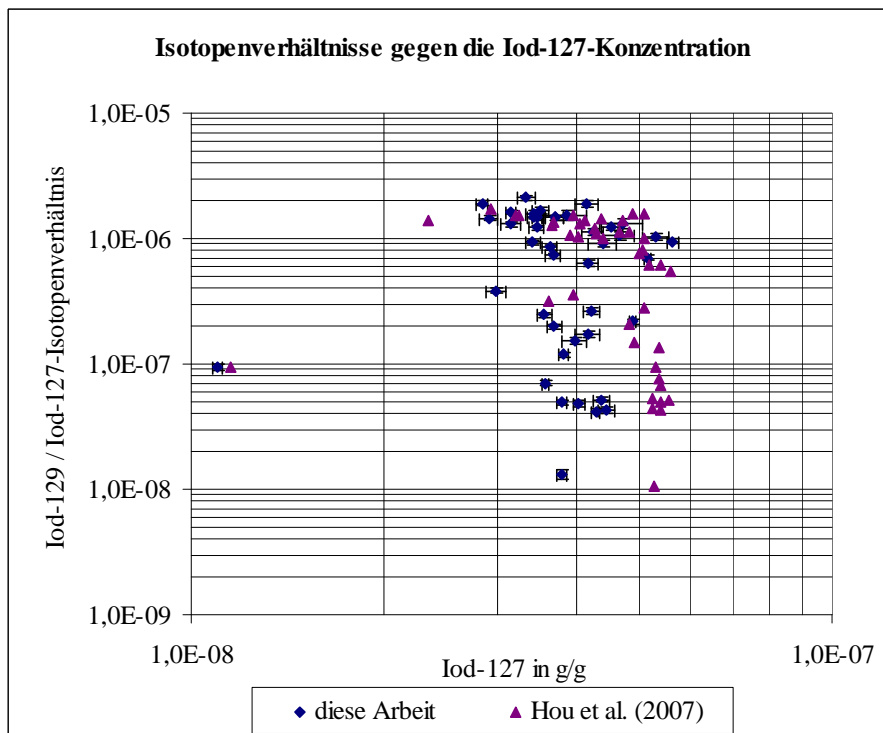
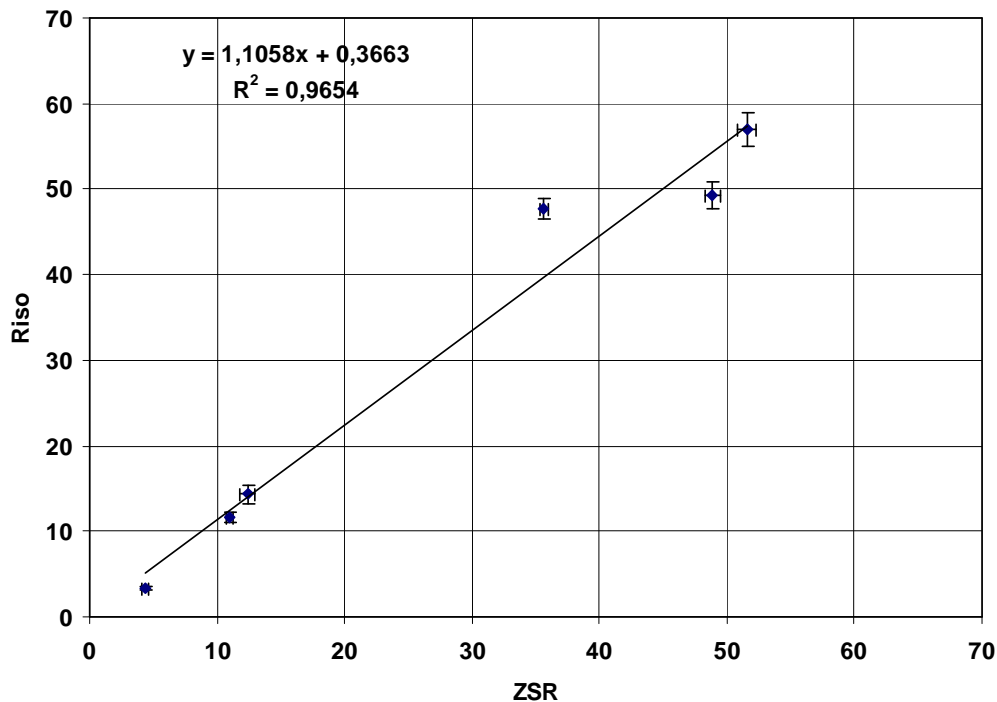


Abbildung 55: Auftragung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen nach Hou et al. (2007) und der in diesem Bericht gefundenen Ergebnisse.

Im Bereich kleinerer Isotopenverhältnisse ( $<5 \cdot 10^{-7}$ ) finden Hou et al. (2007) mehr Iod, als in diesem Bericht angegeben wird, im Bereich hoher Isotopenverhältnisse ( $>1 \cdot 10^{-6}$ ) scheint dies nicht mehr zuzutreffen.



Offensichtlich sind größere Unsicherheiten vorhanden, als es die Messwerte suggerieren. Um diesem nachzugehen, tauschte das ZSR mit der Arbeitsgruppe von Hou am Risø Labor einige Proben aus. Vom ZSR wurden See-, Regen-, Brack- und Oberflächenwasserproben zum Risø gesendet und dort untersucht. Das ZSR bekam vom Institut in Risø Regenwasser und Seewasser. Die Ergebnisse sind in der folgenden Abbildung gegenübergestellt und zeigen sowohl positive als auch negative Abweichungen. In der Abbildung nicht dargestellt sind zwei von Risø selbst hergestellte Proben, da die Abweichungen ziemlich genau Faktor zwei betragen und daher ein Pipettierfehler angenommen wurde.



**Abbildung 56: Vergleich der  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse in ng/g für die mit dem Risø Labor ausgetauschten Proben.**

Die Verhältnisse der vom ZSR ermittelten Iod-127-Gehalte zu denen, die von Hou gefunden wurden, lagen im Mittelwert bei 0,95 bei einer relativen Standardabweichung von 18,8 %. Die Quellen dieser Unsicherheiten sind noch nicht vollständig geklärt. Bei den ausgetauschten Proben gibt es eine bessere Übereinstimmung, als bei den untersuchten Meerwasserproben. Dort lagen die Verhältnisse der Iod-127-Gehalte vom ZSR zu denen von Hou bei 0,88 mit einer Standardabweichung von 23,6 %.

Eine mögliche Erklärung für die unterschiedlichen  $^{127}\text{I}$ -Ergebnisse bei den Meerwasserproben ist, dass es sich nicht um exakt dasselbe Probenwasser handelt. Die in diesem Bericht untersuchten Wasserproben wurden mit NaOH versetzt, um das Iod zu stabilisieren. Die Lagerung erfolgte unter Lichtausschluss. Hou et al. (2007) verwendeten keine weiteren Zusätze, die Proben wurden gefiltert und lagerten bei normalen Laborbedingungen. Dies würde jedoch dafür sprechen, dass bei den Proben von Hou et al. (2007) weniger Iod gefunden wird, da allgemein bekannt ist, dass Iod lichtempfindlich reagiert und Iod durch Basenzusatz stabilisiert wird. Denkbar ist, dass Iodgehalte an der direkten Wasseroberfläche wegen des Phasentransferübergangs in die Atmosphäre etwas geringer ausfallen. Wie bereits erwähnt, wurden die Proben mit einer PE-Flasche an der Oberfläche entnommen.

## Qualitätsmanagementsystem (QMS) im BSH-Labor

Das BSH ist mit seinem Laboratorium im Rahmen von DIN EN ISO/IEC 17025 akkreditiert. Zwischen den Laboratorien BSH, Risø und NRPA wurden erfolgreich in früheren Jahren Ringanalysen auf Tc-99 im Meerwasser durchgeführt. Derzeit ist aufgrund eines Laborneubaus das BSH nicht in der Lage, Tc-99 im Meerwasser zu bestimmen. Dies wird frühestens Ende 2006 wieder der Fall sein.

Das ZSR und die ETH Zürich haben an internationalen Ringvergleichen zur Bestimmung von I-129 teilgenommen. In dem Vorhaben werden Blankanalysen und Analysen an Referenzmaterialien zur Qualitätssicherung durchgeführt.

### 5.3.4 Teilnahme an Ringversuchen

$^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Meerwasser betreffend wurden keine Ringversuche durchgeführt. Für das Jahr 2008 wurden jedoch von der IAEA Seewasserproben aus der Irischen See (IAEA-443) und dem Mittelmeer (IAEA-418) bereitgestellt, die als Ringprobe aufgearbeitet werden. Ziel ist die Erstellung eines zertifizierten Referenzmaterials für die Bestimmung von Iod-129 in Seewasser.

Roberts et al. von der AMS-Gruppe am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) organisierten Ringversuche betreffend der  $^{129}\text{I}$ -Bestimmung in Standards und Umweltproben (Roberts et al., 1997; Roberts und Caffee, 2000). An diesen Ringversuchen nahmen sieben Laboratorien teil. Als Standards wurden sowohl Silberiodidproben als auch Umweltproben herausgegeben. Das ZSR nahm auch an dem Ringversuch teil (Schmidt, 1998). Vier vorbereitete Silberiodidstandards, Bodenproben, Ahornblätter, Tannennadeln und Seetang und Woodwardiod wurden an die verschiedenen Laboratorien verteilt, so dass die zu bestimmenden  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zwischen  $10^{-8}$  und  $10^{-14}$  lagen. Nicht alle beteiligten Labore waren in der Lage, die Umweltproben zu untersuchen, so dass der Datensatz nicht ganz komplett ist. Während die Silberiodidproben eine sehr gute Übereinstimmung zeigten, wichen die Ergebnisse der Umweltproben um bis zu zwei Zehnerpotenzen voneinander ab. Als Ursache wurde die unterschiedliche Chemie der Aufarbeitung in Betracht gezogen. Eine weitere mögliche Ursache kann nach Ansicht der Autoren die unterschiedliche Kontamination der Labore und der Chemikalien sein (Roberts et al., 1997).

In der zweiten Phase des Ringversuchs (Roberts und Caffee, 2000) stellten drei verschiedene Laboratorien Silberiodidproben nach Aufarbeitung von zwei Umweltproben her. Zum einen wurde der Standard „IAEA 375 soil“ aufgearbeitet, zum anderen wurden Ahornblätter für die AMS-Messung vorbereitet. Dabei nutzte jedes Labor seine eigene Probenvorbereitung, Chemikalien usw. Jede der Methode wies damit Unterschiede auf. Die vorbereiteten Proben wurden auf die Laboratorien verteilt und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse bestimmt. Bezüglich des Bodenstandards IAEA 375 wurde unabhängig von der Art und Weise der Probenvorbereitung eine recht gute Übereinstimmung der Isotopenverhältnisse mit den erwarteten Werten beobachtet. Anders sah es bei den untersuchten Ahornblättern aus. Diese streuten um den Faktor zehn. Eine Erklärung sehen Roberts und Caffee (2000) in der unterschiedlichen chemischen Aufarbeitung, störende Nuklide werden unter Umständen nicht vollständig entfernt. Hinzu kommt außerdem, dass die verschiedenen AMS-Labore unterschiedliche Ladungszustände für die Detektion nutzen und damit auch störende Nuklide nicht gleich effizient abgetrennt werden. Als problematisch in Zürich haben sich Tellur-128 aufgrund schlechter Massenauftrennung und Molybdän-97 erwiesen. Ausführlichere Informationen sind der angegebenen Originalliteratur (Roberts et al., 1997; Roberts und Caffee, 2000) zu entnehmen. Außerdem wird im vorangegangenen Abschlussbericht (Michel et al., 2004b) darauf eingegangen.

### 5.3.5 BSH

Das BSH nimmt seit vielen Jahren regelmäßig an nationalen und internationalen Ringanalysen zur Bestimmung von Radionukliden im Meerwasser und Sediment teil. Die nationalen Ringanalysen werden meist vom BfS organisiert und ausgewertet. Hierbei wird ein Kernkraftwerkabwasser auf Gamma-Strahler und Sr-89/90 untersucht. Da im Meeresbereich Sr-89 kaum eine Rolle spielt, wird jeweils nur Sr-90 bestimmt.

International werden die Ringanalysen für Meerwasserproben meist vom Meereslabor der IAEA in Monaco organisiert. So existiert beispielsweise eine jährliche Ringanalyse im Rahmen der HELCOM Arbeitsgruppe MORS, an der das BSH seit Beginn teilnimmt.

Internationale Rückführbarkeit ist jeweils gewährleistet.

In Abbildung 57 und Abbildung 58 sind die Ergebnisse der Ringanalysen des BSH bei den vom BfS (zuvor BGA/WaBoLu) versandten Proben für die Nuklide  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{90}\text{Sr}$  dargestellt.

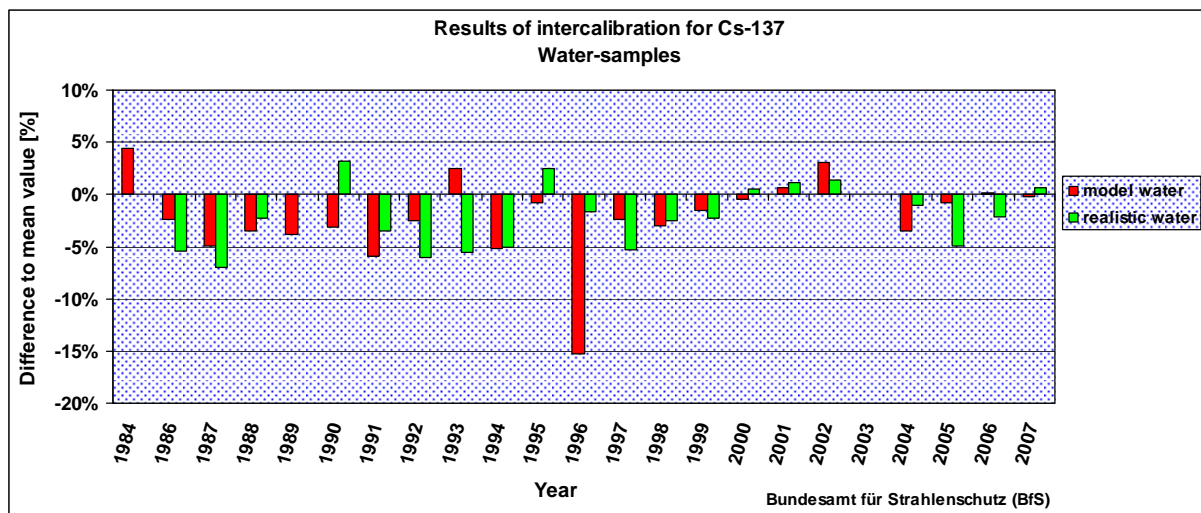
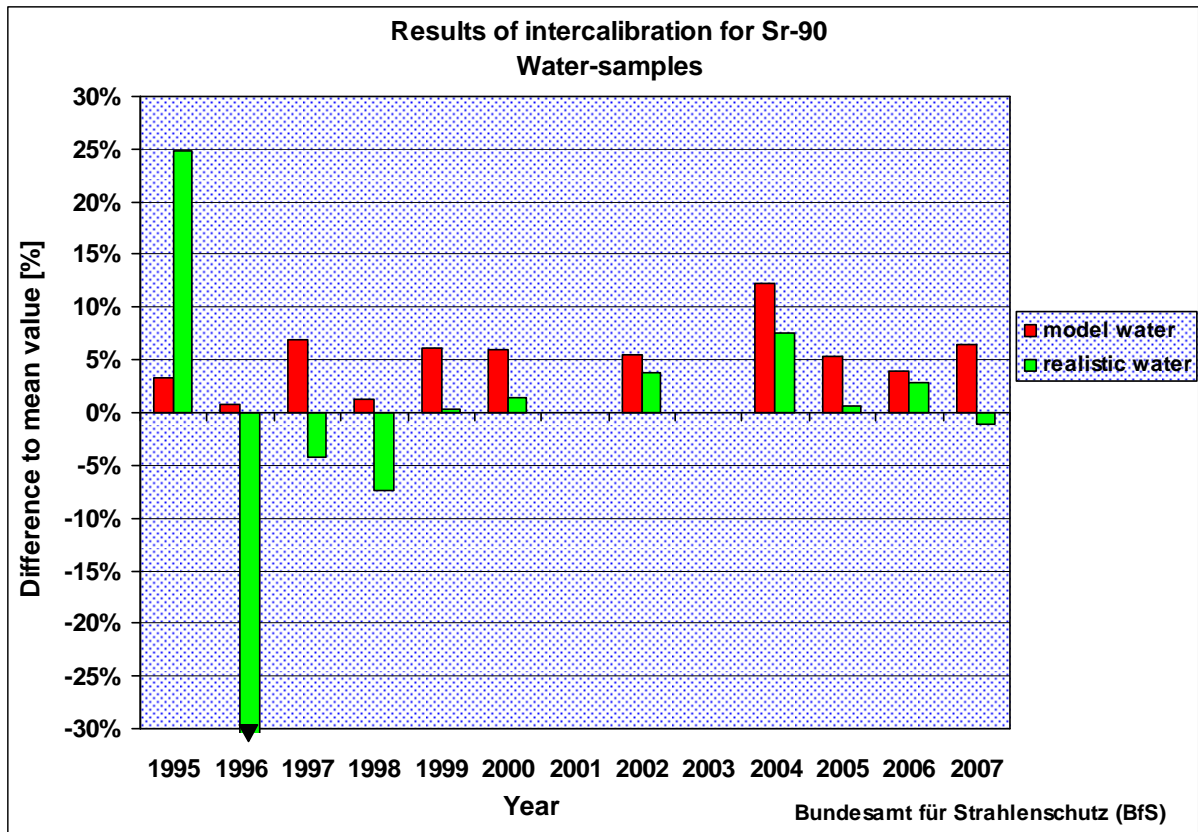


Abbildung 57: Ergebnisse des BSH bei den Ringanalysen auf  $^{137}\text{Cs}$  in einem Modell- und einem realistischen Abwasser mittels Gamma-Spektrometrie.



**Abbildung 58:** Ergebnisse des BfS bei den Ringanalysen auf  $^{90}\text{Sr}$  in einem Modell- und einem realistischen Abwasser mittels Beta-Messung des Tochternuklids  $^{90}\text{Y}$ .

### 5.3.6 RISOE/Dänemark und NRPA/Norwegen

Zwischen den genannten Laboren fanden in der Vergangenheit einige Ringanalysen auf Tc-99 statt, an denen das BfS sowie ein Labor in Großbritannien und Frankreich ebenfalls beteiligt waren. Es ist davon auszugehen, dass die gelieferten Daten eine hohe Qualität aufweisen.

## 6 Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der verschiedenen Radionuklide graphisch in Karten dargestellt. Die Ergebnisse sind zum großen Teil selbsterklärend. Die Diskussion über die Verteilung erfolgt in Abschnitt 6, wobei im Abschnitt 6.1 nicht nur Iod, sondern teilweise auch die anderen Nuklide besprochen werden. Die Unsicherheiten der Messwerte und weitere Probenparameter finden sich in den Tabellenwerken im Anhang.

### 6.1 Iod-129 und Iod-127

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse bezüglich  $^{129}\text{I}$  in der zeitlichen Reihenfolge der Beprobungen zusammengestellt. In den Abbildungen 28 und 29 sind die Ergebnisse der Beprobung der deutschen Bucht im Juni 2005 dargestellt. In den Abb. 30 und 31 sind neben der Nordseebeprobung aus dem August 2005 auch die Ergebnisse aus der Irischen See und der schottischen Küste von 2006 dargestellt. Die Diskussion der Ergebnisse auch unter Einbeziehung Aktivitätsverhältnissen zwischen den verschiedenen Nuklide findet sich in Abschnitt 6. Die ergänzenden Daten im Anhang liefern Probenparameter wie z.B. Temperatur, Salinität und Koordinaten.

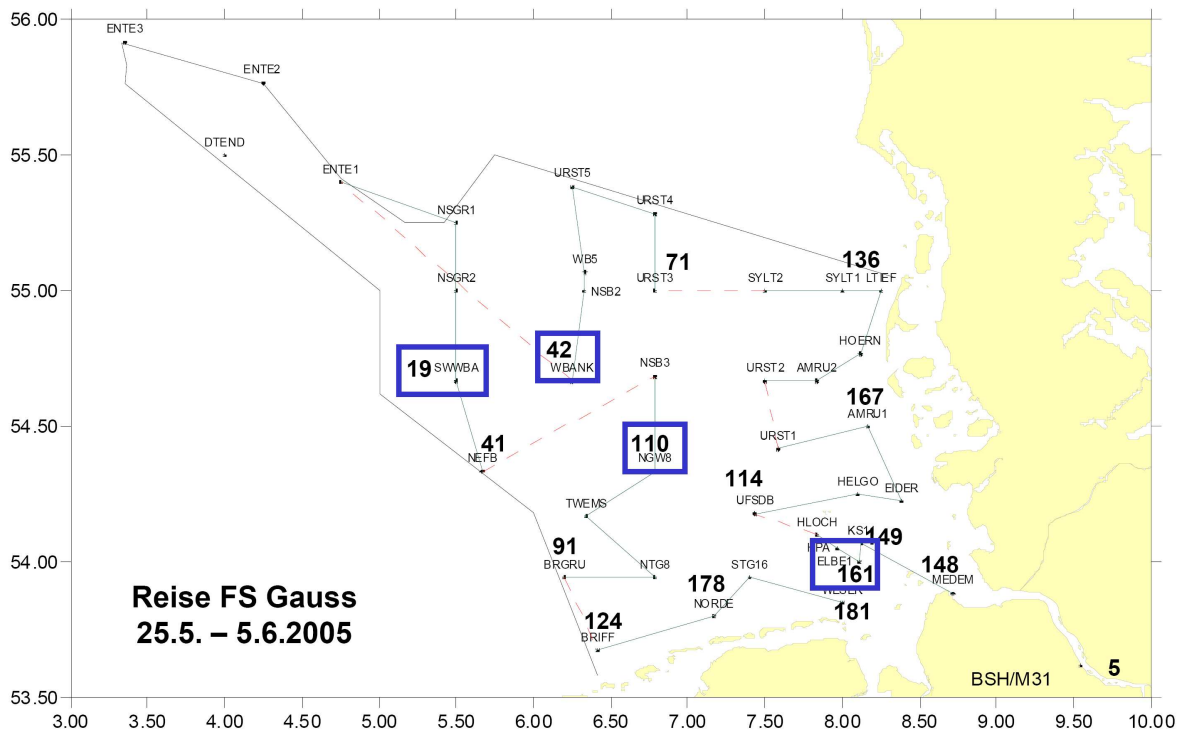
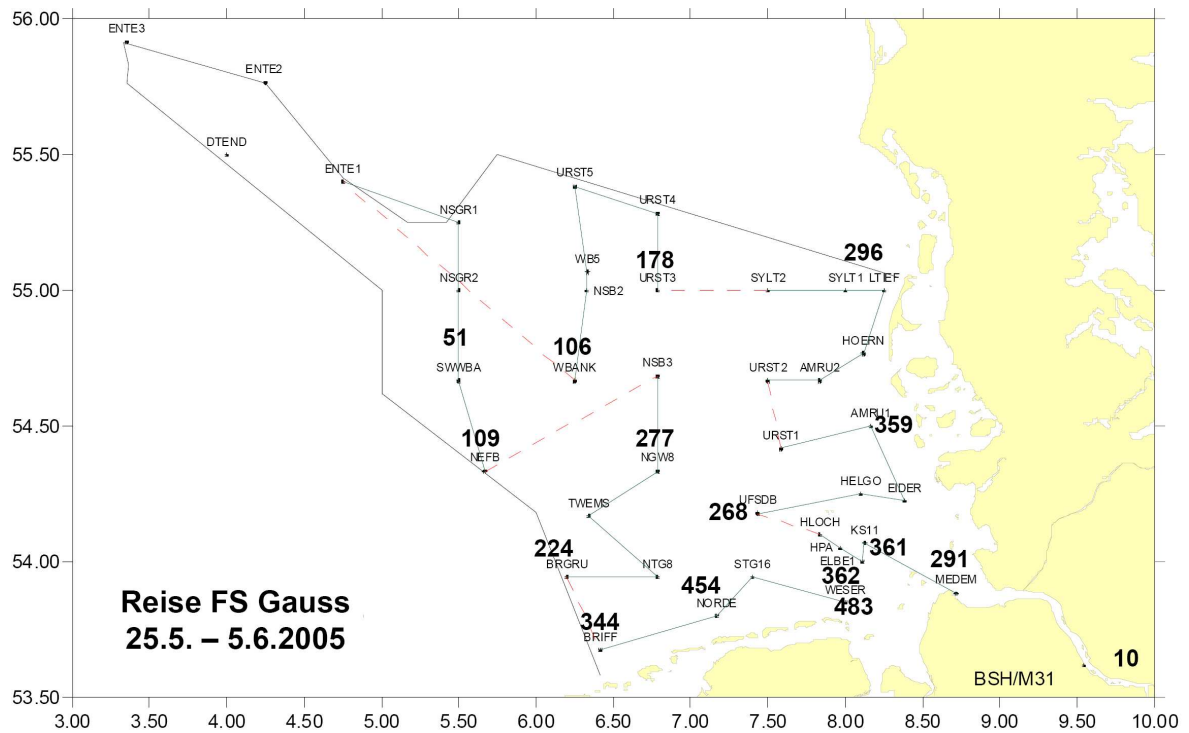


Abbildung 59:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in  $10^{-8}$  im Oberflächenwasser (Entnahmetiefe 5 m) der Deutschen Bucht. Die Proben wurden während der Gaußfahrt 440 vom 25.05.05 bis zum 05.06.05 entnommen. Blaue Rechtecke kennzeichnen die Stationen, bei denen Tiefenprofile analysiert wurden, innerhalb der Deutschen Bucht wird eine gute Durchmischung des Wassers beobachtet.



**Abbildung 60:**  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen in  $\text{mBq/m}^3$  im Oberflächenwasser (Entnahmetiefe 5 m) der Deutschen Bucht (Gaußfahrt 440 vom 25.05.05 bis zum 05.06.05).

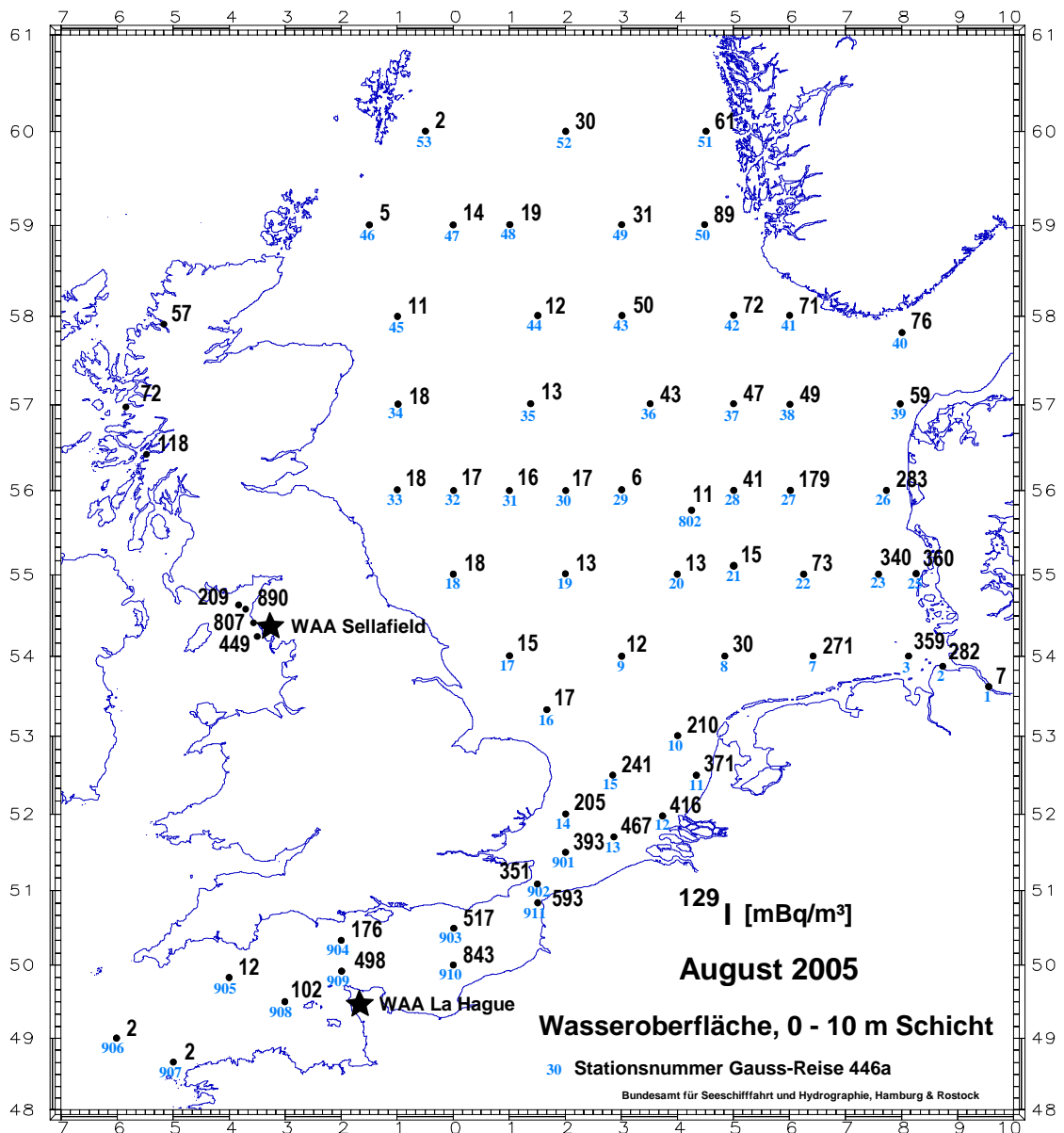


Abbildung 61:  $^{129}\text{I}$  im Oberflächenwasser der Nordsee (Augustreise 2005) in  $\text{mBq}/\text{m}^3$  und der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour und das ZSR im Sommer 2006). Die kleinen, blauen Ziffern beschreiben die Stationsnummern (s. Tab. A 2 im Anhang), oberhalb des Entnahmepunktes sind die experimentellen Daten (schwarz) angegeben.

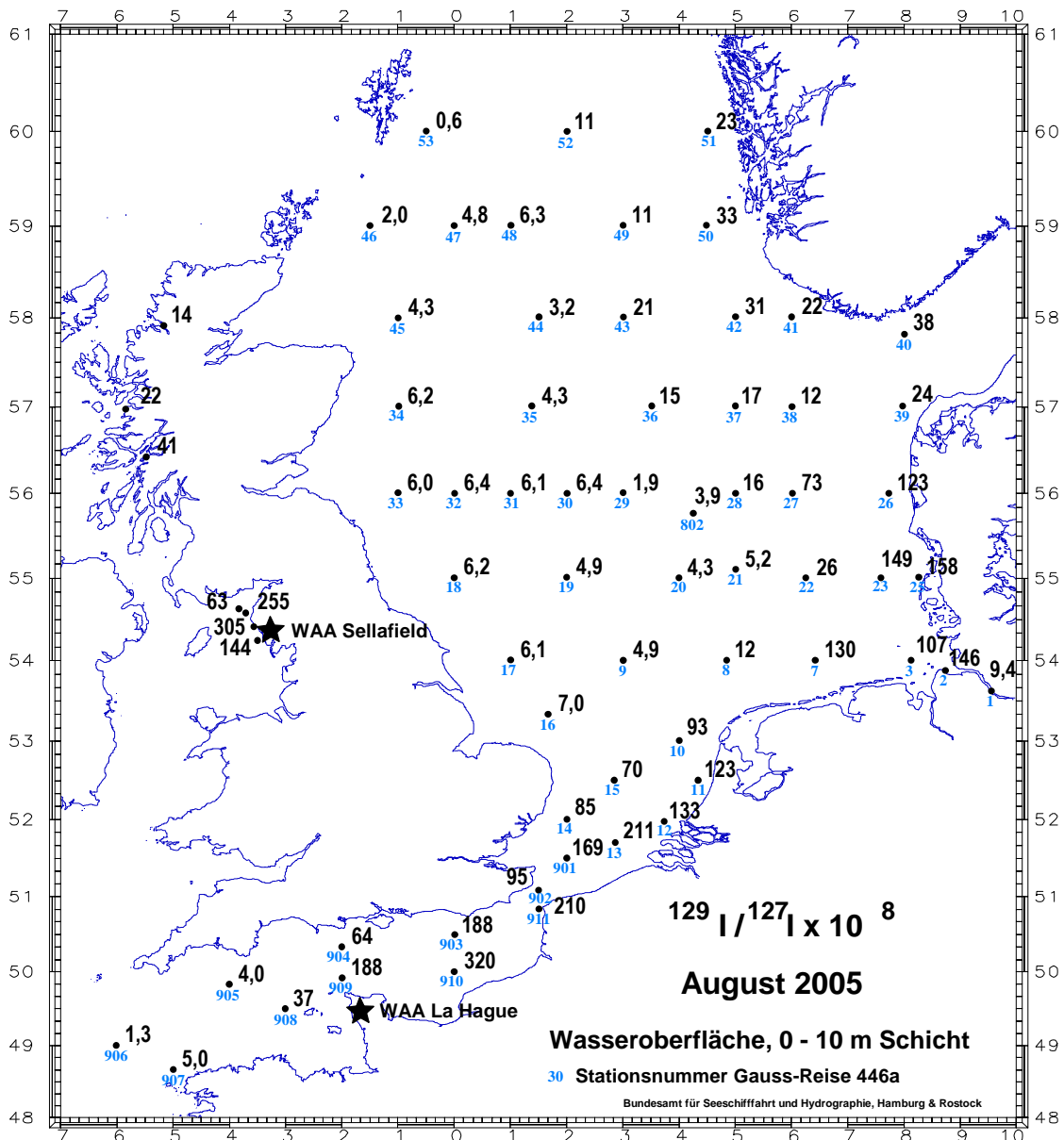


Abbildung 62:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in  $10^{-8}$  im Oberflächenwasser der Nordsee, die während der Augustreise 2005 beprobt wurde und der Irischen See (Probenahme durch die Endeavour und das ZSR im Sommer 2006). Die kleinen, blauen Ziffern beschreiben die Stationsnummern (s. Tab. A 2 im Anhang), oberhalb des Entnahmepunktes sind die experimentellen Daten (schwarz) angegeben.



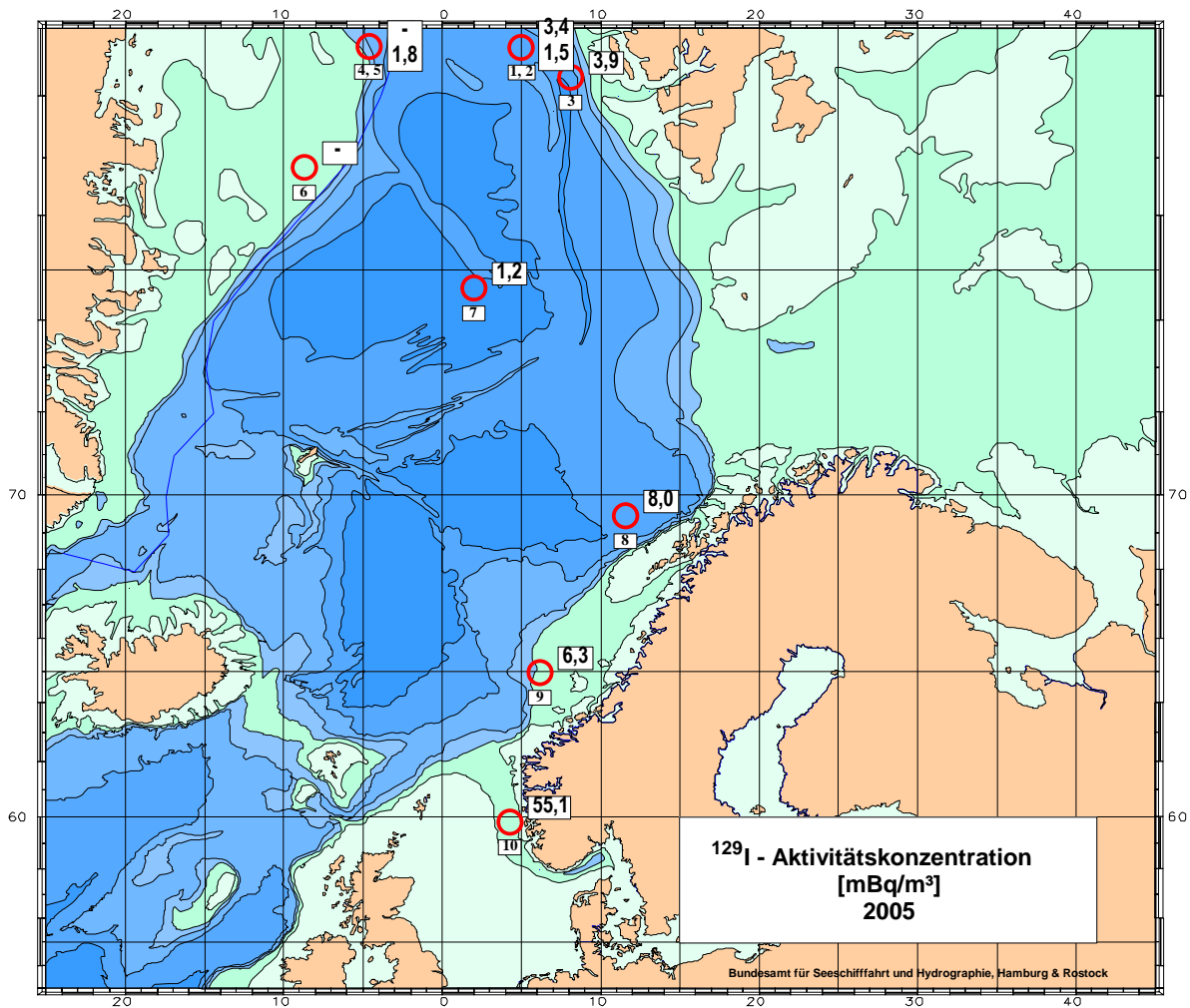
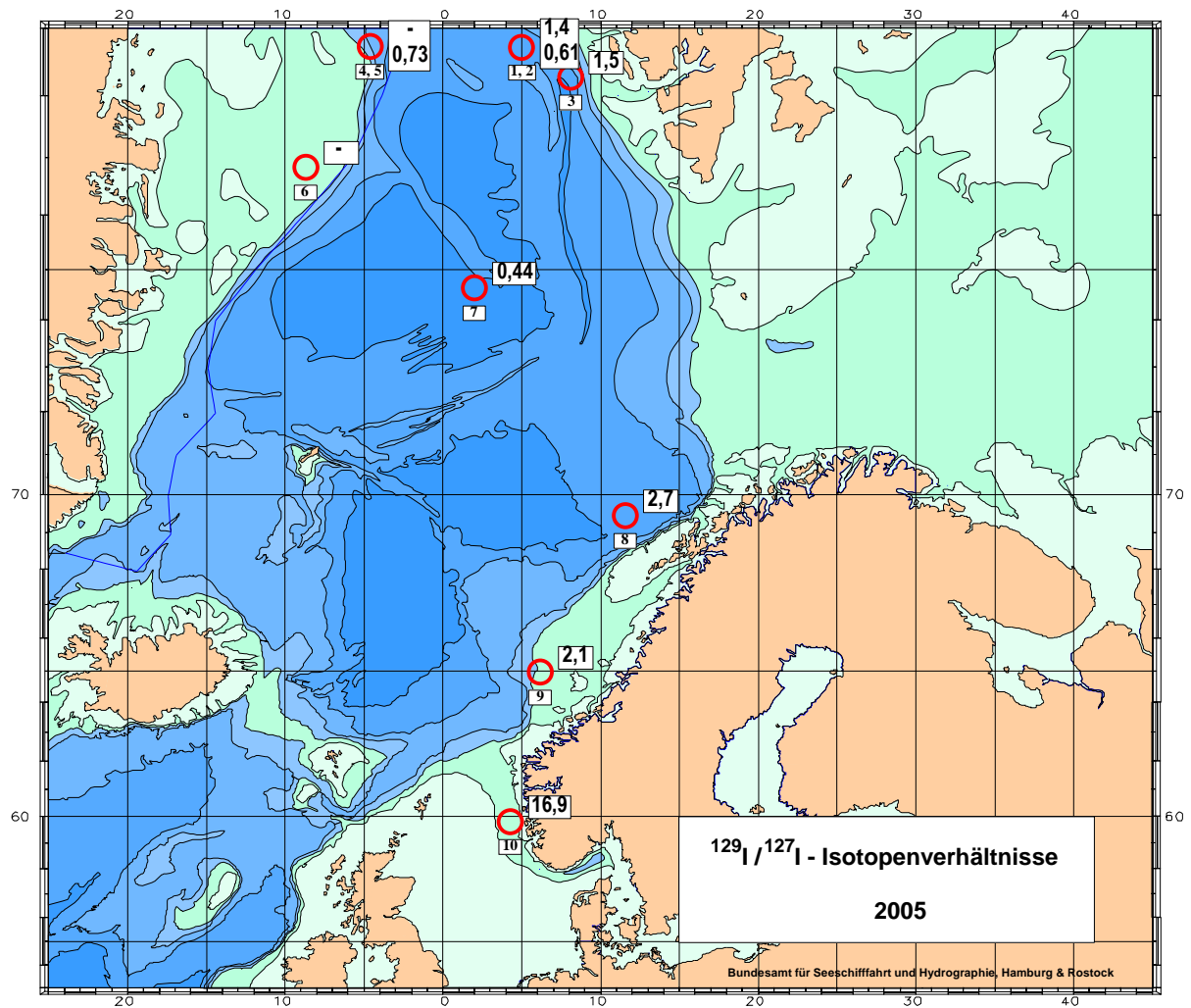


Abbildung 63:  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen in  $\text{mBq}/\text{m}^3$  in Wasserproben aus dem Nordatlantik, die im Jahr 2005 genommen wurden. Die größeren Zahlen sind die experimentellen Daten, die kleineren stehen für die Nummerierung der Proben. Weiterführende Angaben sind Tab. A.4 im Anhang zu entnehmen. Stationsnummern 2 und 5 entsprechen einer Entnahmetiefe von 200 m, Station 1 wurde bei 2 m entnommen und alle übrigen Proben bei 11 m Tiefe. Ein „-“ bedeutet, dass die Ergebnisse aufgrund eines zu hohen Molybdänuntergrundes nicht ausgewertet werden konnten.



**Abbildung 64:**  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in  $10^{-8}$  im Nordatlantik. Die größeren Zahlen sind die experimentellen Daten, die kleineren stehen für die Nummerierung der Proben. Weiterführende Angaben sind Tab. A.4 im Anhang zu entnehmen. Stationsnummern 2 und 5 entsprechen einer Entnahmetiefe von 200 m, Station 1 wurde bei 2 m entnommen und alle übrigen Proben bei 11 m Tiefe. Ein „-“ bedeutet, dass die Ergebnisse aufgrund eines zu hohen Molybdänuntergrundes nicht ausgewertet werden konnten.

## 6.2 Technetium-99, Tritium, Strontium-90, Caesium-137

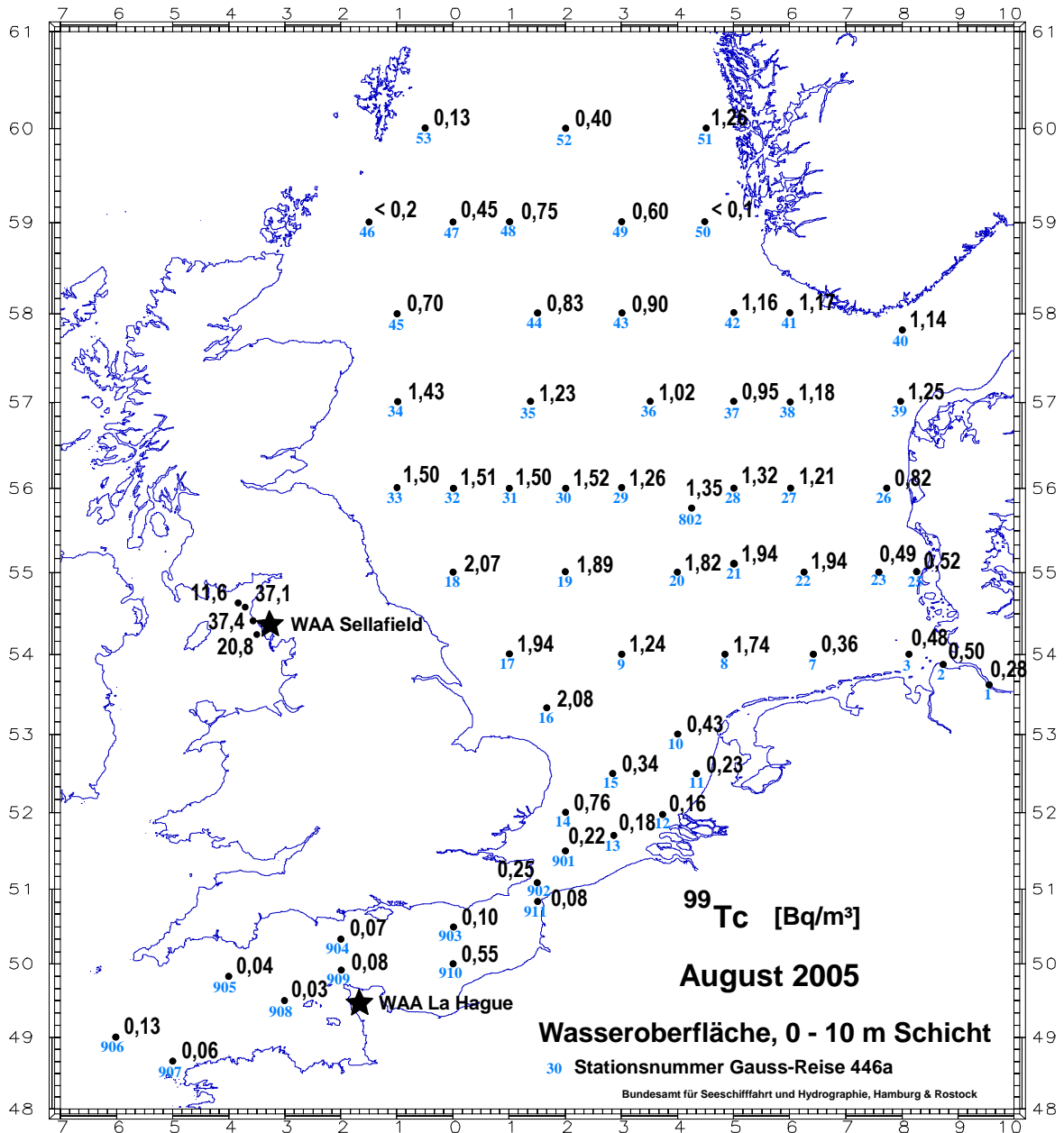


Abbildung 65: Aktivitätskonzentrationen des Technetium-99 in der Nordsee (Augustreise 2005) in Bq/m<sup>3</sup> und der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour im Sommer 2006)

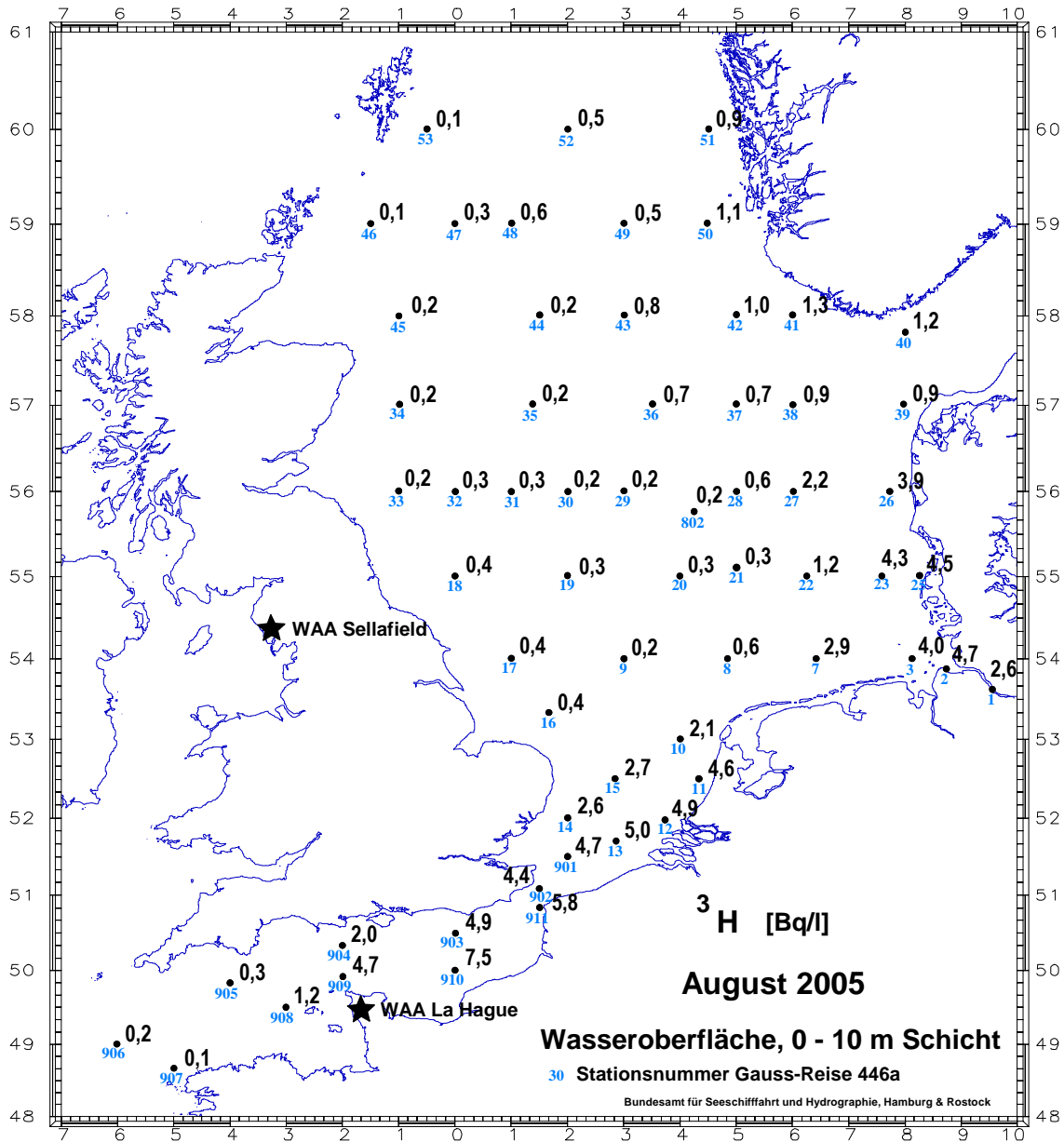


Abbildung 66: Aktivitätskonzentrationen des Tritiums in der Nordsee (Augustreise 2005) in Bq/l.

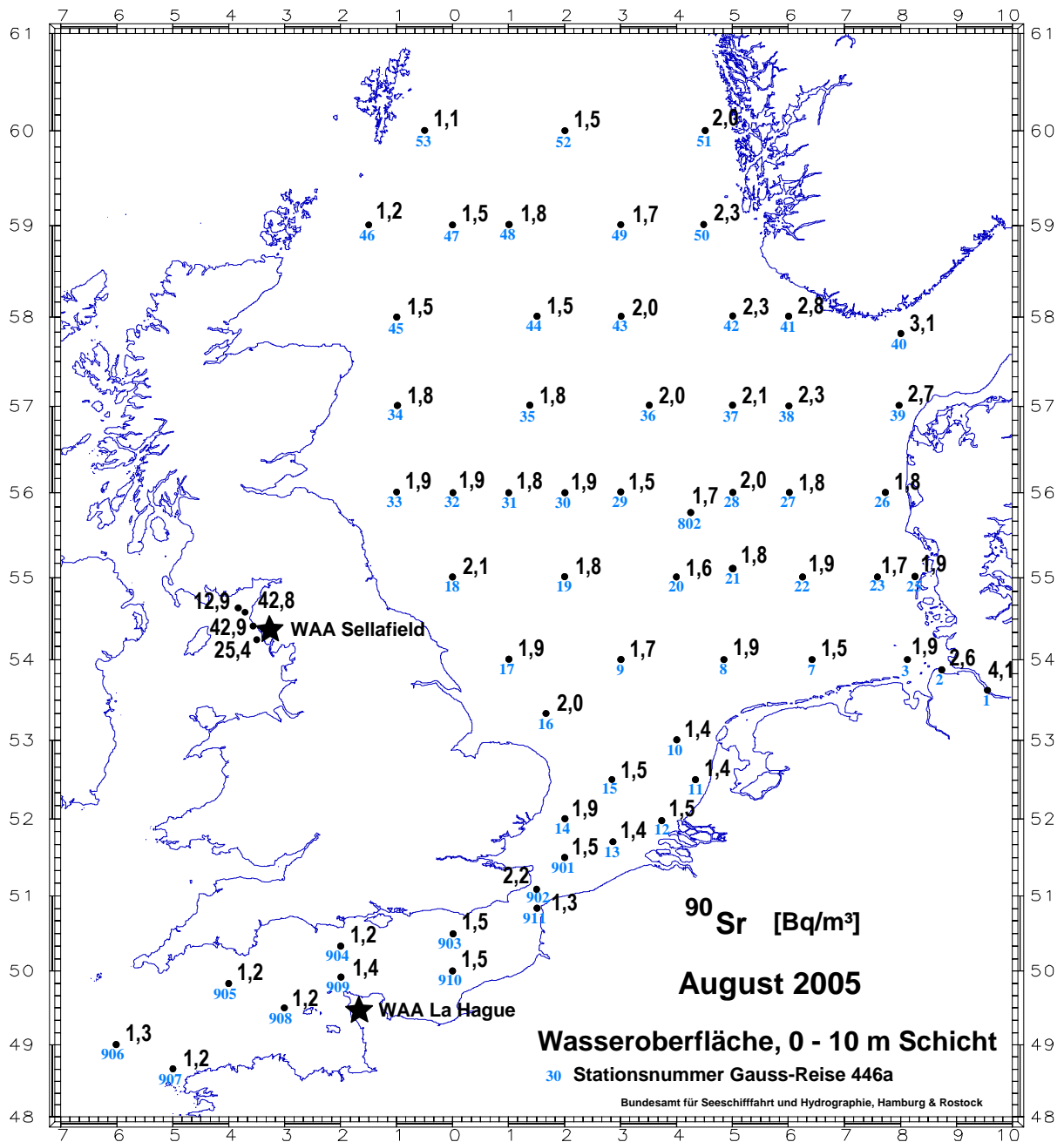


Abbildung 67: Aktivitätskonzentrationen des Strontium-90 in der Nordsee (Augustreise 2005) in Bq/m<sup>3</sup> und der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour im Sommer 2006).

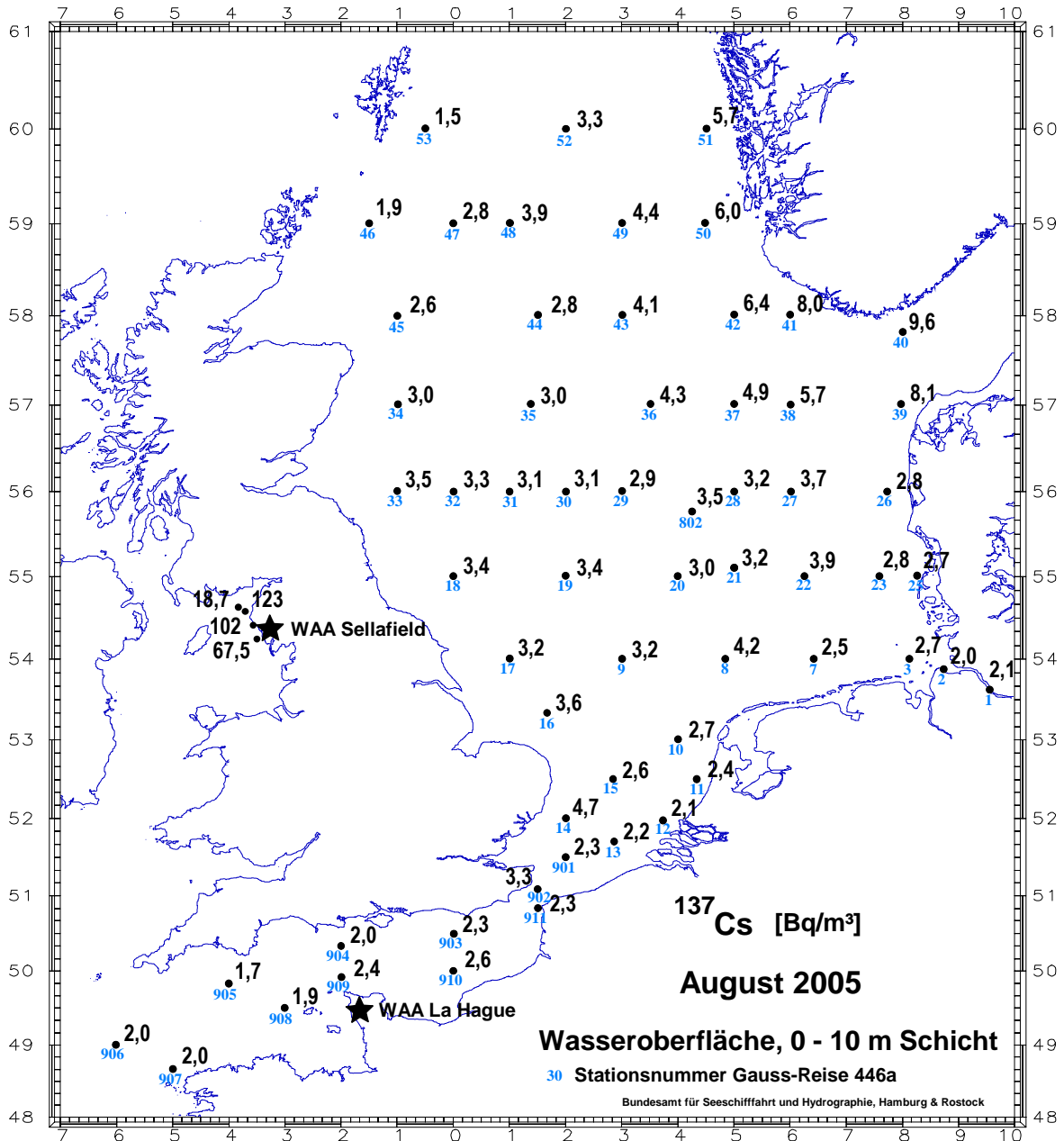


Abbildung 68: Aktivitätskonzentrationen des Caesium-137 in der Nordsee (Augustreise 2005) in Bq/m<sup>3</sup> und der Irischen See (Probennahme durch die Endeavour im Sommer 2006).

### 6.3 Aktinide: Pu-238, Pu-239/240, Am-241

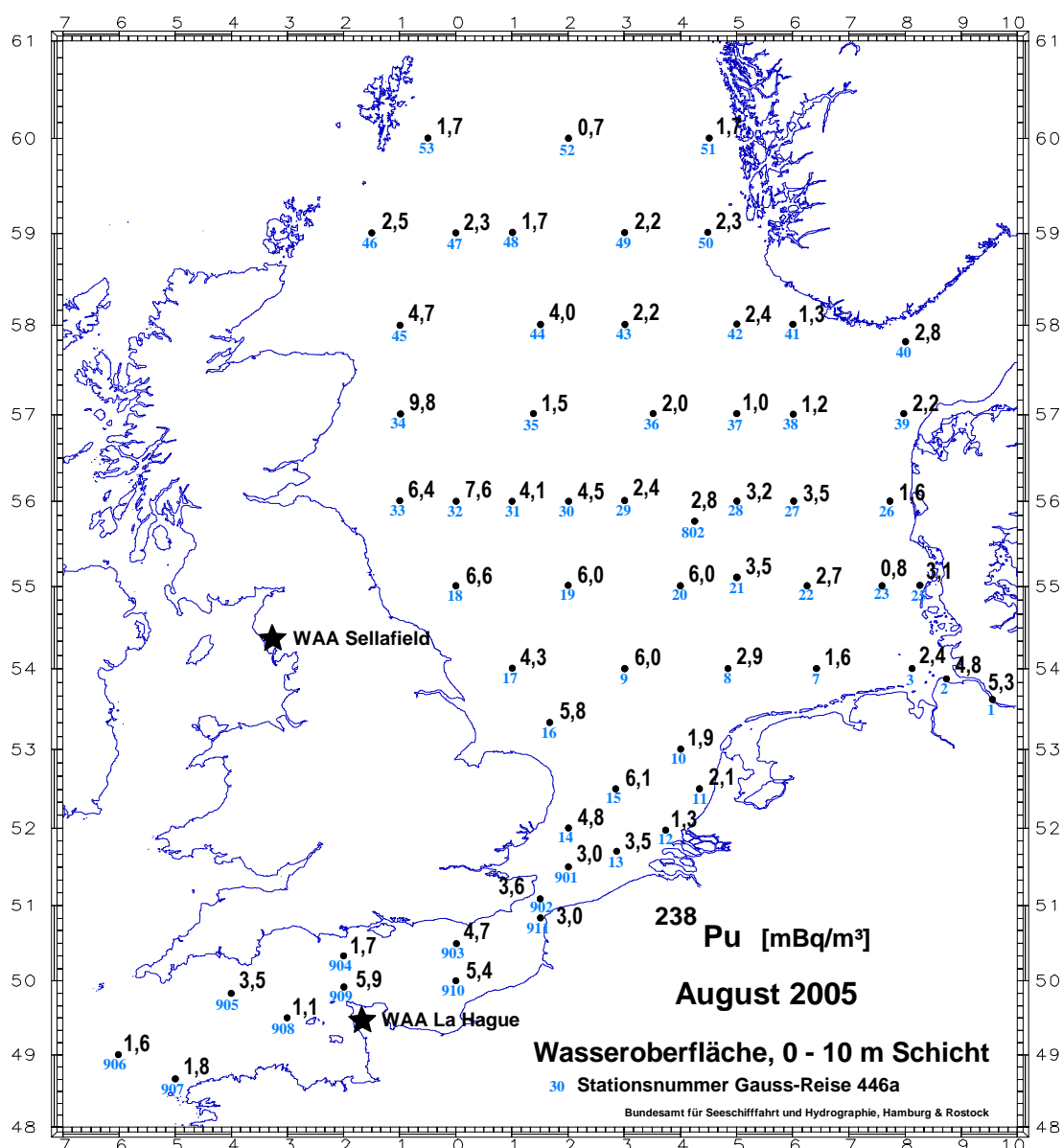


Abbildung 69: Aktivitätskonzentrationen des Plutonium-238 in der Nordsee (August-reise 2005) in mBq/m<sup>3</sup>.

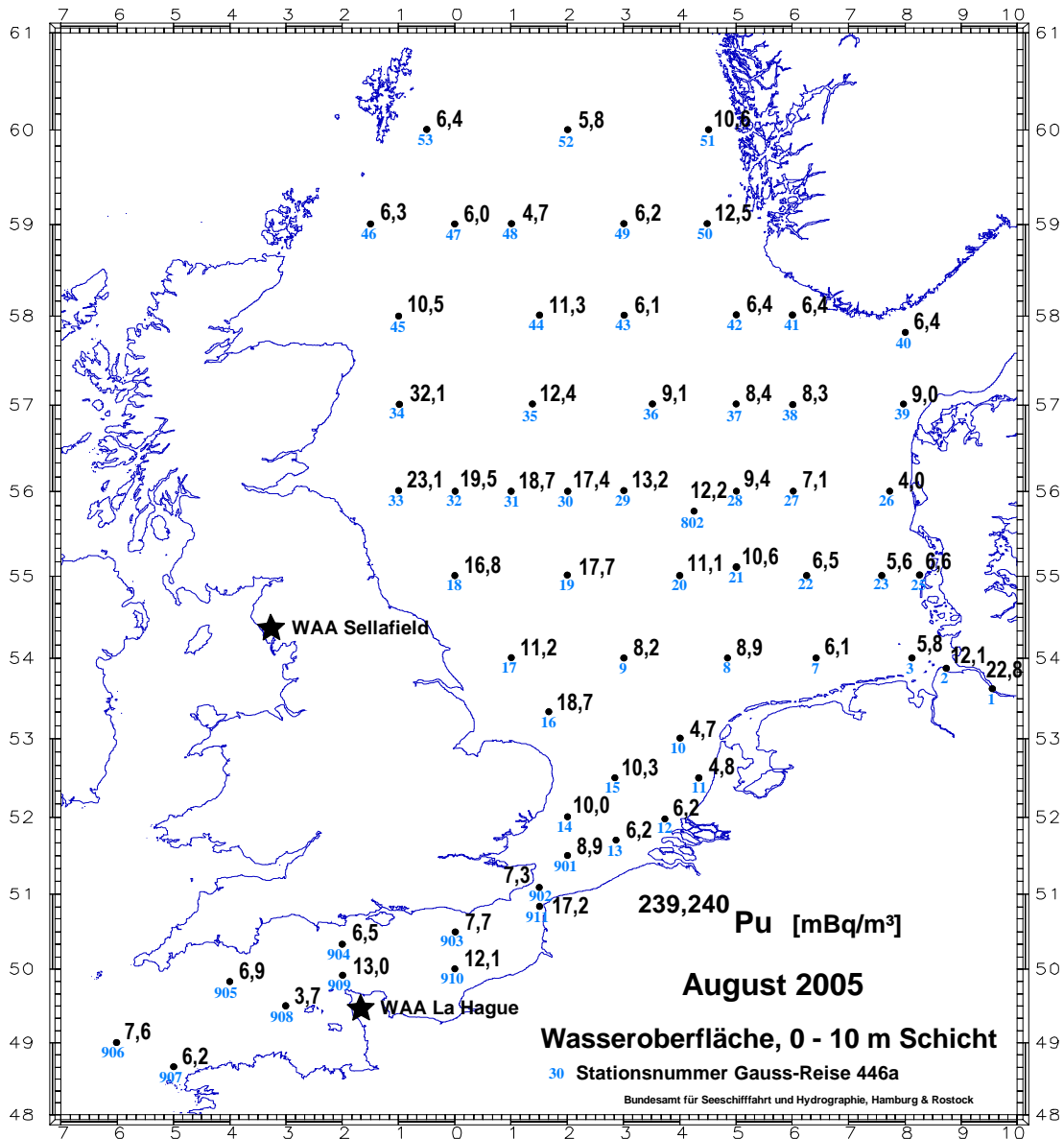


Abbildung 70: Summierte Aktivitätskonzentrationen des Plutonium-239 und des Plutonium-240 in der Nordsee (Augustreise 2005) in mBq/m<sup>3</sup>.



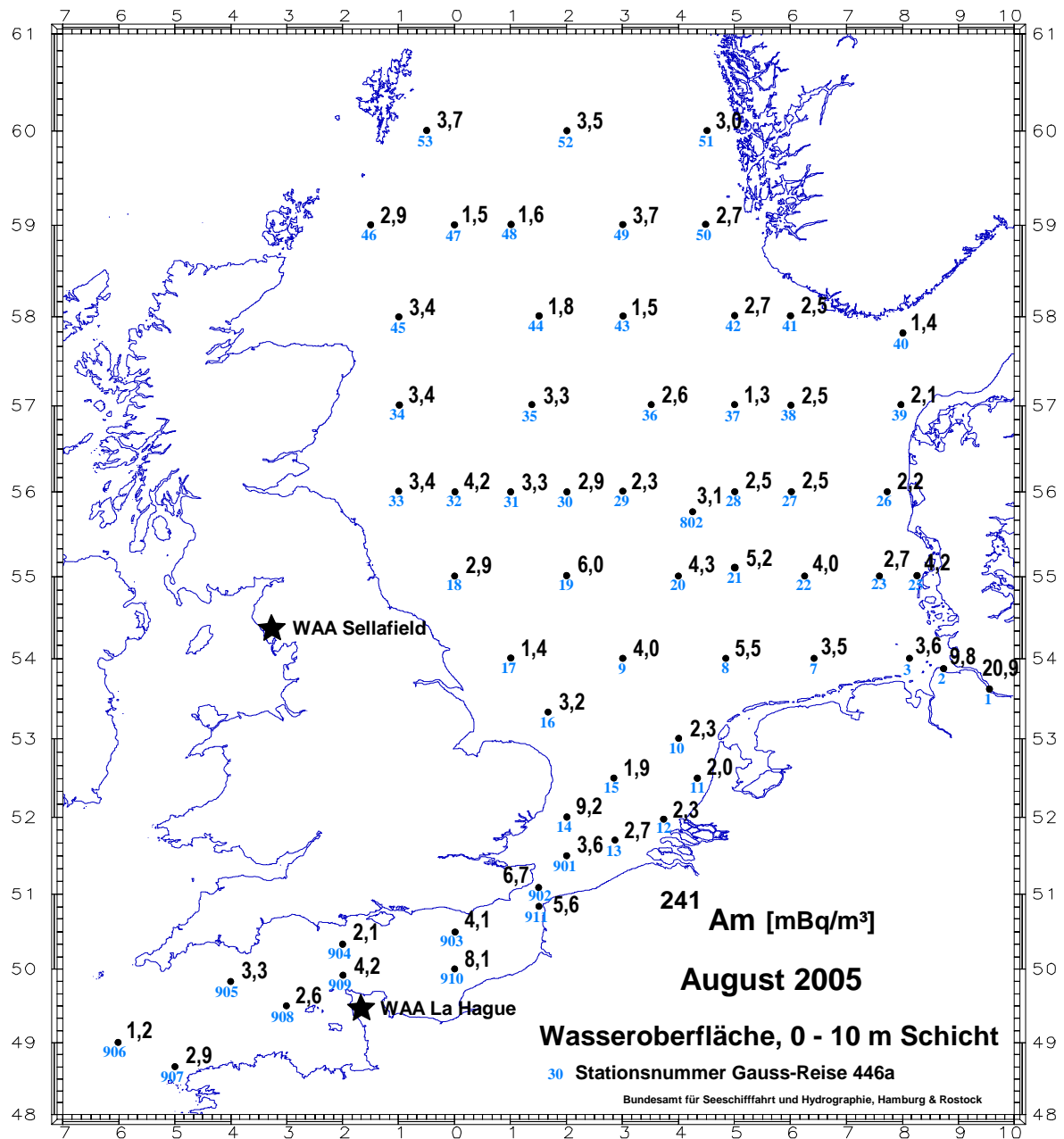
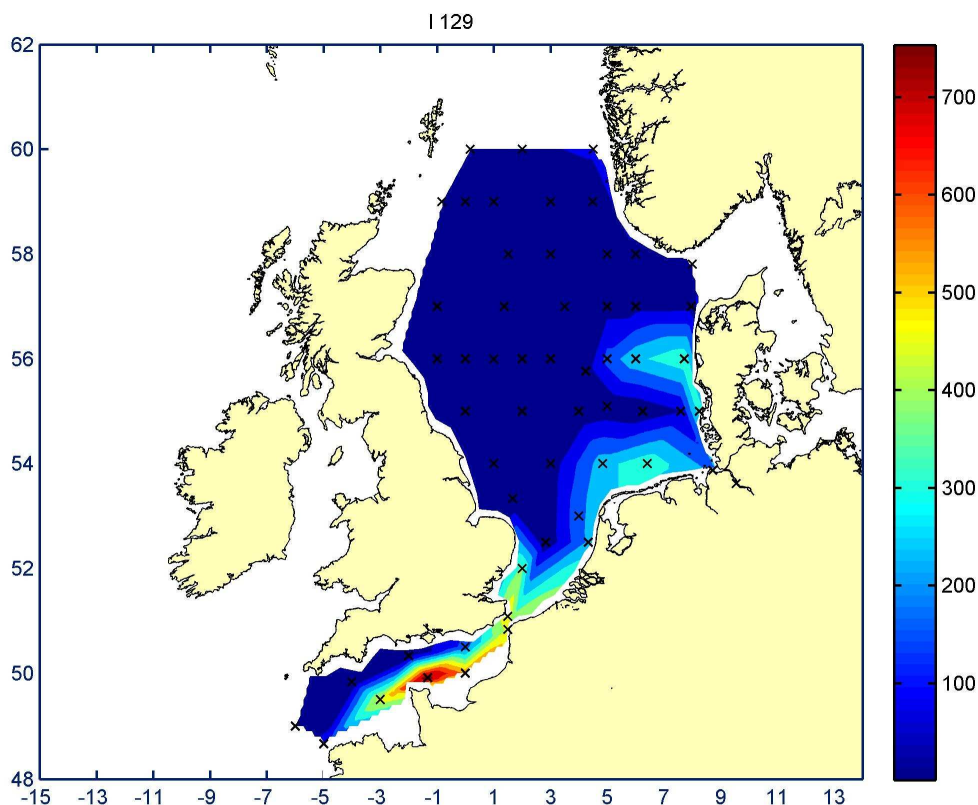


Abbildung 71: Aktivitätskonzentrationen des Americium-241 in der Nordsee (August-reise 2005) in mBq/m<sup>3</sup>.

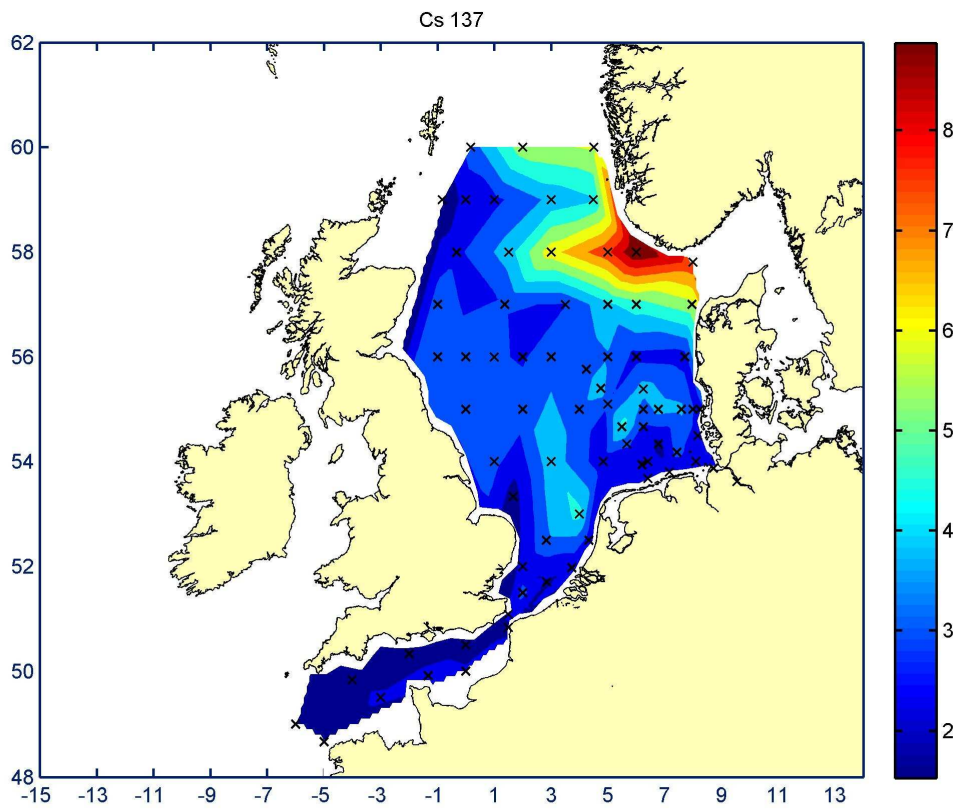
## 6.4 Graphische Darstellung der Verteilung verschiedener Radionuklide mittels Isolethendarstellungen

In den folgenden Abbildungen werden die Konzentrationsverteilungen aus Abschnitt 5.1 – 5.3 graphisch dargestellt, wobei die Konzentrationen als Isoflächen über ein mathematisches Kriegin-Verfahren berechnet wurde. Diese Abbildungen sind allerdings mit Vorsicht zu benutzen, da teilweise Effekte erzeugt werden können, die in der Realität nicht unbedingt vorhanden sind. Bei einigen Radionukliden ist die Dynamik auch so groß, dass tatsächlich vorhandene Strukturen verschwinden können, dies betrifft insbesondere Iod-129. Das Verhalten des Cs-137 und dessen Eindringen aus dem Ostseeraum werden sehr in der farblichen Darstellung sehr anschaulich.

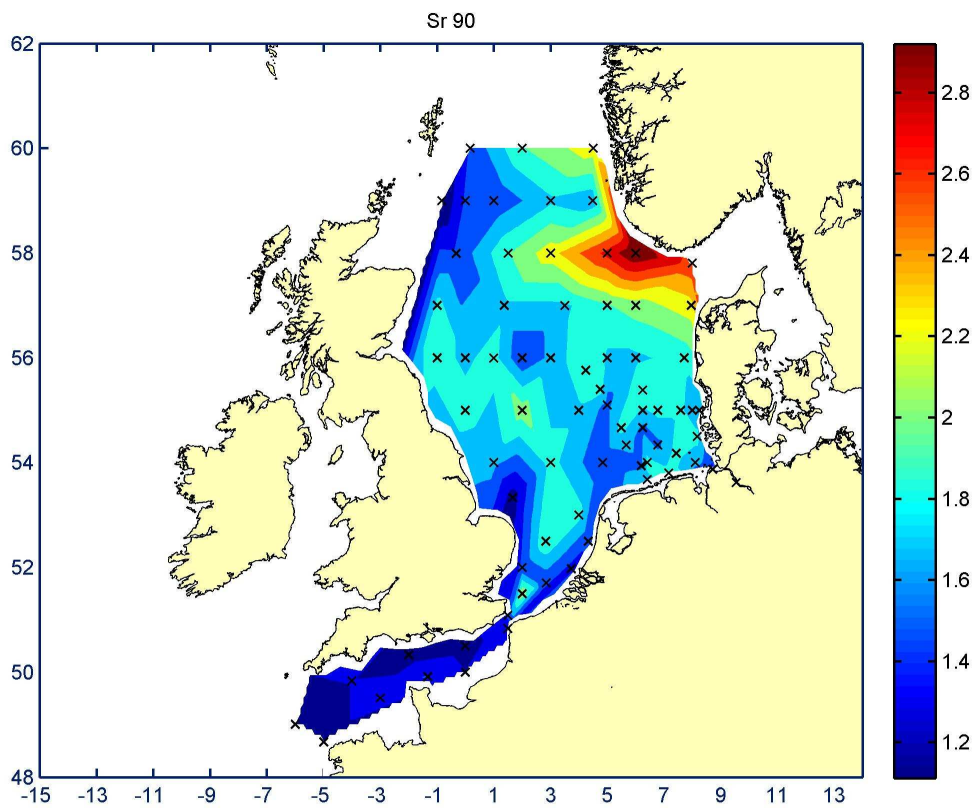
### Iod-129:



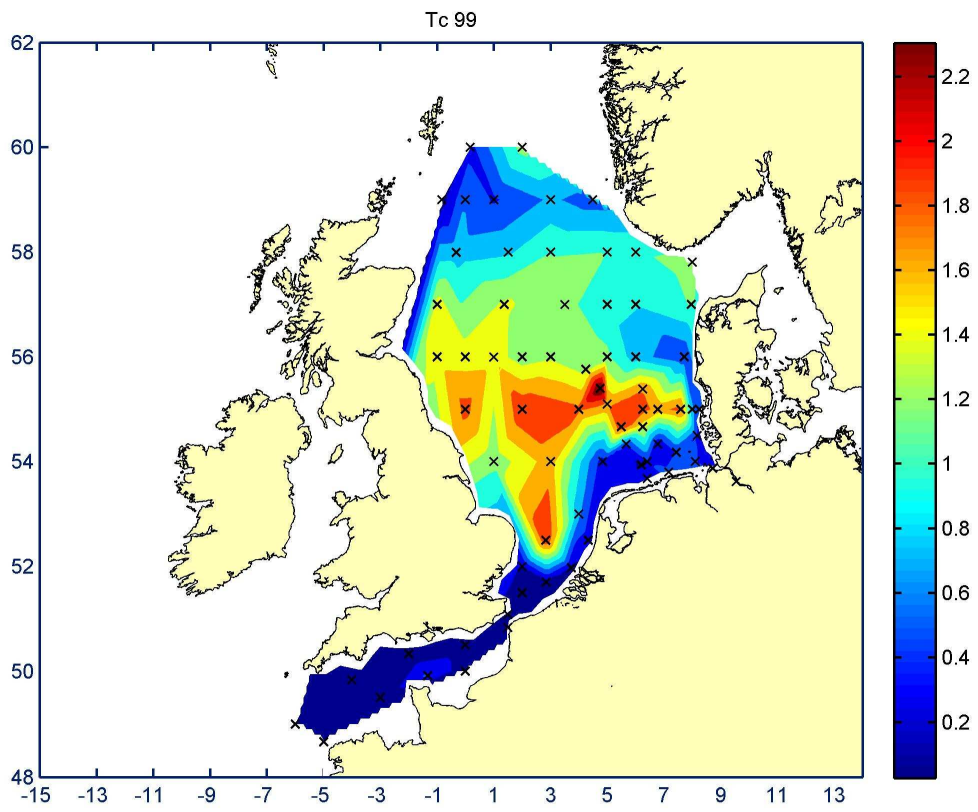
**Cs-137:**



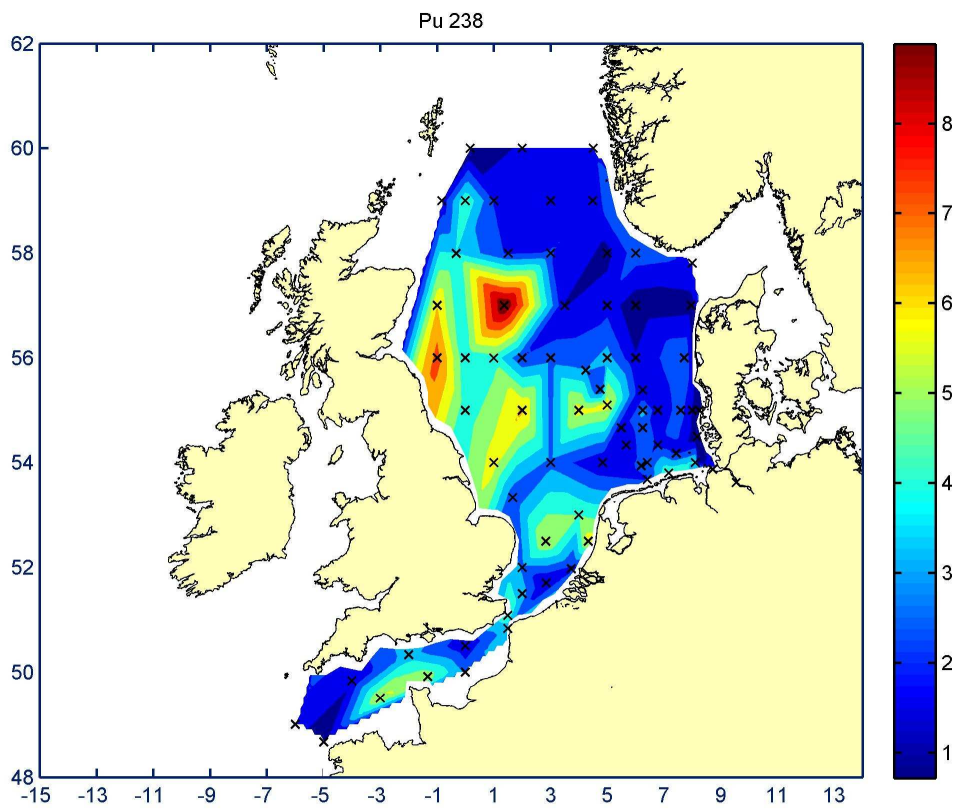
**Sr-90:**



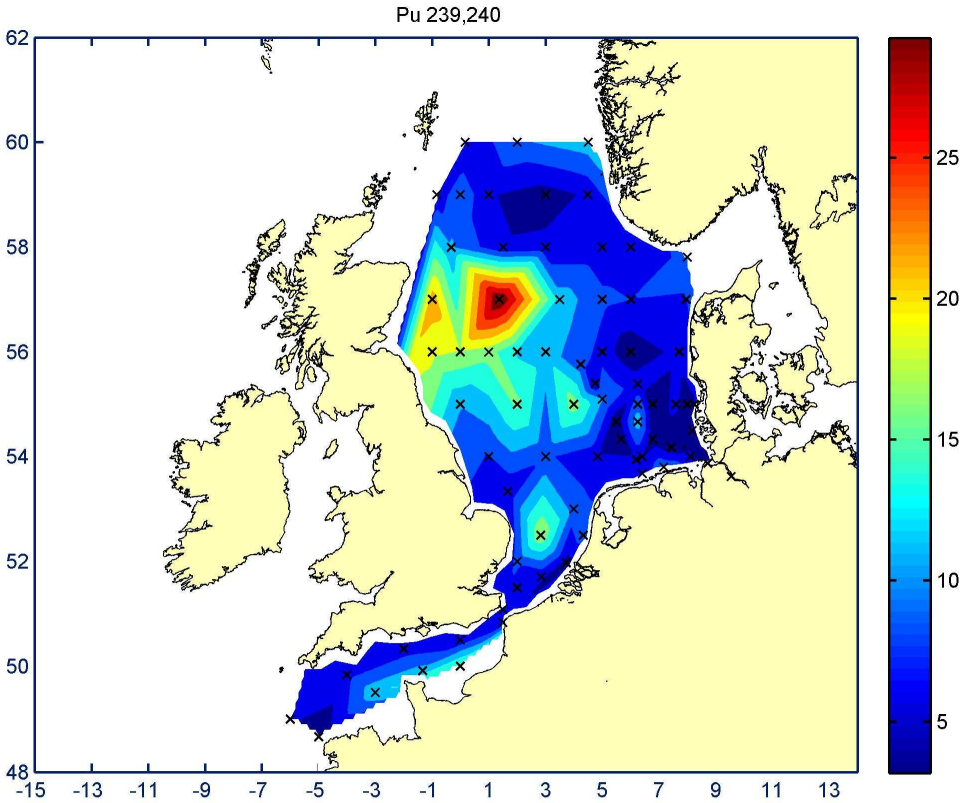
**Tc-99:**



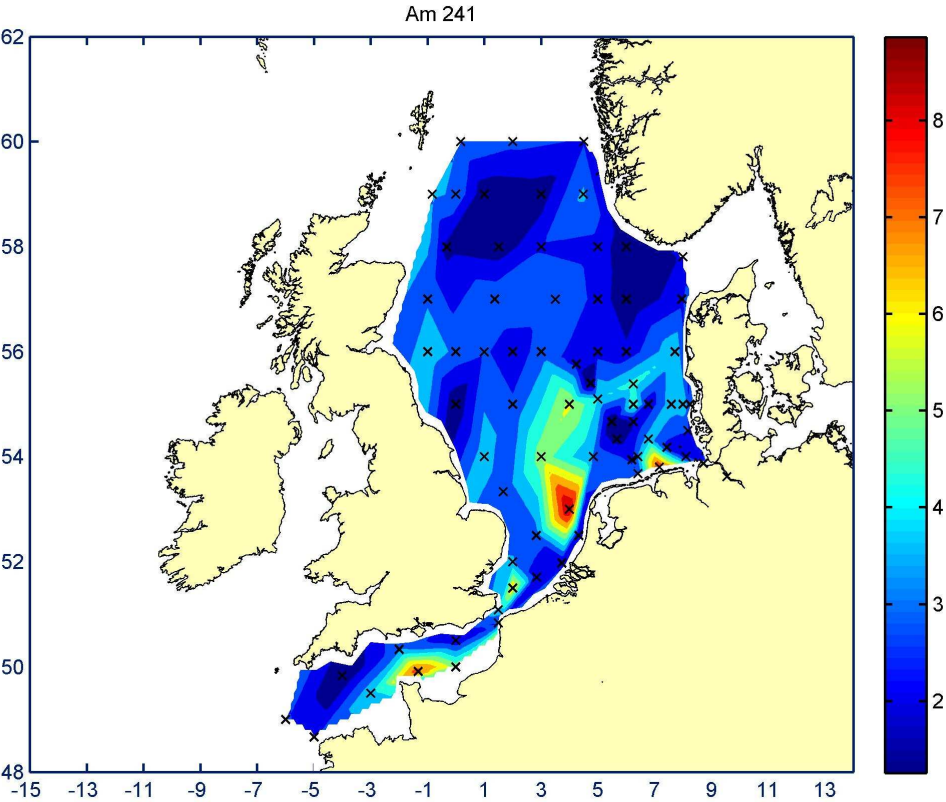
**Pu-238:**



**Pu-239,240:**



**Am-241:**



## 7 Diskussion

### 7.1 Iod-129 und Iod-127 in der Nordsee

Die Ergebnisse aller untersuchten Wasserproben sind in den Tabellen A 1 bis A 14 im Anhang mit den dazugehörigen Koordinaten sowie den verfügbaren Temperaturen und Salinitäten zusammengestellt. Die Daten bezüglich Iod-129 werden in Aktivitätskonzentrationen ( $\mu\text{Bq/l}$  entspricht  $\text{mBq/m}^3$ ) und in  $\text{fg/g}$  angegeben. In der Literatur über  $^{129}\text{I}$  in der Umwelt werden keine gleich bleibenden Einheiten verwendet. Daher werden in der Diskussion neben den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen sowohl die  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen als auch die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (in  $\text{fg/g}$  oder  $\text{g/g}$ ) besprochen. Ein Femtogramm  $^{129}\text{I}$  enthält  $4.67 \cdot 10^6$  Iod-129 Atome, das entspricht  $6,54 \text{ nBq}$ . Die Nachweisgrenzen für  $^{129}\text{I}$  im Meerwasser und im Niederschlag lagen unter  $1,2 \cdot 10^{-18} \text{ g/g}$ . Das entspricht einer  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentration von weniger als  $7,7 \mu\text{Bq/m}^3$  und damit weniger als  $5600 \text{ Atome/g}$ .

Die aus der Augustreise 2005 erhaltenen  $^{129}\text{I}$ -Daten sind in Abbildung 61 als Aktivitätskonzentrationen und in Abbildung 62 als  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse dargestellt. Zusätzlich sind in der Abbildung die Ergebnisse bei den Beprobungen der Irischen See eingefügt. Die Aktivitätskonzentrationen zeigen eine große Streuung und liegen zwischen  $2 \text{ mBq/m}^3$  und  $890 \text{ mBq/m}^3$ . Aber selbst die kleinsten gefundenen Aktivitätskonzentrationen liegen immer noch mehr als Faktor 40 über den Aktivitätskonzentrationen, die fernab der Emittenten bei Hawaii ( $50 \mu\text{Bq/m}^3$ ) und im Indischen Ozean ( $45 \mu\text{Bq/m}^3$ ) angetroffen werden. In der näheren Umgebung der Wiederaufbereitungsanlagen werden die höchsten Aktivitätskonzentrationen beobachtet.  $843 \text{ mBq/m}^3$  finden sich stromabwärts gelegen von La Hague (Station 910) und  $890 \text{ mBq/m}^3$  im küstennahen Wasser vor Sellafield.

Aufgrund der komplizierten Strömungsverhältnisse im Kanal erstreckt sich der Einfluss von La Hague auch nach Westen, bei Station 908 (westlich Guernsey) wird eine Aktivitätskonzentration von  $100 \text{ mBq/m}^3$  beobachtet. Es ist an dieser Stelle eine Beeinflussung aus Sellafield nicht auszuschließen, eine genauere Deutung ist unter Einbeziehung der anderen Nuklide möglich und findet weiter unten in diesem Abschnitt statt. Der wesentliche Transport von  $^{129}\text{I}$  erfolgt von La Hague durch den Englischen Kanal in die Nordsee. Dieser  $^{129}\text{I}$ -Transport kann entlang der Küste über Belgien, den Niederlanden, Deutschland und Dänemark bis zur Station 26 (westlich Ringköbing) deutlich erkannt werden. Entlang dieser Hauptströmungsstrecke nimmt die Aktivitätskonzentration des  $^{129}\text{I}$  nur um den Faktor drei ab. Östlich des Mündungsbereiches des Englischen Kanals in die Nordsee ist der Transport des  $^{129}\text{I}$  aus La Hague auf einen relativ schmalen Bereich in Küstennähe begrenzt. Grund dafür sind die aus Norden, entlang der östlichen, britischen Inselküste in die Nordsee eintretenden Wassermassen. Entlang der deutschen Nordseeküste sind an der Elbmündung und der nordfriesischen Küste die höchsten Aktivitätskonzentrationen zu sehen.

Das aus Sellafield stammende  $^{129}\text{I}$  weist kein so klares, eindeutiges Transportmuster auf. Von Sellafield ausgehend in Richtung der Hauptströmungsrichtung nach Norden zeigt sich eine starke Abnahme der Aktivitätskonzentration. Die Beeinflussung in südlicher Richtung ist deutlich erkennbar. Die an der Küste von Oban, Maror und Ullapool entnommenen Proben weisen ein weiteres Abnehmen der Aktivitätskonzentration in nördlicher Richtung auf. Im Vergleich zum küstennahen Bereich bei Sellafield wird im Norden eine um mehr als den Faktor 15 verringerte Aktivitätskonzentration beobachtet ( $57 \text{ mBq/m}^3$  bei Ullapool gegenüber  $890 \text{ mBq/m}^3$ ).

Die Strömungsverhältnisse in der Irischen See sind relativ komplex, neben der Hauptströmungsrichtung von Sellafield ausgehend in nördlicher Richtung finden auch Verwirbelungen innerhalb der Irischen See statt. Ein signifikanter Teil der Wassermassen und damit auch der Nuklide finden den Weg in den südlich gelegenen Sankt-Georgs-Kanal. Von dort findet ein weiterer Transport bis zum westlichen Teil des Englischen Kanals statt, wo sich die aus Sel-



lafiield stammenden Emissionen nachweisen lassen. Allerdings spielt dieser Transportweg gegenüber dem in nördlicher Richtung eine eher untergeordnete Rolle.

Entlang der Ostküste, beginnend im nordöstlichen Schottland bis hin zur Station 16 (Downsings, Ostküste Englands) liegen die  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen unter  $20 \text{ mBq/m}^3$ . In diesem Bereich dominiert eine südlich gerichtete Strömung. Hier wären eigentlich größere Kontaminationen zu erwarten, die von Sellafield in die Nordsee transportiert werden. Eine mögliche Erklärung für die relativ kleinen Aktivitätskonzentrationen ist, dass nicht nah genug an der Küstenlinie beprobt wurde. Bei einem kleineren Abstand zur Küste wären wahrscheinlich größere Kontaminationen feststellbar.

Die geringsten Aktivitätskonzentrationen innerhalb der Nordsee werden mit  $6 \text{ mBq/m}^3$  bei der Doggerbank (Station 29) in der zentralen Nordsee angetroffen.

Die kleinsten  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen des gesamten Beprobungsgebiets sind am Einlass des Kanals ( $2 \text{ mBq/m}^3$ ) und östlich der Shetlandinseln ( $2 \text{ mBq/m}^3$ ) zu sehen. Betrachtet man nur die  $^{129}\text{I}$ -Datensätze, so ist keine Unterscheidung möglich, ob die Kontamination im Kanal bei den Stationen 906 (nordwestlich Quessant) und 907 (VTG Quessant) von den Emissionen aus La Hague oder aus Sellafield herrühren. Wie auch bei Station 908 (westlich Guernsey, s. oben) und Station 905 (ssw-lich Start Point) ist eine Unterscheidung unter Einbeziehung der  $^{99}\text{Tc}$ -Daten möglich (s. u.).

Unter Berücksichtigung der Emissionsdaten ist es prinzipiell möglich, die dominierende Quelle der Radionuklide an einem Probenahmepunkt zu identifizieren. Hilfreich sind dabei die Verhältnisse der Aktivitäten zweier Radionuklide zueinander, dabei dürfen aber nicht die jeweiligen absoluten Aktivitätskonzentrationen außer Acht gelassen werden. Globaler Fallout, der Reaktorunfall von Tschernobyl, die beiden Wiederaufarbeitungsanlagen und der Eintrag aus Flüssen kommen bei den hier behandelten Radionukliden als jeweils dominierende Quelle infrage. Die Identifizierung der maßgeblichen Quelle an verschiedenen Punkten ist Bestandteil dieses Abschnitts, wobei es große Gebiete gibt, die das Ergebnis des Vermischens mehrere Quellen sind.

Im Anhang sind die Emissionsdaten der relevanten Nuklide aufgeführt, außerdem sind die Verhältnisse der Freisetzungen der betrachteten Nuklide bezogen auf  $^{129}\text{I}$  dargestellt. Seit 1990 übertrifft Sellafield bei den  $^{99}\text{Tc}$ -Emissionen La Hague und seit Mitte der 1990 er Jahre liegt Sellafield etwa 2-3 Größenordnungen über den  $^{99}\text{Tc}$ -Ableitungen aus La Hague. Seit 1995 sind die  $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aus Sellafield 3-4 Größenordnungen höher, als die von La Hague. Im gleichen Zeitraum lag das  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Isotopenverhältnis aus Sellafield immerhin ein bis zwei Größenordnungen über dem aus La Hague, die absoluten Emissionen bezogen auf die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität werden ebenfalls seit Mitte der 1990 er Jahre von Sellafield dominiert.

Folgerichtig finden sich in der Irischen See höhere  $^{90}\text{Sr}$ - und  $^{99}\text{Tc}$ -Aktivitätskonzentrationen. Im Englischen Kanal und der Umgebung von La Hague treten diese Radionuklide aufgrund der kleineren Emissionsraten der dortigen Wiederaufarbeitungsanlage nur im geringen Maße auf.

Die am Einlass des Kanals gefundenen  $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse von 63,5 und 32,0 bei den Stationen 906 bzw. 907 sprechen dafür, dass dort Sellafield Quelle der Kontamination ist. Etwas weiter östlich, bei den Stationen 905 und 908 nehmen die  $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse auf 3,7, bzw. 0,3 ab. Einerseits nahmen die  $^{99}\text{Tc}$ -Aktivitätskonzentrationen ab, andererseits verringert sich das Verhältnis auch aufgrund des verstärkten Einflusses aus La Hague; es sind bereits deutliche  $^{129}\text{I}$ -Einträge zu erkennen.

Die  $^{99}\text{Tc}$ -Aktivitätskonzentrationen erfahren aufgrund von Verdünnungseffekten eine Abnahme,  $0,13 \text{ Bq/m}^3$  und  $0,06 \text{ Bq/m}^3$  bei den Stationen 906 und 907 auf  $0,03$  und  $0,04 \text{ Bq/m}^3$  in

östlicher Richtung. Neben den Verdünnungseffekten tragen auch Verwirbelungen am Einlass des Kanals zur Abnahme der  $^{99}\text{Tc}$ -Konzentrationen bei. Die Aktivitätskonzentration im Nordostatlantik kann im Oberflächenwasser aufgrund des globalen Fallouts mit etwa  $0,05 \text{ Bq/m}^3$  für  $^{99}\text{Tc}$  angenommen werden.

Im weiteren Verlauf des Englischen Kanals sind geringe  $^{99}\text{Tc}$ -Aktivitätskonzentrationen zu beobachten, da wie bereits oben angesprochen La Hague im Vergleich zu Sellafield nur sehr wenig  $^{99}\text{Tc}$  emittiert. Diese geringen Aktivitätskonzentrationen liegen innerhalb des Kanals und entlang der Küstenlinie (Stationen 901 bis 911, 10 bis 15, 1 bis 3, 7, 23, 25) bis Station 26 unter  $0,82 \text{ Bq/m}^3$ . In dem angesprochenen Bereich fallen daher auch die  $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse sehr gering aus. Unter Berücksichtigung dieser Daten kann daher davon ausgegangen werden, dass die Küstenregion bis Dänemark (Station 26) vorrangig durch die Emissionen aus La Hague beeinflusst wird. Bereits etwas nördlich des Küstenbereichs in der südlichen Nordsee bei den Stationen 8, 9, 16 finden sich deutlich höhere  $^{99}\text{Tc}$ -Aktivitätskonzentrationen. Diese betragen bei den genannten Stationen  $1,74$  und  $1,24$  und  $2,08 \text{ Bq/m}^3$ . Die erhöhten  $^{99}\text{Tc}$ -Aktivitätskonzentrationen spiegeln sich auch in den  $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnissen wider. Diese liegen bei  $58$ ,  $103$ ,  $122$  (Stationen 8, 9 und 16). Somit ist anzunehmen, dass bei diesen Stationen bereits eine Beeinflussung von der Wiederaufarbeitungsanlage in Sellafield vorliegt. Dies trifft auch auf den gesamten Bereich westlich der Stationen 23 und 26 zu. Die dortige  $^{129}\text{I}$ -Kontamination stellt eine Mischung aus La Hague und Sellafield dar, andere Quellen wie der globale Fallout spielen nur eine untergeordnete Rolle.

Die Besonderheiten im Bereich des Skagerraks werden bei der Besprechung der Tiefenprofile diskutiert.

Die  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse liegen im westlichen Kanal bei  $650$  und  $600$  (Stationen 906 und 907) und nehmen zu den Stationen 905 und 908 auf  $100$  und  $11,8$  ab. Die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationen sind im westlichen Teil des Englischen Kanals relativ konstant ( $1,2 - 1,5 \text{ Bq/m}^3$ ), der Rückgang der  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse in dem eben beschriebenen Bereich wird ausschließlich durch den  $^{129}\text{I}$ -Eintrag aus La Hague verursacht, wodurch La Hague als Quelle der  $^{129}\text{I}$ -Kontamination bei den Stationen 905 und 908 identifiziert ist, während Sellafield die  $^{129}\text{I}$ -Kontaminationen der Stationen 906 und 907 dominiert. Die beim  $^{99}\text{Tc}$  angesprochenen Verdünnungseffekte fallen beim  $^{90}\text{Sr}$  nicht so stark auf, da die Daten der Stationen 906 und 907 bereits fast globalen Fallout erreicht haben.

Die  $^{137}\text{Cs}$ -Daten bestätigen die Feststellungen, die bei  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{90}\text{Sr}$  gemacht wurden. Wie auch beim  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{90}\text{Sr}$  zeigt die Irische See bezüglich  $^{137}\text{Cs}$  eine wesentlich stärkere Kontamination als der Englische Kanal. Seit 1990 liegen die  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisse aus Sellafield ein bis zwei Größenordnungen über denen aus La Hague, auch bei den absoluten  $^{137}\text{Cs}$ -Emissionen liegt Sellafield deutlich über denen aus La Hague. In den letzten zehn Jahren wurde aus Sellafield etwa eine Zehnerpotenz mehr emittiert, als aus La Hague. Bildet man im Englischen Kanal die Aktivitätskonzentrationsverhältnisse von  $^{137}\text{Cs}$  zu  $^{129}\text{I}$ , wird aufgrund der  $^{129}\text{I}$ -Emissionen aus La Hague von den Stationen 906 und 907 zu den Stationen 905 und 908 stark verringert. Die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen liegen im westlichen Kanal bei  $2,0 \text{ Bq/m}^3$  (Stationen 906 und 907), etwas weiter in östlicher Richtung liegen sie bei  $1,7$  bzw.  $1,9 \text{ Bq/m}^3$  (Stationen 905 und 908). Diese Werte liegen nahe am globalen Fallout, der für  $^{137}\text{Cs}$  mit etwa  $1,0 \text{ Bq/m}^3$  angenommen werden kann. Auch hier kommen die beim  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{90}\text{Sr}$  angesprochenen Verdünnungseffekte zum Tragen. Im weiteren Verlauf des Kanals werden auch die  $^{137}\text{Cs}$ -Emissionen aus La Hague deutlich sichtbar, die Aktivitätskonzentration steigt „stromabwärts“ auf  $2,3$  bis  $4,7 \text{ Bq/m}^3$ . Bei diesen Betrachtungen muss allerdings berücksichtigt werden, dass die Emissionen zeitlich nicht gleichmäßig erfolgen und auch hierdurch unterschiedliche Konzentrationen hervorgerufen werden können.

<sup>241</sup>Am wird ebenfalls in deutlich größeren Mengen aus Sellafield emittiert. Bei den Stationen 906 und 907 liegt es nahe am globalen Falloutlevel, bei den Stationen 905 und 908 liegt be-



reits eine signifikante Menge aus La Hague vor und im Abstrom von La Hague überwiegen die  $^{241}\text{Am}$ -Emissionen aus dieser Anlage. Die  $^{241}\text{Am}$ -Aktivitäten von 1,2 bzw. 2,9  $\text{mBq/m}^3$  am Einlass des Kanals steigen auf 8,1  $\text{mBq/m}^3$  bei Station 901. Zu beachten ist, dass  $^{241}\text{Am}$  über einen Beta-Zerfall von  $^{241}\text{Pu}$  gebildet wird und dadurch dessen Konzentration über die Jahre noch weiter anwächst. Aus dem globalen Fallout wird das Maximum des  $^{241}\text{Am}$  erst etwa 2037 erreicht werden.

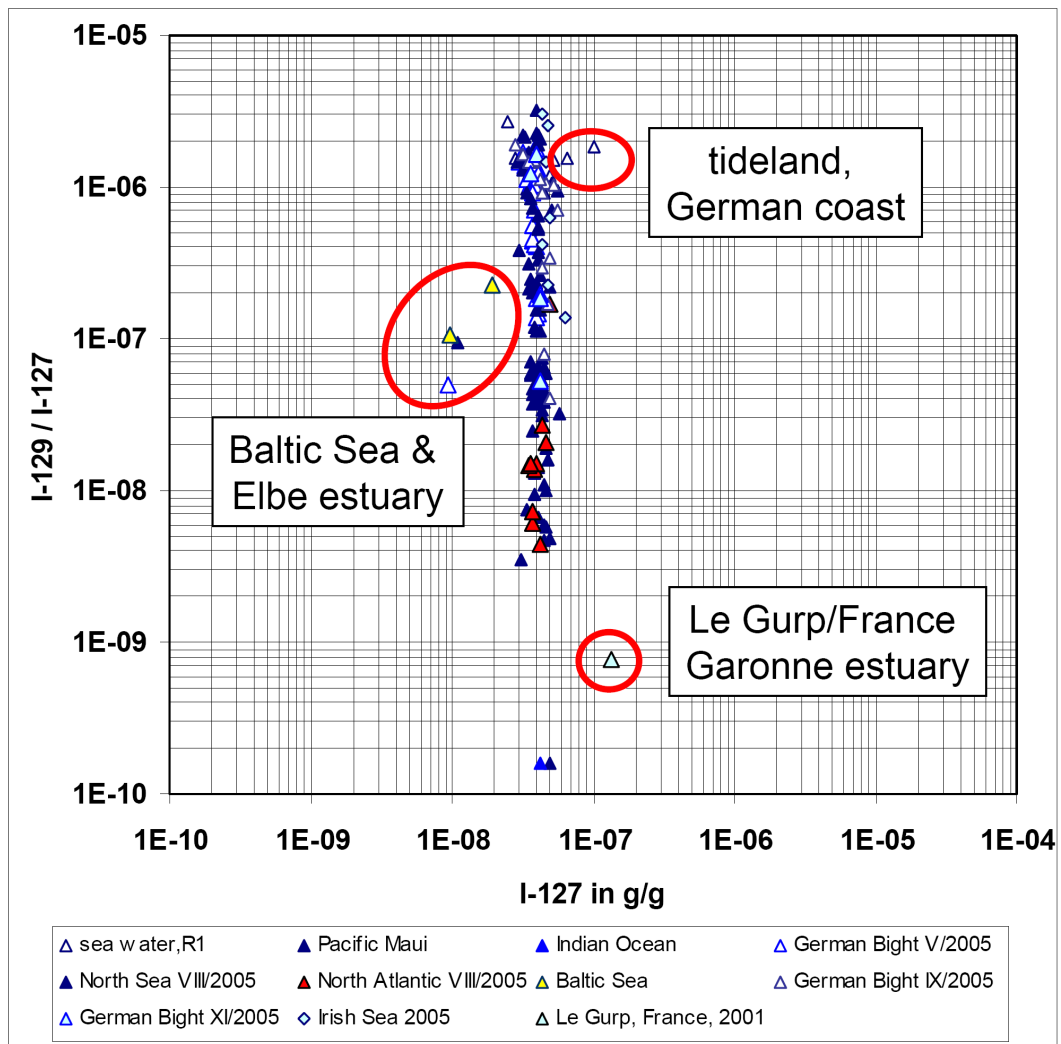
Tritium ( $^3\text{H}$ ) kann als ein sich ideal konservativ verhaltendes Nuklid im Meerwasser verstanden werden. Allerdings sind im zeitlichen Verlauf der  $^3\text{H}$ -Emissionen die Unterschiede von Sellafield zu La Hague nicht groß genug. In den letzten Jahren drei Jahren (2004 - 2006) tritt eine deutliche Reduktion der Emissionen in Sellafield ein. Die  $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der Emissionen unterscheiden sich nur wenig. Wie bei den anderen Nukliden auch, wird die Verringerung des  $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationsverhältnisses im Verlauf des Kanals durch die starken  $^{129}\text{I}$ -Emissionen aus La Hague verursacht. Tritium wird in relativ großen Mengen aus kerntechnischen Anlagen freigesetzt und auch über die Flüsse in die Nordsee eingetragen. Daher ist es ungeeignet, um es zur Unterscheidung der Herkunft von Iod-129 zu nutzen. Der angesprochene Eintrag aus sich auf dem Festland befindlichen kerntechnischen Anlagen spiegelt sich auch in der Elbe und deren Mündungsbereich wieder. Dort finden sich  $^3\text{H}$ -Aktivitätskonzentrationen von 2,6, 4,7 und 4,0  $\text{Bq/l}$ . Das in die Nordsee eingetragene Tritium vermischt sich mit dem aus La Hague stammenden Wasser und folgt der Strömung von der Elbmündung in nördlicher Richtung bis zur Station 26.

Im Bereich des Englischen Kanals und der kontinentalen Küste sind hohe Tritiumkonzentrationen zu beobachten, die sowohl durch Kernkraftwerke auf dem Kontinent als auch durch die Emissionen von La Hague verursacht werden. Die Kernkraftwerke bei Flamanville (2 Reaktoren) und Gravelines (6 Reaktoren) auf französischer Seite sowie die Anlage Winfrith (UK) tragen zur zusätzlichen Tritiumbelastung bei. Die Diskussion bezüglich Tritium wird in Abschnitt 7.3 weiter ausgeführt.

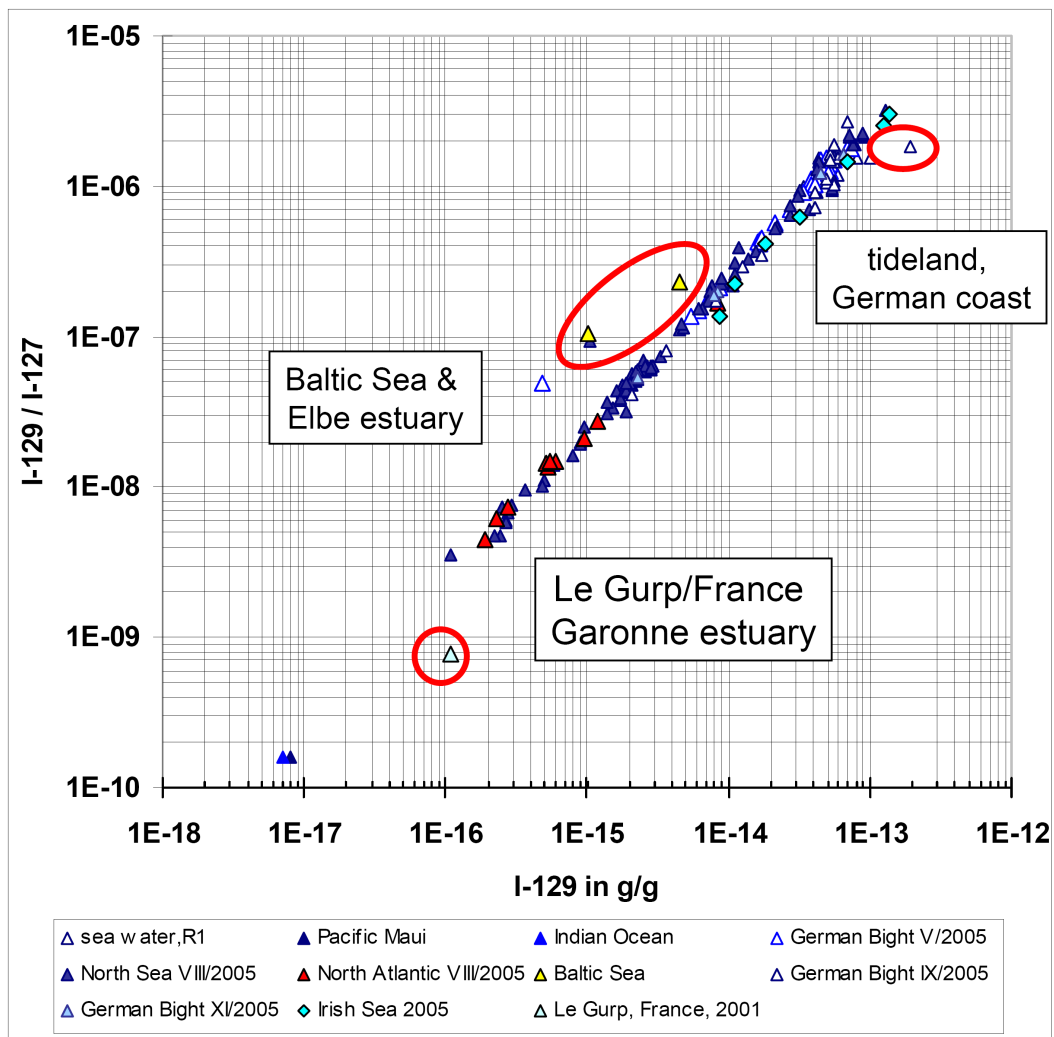
Im Nordostatlantik liegen die  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen zwischen 1,5  $\text{mBq/m}^3$  (Spitzbergen) und 55  $\text{mBq/m}^3$  an der Südküste Norwegens (Abbildung 63). Selbst an der Küste Grönlands, südlich der Danmarkstraße, wo die Strömung südwärts gerichtet ist, werden noch mehr als 2  $\text{mBq/m}^3$  beobachtet.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse zeigen die gleiche Systematik, wie die  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentrationen. Eine Erklärung dafür sind die nur sehr geringen Variationen der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen (Abbildung 63 und Abbildung 64).

Der Mittelwert und die Standardabweichung der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen aller untersuchten Meerwasserproben liegen bei  $(40 \pm 9) \text{ ng/g}$ . Starke Abweichungen vom Mittelwert der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen werden zum einen in der Ostsee und im Bereich der Elbmündung beobachtet (etwa 10  $\text{ng/g}$ ), zum anderen finden sich außergewöhnlich hohe  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen von mehr als 100  $\text{ng/g}$  im Wattenmeer der deutschen Nordseeküste und im Bereich der Garonne-Mündung (Ernst, 2003) (s. Abbildung 72). Diese besonders großen  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen können durch die erhöhte biologische Aktivität in diesen Bereichen erklärt werden, während die kleineren Konzentrationen durch einen größeren Süßwasseranteil an den Einmündungen der Elbe und der Ostsee verursacht werden. Bis auf die eben beschriebenen Ausnahmen variiert das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis nicht mit den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen, während sich die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse über mehr als 4 Zehnerpotenzen erstrecken (Abbildung 72 und Abbildung 73).



**Abbildung 72: Auftragung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen aller bisher am ZSR untersuchten Meerwasserproben (Michel *et al.*, 2004b; Ernst, 2003; Szidat, 2000 und dieser Bericht).**



**Abbildung 73: Auftragung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen aller bisher am ZSR untersuchten Meerwasserproben (Michel *et al.*, 2004b; Ernst, 2003; Szidat, 2000) und dieser Bericht.**

Die Auftragung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen (Abbildung 73) zeigt, dass die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse ausschließlich durch die Beimengungen von anthropogenen  $^{129}\text{I}$  bestimmt werden. Die größten gemessenen Isotopenverhältnisse liegen sechs Zehnerpotenzen über dem natürlichen Gleichgewichtsverhältnis. Iod erweist sich im Meerwasser als ein extrem konservativer Tracer, allerdings gibt es gegenwärtig keine Informationen darüber, wie viel Iod aus dem Meerwasser in Luft und in die Sedimente übergeht.

Die bei der ersten Beprobung der Deutschen Bucht erhaltenen Daten (s. Abbildung 59 und Abbildung 60) stehen weitestgehend mit den Ergebnissen der Nordseereise im August 2005 (s. Abbildung 61 und Abbildung 62) im Einklang. Während dieser Reise über die Deutsche Bucht wurden die Wasserproben üblicherweise aus der Bordseewasserleitung entnommen, das entspricht einer Entnahmetiefe von 5 m unter der Wasseroberfläche. Die Tiefenprofile weisen innerhalb der Deutschen Bucht eine gute Durchmischung auf und werden in Abschnitt 7.5 diskutiert.

Die Zeitreihen der Stationen Borkumriff (B-Riff) und Elbe 1 zeigen im zeitlichen Verlauf eine große Konstanz mit nur kleinen Schwankungen und sind nicht parallel zueinander (Abbildung 74). Dies liegt in den komplexen Strömungsverhältnissen im Bereich der Elbmündung begründet. Elbe 1 scheint ein gut geeigneter Ausgangspunkt für weitere Kontrollmessungen zu

sein, um die Beeinflussung durch die Emissionen aus La Hague zu erfassen. Die zu den Zeitreihen gehörenden ergänzenden Daten befinden sich im Anhang. Ein Vergleich der Ergebnisse von Elbe 1 mit denen von früheren Proben aus der Nordsee zeigt die gleichbleibende, hohe Kontamination der Nordsee in dem letzten Jahrzehnt. Zwischen Juli 1999 und April 2002 hatte die  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentration bei der Station Elbe 1 einen geometrischen Mittelwert von  $430 \text{ mBq/m}^3$  und eine geometrische Standardabweichung von 1,7. Drei Jahre später, im Mai, September und November 2005, werden bei Elbe 1  $(330 \pm 30) \text{ mBq/m}^3$ ,  $(360 \pm 10) \text{ mBq/m}^3$  und  $(290 \pm 110) \text{ mBq/m}^3$  angetroffen. Bezüglich der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse wurden Werte von  $1,45 \cdot 10^{-6}$  (geometrische Standardabweichung 1,4),  $(1,49 \pm 0,10) \cdot 10^{-6}$ ,  $(1,5 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$  und  $(1,2 \pm 0,08) \cdot 10^{-6}$  bestimmt. Die Daten für Mai 2005 der Station Elbe 1 setzen sich aus dem Mittelwert von vier Proben zusammen, die zwischen 0 und 20 m Tiefe genommen wurden.

In den Tabellen A.1, A.3 und A.5 im Anhang sind die Ergebnisse und Probenparameter bezüglich der Deutschen Bucht zusammengefasst.

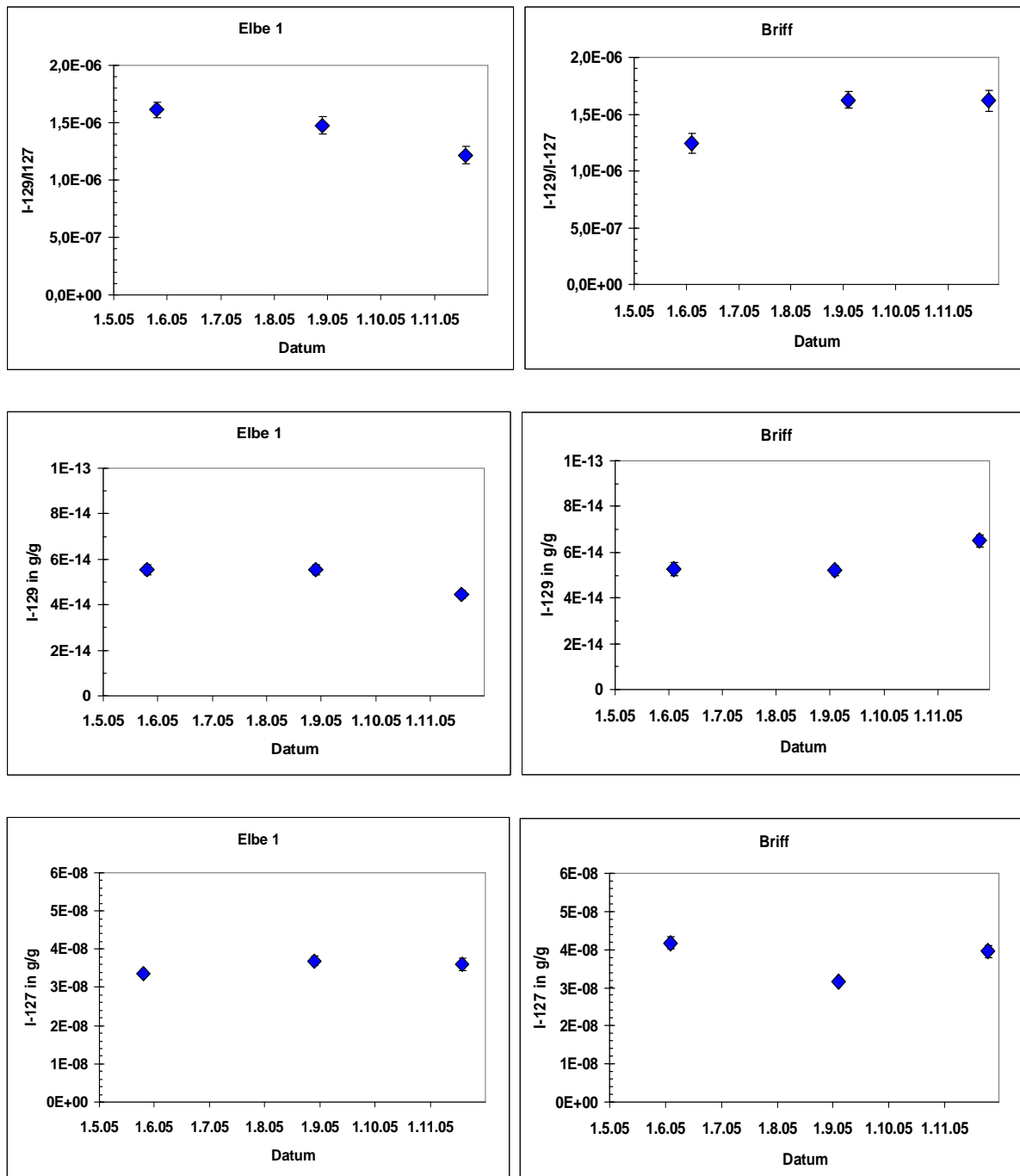


Abbildung 74: Zeitreihen für  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse,  $^{129}I$ -Konzentration und  $^{127}I$ -Konzentrationen im Oberflächenwasser der Deutschen Bucht der Stationen Elbe 1 (links) und Borkumriff (BRIFF, rechts). Weitere, mehrfach beprobte Orte sind dem Tabellenwerk im Anhang zu entnehmen.

### Exkurs: Salinität

Die Salinität beschreibt vereinfachend den Salzgehalt einer Wasserprobe und ist eigentlich eine dimensionslose Größe. Oftmals wird aber PSU (PSU = Practical Salinity Unit, basierend auf der Practical Salinity Scale) als „Einheit“ angegeben, um Verwechslungen mit anderen Salinitätskonzepten zu vermeiden. Die PSU ist keine physikalische Einheit, sie wird aus der Leitfähigkeit einer Probenlösung und einer Standard-Kaliumchloridlösung berechnet.

Die Salinitäten der Seewasserproben liegen zwischen 29 und 35,5 PSU. Ausnahmen bilden die Salinitäten der Stationen Stade in der Elbe und Medem im weiterführenden Bereich der Elbmündung. Die hier angetroffenen geringen Salinitäten von 1 bis 4 PSU (Stade) bzw. 20 bis 25 PSU (Medem) werden durch den Zufluss von kontinentalem Oberflächenwasser (Süßwasser) aus der Elbe erklärt. Die Elbe beeinflusst den gesamten Mündungsbereich. Es zeigt sich keine signifikante Korrelation zwischen den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen und der Salinität, aber die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Oberflächenwasser zeigen bei der Auftragung gegen die Salinität einige interessante Merkmale (Abbildung 75 und Abbildung 76). Des Weiteren zeigt die Station Stade ein außergewöhnlich niedriges  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von weniger als  $10^{-7}$  während es bei Station Medem bereits über  $10^{-6}$  liegt. Medem unterliegt der vollen Beeinflussung von den Emissionen aus La Hague.

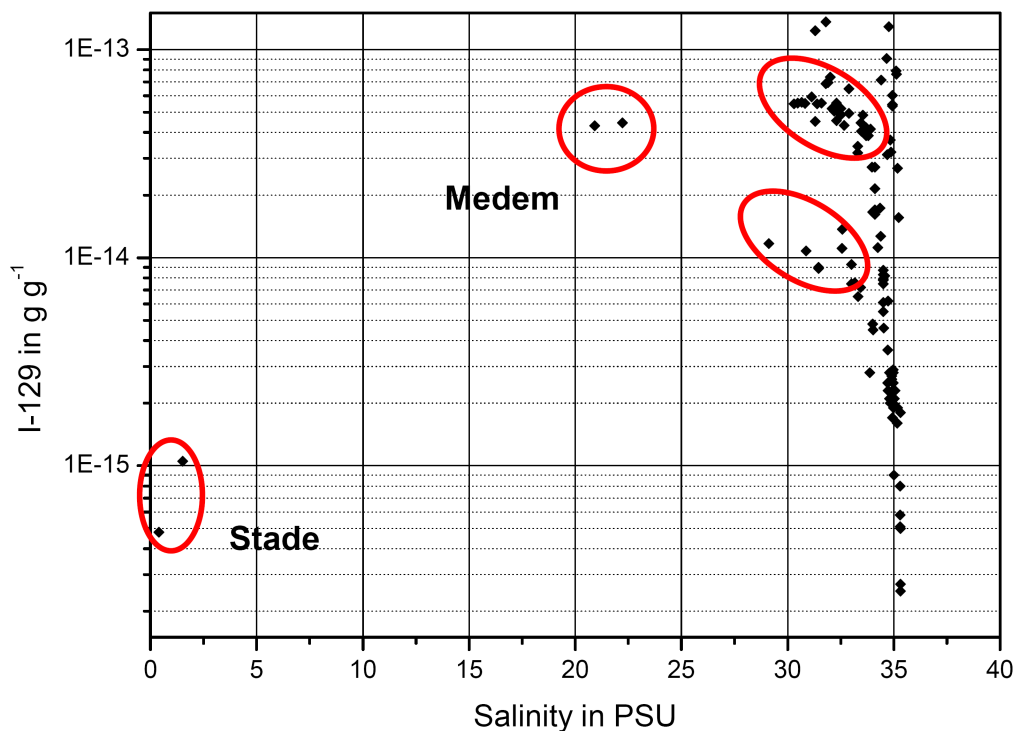
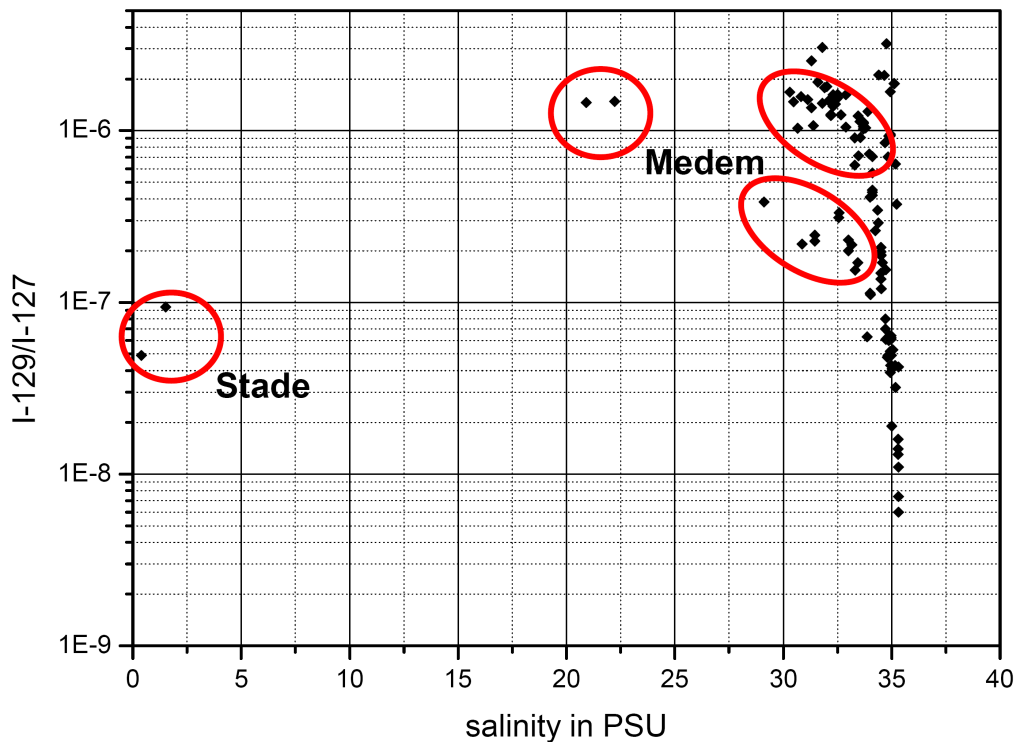


Abbildung 75: Auftragung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentration in g/g gegen die Salinität in PSU. Stade an der Elbe und Medem im äußeren Mündungsbereich besitzen besonders niedrige Salinitäten. Rot eingekreist sind Ausläufer geringer Salinität. Im Flussmündungsbereich werden größere  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen beobachtet als in dem durch Ostseewasser geprägten Gebiet.



**Abbildung 76: Auftragung des  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses gegen die Salinität in PSU. Stade an der Elbe und Medem im äußeren Mündungsbereich besitzen besonders niedrige Salinitäten. Rot eingekreist sind Ausläufer geringer Salinität. Analog zur obigen Abbildung werden im Flussmündungsbereich größere Kontaminationen beobachtet als in dem durch Ostseewasser geprägten Gebiet.**

Betrachtet man die Proben mit einer Salinität von mehr als 29 PSU, so zeigt sich das in Abbildung 75 dargestellte Verhalten. Ein scharfes, oberes Limit wird bei 35,5 PSU beobachtet. Datenpunkte mit großen Salinitäten liegen im Englischen Kanal, im westlichen Bereich der Kanalmündung und in Grenzgebieten zwischen dem nordwestlichen Teil der Nordsee und dem Atlantik. Bei diesen Stationen werden extreme Unterschiede in den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen beobachtet. Zum einen sind die im Westen des Kanals befindlichen Stationen von La Hague nur sehr wenig beeinflusst, während weiter östlich die höchsten Kontaminationen beobachtet werden.

Geringere Salinitäten im Meerwasser werden durch zufließendes Ostseewasser und durch ins Meer mündende Flüsse, die Süßwasser von Festland eintragen, verursacht (Abbildung 75 und Abbildung 76). Es sind zwei Ausläufer geringerer Salinität zu beobachten, die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen von etwa  $10^{-14}$  g/g bzw.  $5 - 6 \cdot 10^{-14}$  g/g aufweisen. Der Ausläufer der geringeren  $^{129}\text{I}$ -Konzentration umfasst die Stationen, die durch Ostseewasser geprägt sind, derjenige mit den größeren  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen ( $5 - 6 \cdot 10^{-14}$  g/g) verläuft entlang der belgischen, niederländischen und deutschen Küstenlinie. Der Eintrag von Süßwasser aus Flüssen, welches kleinste Mengen Iod beinhaltet, beeinflusst nicht signifikant das Isotopenverhältnis, aber es erfolgt eine Verdünnung der  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen sowie eine Herabsetzung der Salinität. Die Stationen innerhalb der zentralen Nordsee und um die Doggerbank haben eine Salinität von etwa 35 PSU, die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen liegen dort zwischen  $10^{-15}$  g/g und  $3 \cdot 10^{-16}$  g/g. Zwei Datenpunkte weisen eine Salinität von 31 PSU bzw. 32 PSU auf, die dazugehörigen  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen liegen bei mehr als  $10^{-13}$  g/g. Diese Werte stammen von den zwei Stationen aus nächster Nähe zu Sellafield.

## 7.2 Tc-99 in der Nordsee

Wesentliche Quelle für das  $^{99}\text{Tc}$  sind die Einleitungen aus der Anlage Sellafield ab dem Jahre 1994. Die höchsten Einleitungen fanden 1995 mit 190 TBq statt und nahmen dann ab. Dies war auch auf internationalen Druck hin erfolgt. Aber die Einleitungen lagen noch bis 1997 über 100 TBq und erst ab 2005 erreichten sie wieder Werte unter 10 TBq. Mit dem Reststrom aus der Irischen See stiegen dann ab 1997 die Konzentrationen in der Nordsee deutlich an. Die Aufnahme der gesamten Nordsee im Jahre 2005 konnte deshalb nur die inzwischen noch verbliebenen Reste der hohen Einleitungen feststellen.

Die Konzentrationsverteilung über die Nordsee zeigt deutlich, in welchen Gebieten eher der Einfluss der Anlage La Hague oder Sellafield zu finden ist. Im Eingangsbereich des Kanals liegen die Werte nahe dem erwarteten Hintergrundwert aufgrund des globalen Fallouts mit etwa  $0,05 \text{ Bq/m}^3$ , wobei eine Station (906) einen etwas höheren Wert aufweist, was ein Zeichen dafür sein könnte, dass auch hier aus Sellafield schwach kontaminiertes Wasser gefunden wurde. Entlang des kontinentalen Küstenstreifens unter dem Einfluss der Anlage La Hague liegen die Konzentrationen relativ niedrig, da nur geringe Ableitungen aus La Hague an  $^{99}\text{Tc}$  stattfinden. Abgesetzt davon finden sich die Reste der Sellafield Ableitungen mehr in der zentralen Nordsee. Die Vermischung der beiden unterschiedlich kontaminierten Wasserkörper findet westlich der jütländischen Küste bis in das Skagerrak statt. Dies wird auch an den Mischungskonzentrationen etwas über  $1 \text{ Bq/m}^3$  deutlich. Der Wert der Station 50 erscheint eher unwahrscheinlich; er dürfte eine Fehlmessung sein.

Die höchsten Werte wurden erwartungsgemäß in den vier Proben aus der Irischen See aus dem Jahre 2006 gemessen, wobei die höchsten Konzentrationen mit um  $37 \text{ Bq/m}^3$  in der Nähe der Anlage Sellafield ermittelt wurden. Südlich und nördlich lagen die Konzentrationen bei  $20 \text{ Bq/m}^3$  und im Abstrom findet man nur noch  $12 \text{ Bq/m}^3$ . Im Vergleich zu den einige Jahre zuvor gefundenen Werten von bis zu  $1000 \text{ Bq/m}^3$  sieht man deutlich, dass die geringeren Einträge aus Sellafield auch zu erheblich geringeren Konzentrationen geführt haben.

In Abschnitt 7.1 wird ein Teil der Diskussion auch in Hinblick auf das  $^{99}\text{Tc}$  geführt, so dass an dieser Stelle darauf verwiesen wird.

## 7.3 H-3, Sr-90 und Cs-137 in der Nordsee

Wie der Abbildung 37 zu entnehmen ist, wird Tritium sowohl aus den Wiederaufarbeitungsanlagen als auch aus Kernkraftwerken und anderen Einrichtungen freigesetzt. Die größten Tritium-Aktivitätskonzentrationen werden im Englischen Kanal und im weiterführenden Küstenbereich vor Belgien und Holland angetroffen (s. Abb. 35). Im Verlauf des Englischen Kanals kommen auch die in England und Frankreich stehenden Kernkraftwerke in Betracht. Mit Flamanville (2 Reaktorblöcke) in direkter Nähe zu La Hague, Paluel (4), Penly (2) und Gravelines (6) befinden sich auf französischer Seite insgesamt 14 im Betrieb stehende Reaktorblöcke direkt am Kanal. Aber auch auf englischer Seite befinden sich mit Winfrith, Dungeness, Bradwell und Sizewell vier Kernreaktoren, die für die Tritiumkontamination ihren Beitrag leisten. Darüber hinaus stehen weiter im Landesinneren, z. B. an der Maas und am Rhein weitere Kernreaktoren, die ihre Ableitungen in die Flüsse einleiten und damit auch zur Kontamination beitragen. Den größten Anteil der Tritiumemissionen trägt allerdings La Hague (11000 TBq im Jahr 2000 gegenüber wenigen 100 TBq aus den Kernkraftwerken) in den Kanal ein.

Die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentration liegt innerhalb des Englischen Kanals nur geringfügig über dem globalen Fallout, der mit etwa  $1 \text{ Bq/m}^3$  im Meerwasser angenommen werden kann (s. Abb. 36). Die größten Kontaminationen in der Nordsee werden bei den Stationen 39 – 41 und im Bereich der Elbmündung beobachtet. Die Kontamination im Bereich des Skagerraks



ist dem Reaktorunfall von Tschernobyl zuzuschreiben, während die in der Elbmündung vermutlich aus dem globalen Fallout stammt und vom Kontinent mit dem Oberflächenwasser in die Elbmündung eingetragen wird. Dieser Effekt ist bei den anderen Flüssen wahrscheinlich deshalb nicht zu sehen, weil nicht nah genug an den Mündungen beprobt wurde und eine schnelle Verdünnung eintritt. Bereits bei Station 3 werden nur noch  $1,9 \text{ Bq/m}^3$  gemessen. Im übrigen Beprobungsgebiet liegen die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationen um den Faktor 1,1 bis 2,2 über dem globalen Fallout. Bezüglich  $^{90}\text{Sr}$  tragen die Wiederaufarbeitungsanlagen in La Hague und Sellafield derzeit auch aufgrund der Reduktion der Emissionen in den letzten Jahren nur noch wenig zur Erhöhung der Kontamination in der Nordsee bei. In der Irischen See wurden im Jahre 2006 immerhin  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationen von  $13 - 43 \text{ Bq/m}^3$  angetroffen.

Die Resuspension kontaminierten Sediments aus der Irischen See ist inzwischen die Hauptquelle von  $^{137}\text{Cs}$  in der Nordsee (s. Abb. 37). Diese Kontamination erfolgte hauptsächlich in den 1970er Jahren. Der Einfluss aus der Ostsee infolge der hohen Kontamination durch den Tschernobyl Fallout ist im Skagerrak und an der norwegischen Küste durch leicht höhere Konzentrationen immer noch zu erkennen. Geringe  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen sind im Kanal zu beobachten, was auf die geringen Ableitungen dieses Nuklids aus der Anlage La Hague zurückzuführen ist. Naturgemäß werden die höchsten Konzentrationen zwischen  $19$  und  $123 \text{ Bq/m}^3$  an den vier Stationen in der Irischen See (2006) gemessen. Die Höhe der Konzentration an den vier Stationen verhält sich ähnlich derer wie beim  $^{99}\text{Tc}$ .

#### **7.4 Aktinide: Pu-238, Pu-239/240 und Am-241 in der Nordsee**

Das Verhalten des Plutoniums im Meerwasser ist komplex, aus diesem Grund sind die erhaltenen Messwerte mit Vorsicht zu genießen. Plutonium lagert sich leicht an Partikel und sedimentiert relativ schnell. Durch raue See können diese Partikel wieder aufgewirbelt werden. Plutonium verhält sich nicht konservativ im Meerwasser. Trotz dieser Einschränkungen lässt sich im Abstrom von La Hague eine erhöhte  $^{238}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentration beobachten. Auch innerhalb der zentralen Nordsee finden sich erhöhte  $^{238}\text{Pu}$ -Aktivitätskonzentrationen. Dort kann man annehmen, dass die Kontamination aus vorangegangenen Jahren großer Emissionen konserviert wurde. Zusätzlich muss man davon ausgehen, dass durch den Prozess der Resuspension kontaminierter feinkörniger Sedimentpartikel aus der Irischen See immer wieder Plutonium in die Nordsee eingetragen wird, wie dies inzwischen beim  $^{137}\text{Cs}$  nachgewiesen wurde (s. Abb. 38).

Auffällig sind die relativ großen  $^{238}\text{Pu}$ -Kontaminationen im Mündungsbereich der Elbe, die auch in den vergangenen Jahren im Rahmen von Zeitreihen beobachtet wurden. Die Quelle dieser Kontamination ist bis heute nicht bekannt. Die Isotopenverhältnisse weisen allerdings auf die nuklearen Wiederaufbereitungsanlagen hin und Transport kontaminierten Wassers und feinkörniger Sedimente über längere Zeiten.

Auch bei  $^{239,240}\text{Pu}$  ist in der Elbmündung ebenfalls eine deutliche Kontamination zu beobachten ( $23 \text{ mBq/m}^3$ ), die offensichtlich im Mündungsbereich durch Verdünnungseffekte abnimmt. Ebenso sind die Spuren der Emissionen aus La Hague im Kanal sichtbar. In der zentralen Nordsee werden immer wieder höhere Konzentrationen diverser Radionuklide aus Sellafield beobachtet, weil hier die Verweilzeit der Wassermassen infolge eines Wirbels höher ist. Frühere Kontaminationen werden quasi in diesem Gebiet länger gespeichert.

Aus der Ostsee wird lediglich Plutonium aus dem globalen Fallout eingetragen und spielt nur eine geringe Rolle für die Bilanz der Nordsee.

## 7.5 Tiefenprofile

Die untersuchten Tiefenprofile geben weitere Informationen über den Transport und die Verteilung des  $^{129}\text{I}$  aus La Hague auf seinem Weg in die Nordsee und den Nordostatlantik. Bei den Stationen 911, 25, 34 und 17 sind sowohl die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen als auch die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen ziemlich konstant, was auf eine gute Durchmischung der dortigen Wassersäulen hindeutet. Demzufolge sind auch die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse nahezu konstant. Die gleichen Beobachtungen wurden bei vier weiteren Tiefenprofilen gemacht, die im Mai 2005 in der Deutschen Bucht entnommen wurden. Eine Auswahl graphischer Darstellungen der Profile befindet sich im Anhang (s. Abbildung 110 und Abbildung 111). Profile aus der Deutschen Bucht zeigen eine sehr gute Durchmischung, daher wurde auf eine graphische Darstellung verzichtet.

Die Stationen 907 und 906 zeigen kompliziertere Befunde (s. Abb. 46). Bei Station 907 (VTG Quessant) sind die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen an der Oberfläche und in 100 m Tiefe anderthalbmal so groß, wie bei 50 m Tiefe. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen sind an der Oberfläche und bei 50 m mit etwa 30 ng/g relativ gering, während bei 100 m Tiefe 50 ng/g gemessen werden. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sind an der Wasseroberfläche höher ( $7,5 \cdot 10^{-9}$ ) als in der Tiefe ( $4 \cdot 10^{-9}$ ). Die Ergebnisse der Tiefenprofile sind den Tabellenwerken im Anhang zu entnehmen.

Station 906 (westlich von Quessant) zeigt die Komplexität der Strömungen am Einlass des Englischen Kanals. Hier sind die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen nahezu konstant, während die Isotopenverhältnisse und die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Vergleich zum Oberflächenwasser und der Probe von 50 m Tiefe um den Faktor vier bei einer Tiefe von 100 m zunehmen (s. Abbildung 77).

Station 911 (Cap Griz Nez, s. Anhang Tab. A2) weist innerhalb der Wassersäule eine gute Durchmischung auf. Eine gute Durchmischung wird auch bei Station 17 und in der Deutschen Bucht angetroffen.

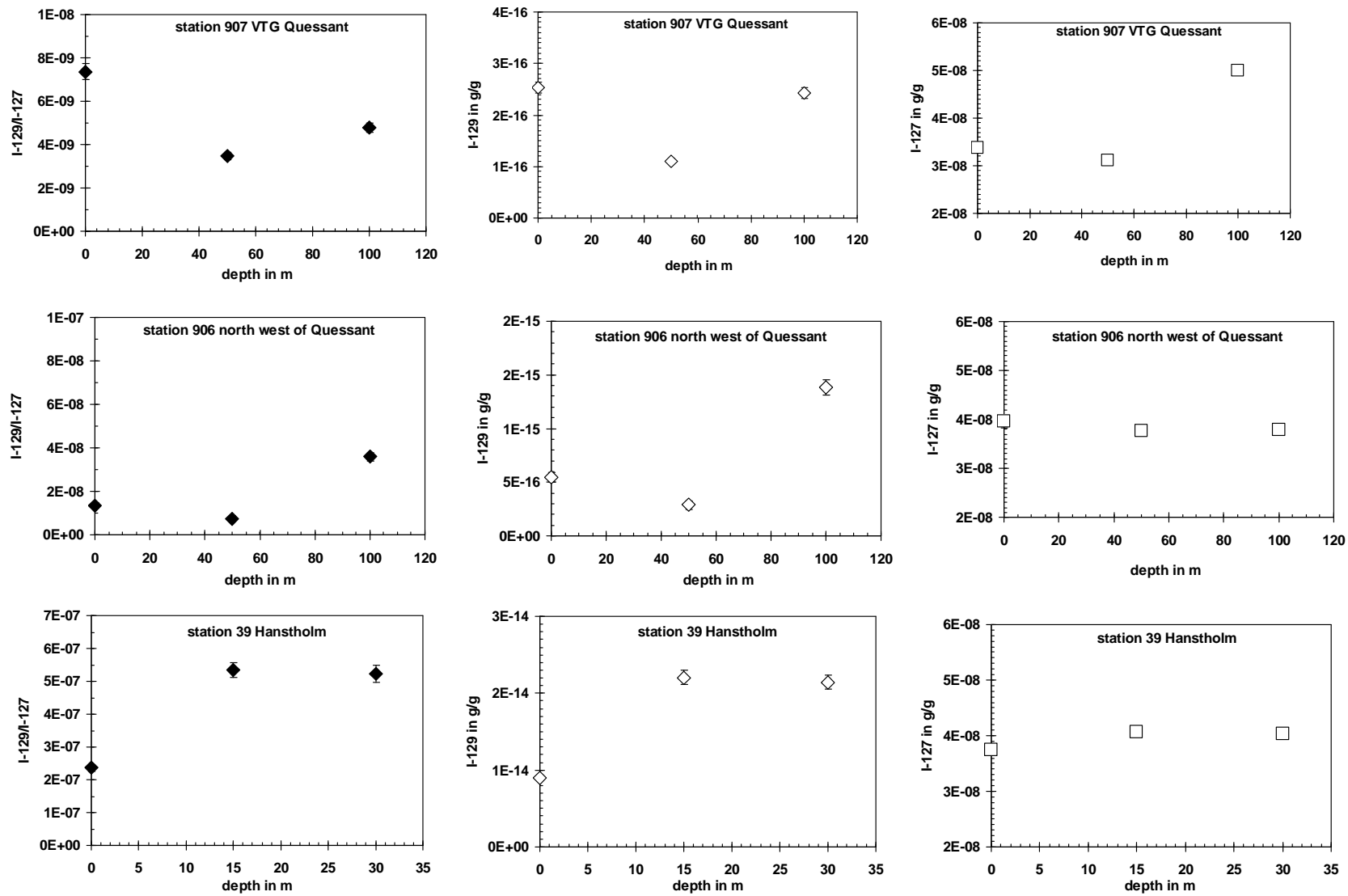


Abbildung 77:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse,  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Tiefenprofilen von Seewasserproben

Eine Besonderheit stellt die Station 39 (Hansthalm, nordwestlich von Dänemark) dar. Hier ist die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration an der Oberfläche etwas geringer als bei 15 m und 30 m Tiefe, aber die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration und damit folglich auch das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis sind an der Oberfläche um den Faktor drei kleiner als in der Tiefe. Dies beruht auf dem Einfluss des an der Oberfläche aus der Ostsee in die Nordsee fließenden Wassers. Das Nordseewasser besitzt im Vergleich zum Ostseewasser eine größere Salinität und Dichte. Es dringt in der Tiefe in die Ostsee ein, während das weniger kontaminierte Ostseewasser aufgrund der geringeren Dichte an der Oberfläche in die Nordsee fließt (s. Abbildung 77).

Weiter nördlich, bei Station 40 (Skagerrak, s. Abbildung 78), zeigt sich ein anderes Verhalten. Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentration ist im Oberflächenwasser geringfügig kleiner als in der Tiefe, aber die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration und das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis sind an der Oberfläche größer als in der Tiefe und zeigen damit ein gegensätzliches Verhalten zu dem, was bei Station 39 (Hansthalm) beobachtet wurde. Die Stationen 50 (Boknafjord) und 51 (Bergenbank, s. Anhang) zeigen gleiche Befunde wie Station 40. Alle drei Stationen (40, 50 und 51) unterliegen den Beimengungen von Ostseewasser, welches nicht die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration an der Oberfläche zu beeinflussen scheint. Betrachtet man die aus La Hague kommende Hauptströmungsrichtung, so ist im Oberflächenwasser von Station 910 bis 26 lediglich eine Abnahme um den Faktor drei der  $^{129}\text{I}$ -Aktivitätskonzentration zu beobachten.

Ein zwischen den Shetland- und Orkneyinseln entnommenes Tiefenprofil (Station 46, s. Abbildung 78), zeigt eine gute  $^{127}\text{I}$ -Durchmischung innerhalb der Wassersäule, aber die  $^{129}\text{I}$ -Konzentration an der Oberfläche ist drei- bis viermal größer als in der Tiefe. Hier macht sich der Eintrag des Oberflächenwassers aus der Irischen See, welches  $^{129}\text{I}$  aus Sellafield transportiert, bemerkbar.

Die Komplexität des Mündungsbereichs und der in Richtung Norden fließenden Strömung wird durch mehrere Faktoren verursacht. Die durch das Reaktorunglück in Tschernobyl eingetragenen Nuklide  $^{137}\text{Cs}$  und in geringerem Umfang  $^{90}\text{Sr}$  und dominieren die Kontamination der Ostsee und darüber hinaus ist mit den Einträgen aus La Hague und Sellafield zu rechnen. Aus der Ostsee stammendes Wasser trägt in den Bereich der Stationen 36-43 und 49-51 große  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen aus dem Ostseeraum ein. Quelle des  $^{137}\text{Cs}$  ist der Reaktorunfall von Tschernobyl. Im Oberflächenwasser der Ostsee beträgt die  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivitätskonzentrationen  $35 \text{ Bq/m}^3$ , im Tiefenwasser etwa  $18 \text{ Bq/m}^3$ .

Die dort angetroffenen erhöhten  $^{90}\text{Sr}$ -Konzentrationen könnten mit dem Eintrag des Ostseewassers erklärt werden. In der Ostsee sind höhere  $^{90}\text{Sr}$ -Konzentrationen zu beobachten als in der Nordsee, man kann von einer  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationen von etwa  $10 \text{ Bq/m}^3$  ausgehen (BMU, 2006). Ein Teil Aktivität wird von Festland über die Flüsse eingetragen.

Technetium-99 ist im Mündungsbereich des Skagerraks in leicht erhöhten Konzentrationen anzutreffen. Quelle des Technetium-99 ist wahrscheinlich Sellafield. Vermutlich sind dort Reste der starken Emissionen aus den 1990 er Jahren zu finden.

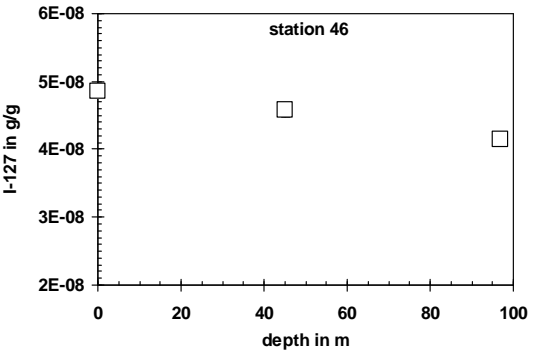
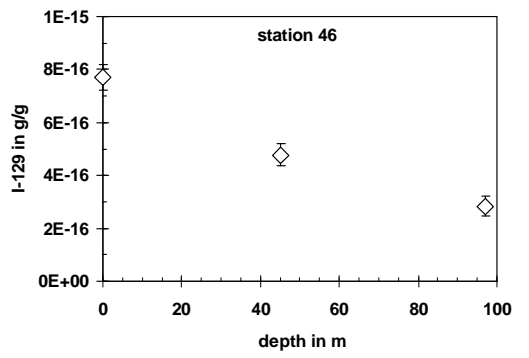
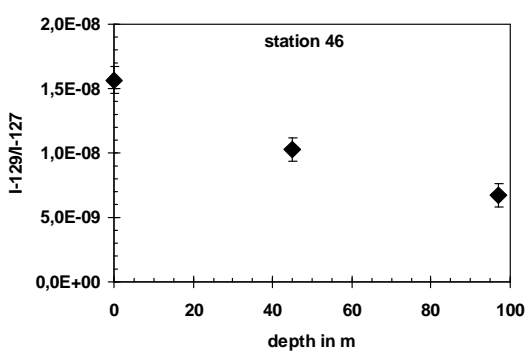
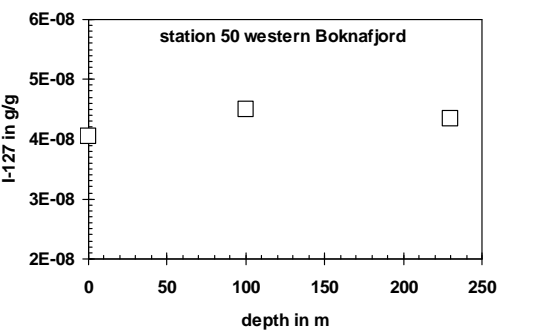
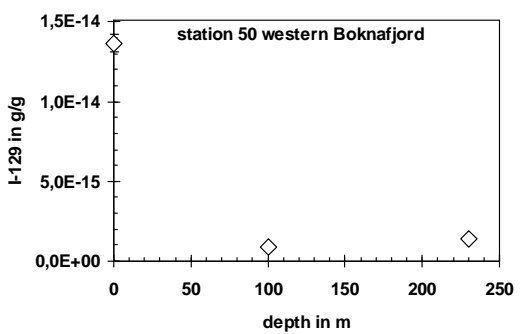
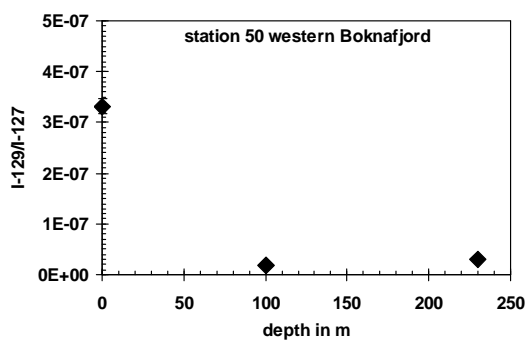
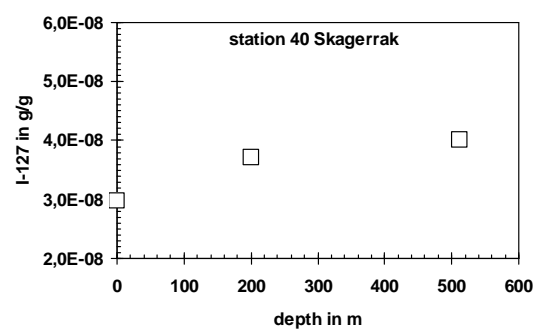
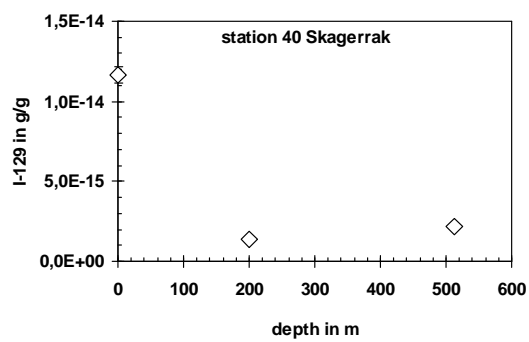
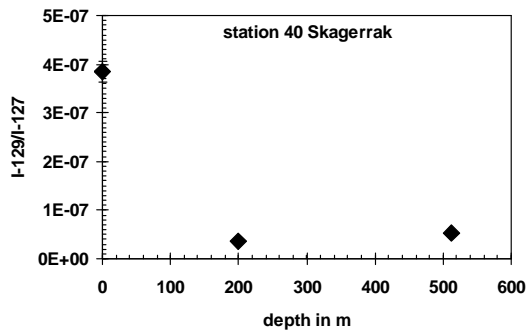


Abbildung 78:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse,  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Tiefenprofilen von Seewasserproben (Gauß 446a)

## 7.6 Aktivitätsverhältnisse in der Nordsee

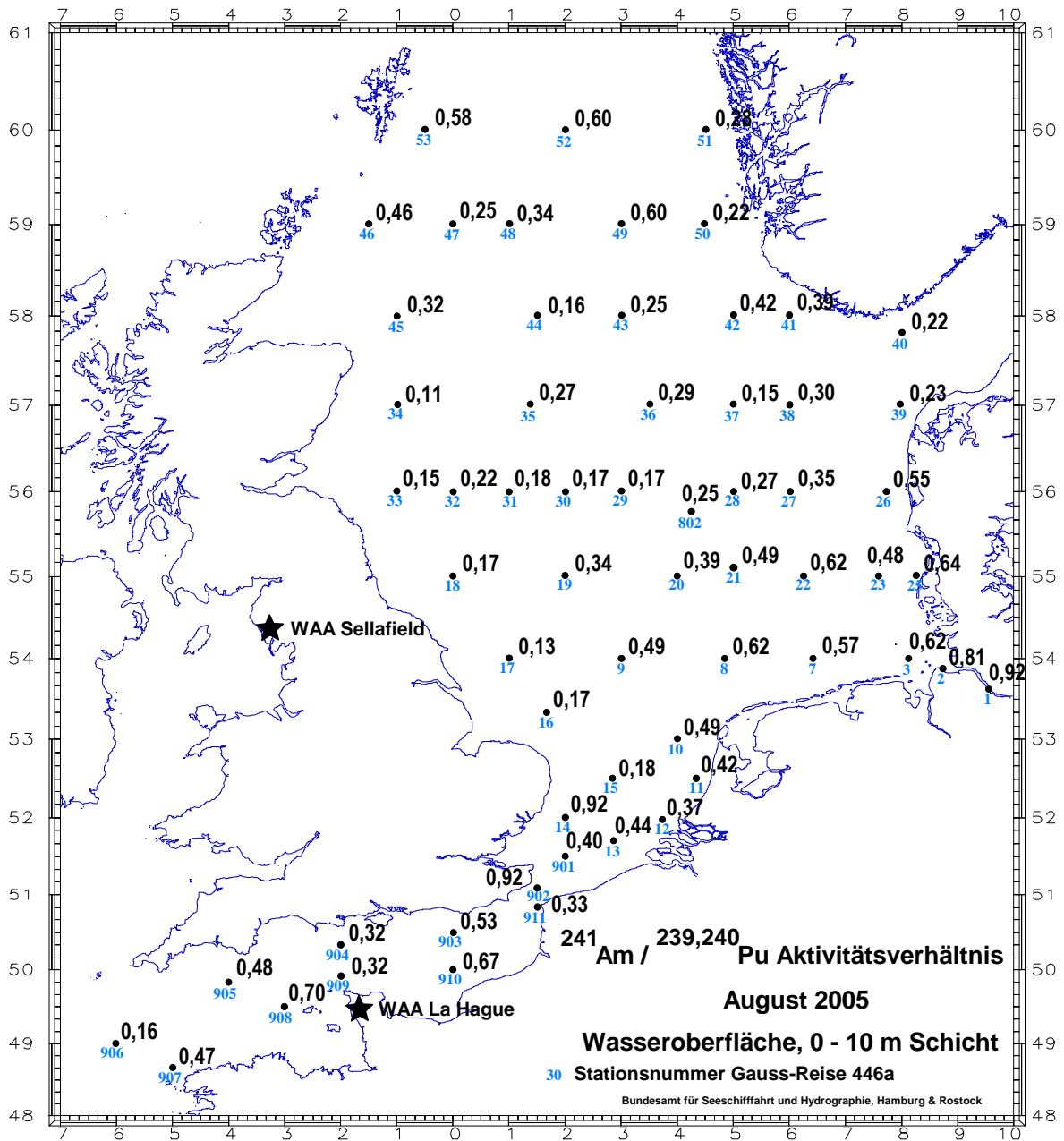


Abbildung 79: Aktivitätsverhältnisse des Americium-241 zu Plutonium-239 und Plutonium-240 in der Nordsee (Augustreise 2005).

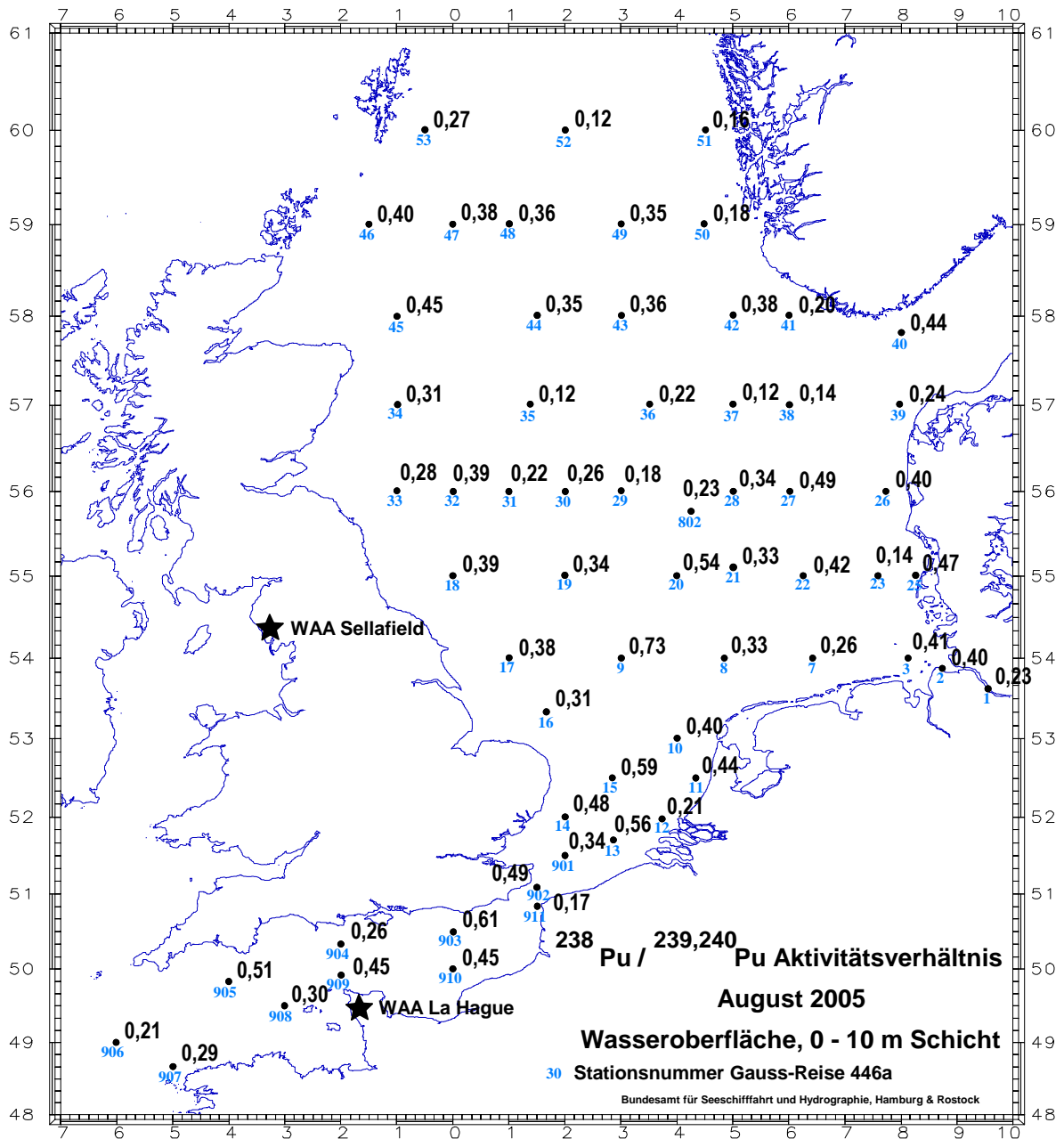


Abbildung 80: Aktivitätsverhältnisse des Plutonium-238 zu Plutonium-239 und Plutonium-240 in der Nordsee (Augustreise 2005).

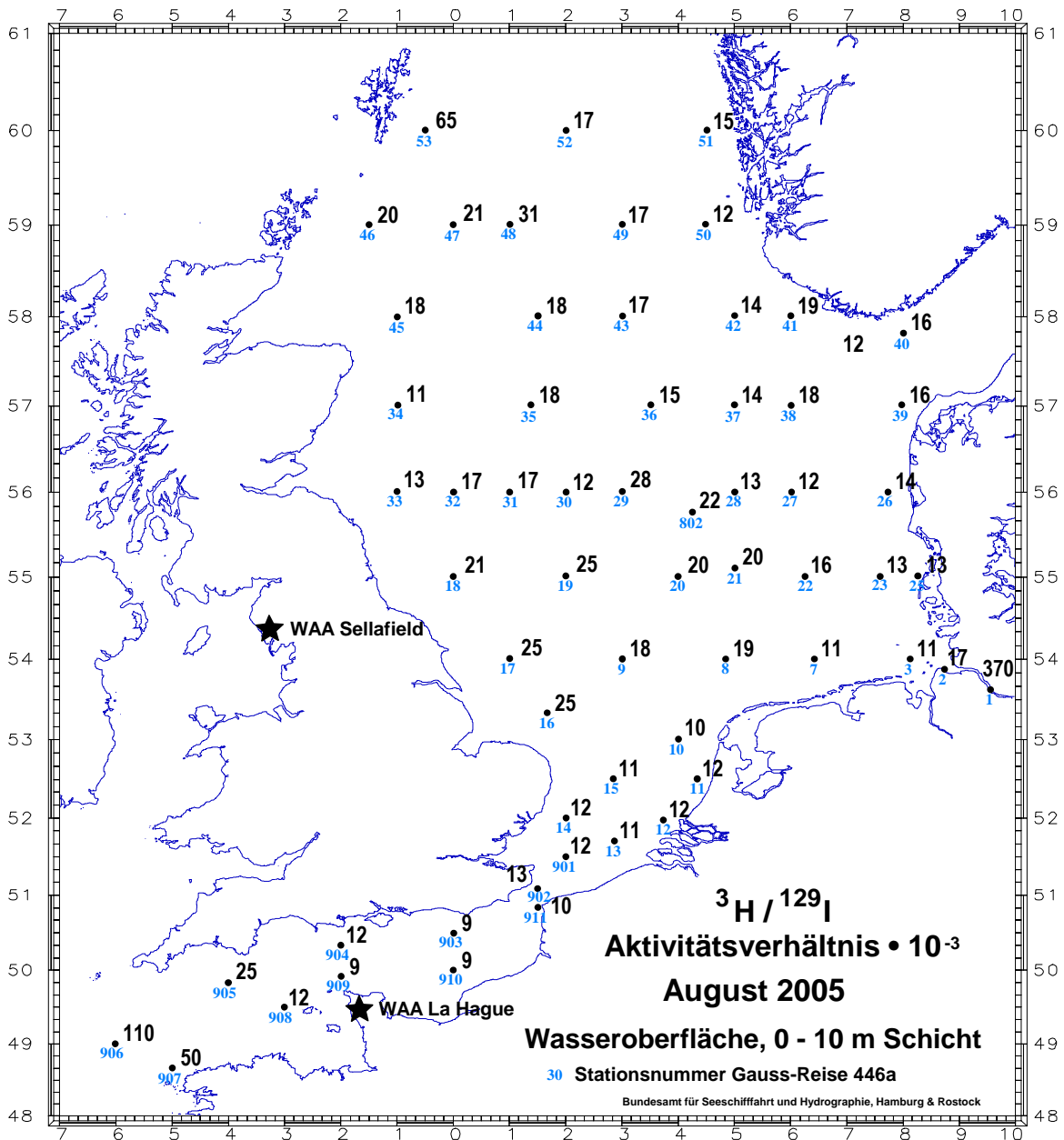


Abbildung 81: Aktivitätsverhältnisse des Tritiums ( $^3\text{H}$ ) zu Iod-129 ( $\cdot 10^{-3}$ ) in der Nordsee (Augustreise 2005).



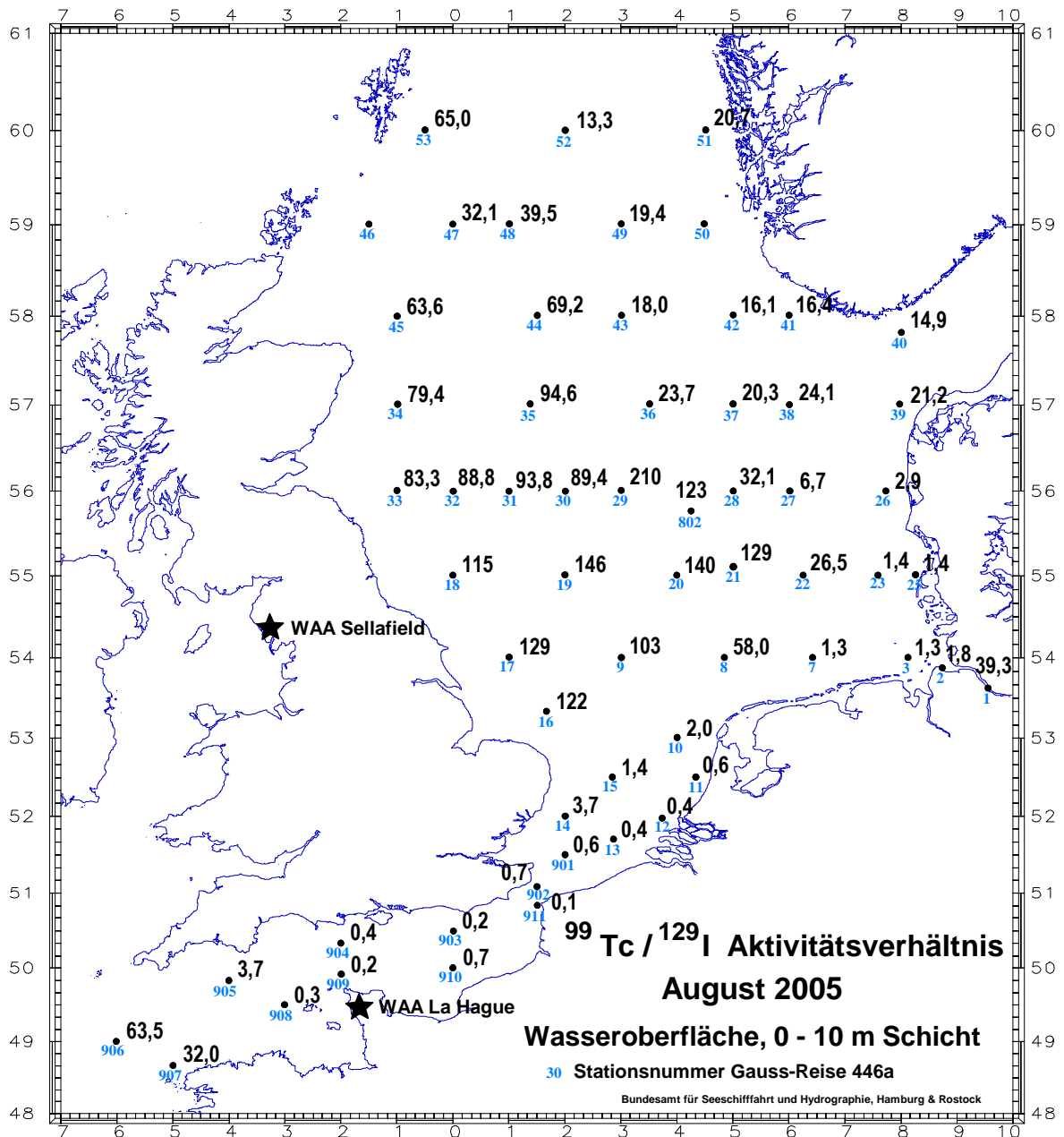


Abbildung 82: Aktivitätsverhältnisse des Technetium-99 zu Iod-129 in der Nordsee (Augustreise 2005).

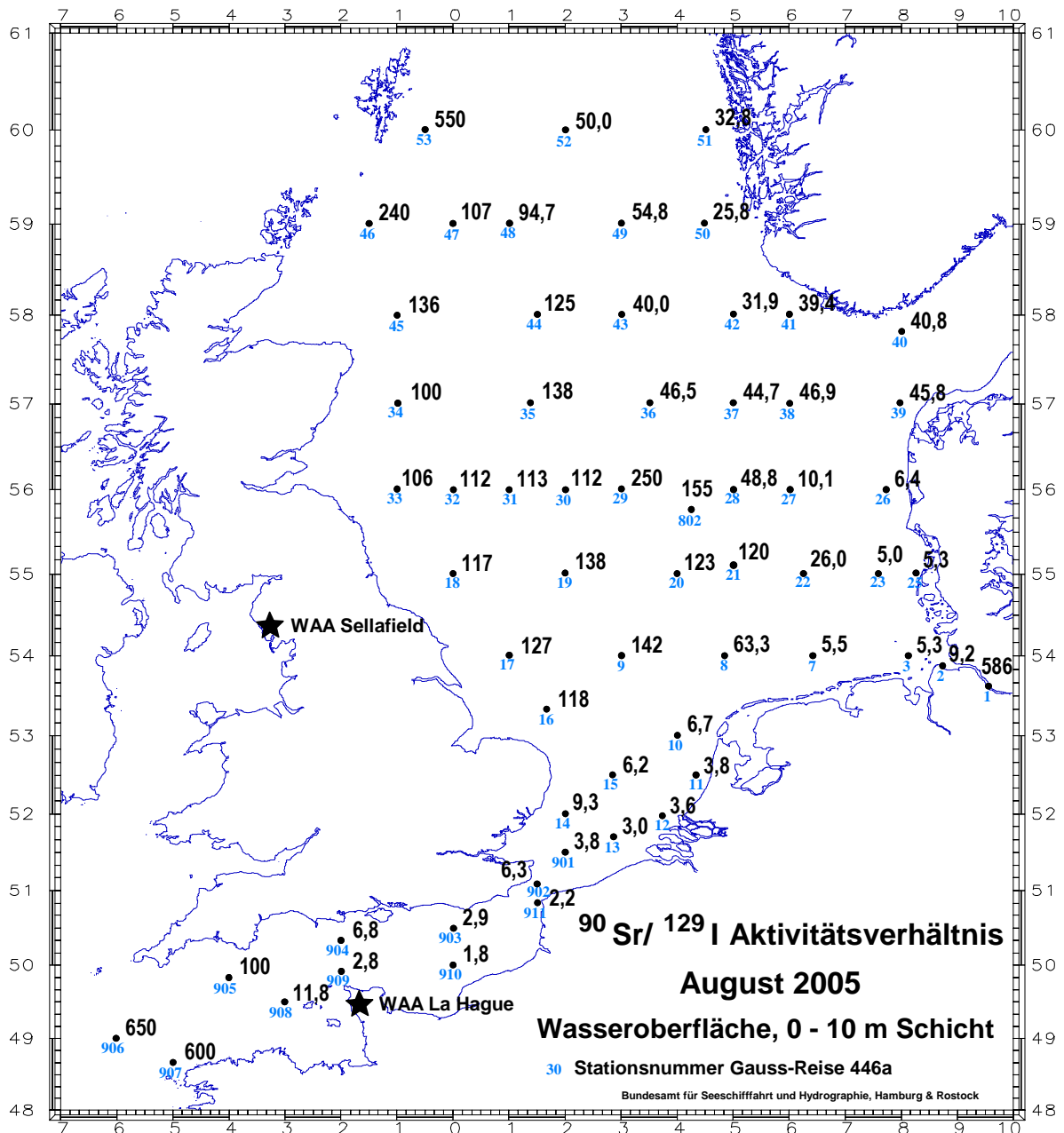


Abbildung 83: Aktivitätsverhältnisse des Strontium-90 zu Iod-129 in der Nordsee (Augustreise 2005).

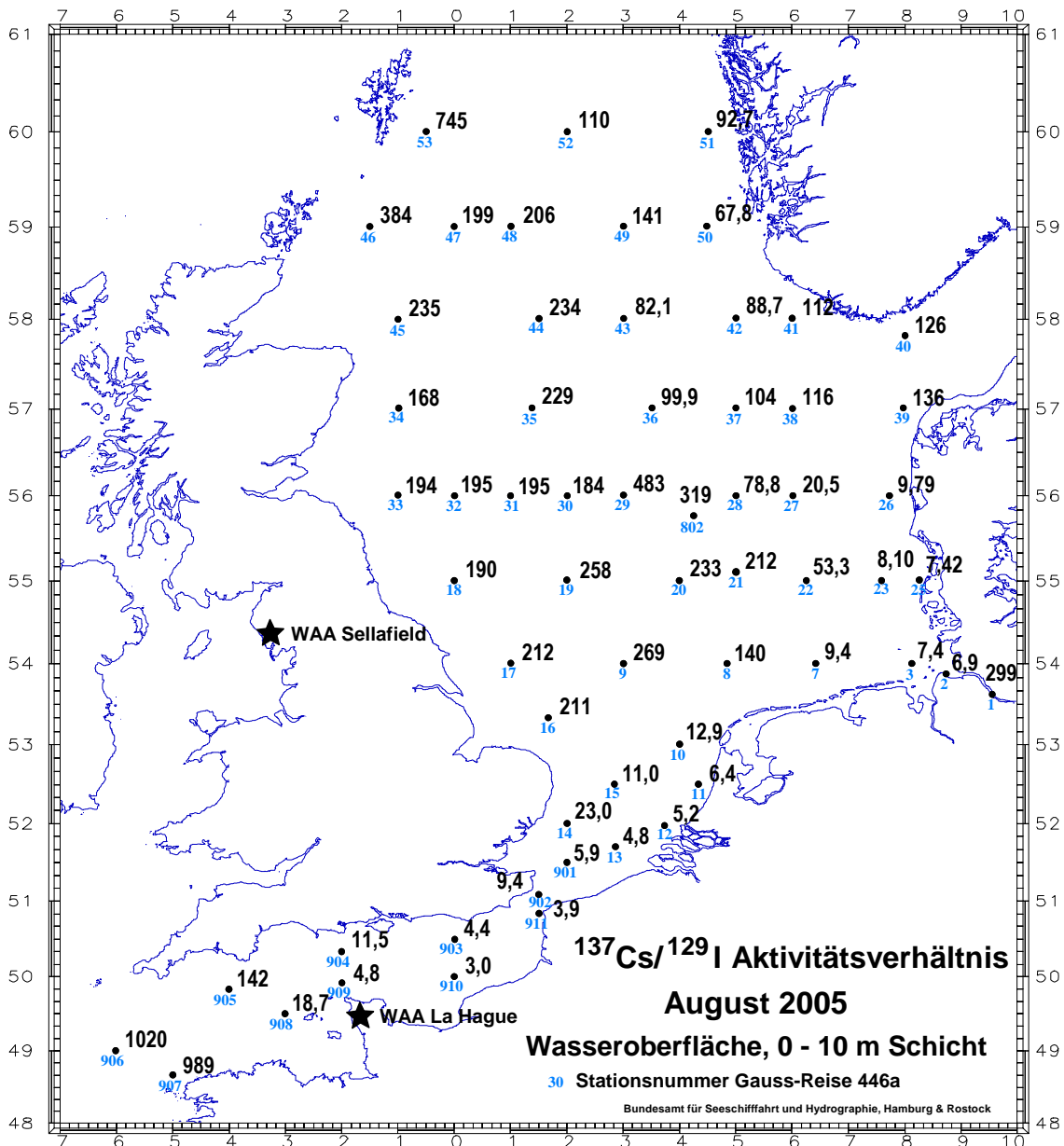


Abbildung 84: Aktivitätsverhältnisse des Caesium-137 zu Iod-129 in der Nordsee (Augustreise 2005).

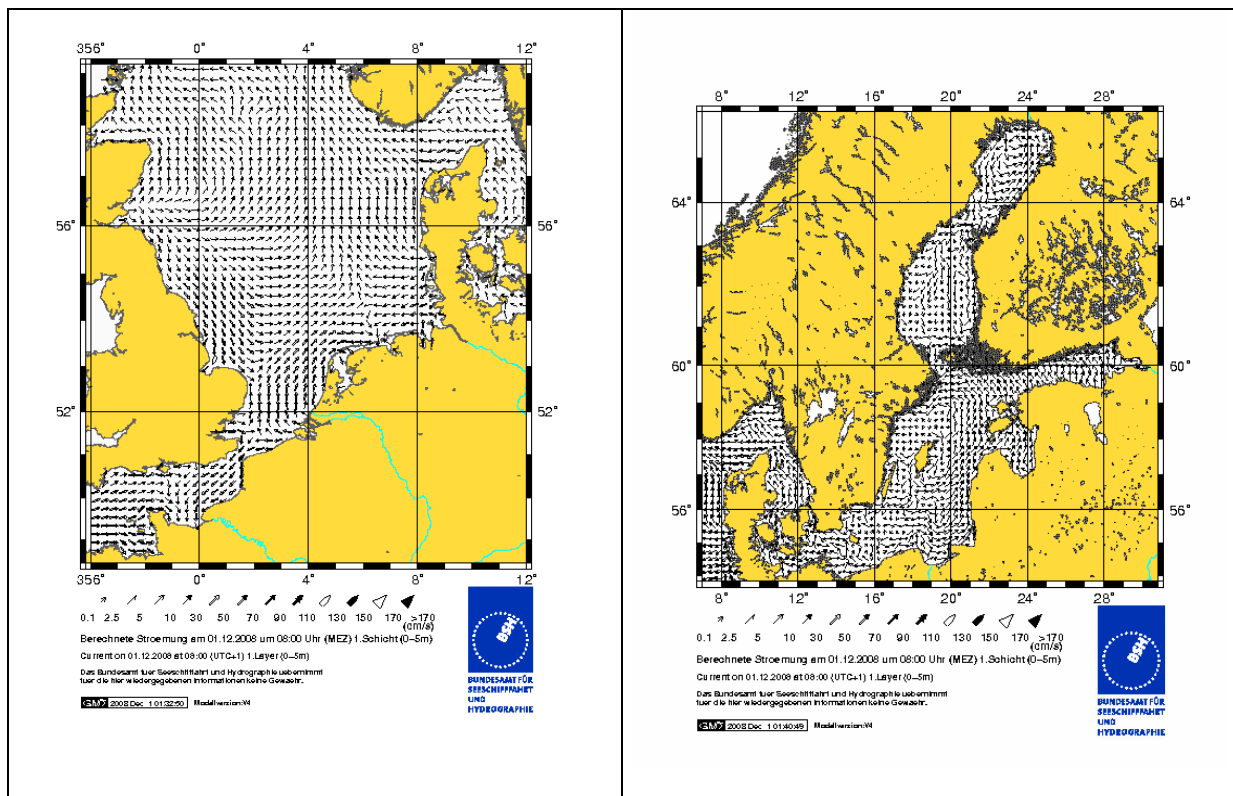
## 7.7 Transportprozesse

### 7.7.1 Modellierung

Das BSH betreibt seit vielen Jahren ein operationelles Modellsystem für aktuelle, zeitkritische Vorhersagen im Bereich der Nord- und Ostsee. Basierend auf den neuesten meteorologischen Vorhersagen werden jede Nacht Strömungen, Wasserstände, Wassertemperatur, Salzgehalt und Eisbedeckung für Nord- und Ostsee auf interaktiv gekoppelten Gitternetzen berechnet. Diese Ergebnisse sind die Basis für Ausbreitungsmodelle, die bei Unfällen auf See oder aktuellen Meeresverschmutzungen Drift- und Ausbreitungsprognosen liefern. Nähere Informationen zum Modellsystem können im Internet auf der Seite des BSH<sup>6</sup> erhalten werden.

In der Deutschen Bucht und der westlichen Ostsee beträgt der Gitterabstand etwa 1,8 km, im übrigen Teil der Nord- und Ostsee etwa 10 km. Auch das Trockenfallen und Überfluten der Wattflächen wird mit dem Modell simuliert. So können Prozesse in den mannigfaltig gegliederten deutschen Küstengewässern (Wattflächen, Sände, Priele und Inselketten) und der Wasseraustausch mit der offenen See realitätsnah wiedergegeben werden.

Das Zirkulationsmodell ist dreidimensional und berücksichtigt die vom Deutschen Wetterdienst (DWD) prognostizierten meteorologischen Verhältnisse über der Nord- und Ostsee, die vom Atlantik einlaufenden Gezeiten und Fernwellen sowie Oberwassereinträge über die größeren Flüsse. Die vom operationellen Zirkulationsmodell berechneten Vorhersagen für das Meer reichen 72 Stunden in die Zukunft.



**Abbildung 85: Berechnete Strömungsvorhersagen für Nord- und Ostsee am 1. Dezember 2008.**

Die zum Antrieb des BSH-Modells benötigten meteorologischen Vorhersagedaten werden mit einem Atmosphärenmodell vom DWD in Offenbach berechnet und täglich zum BSH übertragen. Neben Wind- und Luftdruckprognosen verwendet das BSH-Modell zur Berech-

<sup>6</sup> <http://www.bsh.de/de/Meeresdaten/Vorhersagen/Vorhersagemodelle/index.jsp>

nung der Wärmeflüsse zwischen Luft und Wasser die Lufttemperatur, Bewölkung und spezifische Feuchte über dem Meer. Die Gezeitenrandwerte werden an den offenen Modellrändern der Nordsee aus den harmonischen Konstanten von 14 Partialtiden bestimmt. In die Nordsee einlaufende Fernwellen ('external surges') werden mit einem Modell des nordöstlichen Atlantik berechnet. Dieses zweidimensionale Modell hat einen Gitterabstand von etwa 40 km und wird ebenfalls mit den meteorologischen Daten des DWD angetrieben.

Das Zirkulationsmodell des BSH berücksichtigt auch dichtebedingte Strömungen, die durch die aktuelle Temperatur- und Salzgehaltsverteilung bestimmt werden. Vor allem in der Ostsee sind dichtebedingte Strömungen von großer Bedeutung. Für eine realistische Beschreibung der Dichteverhältnisse wurde im BSH ein Transportalgorithmus entwickelt, der starke Salzgehalts- und Temperaturunterschiede (Fronten) zulässt. Da die Hydrodynamik auch durch die Eisverhältnisse in Nord- und Ostsee beeinflusst wird, ist dem Zirkulationsmodell zusätzlich ein Eismodell angeschlossen, mit dem das Entstehen, Schmelzen und die Drift von Meereis berechnet werden kann.

Im BSH stehen zwei Typen von Drift- und Ausbreitungsmodellen für unterschiedliche Anwendungen zur Verfügung – ein Lagrange'sches und ein Euler'sches Verfahren. Beide Ausbreitungsmodelle basieren auf den Strömungsvorhersagen des Operationellen Zirkulationsmodells.

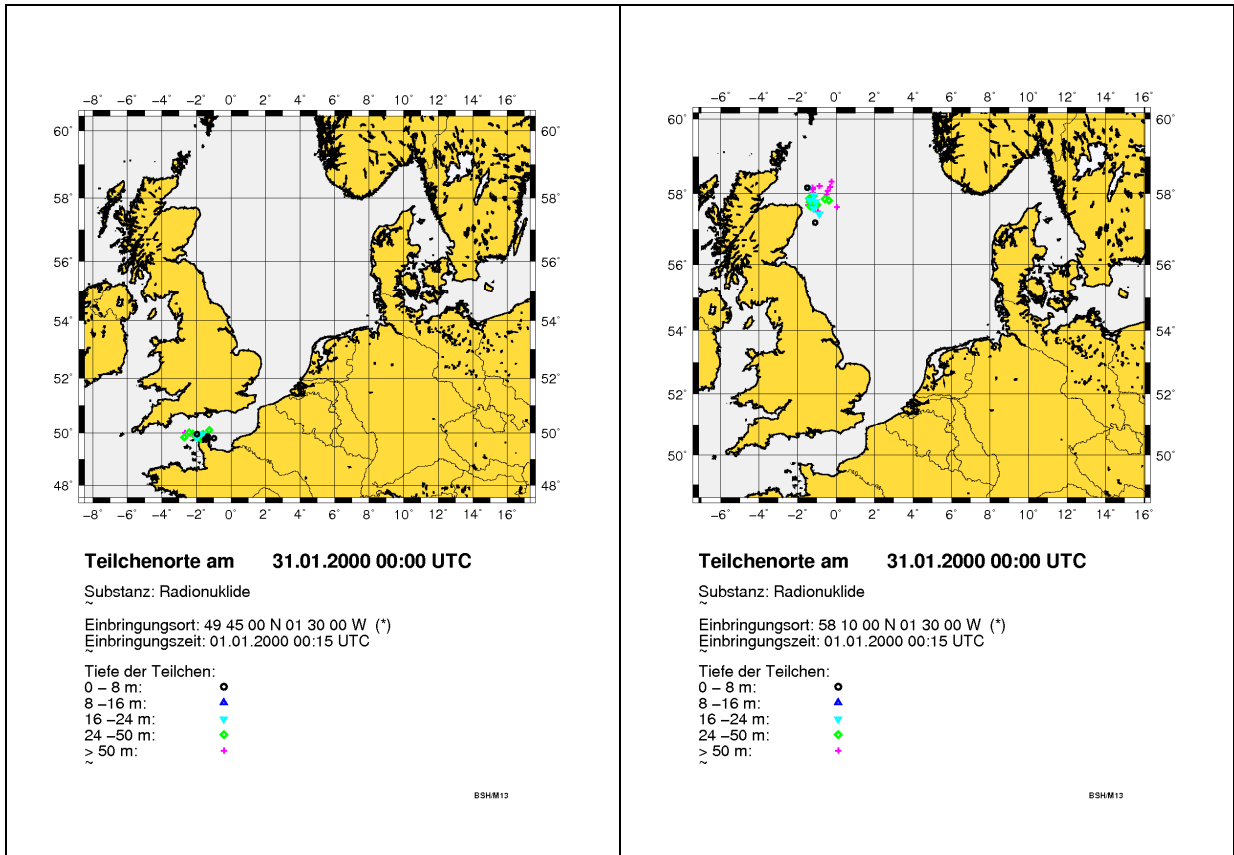
Für die Simulation der Drift und Ausbreitung von Stoffen wird die untersuchte Substanz beim Lagrange'schen Verfahren durch eine Teilchenwolke dargestellt. Die Teilchen werden unter dem Einfluss der Strömung verdriftet. Schwimmende Substanzen werden zusätzlich mit einem bestimmten Prozentsatz der Windgeschwindigkeit transportiert. Bei der Simulation einer Ölausbreitung wird außerdem das physikalische Verhalten unterschiedlicher Ölsorten auf der Wasseroberfläche und in der Wassersäule berücksichtigt.

Das Langrange'sche Modell wird vorwiegend in Seenotfällen und zur Unterstützung der Küstenwache bei aktuellen Meeresverschmutzungen eingesetzt. Mit dem Modell können Driftprognosen für schwimmende Personen und Gegenstände (Boote, über Bord gegangene Ladung etc.) sowie Ausbreitungs- und Driftberechnungen für Öl und wasserlösliche Chemikalien durchgeführt werden. Außerdem wird das Modell häufig verwendet, um das Herkunftsgebiet eines Stoffes zu bestimmen. Es ist somit ein wichtiges Hilfsmittel für die Ermittlung des Verursachers einer Verschmutzung.

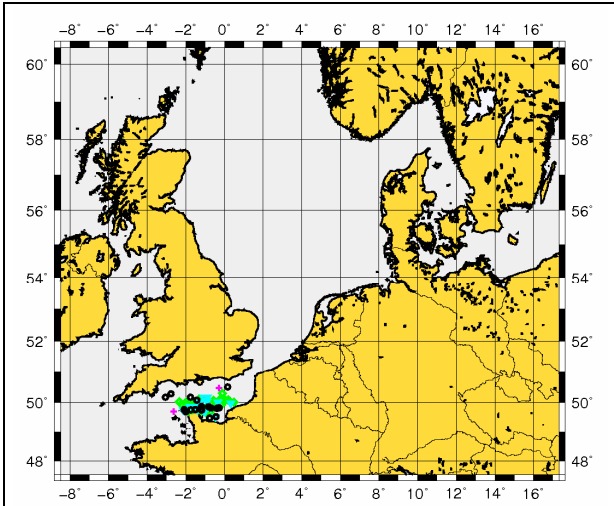
Das Euler'sche Ausbreitungsmodell simuliert die zeitliche Entwicklung von Konzentrationsverteilungen. Der im Modell verwendete Transportalgorithmus ermöglicht die Darstellung starker Konzentrationsunterschiede (Fronten).

Untersuchungen zur Ausbreitung wasserlöslicher Substanzen und zur Wasserqualität der Nord- und Ostsee werden deshalb überwiegend mit dem Euler'schen Ausbreitungsmodell durchgeführt. Das Modell kann beispielsweise Antwort auf die Frage liefern, wie sich schädliche Stoffe, die durch die Flüsse ins Meer gelangen, ausbreiten und verteilen.

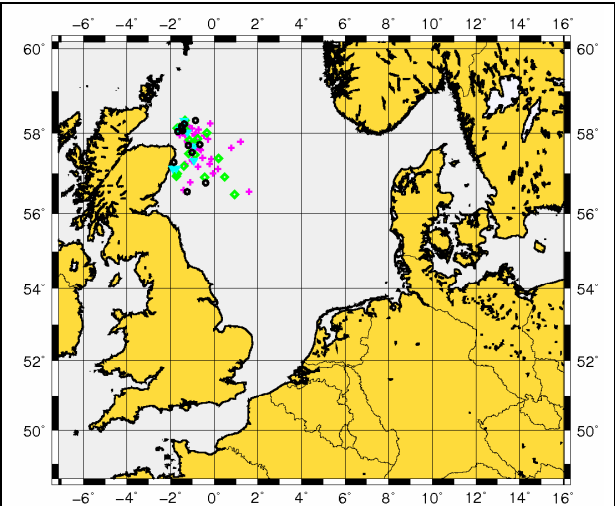
Im Rahmen des Projektes wurden zwei Szenarien der Ausbreitung radioaktiver Stoffe in der Nordsee mithilfe des Lagrange'schen Verfahrens gerechnet. Hierzu wurde im Kanal in der Nähe der Anlage La Hague ein Teilchen pro Tag ab dem 1. Januar 2000 bis zum 31. Dezember 2003 eingebracht und die Ausbreitung der Teilchen bis zum 31. Dezember 2005 in der Nordsee berechnet. In einer zweiten Rechnung wurden während des gleichen Zeitraumes die Teilchen nordöstlich Schottland bei der Position 58°10'N 001°30'W eingebracht. Es musste diese Position gewählt werden, da die Irische See nicht im Modellgebiet des BSH enthalten ist. Bei einer Position zu nahe an den offenen Rändern des Modells z.B. im Pentland Firth hätte die Gefahr bestanden, dass Teilchen aus dem Modellgebiet verdriften und damit aus der Simulation verschwinden. Die genannte Position wurde gewählt, da sie charakteristisch für den Einstrom in die Nordsee für Wasser aus der Irischen See ist. Die errechneten Simulationen zeigen, dass die Verteilung der Teilchen im Prinzip die tatsächliche Drift wiedergibt, wenn sie auch nicht im Detail genau die Natur beschreibt. Die Teilchen wurden als ideal konservativ angenommen, d.h. sie gehen keine Wechselwirkung mit Schwebstoffen oder dem Sediment ein und verhalten sich wie Wasser.



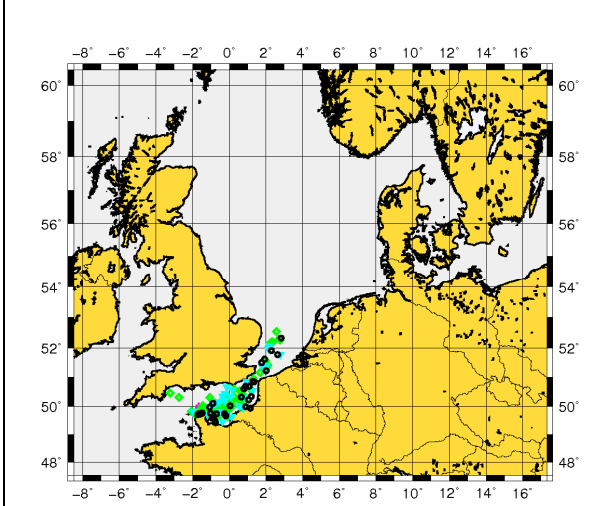
**Abbildung 86: Simulation der Verdriftung der eingebrachten Teilchen im Kanal (links) und nordöstlich Schottland (rechts) am 31. Januar 2000. Beginn des Einbringens der Teilchen ab 1. Januar 2000 bis zum 31. Dezember 2003 mit täglich jeweils einem Teilchen.**



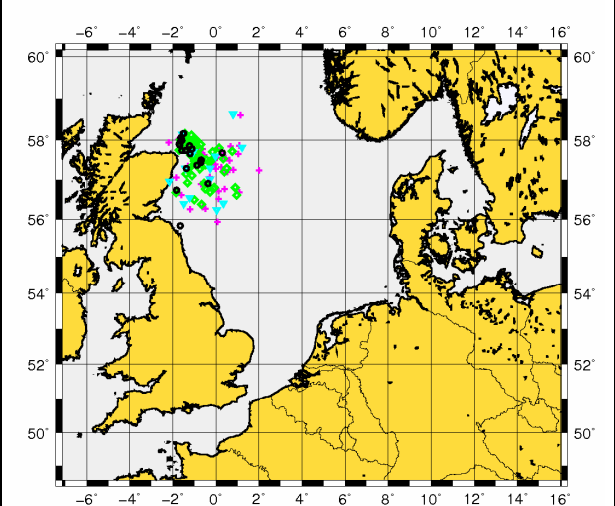
Teilchenorte am 31.03.2000 00:00 UTC



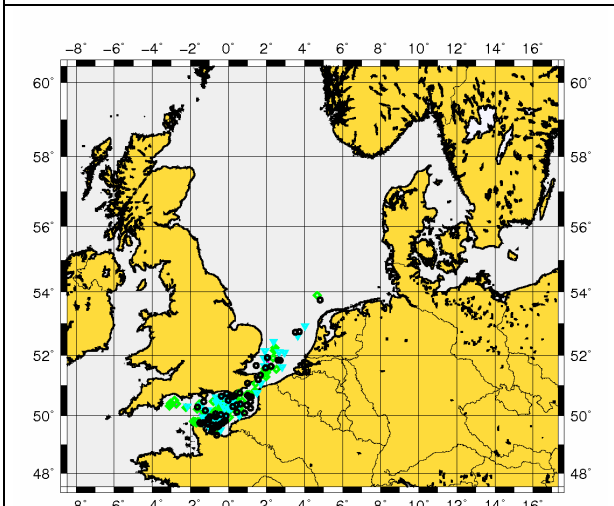
Teilchenorte am 31.03.2000 00:00 UTC



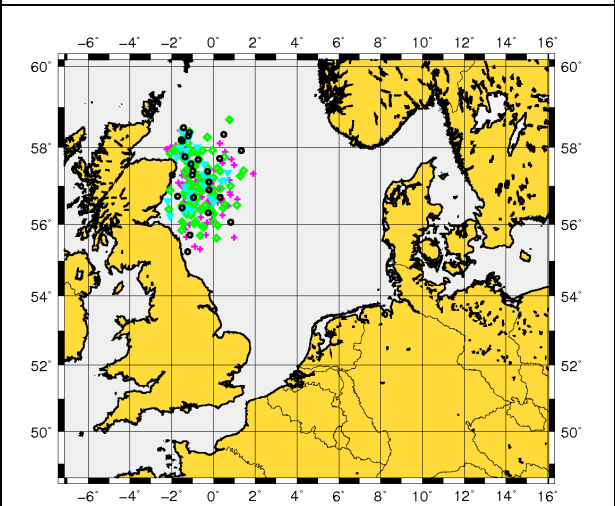
Teilchenorte am 29.06.2000 00:00 UTC



Teilchenorte am 29.06.2000 00:00 UTC

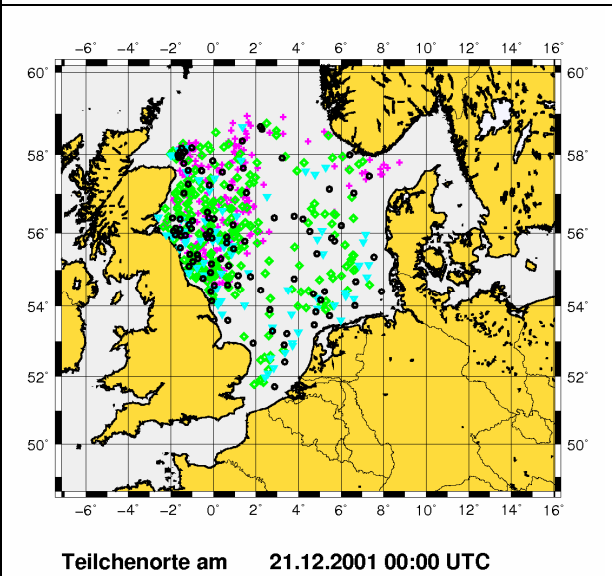
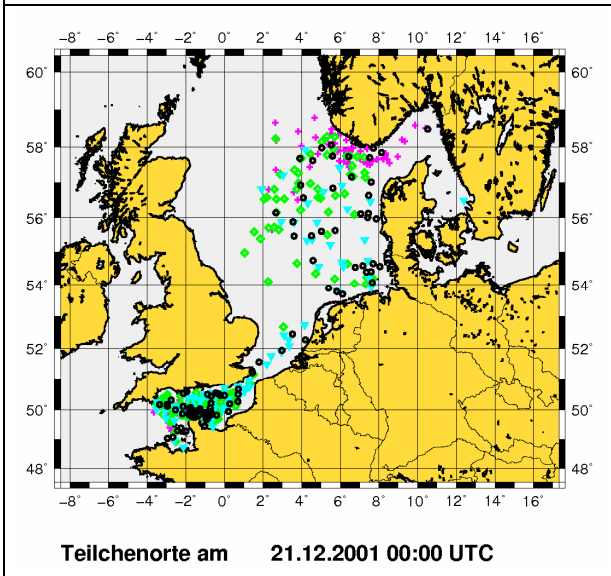
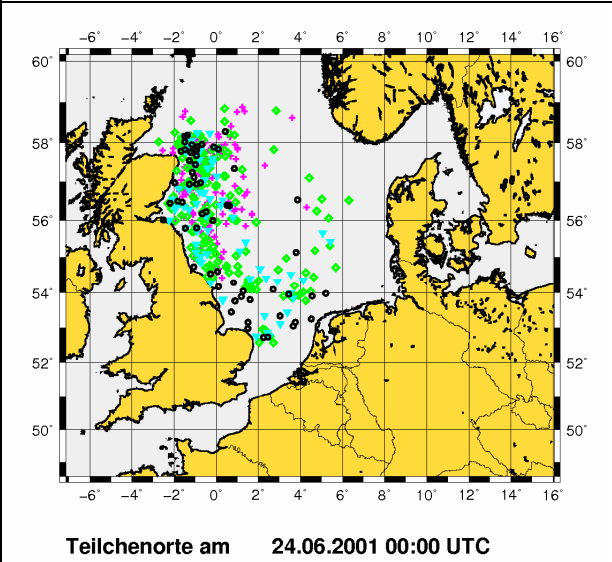
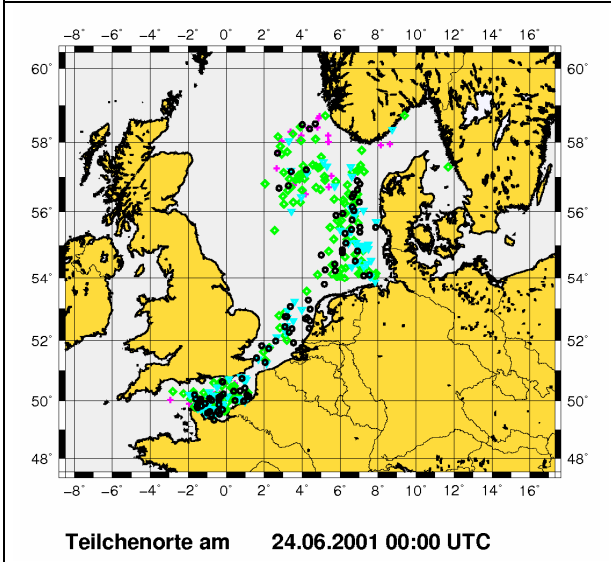
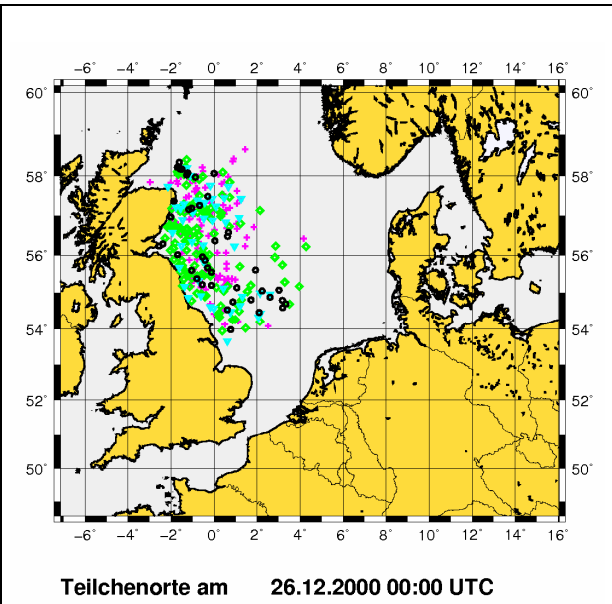
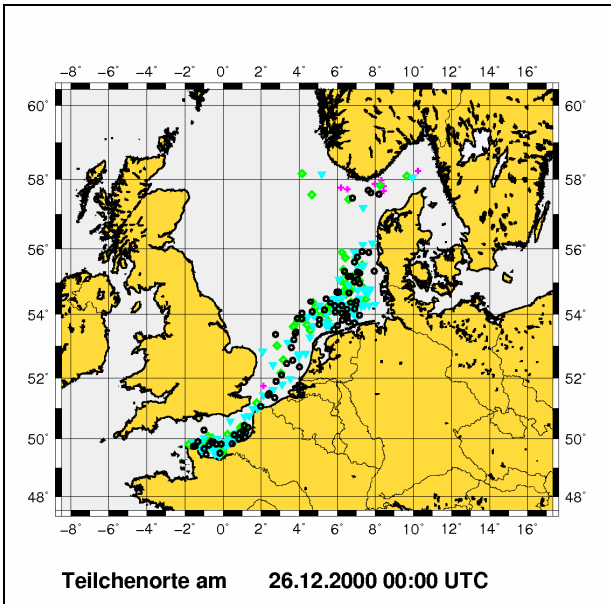


Teilchenorte am 27.09.2000 00:00 UTC

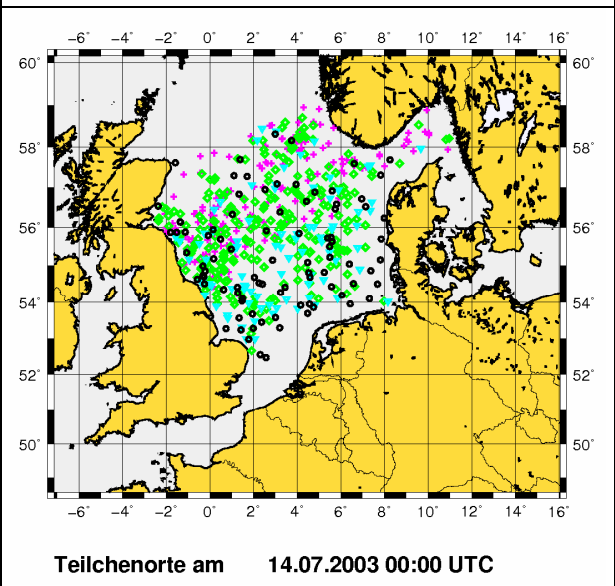
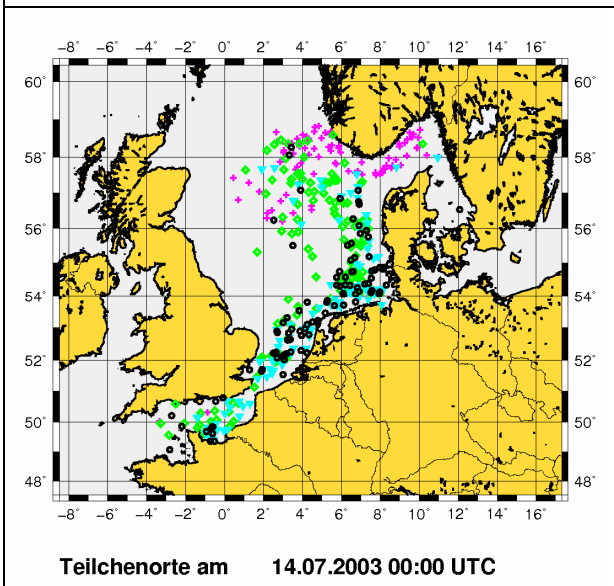
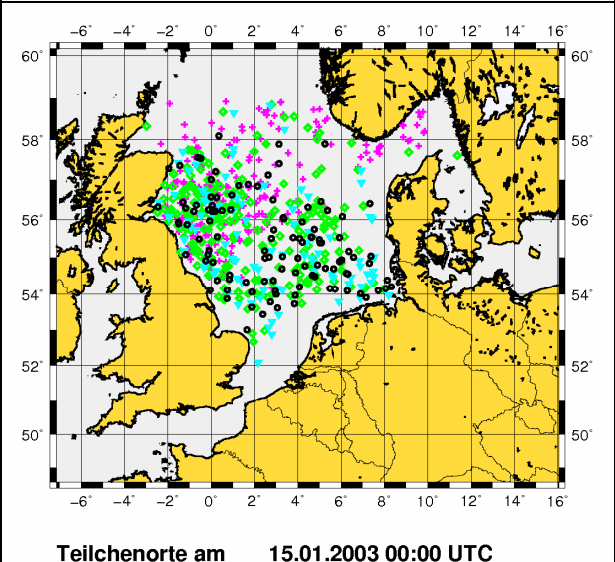
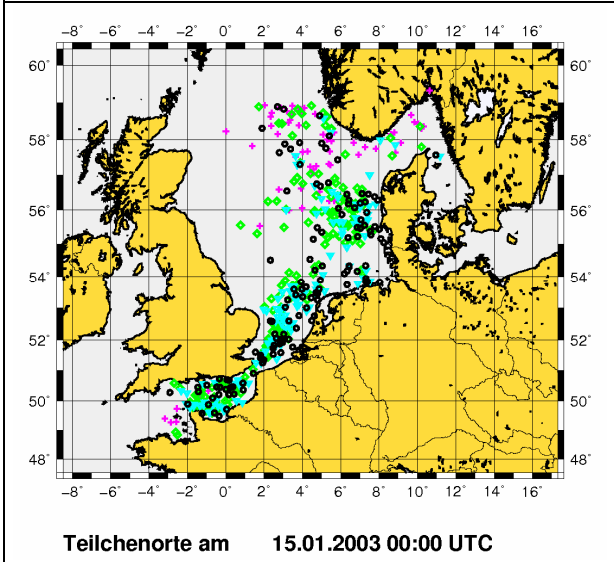
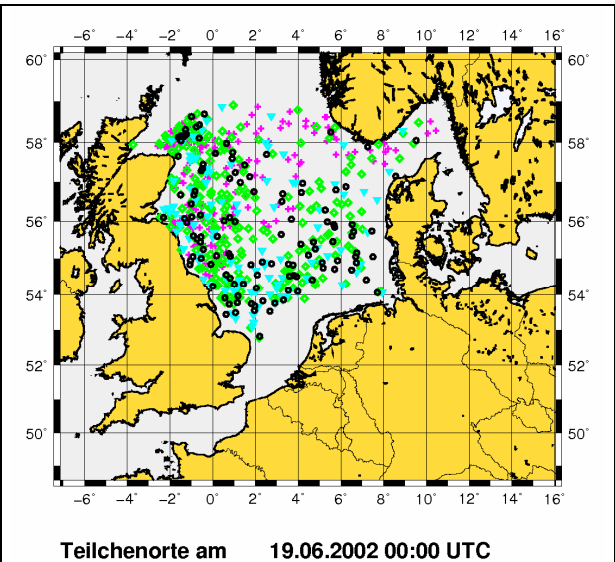
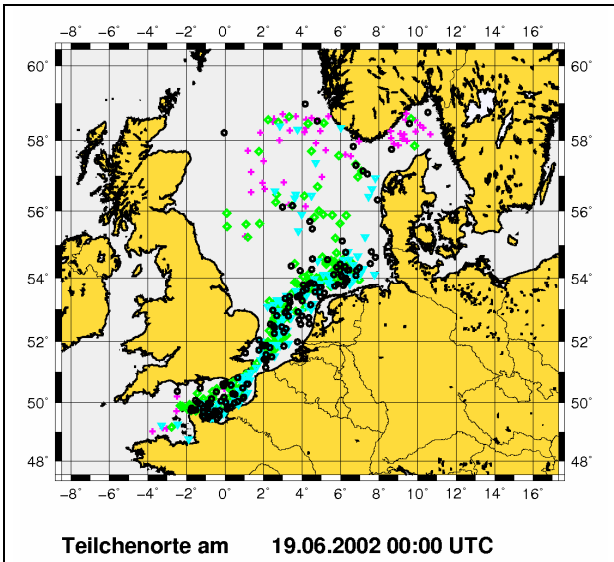


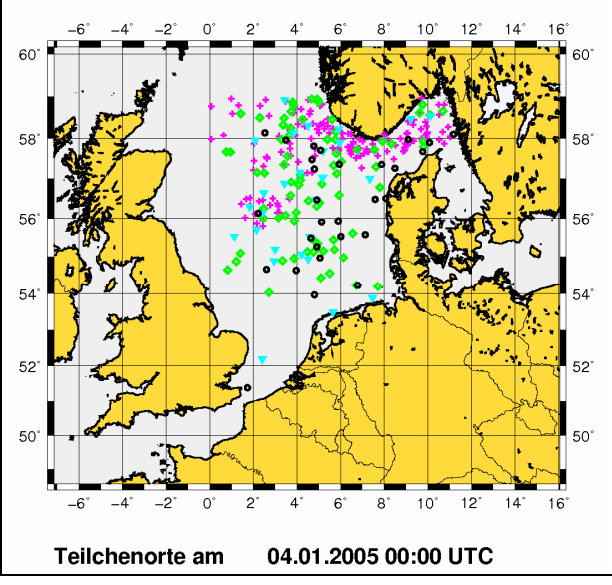
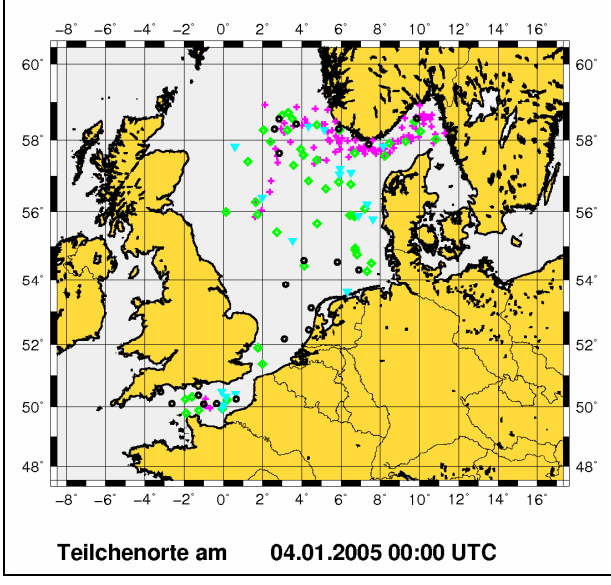
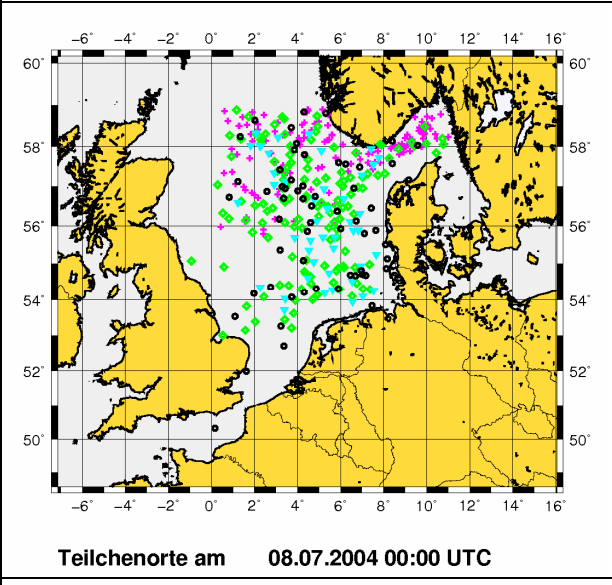
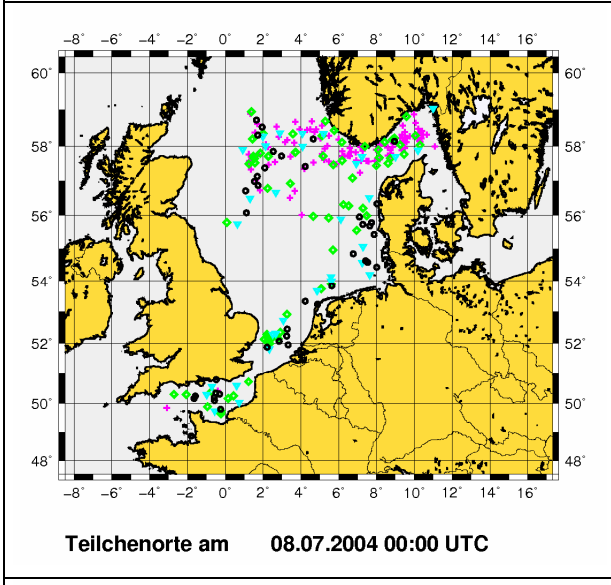
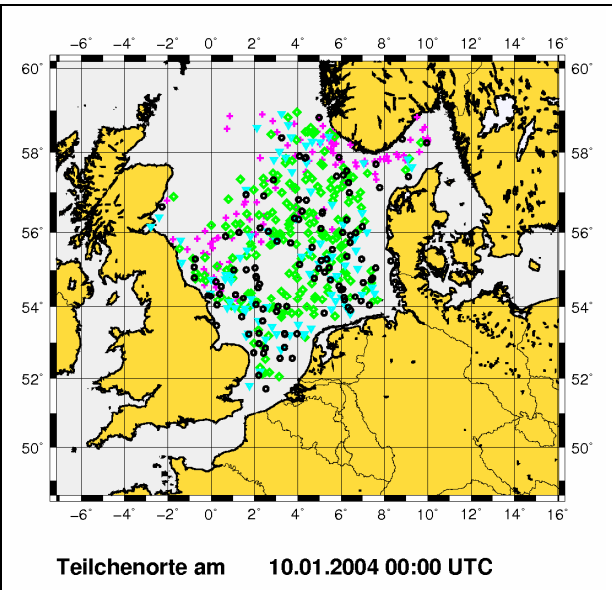
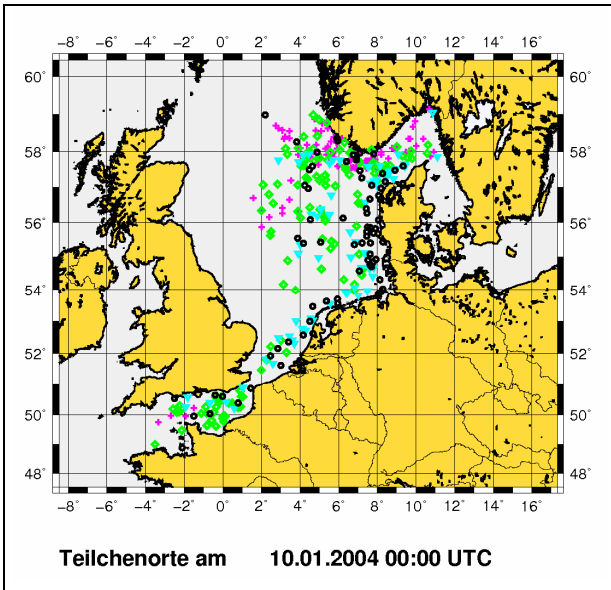
Teilchenorte am 27.09.2000 00:00 UTC

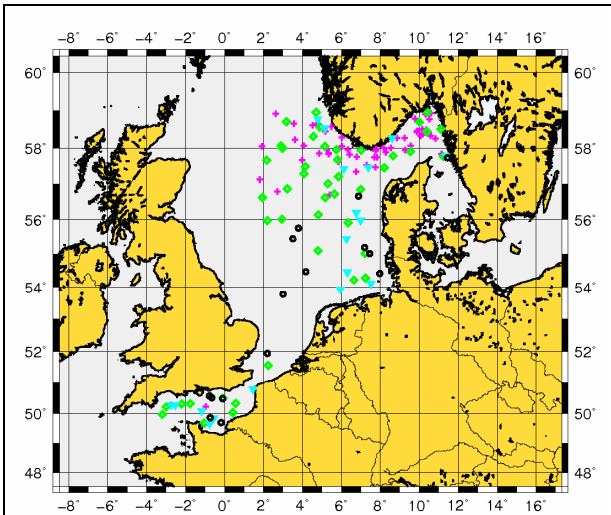




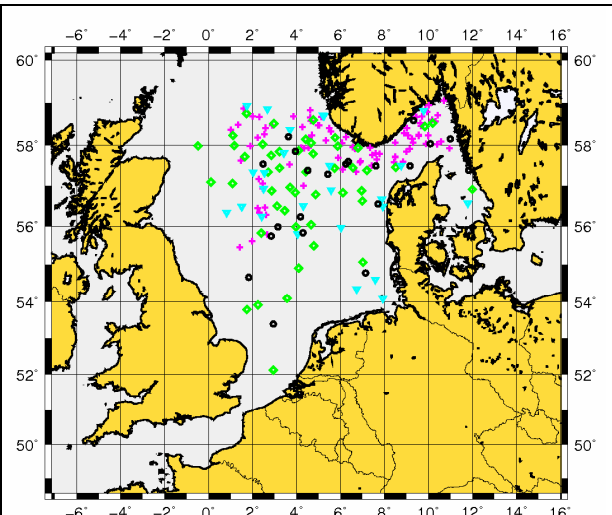




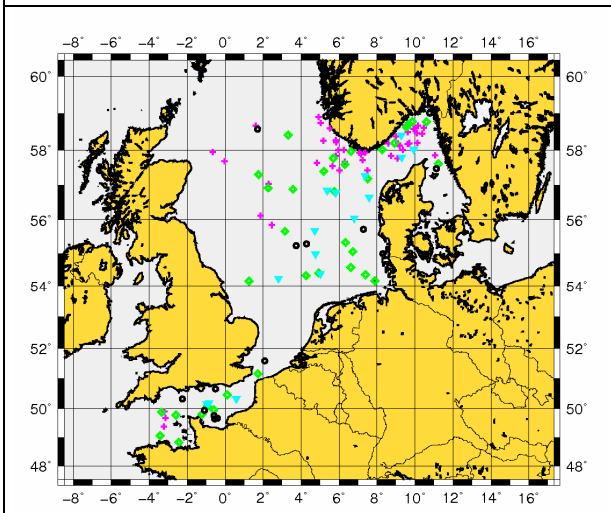




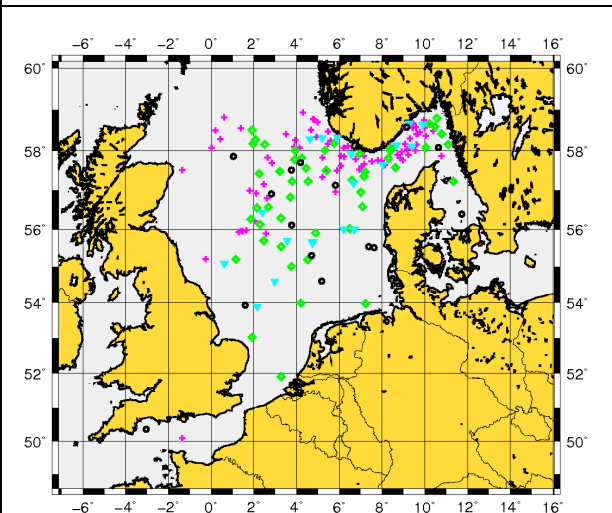
Teilchenorte am 03.07.2005 00:00 UTC



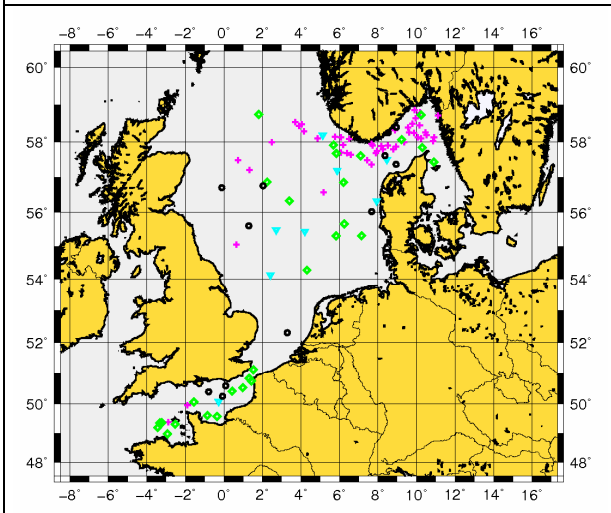
Teilchenorte am 03.07.2005 00:00 UTC



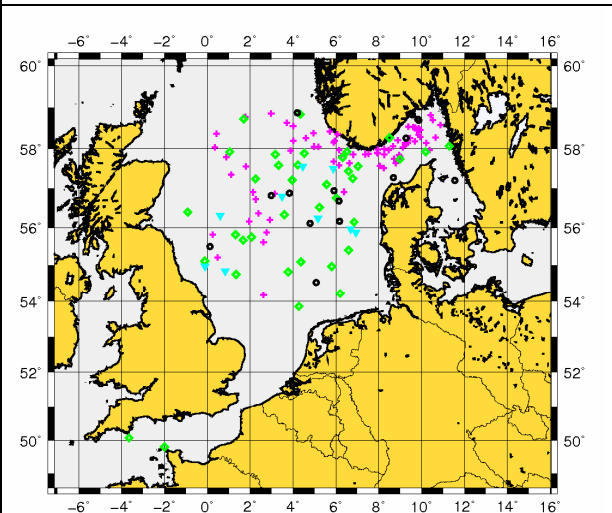
Teilchenorte am 01.10.2005 00:00 UTC



Teilchenorte am 01.10.2005 00:00 UTC



Teilchenorte am 30.12.2005 00:00 UTC



Teilchenorte am 30.12.2005 00:00 UTC

**Abbildung 87: Simulation der Verdriftung der eingebrachten Teilchen im Kanal (links) und nordöstlich Schottland (rechts). Die Einbringung erfolgte vom 1.01.2000 bis 31.12.2003 an den Positionen 49°45'N 001°30'W (Kana I) bzw. 58°10'N 001°30'W (nordöstlich Schottlands). Es wird ebenfalls die dreidimensionale Verteilung errechnet.**

**Tiefenverteilung Legende:**

**Tiefe der Teilchen:**

0 – 8 m:	○
8 –16 m:	▲
16 –24 m:	▼
24 –50 m:	◆
> 50 m:	+

## **7.8 Iod-129 und Iod-127: Transport vom Meer zum Kontinent**

In diesem Abschnitt wird der Transport des Iods aus dem Meer über die Atmosphäre und letztendlich zum Kontinent beschrieben. Dafür werden die in dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse mit denen der früher am ZSR angefertigten Arbeiten verglichen und das Ungleichgewicht der verschiedenen Kompartimente diskutiert. Der zu Mensch und Tier stattfindende Transfer wird anhand untersuchter Schilddrüsenproben diskutiert.

### **7.8.1 Iod-129 und Iod-127 in Norddeutschland**

Hier wird ein Überblick über die Ergebnisse eines wissenschaftlichen Langzeitprojektes gegeben, das darauf abzielt, ein umfassendes Verständnis der Vorkommen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Norddeutschland und der Wege der Iod-Isotope durch die verschiedenen Umweltkompartimente zum Menschen zu erlangen (Michel et al., 2004b; Szidat et al., 2000b; Michel et al., 2002; Ernst 2003; Schmidt et al., 1998; Szidat et al., 2000d; Szidat et al., 2000c; Ernst et al., 2003; Michel et al., 2005a; Klipsch, 2005). Das Vorhaben begann mit der Entwicklung zuverlässiger analytischer Protokolle für die Analyse von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  mittels AMS, RNAA, Ionenchromatographie (IC) und ICP-MS für alle in der Umwelt relevanten Konzentrationen und der Etablierung eines zuverlässigen Systems der Blindwert- und Qualitätskontrolle und -sicherung (Szidat et al., 2000b; Schmidt et al., 1998; Szidat et al., 2000d; Szidat et al., 2000c).

Nach diesen methodischen Entwicklungen, wurde die aktuelle Fallout-Situation in Norddeutschland durch Analysen von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  im Niederschlag, in Oberflächen- und Grundwasser untersucht (Szidat et al., 2000b). Die beobachteten, hohen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag konnten nicht durch die bis dahin bekannten Analyseergebnisse für Wasser aus der Nordsee oder dem Nordatlantik erklärt werden und die Frage blieb offen, ob die luftgetragenen oder die flüssigen  $^{129}\text{I}$ -Ableitungen der Europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen La Hague und Sellafield die Hauptquellen des  $^{129}\text{I}$  im Niederschlag in Norddeutschland oder in anderen Europäischen Staaten waren (Szidat et al., 2000b; Michel et al., 2005a). Außerdem zeigten die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Oberflächen- und Grundwasser deutliche Unterschiede zu denen im Niederschlag (Szidat et al., 2000b), so sich die Notwendigkeit ergab die ökologischen Wege der Iod-Isotope durch die Umweltkompartimente in ihrer Gesamtheit zu untersuchen.



Dies geschah im Rahmen des Forschungsvorhabens StSch 4285 „Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129“ (Michel et al., 2004b und 2005) zu sehen, in dem Seewasser, Luft, Niederschlag, Oberflächen- und Grundwasser, Böden, Pflanzen, Tiere, Lebensmittel, Gesamtnahrung, und menschliche und tierische Schilddrüsen aus Norddeutschland untersucht wurden. Um Information über die räumlichen Abhängigkeiten zu erhalten wurde Norddeutschland in 4 Regionen aufgeteilt, die separat untersucht wurden. Die vier Regionen repräsentieren mit Region I die nähere Küstengebiete an der Nordsee, mit Region II das Norddeutsche Tiefland, mit Region III das mittlere Norddeutschland einschließlich des Harzvorlandes und mit Region IV das Einzugsgebiet der Elbe in der Umgebung von Gorleben.

### 7.8.2 Iod-129 und Iod-127 in der Atmosphäre

Auch der Austausch des Iods zwischen Meer und Atmosphäre und der atmosphärische Transport sind komplex. Zu einem vollständigen Verständnis der Umweltchemie des Iods sind aufwändige Speziationsuntersuchungen erforderlich, die bisher nur in Ansätzen existieren. In den hier beschriebenen Vorhaben (Michel et al., 2004b; Ernst, 2003) wurden die Speziation der Iod-Isotope und die Größenverteilung von Aerosolen in Luft in einem Experiment auf Föhr im April 2002 untersucht. Dabei wurden Partikel mit einem 8-stufigen Berner Impaktor und anorganische und organische Iod-Spezies mit aerodynamischen Durchmessern  $< 1 \mu\text{m}$  mit einem System selektiver Filter gesammelt (Abbildung 88). Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Iod-Spezies in Luft (Tabelle 13) sind signifikant niedriger als im Küstenwasser der Nordsee. Die Größenverteilung der luftgetragenen Teilchen auf Föhr wird von Seaspray dominiert; globale Aerosole sind nur von untergeordneter Bedeutung. Dies beobachtet man auch für das an Teilchen gebundene Iod. Anorganisches und organisches Iod haben niedrigere, jedoch unterschiedliche Isotopenverhältnisse und zeigen so die Komplexität des Transfers des Iods vom Meer in die Atmosphäre auf; siehe Ernst (2003) bzgl. weiterer Information.

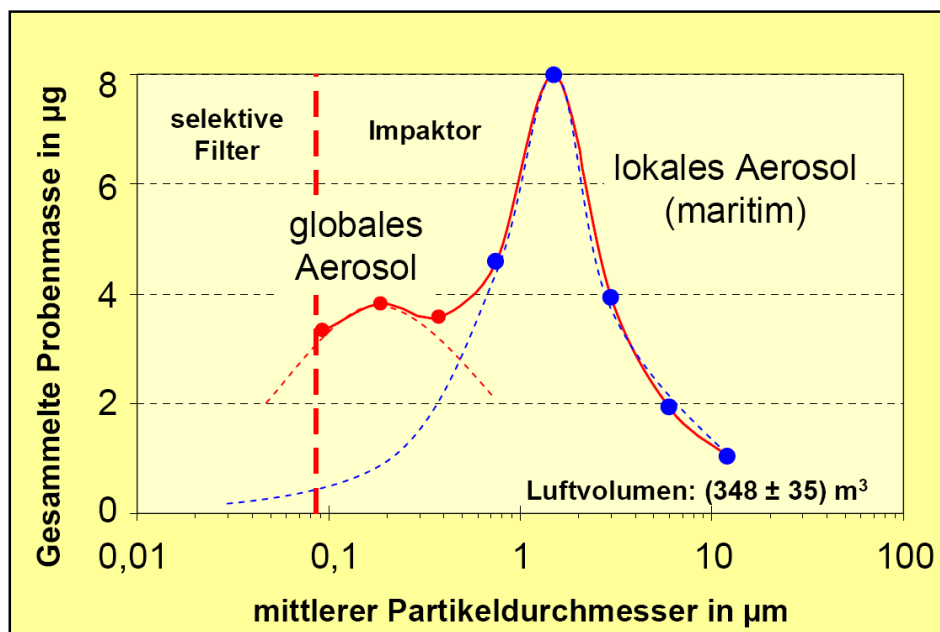


Abbildung 88: Größenverteilung des auf Föhr im Juni 2002 gesammelten Aerosols (Michel et al., 2004b; Ernst, 2003).

**Tabelle 13: Speziation von  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  in Luft, gemessen auf Föhr im Juni 2002 (Michel et al., 2004b; Ernst, 2003).**

	$^{127}\text{I}$ in $\text{ng m}^{-3}$	$^{127}\text{I}$ in %	$^{129}\text{I}$ in $\text{fg m}^{-3}$	$^{129}\text{I}$ in $\text{nBq m}^{-3}$	$^{129}\text{I}$ in %	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ - Isotopen- verhältnis in $10^{-8}$
gebunden an Partikel > 0,1 $\mu\text{m}$	1,9 $\pm$ 0,4	15	1,7 $\pm$ 0,2	11,1 $\pm$ 1,3	18	84 $\pm$ 18
organisch	5,1 $\pm$ 0,8	40	1,6 $\pm$ 0,2	10,5 $\pm$ 1,3	40	31 $\pm$ 04
anorganisch < 0,1 $\mu\text{m}$	5,8 $\pm$ 0,9	45	0,7 $\pm$ 0,1	4,6 $\pm$ 0,7	43	12 $\pm$ 02
Summe	12,8 $\pm$ 1,2	100	4,0 $\pm$ 0,3	26,1 $\pm$ 2,0	100	-

### 7.8.3 Iod-129 und Iod-127 in der terrestrischen Hydrosphäre in Norddeutschland

Seit 1997 wurden Vierteljahresproben von Niederschlag und Oberflächenwasser und Halbjahresproben von Grundwasser in Norddeutschland an verschiedenen Stationen des Niederschlagsmessnetzes Niedersachsen genommen. Zusätzlich wurden Oberflächen- und Grundwasser an Stationen des Integrierten Mess- und Informationsmessnetzes (IMIS) genommen. Zusätzlich zum Freilandniederschlag, der in jeder Region untersucht wurde, wurde durchfallender oder Bestands-Niederschlag als Vierteljahresproben in den Regionen II und III gesammelt. Niederschlag, der unter Baumkronen gesammelt wird, wird als durchfallender oder Bestands-Niederschlag bezeichnet. Er kann aufgrund der Wechselwirkung des Niederschlags mit dem Blattwerk als Proxy für die nasse und trockene Deposition luftgetragener Stoffe angesehen werden. In Abb. 10 sind die Zeitreihen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag und der aus Niederschlagsdaten und Messergebnissen berechneten vierteljährlicher Depositionsraten von  $^{127}\text{I}$  und von  $^{129}\text{I}$  dargestellt.

Im Niederschlag sind die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, abgesehen von Region I in direkter Nachbarschaft der Küste, niedriger als im küstennahen Nordseewasser. Die Isotopenverhältnisse liegen in etwa zwischen  $10^{-7}$  und  $10^{-6}$  und damit im Bereich der im Wasser der Nordsee küstenfern beobachteten Werte. Sie sind seit 1997 nahezu konstant, zweigen aber einen geringfügigen zeitlichen Trend zu niedrigeren Werten. Dieser Trend wird allerdings nicht in den  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten beobachtet. Eine genauere Analyse der Zeitreihen zeigt, dass das mittlere Absinken der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse um einen Faktor Zwei durch einen Anstieg der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen um eben diesen Faktor im letzten Jahrzehnt verursacht wurde.

Gegenüber den Ergebnissen des vergangenen Forschungsvorhabens StSch 4285 (Michel et al., 2004b; Michel et al., 2005a) kann nach Weiterführung der Analysen von Niederschlagsproben festgestellt werden, dass die  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten nicht der Absenkung der luftgetragenen Emissionen folgen, sondern wie die flüssigen Emissionen über die Jahre in etwa konstant geblieben sind. Die damals (Michel et al., 2004b; Michel et al., 2005a) gemachten Aussagen über die Relevanz der trockenen Deposition, die sich in den erhöhten Depositionsraten im durchfallenden Niederschlag manifestieren, bleibt nach wie vor gültig.

Mit den jetzt vorliegenden Daten kann auch die zeitliche Entwicklung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und der  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten in Westeuropa über größere Zeiträume betrachtet werden (Wagner et al., 1996). Analysen von  $^{129}\text{I}$  in einem Eisbohrkern vom Fiescherhorn in der Schweiz (Wagner et al., 1996) belegen, dass die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag vom prä nuklearen Isotopenverhältnis zwischen 1940 und 1950

in Hintergrundgebieten der nördlichen Hemisphäre auf  $10^{-9}$  anstiegen. Im Jahr 1950 übertrafen die atmosphärischen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse  $10^{-9}$ . Der  $^{129}\text{I}$ -Fallout in Westeuropa zeigt nicht den für andere Spaltprodukte typischen Bomben-Peak, der z.B. für  $^{36}\text{Cl}$  im gleichen Eisbohrkern beobachtet wurde (Synal et al., 1990). Für  $^{129}\text{I}$  wurde ein Bomben-Peak wurde bisher nur in Sedimenten des Mississippi beobachtet (Oktay et al., 2000). In Europa zeigen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -isotopenverhältnisse einen kontinuierlichen Anstieg bis Ende der 1980er Jahre. Seitdem werden bis heute nahezu konstante  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse von etwa  $10^{-6}$  im Niederschlag in Deutschland und in der Schweiz beobachtet. Der Fallout des Unfalls von Tschernobyl stellte lediglich eine kurzzeitige Episode dar, mit einem höchsten gemessenen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Niederschlag in München von nahe  $10^{-5}$ .

Auch in den Daten aus Abbildung 89 erkennt man die leichte Abnahme der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Niederschlagsproben aus Norddeutschland, der sich aber in den  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten nicht wieder findet und durch den Anstieg der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen im norddeutschen Niederschlag im letzten Jahrzehnt bedingt ist.

Heute erscheinen die Nordsee und der Nordatlantik die dominierenden Quellen luftgetragener  $^{129}\text{I}$  in den Küstenregionen Norddeutschlands aufgrund der flüssigen Emissionen der Europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen.

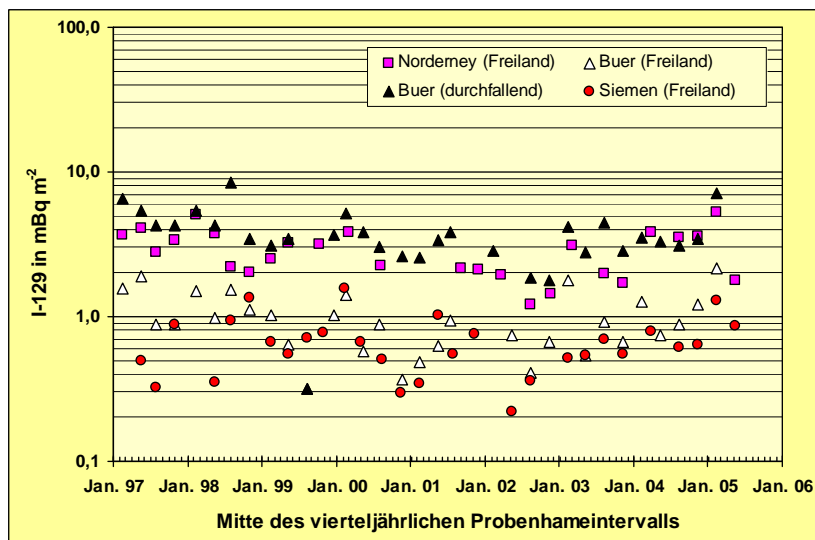
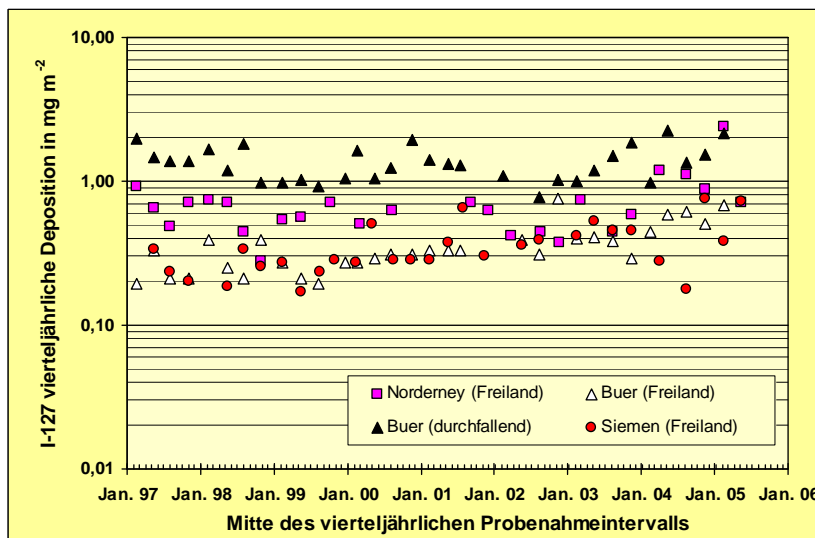
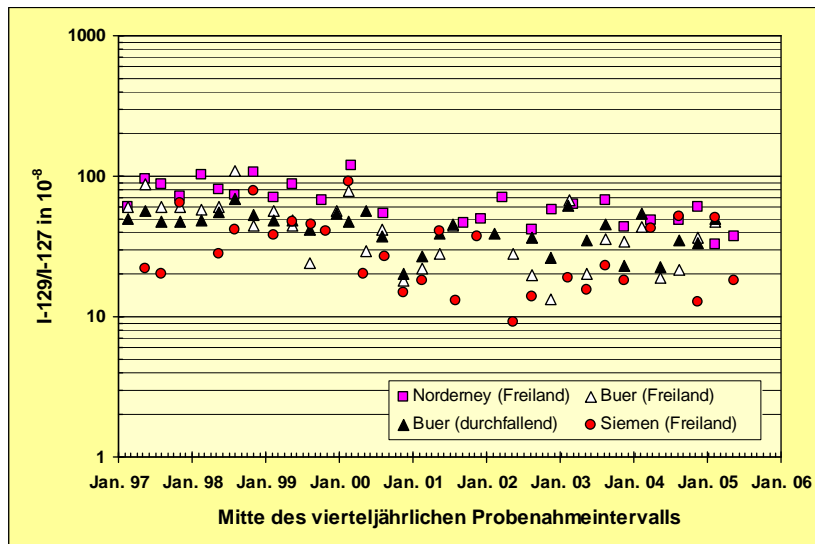


Abbildung 89: Zeitreihen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse (oben), der vierteljährlicher Depositionsraten von  $^{127}\text{I}$  (Mitte) und  $^{129}\text{I}$  (unten) in den Regionen I (Norderney), II (Buer) und IV (Siemen) in Norddeutschland.



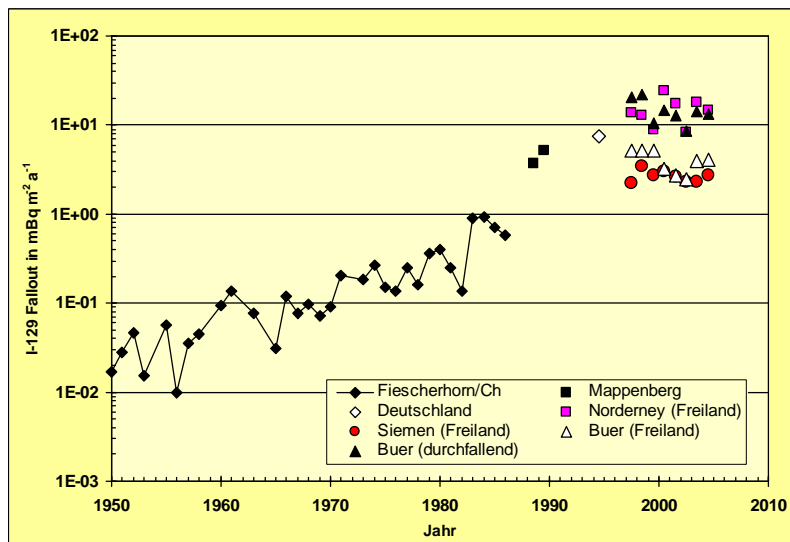
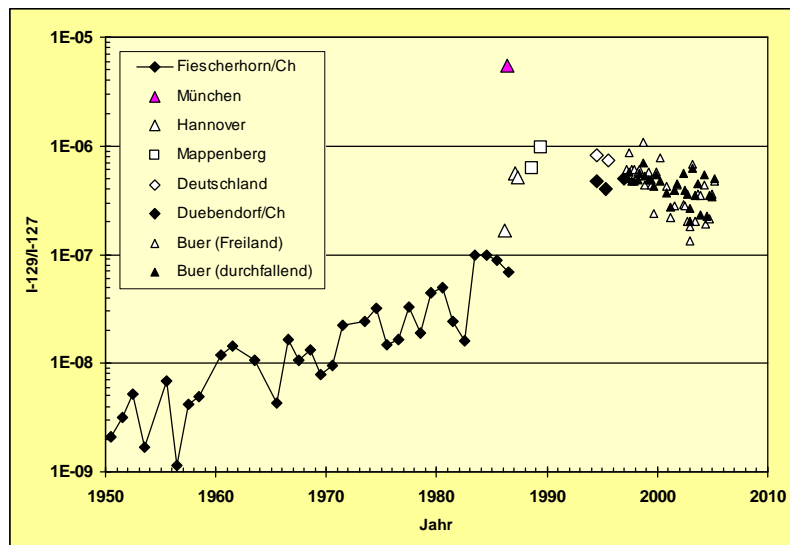
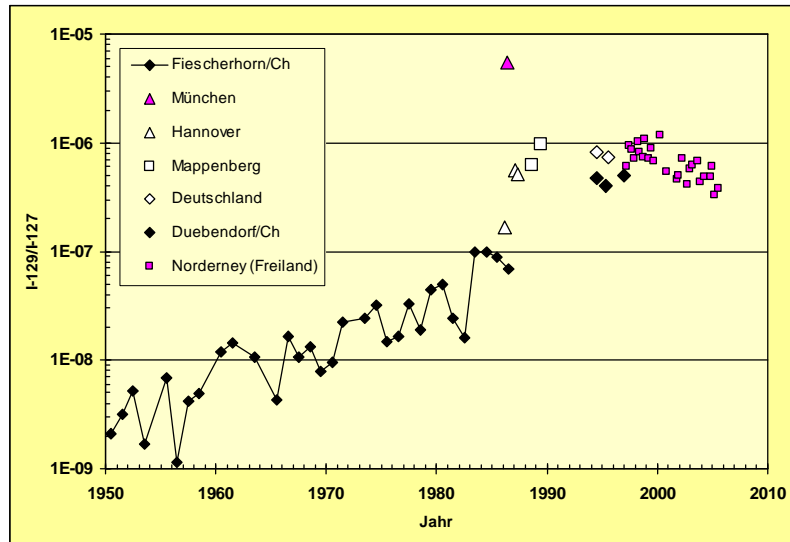


Abbildung 90: : Zeitreihen der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse (oben und Mitte) und der jährlichen Depositionsraten von  $^{129}\text{I}$  (unten) in der Schweiz und in Deutschland; (Michel et al., 2004b; Szidat et al., 2000b; Michel et al., 2005a; Wagner et al., 1996; Paul et al., 1987; Bachhuber und Bunzl, 1992; Krupp und Aumann, 1999; Schnabel et al., 2001 und diese Arbeit)

Der  $^{129}\text{I}$ -Fallout mit dem Niederschlag nahm zwischen 1950 von  $0.01 \text{ mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  um nahezu drei Größenordnungen zu und zeigt ein Plateau ab den späten 1980er Jahren. Analysen der Iodisotope im Freilandniederschlag und in durchfallendem Niederschlag ergeben unterschiedliche Depositionsraten, die von uns als unterschiedliche Einflüsse trockener und nasser Deposition interpretiert werden (Michel et al., 2004b; Szidat et al., 2000b; Ernst 2003; Klipsch, 2005). Während der Jahre 1997 – 2004 betrug die mittlere jährliche  $^{129}\text{I}$  Deposition in Region II in Niedersachsen ( $3.8 \cdot 1,4^{\pm 1}$ )  $\text{mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  für nasse Deposition. Durchfallender Niederschlag ergab mittlere jährliche  $^{129}\text{I}$  Depositionen in der Region II von ( $14 \cdot 1,4^{\pm 1}$ )  $\text{mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ . An der Nordsee betrug die mittlere jährliche nasse Deposition im gleichen Zeitraum ebenfalls ( $14 \cdot 1,4^{\pm 1}$ )  $\text{mBq m}^{-2} \text{ a}^{-1}$ .

Die Schlussfolgerung, dass der  $^{129}\text{I}$ -Fallout in Norddeutschland im Wesentlichen durch die flüssigen Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlagen ins Meer verursacht wird, wird später in der Gesamtschau der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Ungleichgewichte noch eingehender diskutiert werden (s. Abschnitt 7.8.5.).

#### 7.8.4 Iod-129 und Iod-127 in Böden

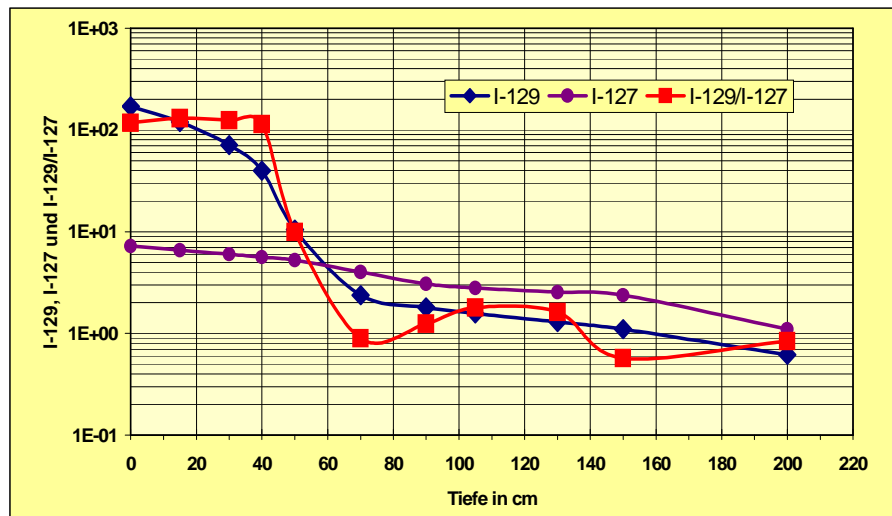
Um die Verhältnisse im Oberflächenwasser und Grundwasser zu verstehen, die hier nicht explizit behandelt werden, sondern im nächsten Abschnitt lediglich für Norddeutschland betrachtet werden, muss zuerst das Verhalten der Iod-Isotope in Böden verstanden werden. Dazu wurden in Norddeutschland sieben tiefe Bodenprofile aus den Regionen II und III bis zu einer Tiefe von 2,5 m untersucht, um die Iod-Migration in tiefere Bodenschichten zu beschreiben (Ernst 2003; Ernst et al., 2003).

Anschließend wurden 5 Bodenprofile aus Bayern analysiert (Daraoui et al., in Vorbereitung). Außerdem wurden diverse Proben von Oberböden aus landwirtschaftlich genutzten Flächen und Wäldern in Niedersachsen als Grundlage für die Bestimmung von Transferfaktoren analysiert (Michel et al., 2004b; Michel et al., 2005b; Klipsch, 2005). Im Übrigen liegen umfangreiche Daten für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Bodenprofilen aus Russland und der Ukraine vor, die im Zusammenhang mit der retrospektiven Dosimetrie der  $^{131}\text{I}$ -Expositionen nach dem Unfall von Tschernobyl ermittelt wurden (Michel et al., 2005b). Die Erfahrung zeigt, dass Böden Archive für die Iod-Isotope darstellen, die es erlauben, integrale Depositionsdichten zu bestimmen.

Die Tiefenabhängigkeiten der Iod-Isotope in sieben Bodenprofilen aus Niedersachsen zeigten die ganze Komplexität der Iod-Migration in Böden (Ernst, 2003; Ernst et al., 2003). Das stabile Iod in den Böden stammt ganz überwiegend aus dem atmosphärischen Eintrag von aus den Meeren stammendem Iod. Vergleicht man die mittlere jährliche Depositionsrate von  $^{127}\text{I}$ , die aus der Analyse von durchfallendem Niederschlag in den Regionen II und III zu  $4.2 \cdot 1.2^{\pm 1} \text{ mg m}^{-2} \text{ a}^{-1}$  bestimmt wurde, mit dem mittleren  $^{127}\text{I}$ -Inventar der sieben Bodenprofile von  $3.5 \cdot 1.6^{\pm 1} \text{ g m}^{-2}$ , dann kann man feststellen, dass das stabile Iod in den Böden das Ergebnis jahrtausende langen Eintrags ist. Anthropogenes  $^{129}\text{I}$  wurde nur während der letzten 50 Jahre eingetragen. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Bodenprofilen variierten um mehr als zwei Größenordnungen und zeigten starke Unterschiede zwischen den Probenahmestandorten. Die niedrigsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in größeren Tiefen betragen jedoch noch etwa  $10^{-10}$ , d.h. zwei Größenordnungen höher als das natürliche Gleichgewichts-isotopenverhältnis. Anthropogenes  $^{129}\text{I}$  ist also bereits in größere Tiefen vorgedrungen.

Das Migrationsverhalten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in den Böden kann nur verstanden werden als zeitabhängiger kinetischer Prozess, der sowohl unspezifische als auch spezifische Adsorptions- und Isotopenaustauschprozesse umfasst, die stark von den jeweiligen hydrologischen Bedingungen abhängen (Ernst, 2003; Ernst et al., 2003). Als Folge der großen Zeiträume, die für die Migration von  $^{127}\text{I}$  in tiefere Bodenschichten zur Verfügung standen, konnte das stabile  $^{127}\text{I}$  stabilere Adsorptionsplätze mit langen charakteristischen Austauschzeiten besetzen. Die Sorption des anthropogenen  $^{129}\text{I}$  in den Böden geschieht hauptsächlich über unspezifische Sorption in Konkurrenz durch Ionenaustausch mit  $^{127}\text{I}$ , das stärker adsorbiert wurde über große Zeiträume. Dies lässt das rezente, anthropogene  $^{129}\text{I}$  in Böden und Oberflächenwasser

beweglicher und verfügbarer erscheinen als die relative viel größere Menge an  $^{127}\text{I}$ . Es zeigt sich, dass die Migration der Iod-Isotope nicht durch stationäre Gleichgewichtsmodelle beschrieben werden kann. Die für eine quantitative Beschreibung der Migration der Iod-Isotope benötigten zeitabhängigen kinetischen Modelle sind aber bisher nicht verfügbar.



**Abbildung 91:** Flächenbezogene Inventare von  $^{129}\text{I}$  in  $\text{mBq m}^{-2}$  und  $^{127}\text{I}$  in  $\text{g m}^{-2}$  sowie  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Einheiten von  $10^{-10}$  in einem Bodenprofil aus Groß Lohke in Niedersachsen (Ernst et al., 2003).

Mehr als 99 % des in den Bodenprofilen beobachteten  $^{129}\text{I}$  befindet sich noch in den obersten 60 cm der Profile. Dies erlaubt die  $^{129}\text{I}$ -Inventare in den Profilen als Näherungen für das gesamte anthropogene  $^{129}\text{I}$ -Inventar zu betrachten. Die bisher vorliegenden Ergebnisse sind in Tabelle 14 dargestellt. Für die sieben Bodenprofile aus Niedersachsen ergibt sich so ein geometrischer Mittelwert von  $168 \cdot 1.5^{\pm 1} \text{ mBq m}^{-2}$ . Die aus den fünf bayrischen Bodenprofilen ermittelten Inventare sind (nicht signifikant) niedriger als die norddeutschen Inventare.

Das totale  $^{129}\text{I}$ -Inventar in Niedersachsen ist mehr als drei Größenordnungen höher als der prä-nukleare Wert von  $0.084 \pm 0,017 \text{ mBq m}^{-2}$  (Szidat et al., 2000b), der in dem Bodenprofil von Lutovinovo, Russland, beobachtet wurde. Das totale  $^{129}\text{I}$ -Inventar in Norddeutschland ist auch höher als die in Moskau, Russland, oder in Zhitomir, Ukraine beobachteten Inventare. Es handelt sich bei letzteren jeweils um Regionen, die nicht signifikant durch Fallout des Unfalls von Tschernobyl kontaminiert wurden. Lediglich in Gebieten der Ukraine und Weißrusslands, die durch den Unfall hoch mit Spaltprodukten kontaminiert wurden, sind die totalen  $^{129}\text{I}$ -Inventare höher als in Norddeutschland. Dort kann  $^{129}\text{I}$  benutzt werden, den Fallout von  $^{131}\text{I}$  aus dem Unfall von Tschernobyl zum Zweck der retrospektiven Dosimetrie abzuschätzen (Michel et al., 2005b).

Ein Vergleich der integralen Depositionsdichten von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  mit den aktuellen Depositionsraten führt zu den Schlussfolgerungen, dass erstens das  $^{127}\text{I}$  in den Böden Ergebnis jahrtausende-langen Eintrags ist und zweitens auch gegenwärtig signifikante Einträge von  $^{129}\text{I}$  stattfinden, die die Inventare in Zukunft weiter erhöhen werden.

**Tabelle 14: Depositionsdichten und Depositionsraten der Iod-Isotope <sup>129</sup>I und <sup>127</sup>I.**

Integrale Depositionsdichten		
Ort	<sup>127</sup> I in mg m <sup>-2</sup>	<sup>129</sup> I in mBq m <sup>-2</sup>
Geometrischer Mittelwert von 7 tiefen Bodenprofilen aus Niedersachsen (1999) <sup>1</sup>	3.500 × 1,6 <sup>±1</sup>	168 × 1,5 <sup>±1</sup>
Geometrischer Mittelwert von 5 Bodenprofilen aus Bayern (1998/1999) (Daraoui et al., in Vorbereitung)	1.900 × 2,0 <sup>±1</sup>	109 × 1,5 <sup>±1</sup>
Geometrischer Mittelwert von Bodenprofilen aus Zhitomir/Ukraine (1997) und Moskau/Russland (1996) <sup>2</sup>	520 × 2,1 <sup>±1</sup>	40 × 1,6 <sup>±1</sup>
Globaler Fallout der atmosphärischen Kernwaffenexplosionen <sup>3</sup>	-	2,8
Prä-nuklearer Boden: Russland (1939) <sup>4</sup>	-	0,084 ± 0,017
Depositionsraten		
	<sup>127</sup> I in mg m <sup>-2</sup> a <sup>-1</sup>	<sup>129</sup> I in mBq m <sup>-2</sup> a <sup>-1</sup>
Durchfallender Niederschlag in Region II aus Buer/Niedersachsen (1997 – 2004) <sup>5</sup>	4,7 × 1,3 <sup>±1</sup>	14 × 1,4 <sup>±1</sup>
Freilandniederschlag in Region I aus Norderney/Niedersachsen (1997 – 2004)	11 × 1,4 <sup>±1</sup>	14 × 1,4 <sup>±1</sup>

Quellen: <sup>1</sup>Michel et al., 2004b; Ernst, 2003; Ernst et al., 2003 ; <sup>2</sup>Michel et al., 2005b; <sup>3</sup>Oktay et al., 2000; <sup>4</sup>Szidat et al, 200b; <sup>5</sup> In Buer lagen die jährlichen Depositionsraten im Zeitraum 1997 bis 2003 im durchfallenden Niederschlag um den Faktor 3,7 · 1,3<sup>±1</sup> für <sup>129</sup>I bzw. um den Faktor 3,4 · 1,6<sup>±1</sup> für <sup>127</sup>I höher als im Freilandniederschlag.

### 7.8.5 Das <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Ungleichgewicht in der Umwelt

Als Konsequenz der unterschiedlichen Eintragungsgeschichten sind die beiden Iod-Isotope, <sup>129</sup>I and <sup>127</sup>I, heute im Ungleichgewicht in allen untersuchten Umweltkompartimenten. Dies kann dargestellt werden, indem man die <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Isotopenverhältnisse gegen die jeweiligen <sup>127</sup>I- bzw. <sup>129</sup>I-Konzentrationen aufträgt. Abbildung 92 stellt diese für die bisher für Meerwasser und in Norddeutschland für Freiland- und durchfallenden Niederschlag, für Oberflächen- und Grundwasser und für Oberböden erzielte Ergebnisse dar.

Die gemessenen <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Isotopenverhältnisse reichen von 3 · 10<sup>-6</sup> im Englischen Kanal vor der französischen Küste bis 10<sup>-10</sup> im Grundwasser. In einer Grundwasserprobe wurde ein Isotopenverhältnis von 1,0 · 10<sup>-11</sup> gemessen (Michel et al., 2004). Abgesehen von Proben menschlicher und tierischer Schilddrüsen liegen die Konzentrationen von <sup>129</sup>I zwischen 2 · 10<sup>-13</sup> g g<sup>-1</sup> und 10<sup>-18</sup> g g<sup>-1</sup>, d.h. 6.5 mBq kg<sup>-1</sup> und 6.5 nBq kg<sup>-1</sup>. Die Konzentrationen von <sup>127</sup>I liegen im Bereich von 2 · 10<sup>-5</sup> g g<sup>-1</sup> bis 2 · 10<sup>-10</sup> g g<sup>-1</sup>. Anthropogenes <sup>129</sup>I wurde in allen untersuchten Tiefen beobachtet: in Böden bis 2,5 m und in Grundwasser bis zu Infiltrationstiefen von 10 m.

Im Meerwasser ist die <sup>127</sup>I-Konzentration in den untersuchten Proben mit ca. 40 ng/l relativ konstant. Auf die höheren <sup>127</sup>I-Konzentration im Wattenmeer wurde bereits oben hingewiesen. Die Variabilität der <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I-Isotopenverhältnisse im Meerwasser über mehr als vier Zehnerpotenzen von 2 · 10<sup>-10</sup> bis 3 · 10<sup>-6</sup> ergibt sich ausschließlich durch die Kontamination mit anthropogenem <sup>129</sup>I.

Im Freilandniederschlag zeigt sich bei den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen eine Variabilität um etwa einen Faktor Vier. Der geometrische Mittelwert der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen liegt bei  $2 \text{ ng l}^{-1}$ , um einen Faktor 20 niedriger als im Meerwasser. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Freilandniederschlag variieren um etwa eine Zehnerpotenz zwischen  $10^{-7}$  und  $10^{-6}$ . Die roten Parallelogramme in Abbildung 92 zeigen, dass die Variabilität der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse der Korrelation mit den  $^{129}\text{I}$ -konzentrationen folgt, ebenfalls mit um einen Faktor 20 niedrigeren  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Niederschlag als im Meerwasser bei gleicher Variabilität der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen wie der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen bei gegebenem  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis.

Das heißt, dass  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Freilandniederschlag vollständig durch Iod aus dem Meer erklärt werden kann. Würde ein signifikanter Beitrag aus den luftgetragenen Emissionen aus Sellafield oder La Hague zum Fallout von  $^{129}\text{I}$  existieren, müsste sich das in einer größeren Variabilität der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag ausdrücken. Diese erhöhte Variabilität würde sich nicht in der Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen auswirken. In der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen wird neben  $^{129}\text{I}$  auch  $^{127}\text{I}$  im Verhältnis  $Y(^{129}\text{I})/Y(^{127}\text{I}) = 6,1:1$  erzeugt. Eine Beeinflussung der  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen im Niederschlag von nur  $0,1 \text{ fg/l}$  durch luftgetragene Emissionen würde in der Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen bereits erkennbar sein, würde aber die Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gegen die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen nicht verändern. Zusammen mit der bereits oben festgestellten Konstanz der  $^{129}\text{I}$ -Depositionsraten im letzten Jahrzehnt führen vorstehende Überlegungen zu der Schlussfolgerung, dass  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Niederschlag in Norddeutschland vollständig durch die Ableitungen aus Sellafield und La Hague ins Meer erklärt werden können. Hinweise auf signifikante Immissionen aus den luftgetragenen Ableitungen der Wiederaufarbeitungsanlagen liegen nicht vor.

Die Ergebnisse für den durchfallenden Niederschlag aus Norddeutschland heben sich in Abbildung 92 deutlich gegen die für Freilandniederschlag ab. Sie folgen prinzipiell der gleichen Systematik in Bezug auf die Beziehung zwischen den  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse und den Iod-Isotopen im Meerwasser. Allerdings fehlen im durchfallenden Niederschlag Proben mit  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen unter  $2 \cdot 10^{-7}$ . Dies erscheint plausibel, da mit einer Anreicherung partikel-gebundenen Iods im durchfallenden Regen gerechnet werden kann, da infolge der Beladung Iod aus der Luft gefiltert wird. Partikel-gebundenes Iod zeigte aber in der Messung auf Föhr die höchsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse  $(8,4 \pm 1,8) \cdot 10^{-7}$ .

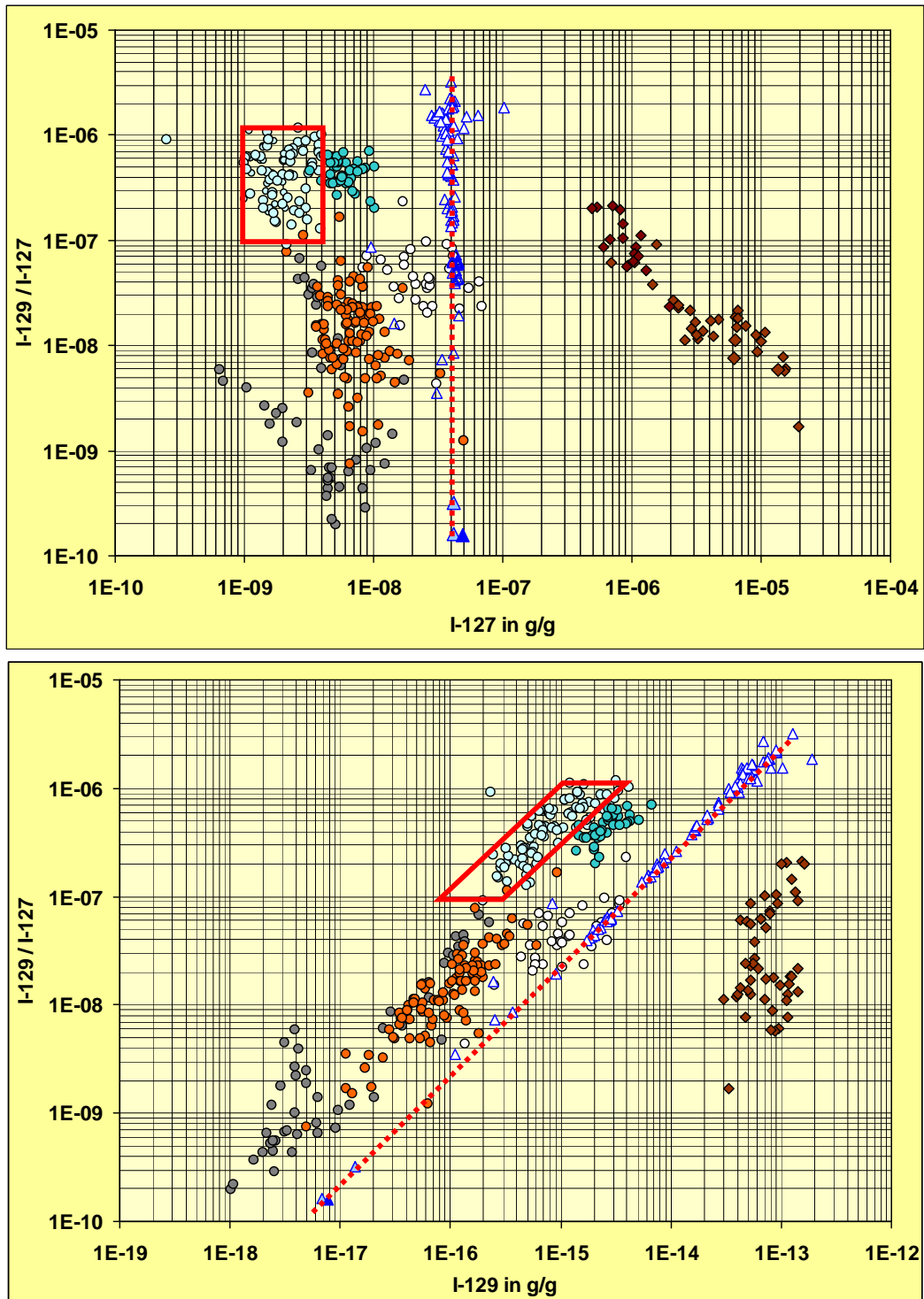


Abbildung 92: Das Ungleichgewicht zwischen  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in der Umwelt wird durch den Vergleich der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopen-verhältnisse als Funktionen der  $^{127}\text{I}$ - (oben) und  $^{129}\text{I}$ - (unten) Konzentrationen im Wasser-Boden-System in Norddeutschland und in der Nordsee deutlich: Nordseewasser (blau-weiße Dreiecke), Freilandniederschlag (hellblaue Kreise), durchfallender Niederschlag (dunkelblaue Kreise), Oberflächenwasser aus den Regionen II-IV (rote Kreise), Oberflächenwasser aus dem Großen Meer in Region I (weiße Kreise), Grundwasser (graue Kreise), Oberboden (schwarz-braune Rauten). Zusätzlich sind die Ergebnisse für zwei Proben aus dem Indischen Ozean aus dem Jahr 2005 (hellblaue Dreiecke und eine Probe aus Hawaii aus dem Jahr 1997 (dunkelblaues Dreieck) angegeben. Die durchgezogenen gestrichelten Linien sind die Korrelationsgeraden für Meerwasser. Bzgl. der roten Vierecke siehe Text.

Die aus der Atmosphäre eingetragenen Iod-Isotope gelangen in das System von Oberflächenwasser und Boden, wo frisches  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  mit den Iod-Isotopen austauschen, die in den Böden bereits vorhanden sind. Die  $^{127}\text{I}$  Konzentrationen in den Böden werden stark durch die hydrologischen Bedingungen beeinflusst. In Oberböden reichten die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen von  $2 \cdot 10^{-5} \text{ g g}^{-1}$  bis  $5 \cdot 10^{-7} \text{ g g}^{-1}$ , die Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  lagen zwischen  $2 \cdot 10^{-13} \text{ g g}^{-1}$  und  $3 \cdot 10^{-14} \text{ g g}^{-1}$ , d.h.  $1 \text{ mBq kg}^{-1}$  und  $0.2 \text{ mBq kg}^{-1}$ . Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Oberflächenwasser ( $2 \cdot 10^{-6}$  bis  $1.7 \cdot 10^{-8}$ ) und im Oberboden ( $2 \cdot 10^{-7}$  bis  $2 \cdot 10^{-9}$ ) sind niedriger als die im Niederschlag. Im Oberflächenwasser findet eine Verdünnung des Iods aus dem Fallout mit stabilem  $^{127}\text{I}$ , das nur schwach im Boden adsorbiert ist statt und ein wesentlicher Abtransport des Iods mit dem Oberflächenwasser muss in Betracht gezogen werden. Die Isotopenverhältnisse in den Bodenprofilen und im Grundwasser belegen die hohe Mobilität und Akkumulation von  $^{129}\text{I}$  in den Wasser ungesättigten Bodenzonen, eine effiziente Migration in die Wasser gesättigten Bodenschichten und einen andauernden Transfer von anthropogenen  $^{129}\text{I}$  in das Grundwasser.

Einen Sonderfall stellt das Oberflächenwasser aus Region I (Großes Meer) dar. Hier sind außergewöhnlich hohe  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen zu verzeichnen. Dies ist in den hydrologischen Bedingungen des Großen Meeres begründet, dass aufgrund der Nähe zur Nordsee deutlich durch Seaspray und durch Austausch mit küstennahem Grundwasser (der Wasserstand des Großen Meeres liegt bei 1,4 m unter NN) relativ hohe  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen aufweist.

Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in den Oberböden hängen nicht von den  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen ab, die innerhalb einer geometrischen Standardabweichung von  $\sim 2$  konstant sind. Ausnahmen stellen die hier nicht behandelten Waldböden dar, die höhere  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen aufweisen. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in Oberböden zeigen eine inverse Korrelation mit den  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen auf. In den Bodenproben liegen die höchsten  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen bei  $6 \cdot 10^{-13} \text{ g g}^{-1}$ , d.h.  $4 \text{ mBq kg}^{-1}$ , und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse gehen bis zu  $5 \cdot 10^{-7}$  in Waldböden.

Die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Vegetation und Nahrungsmitteln sowie die Transferfaktoren für  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  zeigen Einflüsse vielfältiger Effekte. Für Gras, Getreide und Blattgemüse deuten erhöhte  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse auf direkte Kontamination durch nasse und trockene Deposition hin. Für andere Pflanzen und Gemüse, für Milch, Fleisch und Pilze manifestiert sich die Aufnahme über den Wurzelpfad durch gleiche  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse. Ihre Konzentrationen von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  liegen zwischen denen von Böden und Oberflächenwasser. Solange der Transfer der Iod-Isotope in die Pflanzen durch Wurzel Aufnahme dominiert wird, entsprechen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse sowie die  $^{127}\text{I}$ - und  $^{129}\text{I}$ -Konzentrationen denen der Region, die in Abbildung 92 durch die Daten für Seewasser, Niederschlag, Oberflächenwasser und Oberboden aufgespannt werden. Nur wenn die direkte Kontamination der Pflanzenoberfläche durch Fallout relevant ist, liegen die entsprechenden Daten außerhalb dieser Bereiche. Dies ist z.B. der Fall für Gras, Getreide und Blattgemüse in Region I als Folge der direkten Kontamination durch Seaspray. Das Verhalten der Iod-Isotope im Oberboden bestimmt auch den Transfer zu Tieren (Abbildung 93). In der Darstellung der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als Funktion der  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen wird eine inverse Korrelation parallel zur der in Oberböden beobachtet.

#### 7.8.6 Iod-129 und Iod-127 in Tieren und Menschen

Für den Transfer der Iod-Isotope zum Menschen erwiesen sich die Analysen von Gesamtnahrung als besonders wichtig. In neun von zehn Proben konnte kein  $^{129}\text{I}$  nachgewiesen werden bei Nachweisgrenzen zwischen  $0.6 \text{ fg g}^{-1}$  und  $1 \text{ fg g}^{-1}$ , d.h.  $4 \text{ nBq g}^{-1}$  und  $9 \text{ nBq g}^{-1}$ . Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in diesen Proben lagen deutlich niedriger als  $10^{-8}$ . Nur in einer Probe von Gesamtnahrung, die Fisch enthielt, war  $^{129}\text{I}$  nachweisbar, das  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis lag bei  $10^{-7}$ . Die  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in allen Proben der Gesamtnahrung waren allerdings relativ hoch ( $0.1 \mu\text{g g}^{-1}$  -  $0.2 \mu\text{g g}^{-1}$ ). Wir nehmen an, dass der überwiegende Anteil des  $^{129}\text{I}$ , der ursprünglich in den Nahrungsmitteln enthalten war, während der Zube-

reitung verloren ging und dass iodiertes Kochsalz mit niedrigen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen gegen Ende der Zubereitung zugegeben wurde. Die Iod-Konzentrationen in der Gesamtnahrung entsprachen täglichen  $^{127}\text{I}$ -Aufnahmen zwischen 180 und 400  $\mu\text{g d}^{-1}$ , mehr als der Wert von 150  $\mu\text{g d}^{-1}$ , der von der WHO empfohlen wird. Weiterführende Untersuchungen zeigten, dass sowohl in Deutschland gebräuchliche iodierte Speisesalze als auch Nahrungssupplemente wie Vitamintabletten und Iod-Tabletten zusätzliche Iod-Quellen mit sehr niedrigen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnissen (Klipsch, 2005) in der Ernährung darstellen. Diese entkoppeln die derzeitige Iod-Versorgung der Menschen in Deutschland teilweise von den normalen radioökologischen Expositionspfaden.

In Abbildung 93 sind alle  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aller tierischen und menschlichen Schilddrüsen zusammengefasst, die bisher für Standorte fernab von Emittenten berichtet wurden. Seit den 1970er Jahren wurden solche Messungen von Handl und Mitarbeitern durchgeführt; (Handl et al., 1993; Handl, 1996; und dort angegebene Referenzen). In neuerer Zeit berichteten Hou et al. (2003) über die Analyse von Schafsschilddrüsen aus Dänemark und von menschlichen Schilddrüsen aus Weißrussland. In diesen Tierschilddrüsen entsprachen die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse weitgehend denen im Niederschlag in Norddeutschland. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen sind niedriger als andere biosphärische Isotopenverhältnisse. Dies kann auch dadurch erklärt werden, dass die Nahrungsmittel mit den höchsten  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen wegen der Verdünnung mit stabilem Iod aus den Böden die niedrigsten  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse aufweisen. Schilddrüsen von Kühen, Schafen, und grasenden Wildtieren zeigen  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse, die durch direkte Kontamination über nasse und trockene Deposition beeinflusst sind und die um eine Größenordnung höher liegen als die von Menschen.  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse oberhalb von  $10^{-6}$  wurde in Europa bisher nur für den Nord Cotentin unter dem direkten Einfluss der Emissionen aus La Hague berichtet (Frechou et al., 2002).

Menschliche Schilddrüsen in Deutschland weisen niedrigere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als tierische Schilddrüsen auf. Darüber hinaus liegen die Isotopenverhältnisse menschlicher Schilddrüsen mit  $2 \cdot 10^{-9}$  bis  $3 \cdot 10^{-8}$  aus den Jahren 1998 und 2002 in Norddeutschland niedriger als die aus den Jahren 1985 bis 1990. Die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in menschlichen Schilddrüsen aus Weißrussland (Hou et al., 2003) sind noch niedriger als in denen aus Norddeutschland. Das mittlere  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von  $1.1 \cdot 10^{-8}$  in menschlichen Schilddrüsen entspricht einer Strahlenexposition mit einer jährlichen Schilddrüsendosis von  $\sim 6$  nSv für Erwachsene.



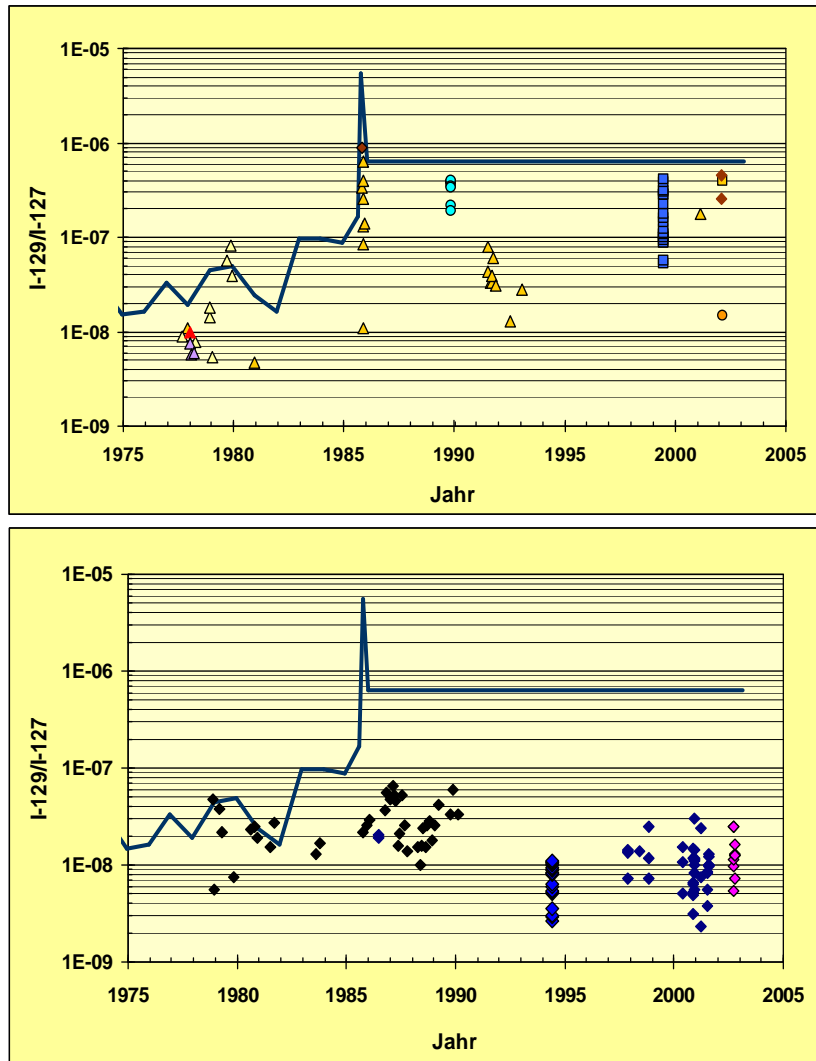


Abbildung 93:  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse in tierischen (oben) und menschlichen (unten) Schilddrüsen aus Europa fernab von  $^{129}\text{I}$ -Emittenten; (siehe Michel et al., 2004b) bzgl. Einzelheiten und Referenzen. Die durchgezogene Linie gibt grob den zeitlichen Trend der  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse im Niederschlag wieder.

## 8 Schlussfolgerung und Ausblick

### 8.1 Beantwortung der Fragen des Auftrages

Der vorliegende Bericht beschreibt den Zustand der Nordsee in Hinblick auf die untersuchten, langlebigen Radionuklide  $^{129}\text{I}$  und  $^{99}\text{Tc}$ , sowie zusätzlich von  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  für das Jahr 2005. Diese langlebigen, anthropogenen Radionuklide, die aus den Europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen in die See eingetragen werden, sind derzeit noch nicht radiologisch relevant. Am Beispiel des Iods wurde deutlich, wie gravierend der Mensch Veränderungen in der Umwelt verursacht hat. Diese Veränderungen sollten auch unter Berücksichtigung der anderen Nuklide, insbesondere der Aktiniden, im Sinne der Nachhaltigkeit künftiger Strahlenschutzkonzepte überwacht werden. Die mit diesem Bericht erstellte Datenbasis kann als Ausgangspunkt angesehen werden, um künftige Veränderungen zu beurteilen.

Die deutsche Nordseeküste wird maßgeblich von den Ableitungen aus La Hague beeinflusst. Als Überwachungspunkt dieser Ableitungen bietet sich die Station Borkumriff an, da diese Station unter direkter Beeinflussung von La Hague steht und sich in deutschen Hoheitsgewässern befindet. Als weiterer Kontrollpunkt wird die Station Elbe 1 empfohlen.

Die Verhältnisse der verschiedenen Radionuklide lassen eine Einschätzung zu, an welchem Ort welche Quelle die vorliegende Kontamination dominiert. Mit Hilfe von Modellrechnungen lassen sich die relevanten Transportprozesse voraussagen und Ausbreitungsszenarien der Radionuklide simulieren.

Die Ergebnisse des Vorhabens beschreiben den Ist-Zustand des Untersuchungsgebietes beschreiben. Die Interpretation der Ergebnisse mit Hilfe von Modellrechnungen lässt Aussagen über die relevanten Transportprozesse zu. Die Aktivitätsverhältnisse der verschiedenen Radionuklide und die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse können im Hinblick auf die unterschiedliche Bedeutung der Emittenten interpretiert werden.

## 9 Offene Fragen

In Zeitreihen werden am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Leibniz Universität Hannover die Einträge des  $^{127}\text{I}$  und  $^{129}\text{I}$  kontinuierlich überwacht. Es fehlt eine Bilanzierung des Eintrages von  $^{129}\text{I}$  über den Niederschlag für die gesamte Bundesrepublik Deutschland. Um dieser Fragestellung nachzugehen, empfiehlt sich eine umfassende Kartierung von Gesamtdeutschland in Bezug auf den Eintrag des  $^{129}\text{I}$  über den Niederschlag. Ebenfalls liegen noch keine Informationen über den Transport des eingetragenen Iods ins Meer über das Oberflächenwasser in Flüssen vor.

Wenig ist bisher über die Austauschprozesse des Iods aus dem Meer in die Atmosphäre und des möglichen Eintrags auf dem Land bekannt. Es kann vermutet werden, dass die Nordsee einen ganz wesentlichen Einfluss auf die Iodbilanz der Landmassen besitzt. Weiter ist nicht bekannt, in welchem Ausmaß das Iod in Algen angereichert wird, anschließend in das Sediment eingelagert und durch Remineralisation wieder in die Wassersäule freigesetzt wird. Es kann vermutet werden, dass derartige Prozesse den Transport der Radionuklide durch die Nordsee erheblich beeinflussen.

Des Weiteren liegen noch keine hinreichenden Informationen über den Transport von Radionukliden in Flüssen Richtung Meer vor. Nicht nur in Hinblick auf das OSPAR-Übereinkommen, sondern auch als grundsätzliche Fragestellung ist die Untersuchung und Bilanzierung des Transports von  $^{129}\text{I}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und Uranisotopen mit dem Oberflächenwasser der Flüsse in die Nordsee zu erfassen. Die langlebigen Nuklide der Thoriumreihe gilt es dabei zu erfassen.

Die I-129/I-127 Isotopenverhältnisse sind derzeit in allen europäischen Umweltkompartimenten im Ungleichgewicht. Damit werden die Iod-Isotope zu Tracern, die es mit hoher Empfindlichkeit erlauben, die anthropogenen Veränderungen zu quantifizieren und ggfs. über Zeitreihen zu überwachen.

## 10 Danksagung

Das Projekt wurde durch das Bundesamt für Strahlenschutz unter dem Förderkennzeichen StSch4481 gefördert.

Der erfolgreiche Abschluss des Projektes wäre ohne die Hilfe zahlreicher Kolleginnen und Kollegen nicht möglich gewesen. Die Autoren danken insbesondere dem Kapitän und der Mannschaft des Forschungsschiffes GAUSS bei der Hilfe der Forschungsfahrt im Sommer 2005 in die Nordsee sowie etlichen Kollegen, die uns Proben aus der Irischen See oder von Spitzbergen entnahmen und uns zur Verfügung stellten. Es waren dies die Herren Drs. Ian McMeekan, P. Kershaw, K. Leonard (CEFAS, UK), Herr Dr. D. Dethleff (Inst. für Polarökologie der Universität Kiel), sowie die Herren Drs. A. Wisotzki und E. Fahrbach vom Alfred-Wegener-Institut Bremerhaven, die für uns die Proben auf der „Polarstern“ entnommen haben.

Herzlichen Dank gilt Anke Gottschalk, Andrea Meyer und Klaus Becker für die Probenahme während der GAUSS-Fahrt 446 und für die Aufarbeitung und Messung der zahlreichen Proben auf Tritium,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$ . Die Analyse der Proben auf Transurane wurde von Ingo Goroncy durchgeführt.

Die Literatur wurde von Frau Dr. Ina Brodzinski zusammengestellt und eine entsprechende EndNote Datenbank erstellt. Hierfür sei ihr ganz herzlich gedankt.

Wir danken Frau Prof. Dr. C. Vogt und ihren Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern vom Lehrgebiet Analytische Chemie am Institut für Anorganische Chemie der Universität Hannover für die Möglichkeit der Durchführung von ICP-MS Messungen.

Wir danken auch herzlich Herrn Hartmut Komo und Stephan Dick aus der Modellierungsgruppe des BSH für die durchgeführten Simulationen der Ausbreitung der Radionuklide in der Nordsee.

Frau Clemens sei herzlich gedankt für die finanzielle und verwaltungsmäßige Abwicklung des Projektes innerhalb des BSH.

Beim Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit und dem Bundesamt für Strahlenschutz bedanken wir uns für die finanzielle Unterstützung und die engagierte Projektbegleitung durch Frau C. Willrodt (BfS). Wir danken Frau Willrodt besonders für die intensive und kritische Durchsicht des Abschlussberichtes und viele konstruktive Anmerkungen und Hilfen auch bei administrativen Problemen.

## Anhang I: Emissionen aus La Hague und Sellafield

### Emissionsdaten von Sellafield und La Hague

Dieser Abschnitt stellt zuerst die absoluten Emissionsdaten der Anlagen in Sellafield und La Hague dar, anschließend werden die Verhältnisse der Nuklide zum Iod-129 gebildet und mit den beiden Emissionsquellen in einem Diagramm dargestellt.

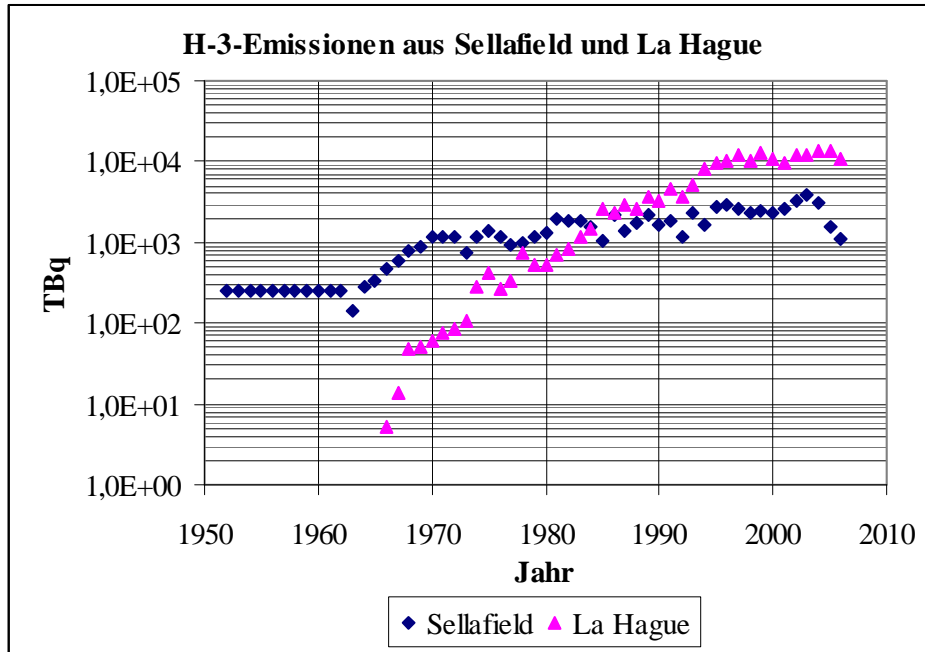


Abbildung 94: Zeitlicher Verlauf der flüssigen Tritium- $(^3\text{H})$ -Emissionen aus La Hague und Sellafield.

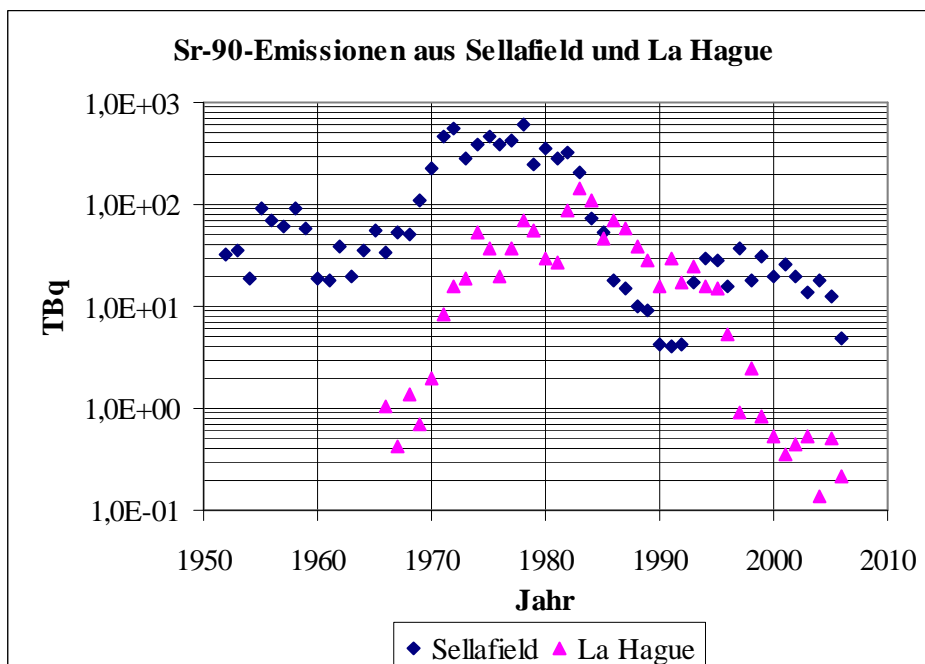


Abbildung 95: Zeitlicher Verlauf der flüssigen  $^{90}\text{Sr}$ -Emissionen aus La Hague und Sellafield.

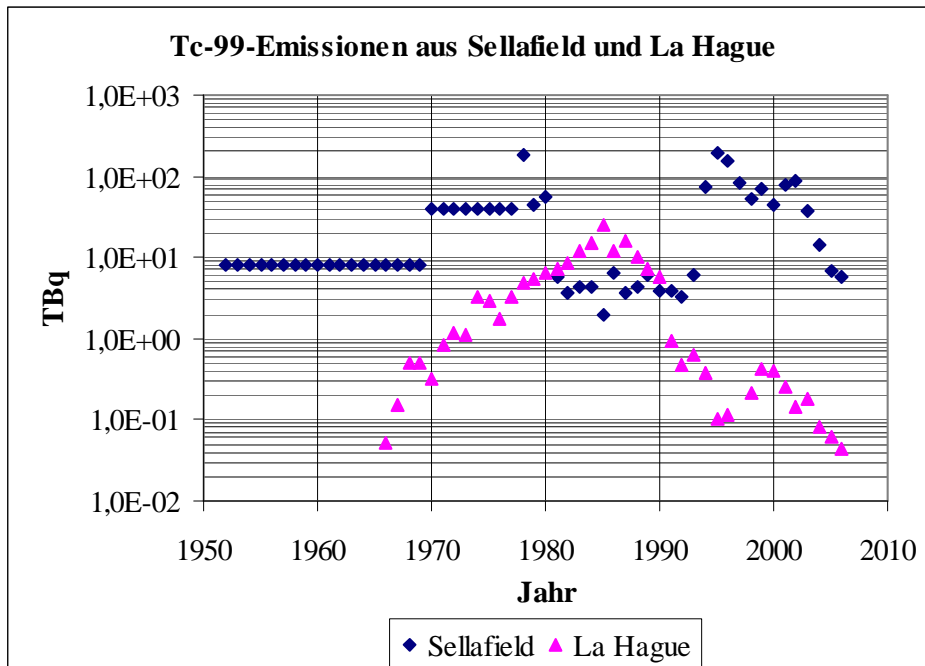


Abbildung 96: Zeitlicher Verlauf der flüssigen  $^{99}\text{Tc}$ -Emissionen aus La Hague und Sellafield.

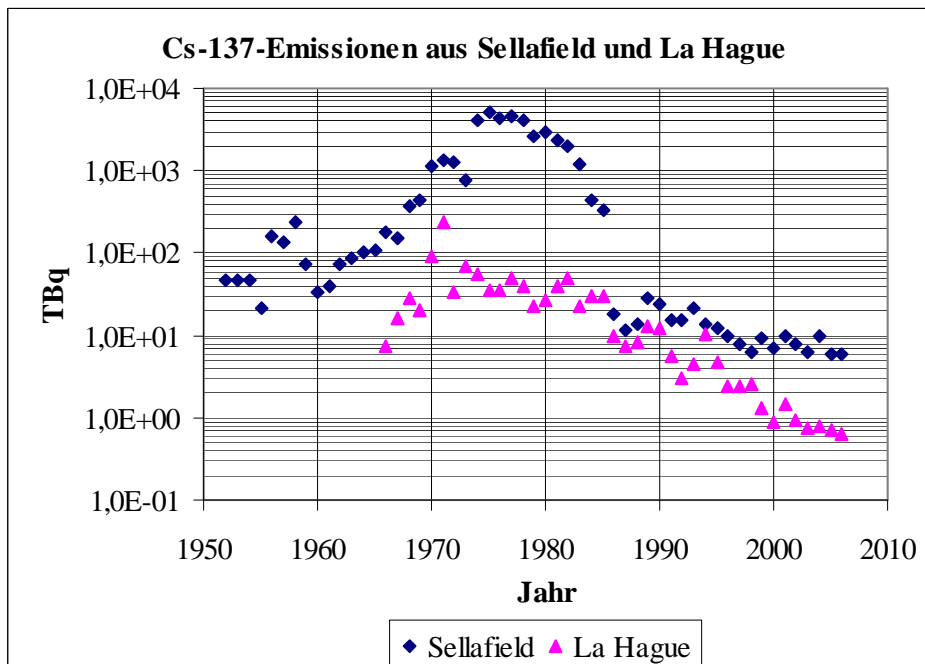


Abbildung 97: Zeitlicher Verlauf der flüssigen  $^{137}\text{Cs}$ -Emissionen aus La Hague und Sellafield.

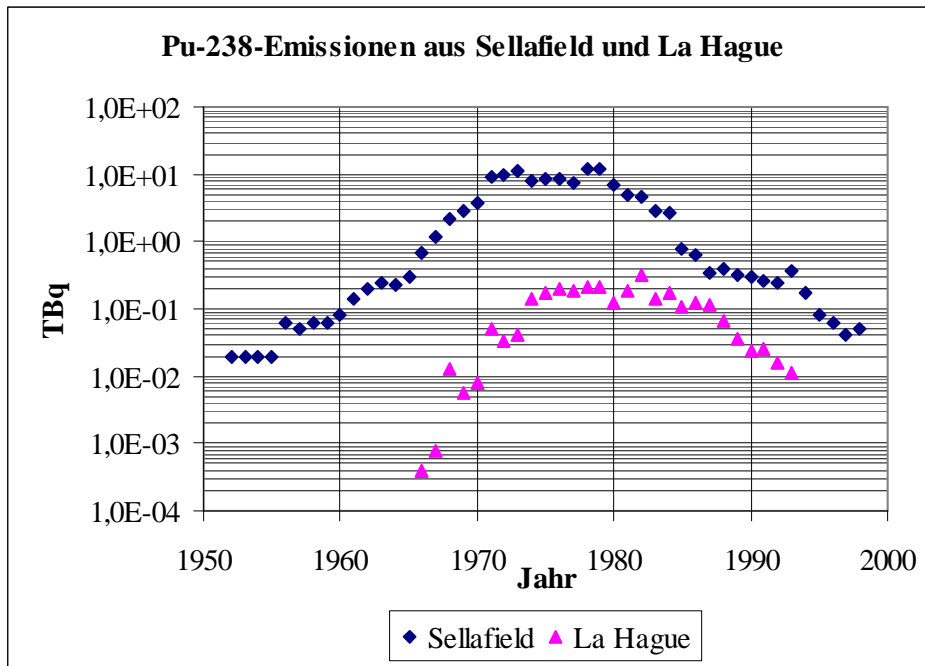


Abbildung 98: Zeitlicher Verlauf der flüssigen <sup>238</sup>Pu-Emissionen aus La Hague und Sellafield.

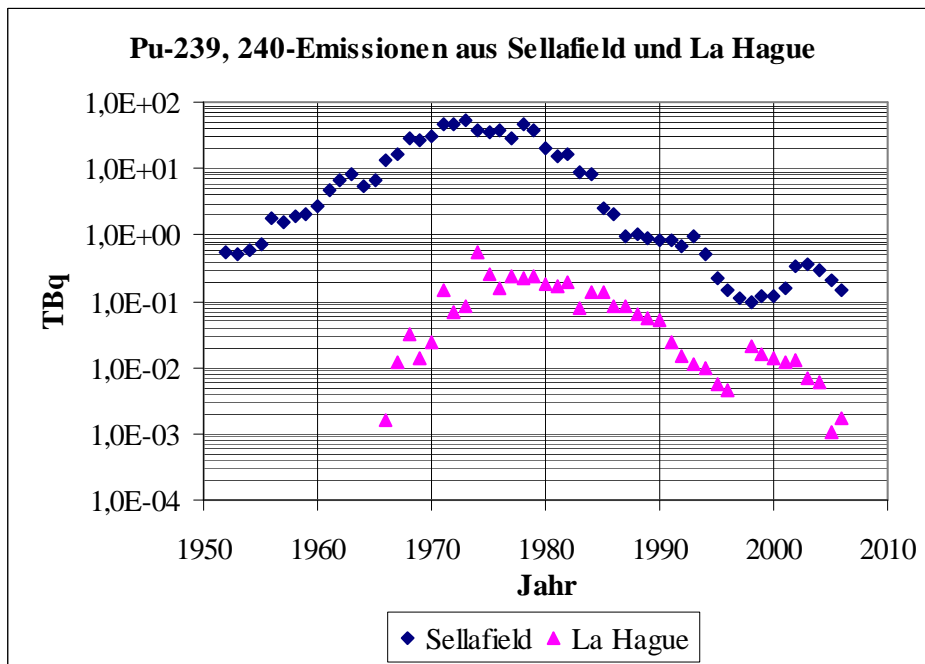


Abbildung 99: Zeitlicher Verlauf der flüssigen <sup>239, 240</sup>Pu-Emissionen aus La Hague und Sellafield.

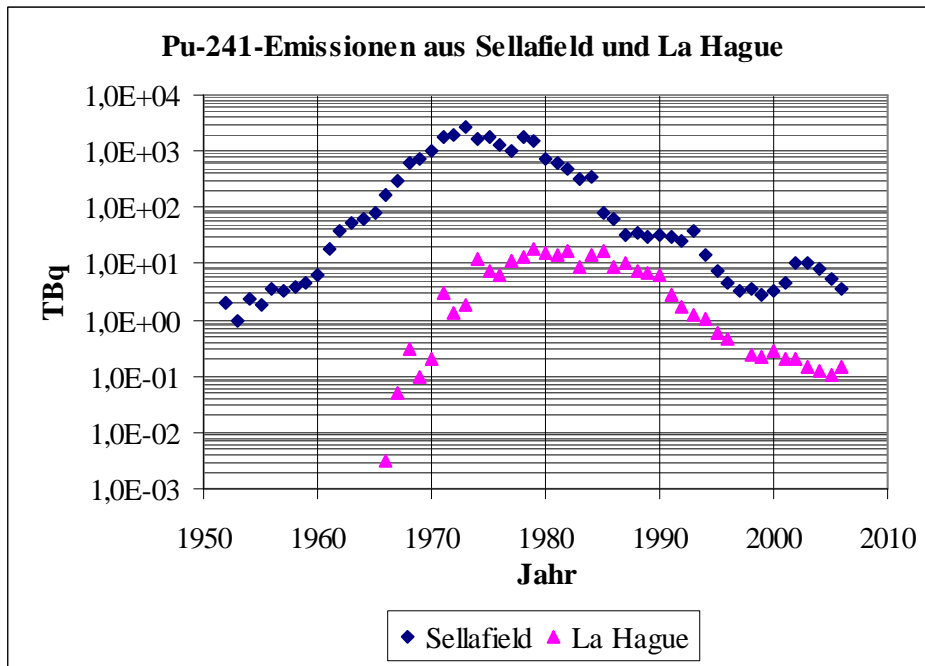


Abbildung 100: Zeitlicher Verlauf der flüssigen <sup>241</sup>Pu-Emissionen aus La Hague und Sellafield.

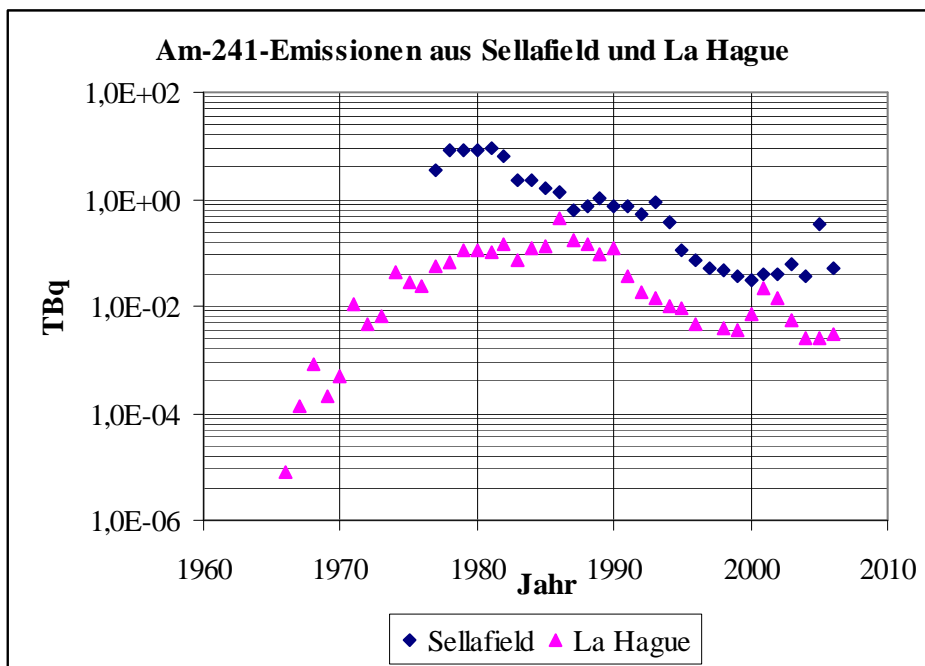


Abbildung 101: Zeitlicher Verlauf der Americium-241-Emissionen aus La Hague und Sellafield (soweit Daten verfügbar). Zu beachten ist, dass das Hauptintervall zwecks besserer Übersichtlichkeit an der Y-Achse 100 TBq beträgt und nicht wie in den übrigen Abbildungen 10 TBq.



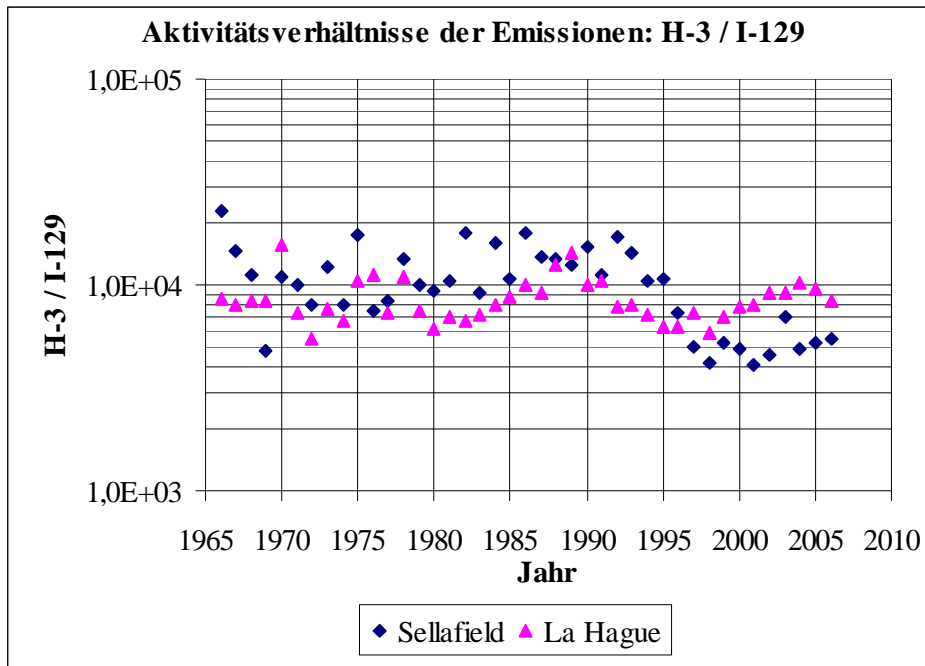


Abbildung 102:  $^3\text{H}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafeld im zeitlichen Verlauf.

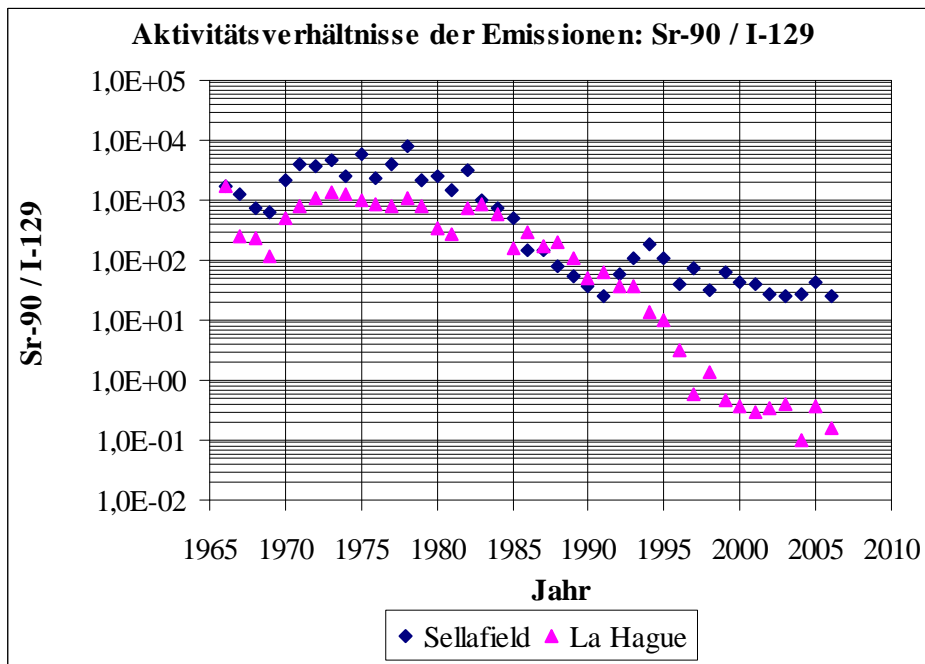


Abbildung 103:  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafeld im zeitlichen Verlauf.

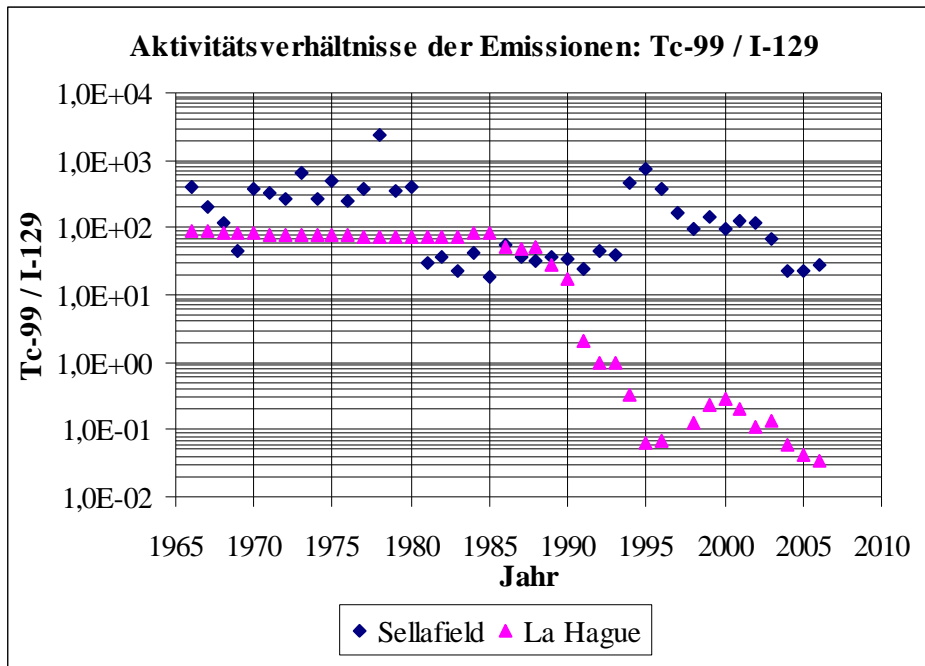


Abbildung 104:  $^{99}\text{Tc}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafeld im zeitlichen Verlauf.

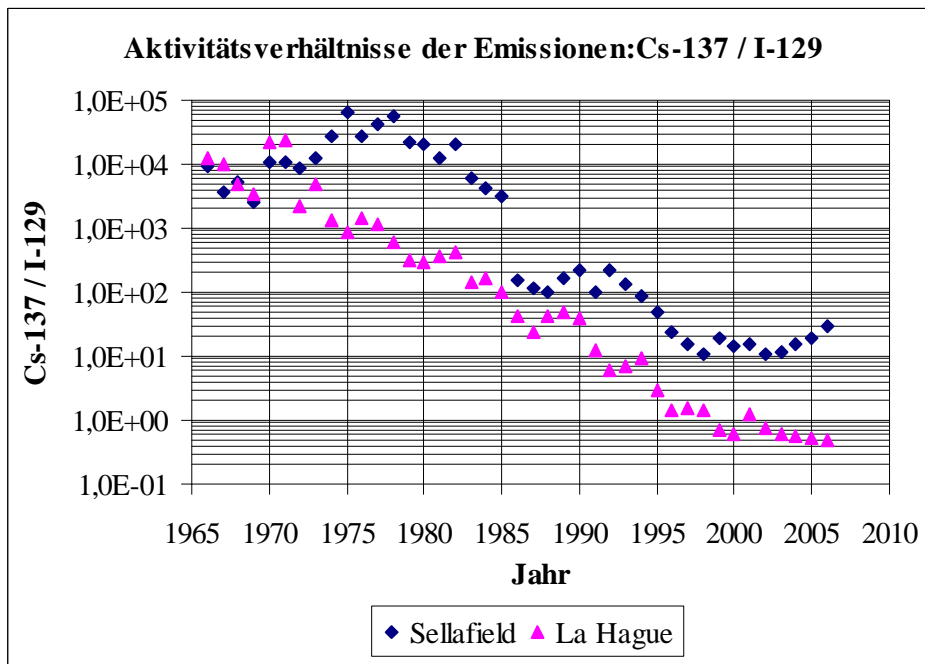


Abbildung 105:  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafeld im zeitlichen Verlauf.

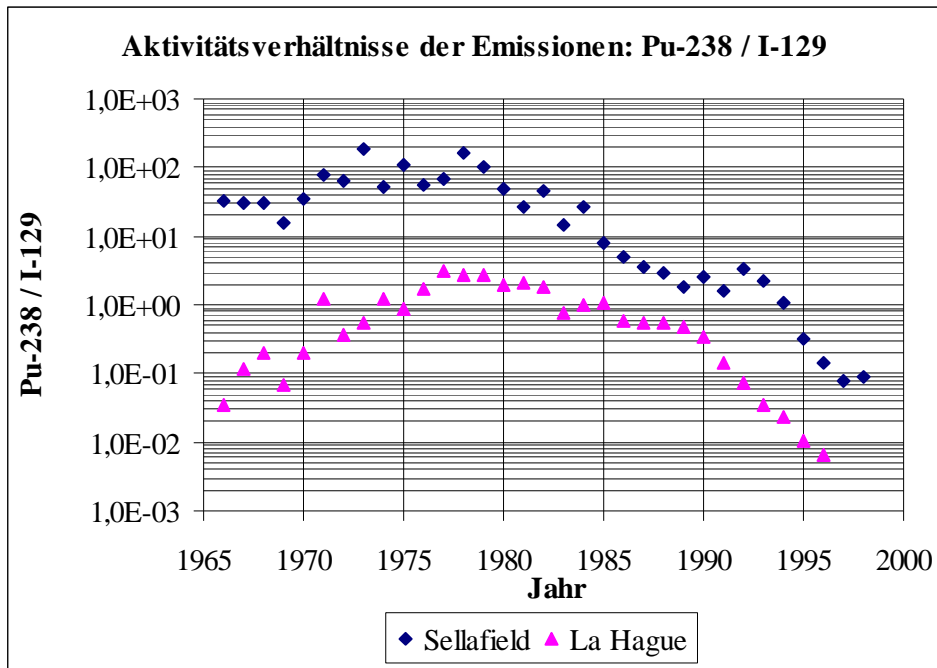


Abbildung 106:  $^{238}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafeld im zeitlichen Verlauf.

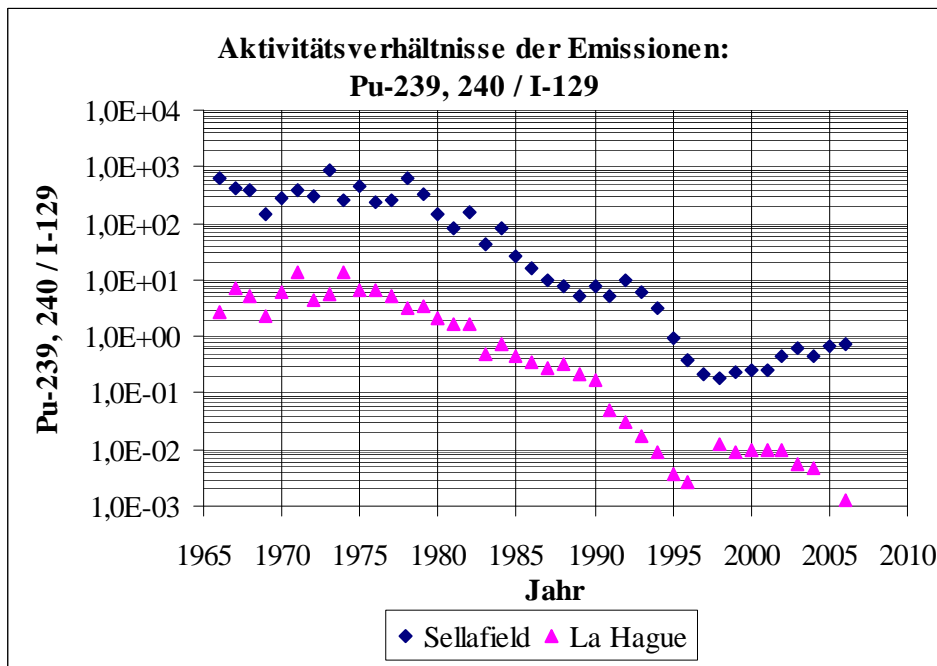
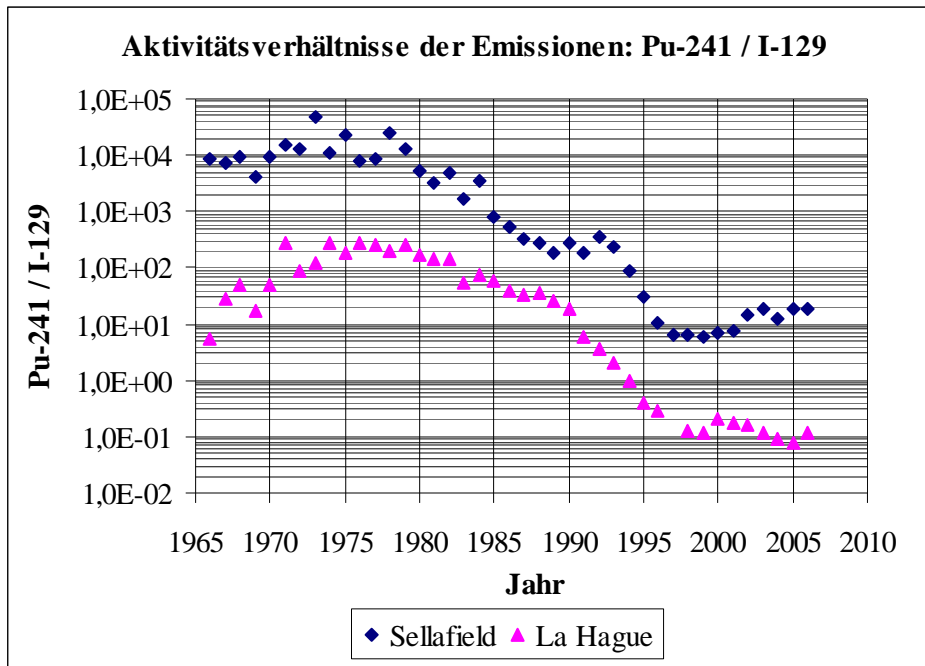
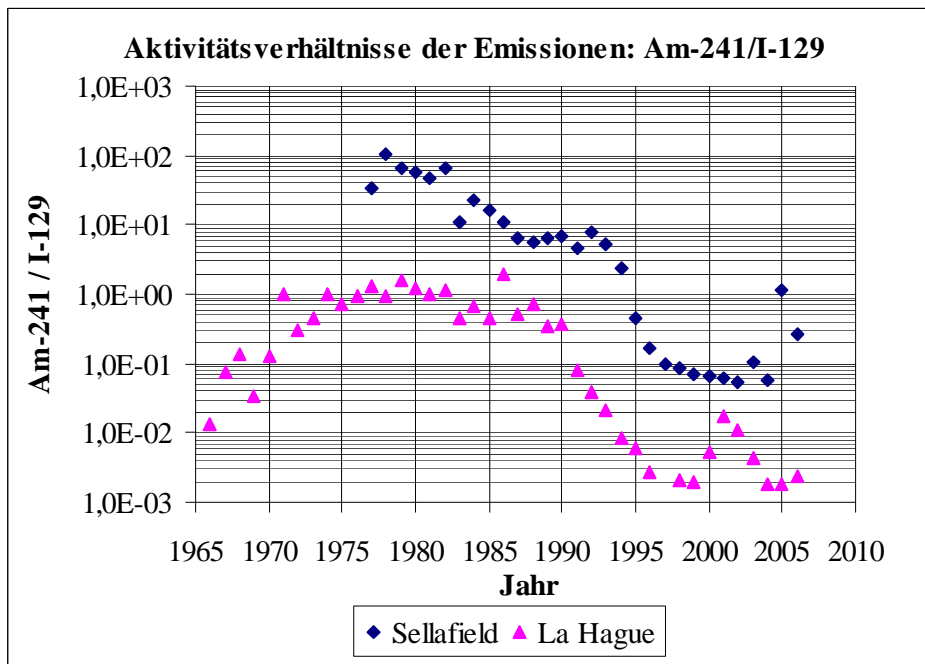


Abbildung 107:  $^{239, 240}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafeld im zeitlichen Verlauf.



**Abbildung 108:**  $^{241}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafield im zeitlichen Verlauf.



**Abbildung 109:**  $^{241}\text{Am}/^{129}\text{I}$ -Aktivitätsverhältnisse der flüssigen Emissionen aus La Hague und Sellafield im zeitlichen Verlauf.

## Anhang II: Zusammenfassung der Analysenergebnisse

### Zusammenfassung der Iod-129-Ergebnisse

**Tabelle A1: Ergebnisse der ersten Beprobungsfahrt, Deutsche Bucht vom 25.05. bis 05.06.2005, Gauß 440.**

Stati- on	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
	Stade	54,37	9,327	25.05.2005	5	0,4	16,2	0,48	± 0,03	3,1	± 0,2	9,5	± 0,2	49	± 3				
	MEDEM	53,53	8,43	25.05.2005	5	22,23	13,1	44,5	± 1,9	290,8	± 12,1	29,7	± 0,7	1477	± 71				
	KS 11	54,04	8,075	25.05.2005	5		13,7	55,2	± 2,1	360,6	± 13,8	36,4	± 1,1	1494	± 72				
	Elbe 1	54	8,065	26.05.2005	0	32,3	-	45,6	± 2,2	298	± 14,7	32,4	± 0,7	1387	± 74				
	Elbe 1	54	8,065	26.05.2005	5	32,3	11,6	55,4	± 2,2	361,7	± 14,1	33,8	± 0,5	1614	± 68				
	Elbe 1	54	8,065	26.05.2005	10	32,4	-	52,1	± 2,2	340,7	± 14,1	35,9	± 0,9	1429	± 69				
	Elbe 1	54	8,065	26.05.2005	20	32,5	-	48,7	± 2,3	318,6	± 15,1	31	± 1,6	1550	± 110				
	UFSDB	54,107	7,26	26.05.2005	5	33,6	11,7	41	± 1,8	267,8	± 11,7	35,3	± 0,6	1142	± 54				
	AMRU1	54,3	8,1	01.06.2005	5	30,3	13,5	54,9	± 2,2	358,6	± 14,1	32,3	± 0,9	1674	± 81				
	SYLT1	55	8	01.06.2005	5	31,3	12,8	45,3	± 1,8	296,2	± 11,9	32,9	± 0,8	1358	± 64				
	URST3	55	6,47	02.06.2005	5	34,1	11,4	27,3	± 1,5	178,3	± 9,6	38	± 0,6	706	± 40				
	SWWBA	54,4	5,3	03.06.2005	0	34,5	-	6,1	± 1,2	40,1	± 7,9	40,7	± 0,8	148	± 29				
	SWWBA	54,4	5,3	03.06.2005	5	34,5	11,9	7,8	± 1,2	51	± 8	40,7	± 1,7	189	± 31				
	SWWBA*	54,4	5,3	03.06.2005	10	34,5	-	5,5	± 1,2	35,9	± 7,7	39,4	± 1,3	137	± 30				
	SWWBA*	54,4	5,3	03.06.2005	10	34,5	-	7,5	± 0,3	49	± 1,7	39,4	± 1,3	187,18	± 8,93				
	SWWBA	54,4	5,3	03.06.2005	42	34,5	-	8,7	± 1,2	56,7	± 7,9	41	± 0,7	209	± 29				
	NEFB	54,2	5,4	03.06.2005	5	34	12,1	16,6	± 1,3	108,7	± 8,2	39,9	± 0,7	410	± 32				

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben

**Tabelle A1 (Fortsetzung): Ergebnisse der ersten Beprobungsfahrt, Deutsche Bucht vom 25.05. bis 05.06.2005, Gauß 440.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
	WBANK	54,4	6,15	03.06.2005	0	34,1	-	16,7	± 1,5	109,3	± 9,9	37,7	± 0,7	437	± 40				
	WBANK	54,4	6,15	03.06.2005	5	34,1	12,4	16,2	± 1,3	106	± 8,3	38	± 0,7	420	± 34				
	WBANK	54,4	6,15	03.06.2005	10	34,1	-	17	± 1,3	111,1	± 8,6	37,2	± 0,5	450	± 35				
	WBANK	54,4	6,15	03.06.2005	40	34,1	-	21,5	± 1,4	140,2	± 9,1	37,3	± 0,7	566	± 38				
	NGW8	54,2	6,47	03.06.2005	0	33,7	-	38,7	± 1,7	252,8	± 11,4	36,1	± 1	1054	± 55				
	NGW8**	54,2	6,47	03.06.2005	5	33,7	12	40,4	± 1,8	264,3	± 11,8	38,9	± 0,9	1023	± 52				
	NGW8	54,2	6,47	03.06.2005	5	33,7	12	42,3	± 1,8	276,5	± 11,9	37,7	± 0,8	1104	± 53				
	NGW8	54,2	6,47	03.06.2005	10	33,7	-	38,9	± 1,6	254,1	± 10,5	34,3	± 1,4	1116	± 65				
	NGW8	54,2	6,47	03.06.2005	36	33,8		38,6	± 1,7	252,1	± 11	36,7	± 0,6	1036	± 48				
	BRGRU	53,565	6,12	04.06.2005	5	33,3	-	34,3	± 1,6	224,5	± 10,4	37,3	± 0,8	907	± 47				
	BRIFF**	53,405	6,25	04.06.2005	5	32,2	13,5	50,6	± 2	330,7	± 13,2	40,7	± 0,9	1223	± 56				
	BRIFF	53,405	6,25	04.06.2005	5	32,2	13,5	52,6	± 3	343,7	± 19,6	41,7	± 1,6	1243	± 86				
	NORDE	53,48	7,1	04.06.2005	5	31,9	13,9	69,5	± 2,5	454,1	± 16,5	38,4	± 0,8	1783	± 75				
	WESER	53,51	8	05.06.2005	5	32	14,3	73,9	± 2,7	483,1	± 17,4	40,3	± 0,8	1806	± 74				

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben

\*\* nach Probennahme nicht mit NaOH versetzt

**Tabelle A2: Ergebnisse der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
1	STADE	53,371	9,328	10.08.2005	0	1,51	19,6	1,05	± 0,05	6,9	± 0,3	11	± 1	94	± 2				
2	MEDEM-Reede	53,525	8,437	10.08.2005	0	20,92	17,5	43,1	± 1,8	281,9	± 11,6	29,1	± 1	1457	± 78				
10	TSS of Texel	52,599	4	11.08.2005	0	34,86	16,7	32,2	± 1,3	210,5	± 8,7	34,1	± 0,9	929	± 46				
14	Outer Gabbard	51,599	2	11.08.2005	0	34,69	18	31,3	± 1,3	204,7	± 8,5	36,3	± 1	850	± 42				
901	örtl.Falls Gap	51,3	2	12.08.2005	0	34,94	17,8	60,2	± 2,5	393,4	± 16,2	35,2	± 1,1	1685	± 86				
902*	Str. von Dover	51,05	1,3	12.08.2005	0	34,94	18,2	53,7	± 2,2	350,9	± 14,5	56,4	± 1,3	936	± 44				
902*	Str. von Dover	51,05	1,3	12.08.2005	0	34,94	18,2	54,6	± 2,3	356,7	± 14,7	56,4	± 1,3	952	± 45				
903	O-Meridian	50,3	0	12.08.2005	0	35,11	17,5	79,1	± 3,3	517	± 21,3	41,5	± 1,8	1878	± 112				
904	NE Casquettes	50,2	-2	12.08.2005	0	35,18	17,8	27	± 1,1	176,4	± 7,3	41,5	± 1,5	640	± 35				
905	SSW-lich Start Point	49,5	-4	13.08.2005	0	35,32	19	1,8	± 0,1	11,9	± 0,6	42,8	± 0,7	42	± 2				
906*	NW-lich Ouessant	49	-6	13.08.2005	0	35,3	19,6	0,58	± 0,04	3,8	± 0,3	41,5	± 2	14	± 1				
906*	NW-lich Ouessant	49	-6	13.08.2005	0	35,3	19,6	0,51	± 0,04	3,3	± 0,3	37,9	± 0,7	13	± 1				
906	NW-lich Ouessant	49	-6	13.08.2005	50	35,33	10,8	0,29	± 0,04	1,9	± 0,2	37,6	± 0,5	7,5	± 1				
906*	NW-lich Ouessant	49	-6	13.08.2005	100	35,33	10,8	0,96	± 0,05	6,3	± 0,4	37,8	± 0,8	25	± 2				
906*	NW-lich Ouessant	49	-6	13.08.2005	100	35,33	10,8	1,8	± 0,1	11,8	± 0,6	37,8	± 0,8	47	± 2				

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben

**Tabelle A2 (Fortsetzung): Ergebnisse der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
907*	VTG- Ouessant	48,4	-5	13.08.2005	0	35,32	17	0,5	±	0,09	3,3	±	0,6	44,3	±	1,7	11	±	2
907*	VTG- Ouessant	48,4	-5	13.08.2005	0	35,32	17	0,25	±	0,01	1,7	±	0,1	33,7	±	0,9	7,4	±	0,4
907	VTG- Ouessant	48,4	-5	13.08.2005	50	35,34	12,7	0,11	±	0	0,7	±	0	31,2	±	0,9	3,5	±	0,2
907*	VTG- Ouessant	48,4	-5	13.08.2005	100	-		0,37	±	0,09	2,4	±	0,6	38	±	1,1	9,5	±	2,4
907*	VTG- Ouessant	48,4	-5	13.08.2005	100	-	-	0,24	±	0,01	1,6	±	0,1	50	±	0,8	4,8	±	0,2
908	W-lich Guern- sey	49,3	-3	14.08.2005	0	35,23	18	15,6	±	0,6	102,2	±	4,2	41,2	±	1,4	373	±	20
909	Cap de la Hague	49,55	-1,599	14.08.2005	0	35,12	17,9	76,2	±	3,1	497,8	±	20,6	39,8	±	0,9	1884	±	89
910	N-lich Le Havre	50	0	14.08.2005	0	34,76	17,6	129,1	±	5,3	843,4	±	34,8	39,7	±	0,8	3199	±	147
911	Cap Griz Nez	50,5	1,3	15.08.2005	0	34,66	18,9	90,8	±	3,7	593,3	±	24,5	42,5	±	1	2101	±	100
911	Cap Griz Nez	50,5	1,3	15.08.2005	20	34,69	18,2	89,4	±	3,7	584,1	±	24,1	40,4	±	0,9	2176	±	102
911	Cap Griz Nez	50,5	1,3	15.08.2005	33	-		89,2	±	3,7	583,1	±	24,1	39,3	±	1,1	2235	±	110
13	Bligh Bank	51,422	2,514	15.08.2005	0	34,4	18,5	71,4	±	2,9	466,6	±	19,3	33,3	±	1,1	2109	±	110
13	Bligh Bank	51,422	2,514	15.08.2005	36	-	-	70,5	±	2,9	461	±	19	32,1	±	1	2165	±	110
12	Maas Appro- ach	51,585	3,44	15.08.2005	0	30,69	18,6	63,7	±	2,6	416,3	±	17,2	47,1	±	3,6	1331	±	116
11	Ijmuiden Appr.	52,3	4,2	15.08.2005	0	31,51	18,2	56,8	±	2,3	371,3	±	15,3	45,3	±	1,7	1234	±	69
15	Noord Hinder	52,3	2,5	16.08.2005	0	34,84	17	36,8	±	1,5	240,6	±	9,9	51,5	±	0,7	703	±	31
16	Dowsings	53,2	1,4	16.08.2005	0	34,71	16,2	2,5	±	0,1	16,6	±	0,7	35,7	±	0,4	70	±	3
46		59	-1,3	17.08.2005	0	35,29	14,2	0,8	±	0	5	±	0,3	48,5	±	1,1	16	±	1
46		59	-1,3	17.08.2005	45	35,28	11,41	0,48	±	0,04	3,1	±	0,3	45,8	±	1	10	±	1
46		59	-1,3	17.08.2005	97	-	-	0,28	±	0,04	1,8	±	0,2	41,4	±	0,8	6,7	±	0,9

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben



**Tabelle A2 (Fortsetzung): Ergebnisse der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling-depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
53	E-lich Shetlands	60	-0,3	17.08.2005	0	35,31	13,6	0,27	±	0,04	1,8	±	0,2	44,7	±	0,9	6	±	0,8
53	E-lich Shetlands	60	-0,3	17.08.2005	60	35,37	9,33	0,27	±	0,04	1,8	±	0,2	46	±	1	5,8	±	0,8
53	E-lich Shetlands	60	-0,3	17.08.2005	120	35,37	8,1	0,22	±	0,04	1,4	±	0,2	45,6	±	1,1	4,7	±	0,8
52	Bergenbanken	60	2	18.08.2005	0	34,02	13,7	4,5	±	0,2	29,4	±	1,3	40	±	0,7	111	±	5
51	E-lich Bergenbank	60	4,3	18.08.2005	0	33	13,8	9,3	±	0,4	60,9	±	2,5	39,8	±	0,8	231	±	11
51	E-lich Bergenbank	60	4,3	18.08.2005	100	35,23	7,8	1,7	±	0,1	11,2	±	0,5	44,9	±	1,1	38	±	2
51	E-lich Bergenbank	60	4,3	18.08.2005	250	-	-	1,5	±	0,1	9,6	±	0,5	43,1	±	1,4	34	±	2
50	w-lich Boknafjord	59	4,29	18.08.2005	0	32,58	14,8	13,7	±	0,6	89,2	±	3,7	40,5	±	0,5	332	±	14
50	w-lich Boknafjord	59	4,29	18.08.2005	100	35,29	8,23	0,9	±	0,05	5,9	±	0,3	45	±	0,8	20	±	1
50	w-lich Boknafjord	59	4,29	18.08.2005	230	-	-	1,4	±	0,1	8,9	±	0,4	43,4	±	0,8	31	±	2
49	Utsiragrunnen	59	3	19.08.2005	0	34,01	14,7	4,8	±	0,2	31,5	±	1,3	42	±	1	113	±	6
48		59	1	19.08.2005	0	33,87	14,8	2,8	±	0,1	18,5	±	0,7	44,4	±	1,3	63	±	3
47	E-lich Orkneys	59	0	19.08.2005	0	34,8	14,3	2,1	±	0,1	13,7	±	0,6	43	±	1,3	48	±	3
45	Bosies Bank	57,595	-0,599	20.08.2005	0	35,16	14	1,6	±	0,1	10,5	±	0,5	36,9	±	0,3	43	±	2
44	Andrew Oilfield	57,599	1,301	20.08.2005	0	35,17	14,2	1,9	±	0,1	12,2	±	0,8	57,4	±	2,1	32	±	2
43	Midtbanken	58	3	20.08.2005	0	33,16	15,3	7,6	±	0,3	49,7	±	2,1	34,6	±	0,6	216	±	10
42	Eigersundbanken	58	4,598	21.08.2005	0	32,55	15,2	11,1	±	0,5	72,7	±	3	35,1	±	0,5	312	±	14
41	SW-lich Listafjord	58	6	21.08.2005	0	30,87	17,1	10,8	±	0,5	70,6	±	2,9	48,9	±	0,6	218	±	9
40	Skagerrak	57,485	8	21.08.2005	0	29,12	18,4	11,7	±	0,5	76,2	±	3,2	29,8	±	1	385	±	21
40	Skagerrak	57,485	8	21.08.2005	200	35,25	7,07	1,4	±	0,1	9,2	±	0,5	37,2	±	1	37	±	2
40*	Skagerrak	57,485	8	21.08.2005	512	-	-	2,1	±	0,1	13,8	±	0,6	36,3	±	1,1	57	±	3
40*	Skagerrak	57,485	8	21.08.2005	512	-	-	2,2	±	0,1	14,4	±	0,7	43,8	±	0,5	50	±	2

**Tabelle A.2 (Fortsetzung): Ergebnisse der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling-depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>9</sup>		
39*	Hanstholm	57	7,58	21.08.2005	0	31,45	16,8	9	±	0,4	59	±	2,5	39,2	±	0,7	227	±	10
39*	Hanstholm	57	7,58	21.08.2005	0	31,45	16,8	8,9	±	0,3	58,2	±	1,9	35,6	±	1	246	±	11
39	Hanstholm	57	7,58	21.08.2005	15	33,67	15,13	22	±	0,9	144,1	±	6	40,6	±	0,6	535	±	23
39	Hanstholm	57	7,58	21.08.2005	30	-	-	21,4	±	0,9	140,1	±	5,8	40,4	±	0,9	523	±	25
38		57	6	22.08.2005	0	33	16,7	7,5	±	0,3	48,8	±	1,6	36,9	±	1	200	±	9
37		57	5	22.08.2005	0	33,44	16,5	7,2	±	0,3	47	±	2	41,6	±	1,8	170	±	10
36		56,599	3,304	22.08.2005	0	33,31	16,1	6,5	±	0,3	42,7	±	1,9	41,7	±	1,8	154	±	9
35	Banff Plattform	57,001	1,226	22.08.2005	0	34,95	15,3	2	±	0,1	13,2	±	0,7	46	±	1,9	43	±	3
34*		57	-1	23.08.2005	0	34,97	13,8	2,8	±	0,1	18,1	±	0,9	44,4	±	1,8	62	±	4
34*		57	-1	23.08.2005	0	34,97	13,8	2,8	±	0,1	18,2	±	0,9	44,4	±	1,8	62	±	4
34*		57	-1	23.08.2005	0	34,97	13,8	2,9	±	0,1	18,9	±	0,9	44,4	±	1,8	64	±	4
34*		57	-1	23.08.2005	39	34,98	12,1	2,9	±	0,1	18,7	±	0,9	44,3	±	1,8	64	±	4
34*		57	-1	23.08.2005	39	34,98	12,1	2,7	±	0,1	17,7	±	0,9	44,3	±	1,8	60	±	4
34*		57	-1	23.08.2005	39	34,98	12,1	2,6	±	0,1	17,3	±	0,8	44,3	±	1,8	59	±	4
34		57	-1	23.08.2005	70	34,98	12,09	3,3	±	0,2	21,5	±	1	44,1	±	1,8	74	±	5
33	Berwick Bank	56	-1	24.08.2005	0	34,87	15	2,8	±	0,1	18,4	±	0,7	46	±	1,4	60	±	3
32	Swallow Hole	56	0	24.08.2005	0	34,9	15,2	2,7	±	0,1	17,4	±	0,6	40,8	±	0,8	64	±	3
31	nördl.EastBank	55,597	0,599	24.08.2005	0	34,97	15	2,5	±	0,1	16,3	±	0,6	40,3	±	0,9	61	±	3
29	N of Dogger-bank	56	3	24.08.2005	0	35,01	15,2	0,9	±	0,1	6	±	0,7	46,1	±	1,4	19	±	2
30	N of Dogger-bank	56	2	24.08.2005	0	34,9	15,4	2,6	±	0,1	17,1	±	0,6	40,7	±	0,9	64	±	3
28a	Roar Gas Field/Ente2	55,458	4,15	25.08.2005		34,94	15,5	1,7	±	0,1	11,2	±	0,5	42,7	±	1,3	39	±	2

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben

**Tabelle A.2 (Fortsetzung): Ergebnisse der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>9</sup>		
28	Coffee Soil	56	5	25.08.2005	0	34,73	16	6,2	± 0,3	40,8	± 1,8	39,7	± 1,8	155	± 10				
27		56	6	25.08.2005	0	33,97	16,7	27,3	± 1,1	178,6	± 7,4	36,7	± 1	733	± 37				
26	W of Ringkö- bing	56	7,43	25.08.2005	0	32,67	17	43,3	± 1,8	283,1	± 11,7	34,6	± 0,9	1233	± 60				
25	Lister Tief	55	8,15	26.08.2005	0	30,81	17,6	55,1	± 2,3	360,3	± 14,9	34,3	± 1	1581	± 79				
25	Lister Tief	55	8,15	26.08.2005	4	30,82	16,91	53,1	± 2,2	347	± 14,4	34,4	± 1	1520	± 76				
25	Lister Tief	55	8,15	26.08.2005	14	-	-	53,8	± 2,2	351,7	± 14,6	35,8	± 1	1481	± 74				
23	Sylt 2	55	7,35	26.08.2005	0	32,1	17	52,1	± 1,7	340,4	± 10,8	34,3	± 1	1493	± 64				
22	Weisse Bank	55	6,15	26.08.2005	0	34,25	16,2	11,2	± 0,6	73,2	± 4	42,2	± 1,3	261	± 16				
21	Nord- schillgrund	55,06	5	26.08.2005	0	34,93	16	2,3	± 0,1	15,1	± 0,6	43,7	± 1,3	52	± 3				
20	Elbow Spit	55	4	26.08.2005	0	34,99	15,8	1,9	± 0,1	12,6	± 0,5	44,5	± 1,4	43	± 2				
19	Dogger Bank	55	2	27.08.2005	0	34,83	15,1	2	± 0,1	13	± 0,9	40,3	± 0,9	49	± 4				
18	Barmada Bank	55	0	27.08.2005	0	34,8	15,8	2,8	± 0,1	18,6	± 0,7	45,5	± 1,3	62	± 3				
17	Neptune Gas Field	54	1	27.08.2005	0	34,73	15,1	2,3	± 0,1	14,8	± 0,7	36,7	± 1	61	± 3				
17	Neptune Gas Field	54	1	27.08.2005	40	-	-	2,2	± 0,1	14,3	± 0,6	36,4	± 1,1	59	± 3				
9	Botney Cut	54	3	28.08.2005	0	34,98	15,6	1,9	± 0,1	12,4	± 0,6	37,9	± 0,6	49	± 2				
8	VTG Friesland	54	4,5	28.08.2005	0	34,52	16,9	4,6	± 0,2	30,3	± 1,3	38,1	± 0,6	120	± 5				
7	Borkumriff- grund	54	6,25	28.08.2005	0	33,91	17,7	41,5	± 1,7	271	± 11,2	31,5	± 1,1	1295	± 70				
3	Tn.Elbe	54	8,065	29.08.2005	0	31,39	17,8	54,9	± 2,3	358,7	± 14,8	50,5	± 1	1071	± 49				

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben

**Tabelle A.3: Ergebnisse der Anschlussfahrt über die Deutsch Bucht vom 29.08. - 05.09.2005, Gauß 446b.**

Stati- on	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>9</sup>		
	Elbe1	54	8,06	29.08.2005	0	30,47	17,9	55,29	±	2,28	361,3	±	14,9	36,9	±	1,2	1474	±	77
	UFSDB	54,107	7,26	30.08.2005	0	32,88	17,5	49,5	±	2	323,2	±	13,3	46,5	±	2,6	1047	±	72
	AMRU1	54,3	8,1	30.08.2005	0	30,66	18,1	55,83	±	2,3	364,8	±	15,1	53,1	±	2,5	1034	±	64
	SYLT1	55	8	31.08.2005	0	31,13	17,7	59,4	±	2,5	387,9	±	16	38,4	±	2,9	1520	±	131
	URST3	55	6,47	01.09.2005	0	33,47	17,4	40,5	±	1,7	264,9	±	10,9	55,8	±	2,4	715	±	42
	URST5	55,23	6,151	01.09.2005	0	34,35	16,7	17,3	±	0,7	113	±	4,7	49,5	±	2	344	±	20
	WBANK	54,4	6,15	01.09.2005	0	34,38	16,7	12,7	±	0,5	83	±	3,5	43,1	±	3,6	290	±	27
	ENTE1	55,24	4,45	02.09.2005	0	35,02	-	2,1	±	0,1	13,5	±	0,8	49,8	±	2,3	41	±	3
	SWWBA	54,4	5,3	02.09.2005	0	34,71	16,9	3,6	±	0,2	23,5	±	1,1	44,4	±	2,6	80	±	6
	NEFB	54,2	5,4	02.09.2005	0	34,57	17,6	8,2	±	0,3	53,4	±	2,3	47,4	±	3,9	170	±	16
	NGW8	54,2	6,47	03.09.2005	0	33,56	17,9	40,47	±	1,67	264,5	±	10,9	43,8	±	2,2	909	±	60
	BRGRU	53,565	6,12	03.09.2005	0	33,54	18,3	48,54	±	2	317,2	±	13,1	42,3	±	1,6	1129	±	63
	BRIFF	53,405	6,25	04.09.2005	0	32,5	18,2	52,03	±	2,15	340	±	14	31,5	±	0,5	1626	±	72
	NORDE	53,48	7,1	04.09.2005	0	32,2	18,3	52,13	±	2,15	340,7	±	14,1	34,7	±	0,7	1481	±	68
	WESER	53,509	8	04.09.2005	0	31,6	18,3	55,3	±	2,3	361,6	±	14,9	28,5	±	0,6	1914	±	89

**Tabelle A.4: Ergebnisse Nordatlantikkprobungen durch die Polarstern, 16.08.2005 bis 16.09.2005, fehlende Daten konnten aufgrund einer Molybdänstörung nicht verwendet werden.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g	±		in µBq/l	±		in ng/g	±		in 10 <sup>-9</sup>	±	
280	Nordatlantik 1	78,4974	5,0144	26.08.2005	2	-	-	0,53	±	0,02	3,44	±	0,15	38,0	±	0,6	13,64	±	0,59
280	Nordatlantik 2	78,4974	5,0144	26.08.2005	200	-	-	0,23	±	0,01	1,51	±	0,08	42,8	±	1,9	5,32	±	0,36
	Nordatlantik 3	78,225	8,0284	28.08.2005	11	-	-	0,60	±	0,03	3,92	±	0,20	42,5	±	1,9	13,91	±	0,93
339	Nordatlantik 4	78,4998	-4,2004	06.09.2005	10	-	-						-	40,9	±	1,9	-	±	-
339	Nordatlantik 5	78,4998	-4,2004	06.09.2005	200	-	-	0,28	±	0,01	1,80	±	0,08	37,1	±	0,9	7,31	±	0,34
	Nordatlantik 6	76,49128	-8,4914	10.09.2005	11	-	-						-	37,9	±	0,7	-		-
	Nordatlantik 7	74,4839	1,5884	11.09.2005	11	-	-	0,19	±	0,01	1,24	±	0,05	42,7	±	0,7	4,36	±	0,19
	Nordatlantik 8	69,3972	11,3708	13.09.2005	11	-	-	1,23			8,02		-	44,2		1,0	27,33		-
	Nordatlantik 9	64,5772	6,1582	14.09.2005	11	-	-	0,96		0,04	6,30		0,27	45,7		0,9	20,79		0,94
	Nordatlantik 10	59,5052	4,134	16.09.2005	11	-	-	8,43	±	0,36	55,12	±	2,34	49,2	±	1,1	168,75	±	7,70

**Tabelle A.5: Ergebnisse der Beprobungen der Deutschen Bucht, 18.11.05 bis 28.11.05 Gauß 451.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>9</sup>		
5	Elbe 1	54	8,068	19.11.2005	0	33,45	-	44,6	± 1,8		290	± 110		36,1	± 1,7		1220	± 770	
18*	URST 5	55,23	6,151	22.11.2005	0	34,51	-	8,3	± 0,3		54,4	± 2,3		41,6	± 1		197	± 10	
18*	URST 5	55,23	6,151	22.11.2005	0	34,51	-	7,9	± 0,3		51,6	± 2,2		41,6	± 1		187	± 9	
20	Ente 3	55,55	3,21	23.11.2005	0	35,05	-	2,3	± 0,1		14,8	± 0,9		42,4	± 1,9		53	± 4	
36	BRIFB	53,405	6,25	25.11.2005	0	32,89	-	65	± 2,7		425,1	± 17,5		39,6	± 1,5		1618	± 92	

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben

**Tabelle A.6: Ergebnisse der Beprobungen der Irischen See durch die Endeavour, Fahrt 13/06 vom 23.06.06 bis 25.06.06.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>9</sup>		
32	Irische See	54,1500	-03,3000	23.06.2006	0	31,8	-	68,7	± 2,8		449,0	± 0,02		47,0	± 1,9		1440	± 84	
33	Irische See	54,2500	-03,3400	24.06.2006	0	31,3	-	123,4	± 5,1		806,5	± 0,03		47,7	± 2,6		2547	± 173	
41	Irische See	54,3507	-03,4306	24.06.2006	0	31,8	-	136,1	± 5,6		889,1	± 0,04		44,0	± 2,4		3046	± 208	
43	Irische See	54,3800	-03,5000	25.06.2006	0	33,3	-	31,9	± 1,3		208,4	± 0,01		49,8	± 0,7		630	± 27	

**Tabelle A.7: Ergebnisse der Beprobungen der Irischen See und der schottischen Küste durch das ZSR vom 30.07.06 bis 06.08.06.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
	N von Oban	56,2535	-5,291	30.07.2006	0	-	-	18,1	± 0,8		118,2	± 4,9		43,1	± 1,9		413	± 25	
	SW of Maror, S of Mallaig	56,5805	-5,507	01.08.2006	0	-	-	11	± 0,5		71,9	± 3		48,3	± 1,2		224	± 11	
	Ullapool	57,543	-5,1067	06.08.2006	0	-	-	8,7	± 0,4		56,7	± 2,4		62,9	± 1,2		136	± 6	

**Tabelle A.8: Ergebnisse von Ostseeproben, Gauß 461.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
	Arko 2	54,55	13,3	15.06.2006	0	-	-	1,1	± 0,1		6,8	± 0,7		9,7	± 0,7		106	± 13	
	Kibu 1	54,34	10,34	16.06.2006	0	-		4,5	± 0,2		29,5	± 1,4		19,4	± 1,1		229	± 17	

**Tabelle A.9 Einzelprobe Elbe 1, Gauß 465.**

Station	Name	Coordinates	Coordinates	Date	sampling depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		Lat	Lon		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
	Elbe 1	54	8,068	14.10.2006	0	-	-	56,33	± 2,33		368,14	± 15,2		35,2	± 1,1		1577,75	± 81,20	

**Tabelle A.10: Ergebnisse einiger „exotischer“ Proben und Proben von Spitzbergen.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	sampling -depth	Sal	T	I-129			I-129			I-127			I-129/I-127		
		DD.MMmm	DD.MMmm		in m	in PSU	in °C	in fg/g			in µBq/l			in ng/g			in 10 <sup>-9</sup>		
	Maui(Hawaii)	20,3844	-156,2682	28.07.1997	0	-	-	0,008	±	0	0,052	±	0,01	49	±	0,1	0,16	±	0,03
	Indian Ocean*	-06,3516	103,2357	26.10.2005	0	-	-	0,007	±	0	0,045	±	0,01	41,6	±	0,1	0,16	±	0,02
	Indian Ocean*	-06,3516	103,2357	26.10.2005	0	-	-	0,014	±	0	0,089	±	0,03	41,6	±	0,1	0,32	±	0,09
	Spitzbergen Brandalpynten	78,5688	11,5166	05.09.2005	9	34,4	3,2	0,54	±	0,02	3,6	±	0,1	35,7	±	0,3	15	±	0,6
	Spitzbergen Brandalpynten	78,5688	11,5166	05.09.2005	13	34,4	3,1	0,52	±	0,02	3,4	±	0,1	35,4	±	0,3	14,4	±	0,6

\* mehrfache Aufarbeitung identischer Proben



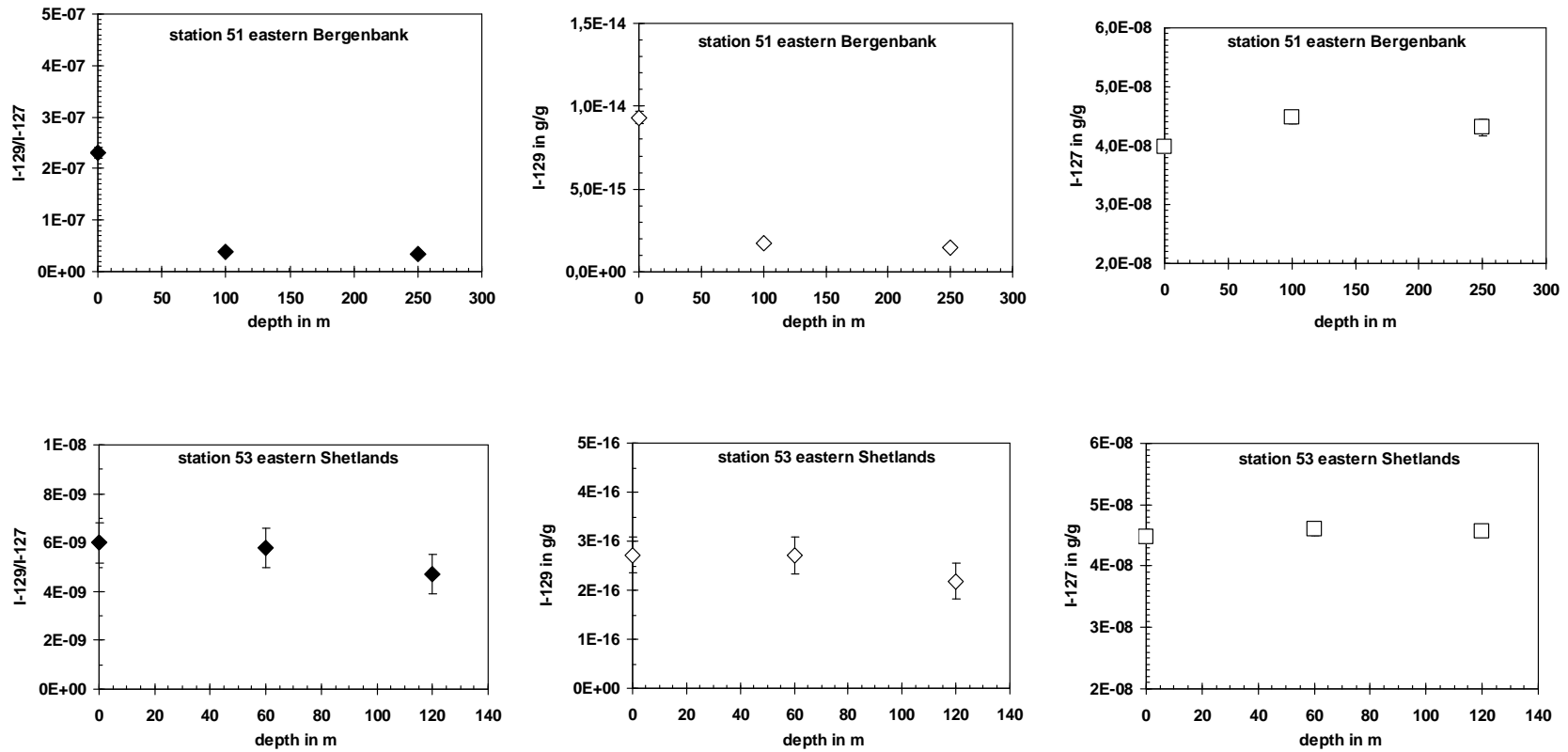
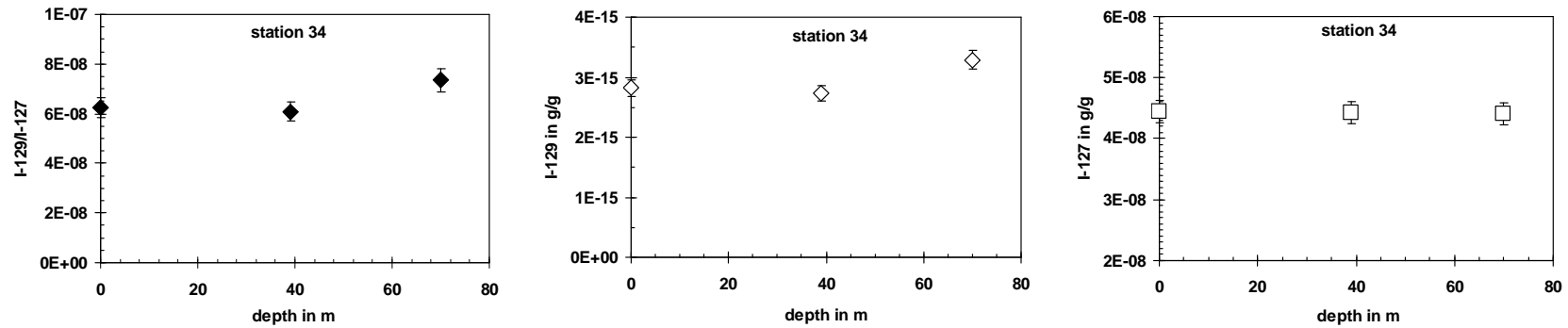


Abbildung 110: Tiefenprofile der Stationen 51 und 53 von der Nordseereise vom 29.08. - 05.09.2005, Gauß 446a. Bei sehr kleinen Fehlerbalken sind diese aufgrund der Größe der Symbole nicht mehr zu erkennen. Es werden sowohl die  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnisse als auch die  $^{129}\text{I}$ - und  $^{127}\text{I}$ -Konzentrationen in Abhängigkeit der Tiefe angegeben.



**Abbildung 111: Tiefenprofile (Station 34) von der Nordseereise vom 29.08. - 05.09.2005, Gauß 446a. Bei sehr kleinen Fehlerbalken sind diese aufgrund der Größe der Symbole nicht mehr zu erkennen. Es werden sowohl die  $^{129}I/^{127}I$ -Isotopenverhältnisse als auch die  $^{129}I$ - und  $^{127}I$ -Konzentrationen in Abhängigkeit der Tiefe angegeben.**

Diese Graphiken stellen nur eine Auswahl der vorhandenen Profile dar.

## Ergebnisse der übrigen Radionuklide

**Tabelle A11: Ergebnisse der Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und  $^3\text{H}$  der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Cs 137	1 Sigma	Sr 90	1 Sigma	Tc 99	1 Sigma	H 3	1 Sigma
		DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/l	%
1	STADE	53,3710	09,3280	10.08.2005	14	0	1,51	2,1	12,9	4,1	2,5	0,28	0,03	2,59	1,41
2	MEDEM-Reede	53,5250	08,4370	10.08.2005	19	0	20,92	2,0	12,3	2,6	4,8	0,50	0,05	4,68	1,01
10	TSS of Texel	52,5990	04,0000	11.08.2005	29	0	34,86	2,7	6,8	1,4	5,5	0,43	0,04	2,14	1,6
14	Outer Gabbard	51,5990	02,0000	11.08.2005	29	0	34,69	4,7	5,5	1,9	5,0	0,76	0,08	2,55	1,44
901	östl.Falls Gap	51,3000	02,0000	12.08.2005	45	0	34,94	2,3	5,2	1,5	9,5	0,22	0,02	4,72	1,02
902	Str. von Dover	51,0500	01,3000	12.08.2005	55	0	34,94	3,3	7,7	2,2	3,9	0,25	0,03	4,4	1,01
903	O-Meridian	50,3000	00,0000	12.08.2005	47	0	35,11	2,3	11,3	1,5	13,0	0,10	0,01	4,91	0,92
904	NE Casquettes	50,2000	-02,0000	12.08.2005	50	0	35,18	2,0	6,3	1,2	9,6	0,07	0,01	2,03	1,74
905	SSW-lich Start Point	49,5000	-04,0000	13.08.2005	74	0	35,32	1,7	7,4	1,2	7,9	0,04	0,01	0,3	7,05
906	NW-lich Ouessant	49,0000	-06,0000	13.08.2005	115	0	35,30	2,0	6,9	1,3	10,9	0,13	0,02	0,22	8,76
907	VTG-Ouessant	48,4000	-05,0000	13.08.2005	106	0	35,32	2,0	4,3	1,2	5,2	0,06	0,01	0,1	20,2
908	W-lich Guernsey	49,3000	-03,0000	14.08.2005	70	0	35,23	1,9	9,4	1,2	6,6	0,03	0,01	1,21	1,66
909	Cap de la Hague	49,5500	-01,5990	14.08.2005	90	0	35,12	2,4	6,5	1,4	10,4	0,08	0,01	4,68	0,69
910	N-lich Le Havre	50,0000	00,0000	14.08.2005	41	0	34,76	2,6	7,2	1,5	5,3	0,55	0,05	7,52	0,52
911	Cap Griz Nez	50,5000	01,3000	15.08.2005	33	0	34,66	2,3	4,4	1,3	5,3	0,08	0,01	5,8	0,88
13	Bligh Bank	51,4220	02,5140	15.08.2005	36	0	34,40	2,2	6,5	1,4	5,0	0,18	0,02	5,04	0,93
12	Maas Approach	51,5850	03,4400	15.08.2005	22	0	30,69	2,1	10,0	1,5	7,5	0,16	0,02	4,85	0,93
11	Ijmuiden Appr.	52,3000	04,2000	15.08.2005	17	0	31,51	2,4	7,2	1,4	4,1	0,23	0,03	4,6	1
15	Noord Hinder	52,3000	02,5000	16.08.2005	42	0	34,84	2,6	6,6	1,5	3,1	0,34	0,04	2,7	1,26
16	Dowsings	53,2000	01,4000	16.08.2005	28	0	34,71	3,6	4,3	2,0	8,0	2,08	0,21	0,42	4,96
46		59,0000	-01,3000	17.08.2005	98	0	35,29	1,9	11,5	1,2	11,0	< 0.2		0,1	19,71
53	E-lich Shetlands	60,0000	-00,3000	17.08.2005	120	0	35,31	1,5	11,7	1,1	9,1	0,13	0,06	0,13	14,91
52	Bergenbanken	60,0000	02,0000	18.08.2005	99	0	34,02	3,3	7,2	1,5	5,3	0,40	0,06	0,5	4,39
51	E-lich Bergenbank	60,0000	04,3000	18.08.2005	250	0	33,00	5,7	5,2	2,0	2,4	1,26	0,16	0,94	2,54
50	w-lich Boknafjord	59,0000	04,2900	18.08.2005	248	0	32,58	6,0	5,2	2,3	4,0	< 0.1		1,07	2,51
49	Utsiragrunnen	59,0000	03,0000	19.08.2005	131	0	34,01	4,4	6,0	1,7	8,2	0,60	0,10	0,53	4,17
48		59,0000	01,0000	19.08.2005	119	0	33,87	3,9	4,2	1,8	7,0	0,75	0,11	0,58	3,78

**Tabelle A11 (Fortsetzung): Ergebnisse der Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und  $^3\text{H}$  der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Cs 137	1 Sigma	Sr 90	1 Sigma	Tc 99	1 Sigma	H 3	1 Sigma
		DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/l	%
47	E-lich Orkneys	59,0000	00,0000	19.08.2005	124	0	34,80	2,8	8,0	1,5	4,8	0,45	0,08	0,29	7,36
45	Bosies Bank	57,5950	-00,5990	20.08.2005	112	0	35,16	2,6	6,0	1,5	6,8	0,70	0,11	0,2	9,78
44	Andrew OilFiled	57,5990	01,3010	20.08.2005	101	0	35,17	2,8	7,4	1,5	8,2	0,83	0,12	0,22	9,62
43	Midtbanken	58,0000	03,0000	20.08.2005	73	0	33,16	4,1	8,0	2,0	5,3	0,90	0,13	0,83	2,94
42	Eigersundbanken	58,0000	04,5980	21.08.2005	120	0	32,55	6,4	4,6	2,3	6,2	1,16	0,15	1,02	2,41
41	SW-lich Listafjord	58,0000	06,0000	21.08.2005	300	0	30,87	8,0	6,5	2,8	6,6	1,17	0,12	1,32	2,13
40	Skagerrak	57,4850	08,0000	21.08.2005	512	0	29,12	9,6	3,7	3,1	3,7	1,14	0,12	1,2	2,24
39	Hanstholm	57,0000	07,5800	21.08.2005	30	0	31,45	8,1	4,4	2,7	2,1	1,25	0,13	0,92	2,76
38		57,0000	06,0000	22.08.2005	51	0	33,00	5,7	7,3	2,3	5,7	1,18	0,12	0,87	2,94
37		57,0000	05,0000	22.08.2005	56	0	33,44	4,9	4,9	2,1	6,4	0,95	0,10	0,67	3,41
36		56,5990	03,3040	22.08.2005	64	0	33,31	4,3	4,8	2,0	5,2	1,02	0,18	0,65	3,63
35	Banff Plattform	57,0010	01,2260	22.08.2005	99	0	34,95	3,0	7,2	1,8	6,5	1,23	0,20	0,24	7,96
34		57,0000	-01,0000	23.08.2005	70	0	34,97	3,0	4,9	1,8	7,6	1,43	0,21	0,2	9,96
33	Berwick Bank	56,0000	-01,0000	24.08.2005	60	0	34,87	3,5	7,1	1,9	6,4	1,50	0,19	0,23	8,72
32	Swallow Hole	56,0000	00,0000	24.08.2005	84	0	34,90	3,3	5,6	1,9	6,5	1,51	0,18	0,29	7,57
31	nördl.EastBank	55,5970	00,5990	24.08.2005	72	0	34,97	3,1	8,0	1,8	4,5	1,50	0,20	0,27	8,16
30	N- lich Doggerbank	56,0000	02,0000	24.08.2005	83	0	34,90	3,1	6,5	1,9	4,5	1,52	0,18	0,21	10,06
29	N- lich Doggerbank	56,0000	03,0000	24.08.2005	70	0	35,01	2,9	6,2	1,5	4,4	1,26	0,16	0,17	11,36
28a	Roar Gas Field/Ente2	55,4580	04,1500	25.08.2005	37	0	34,94	3,5	7,2	1,7	7,4	1,35	0,14	0,24	8,3
28	Coffee Soil	56,0000	05,0000	25.08.2005	40	0	34,73	3,2	8,1	2,0	6,9	1,32	0,13	0,55	4,28
27		56,0000	06,0000	25.08.2005	46	0	33,97	3,7	9,1	1,8	4,4	1,21	0,12	2,2	1,5
26	W-lich Ringköbing	56,0000	07,4300	25.08.2005	27	0	32,67	2,8	6,3	1,8	3,1	0,82	0,08	3,88	1,11
25	Lister Tief	55,0000	08,1500	26.08.2005	13	0	30,81	2,7	9,5	1,9	5,2	0,52	0,05	4,53	0,95
23	Sylt 2	55,0000	07,3500	26.08.2005	25	0	32,10	2,8	5,7	1,7	3,8	0,49	0,05	4,27	1,05
22	Weisse Bank	55,0000	06,1500	26.08.2005	42	0	34,25	3,9	6,0	1,9	6,7	1,94	0,19	1,17	2,24
21	Nordschillgrund	55,0600	05,0000	26.08.2005	37	0	34,93	3,2	6,5	1,8	4,2	1,94	0,20	0,3	6,96
20	Elbow Spit	55,0000	04,0000	26.08.2005	46	0	34,99	3,0	10,3	1,6	6,0	1,82	0,18	0,26	7,77

**Tabelle A11 (Fortsetzung): Ergebnisse der Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und  $^3\text{H}$  der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Cs 137	1 Sigma	Sr 90	1 Sigma	Tc 99	1 Sigma	H 3	1 Sigma
		DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/l	%
19	Dogger Bank	55,0000	02,0000	27.08.2005	25	0	34,83	3,4	5,7	1,8	4,7	1,89	0,19	19	Dogger Bank
18	Barmada Bank	55,0000	00,0000	27.08.2005	72	0	34,80	3,4	5,0	2,1	5,0	2,07	0,25	18	Barmada Bank
17	Neptune Gas Field	54,0000	01,0000	27.08.2005	43	0	34,73	3,2	4,8	1,9	5,1	1,94	0,22	17	Neptune Gas Field
9	Botney Cut	54,0000	03,0000	28.08.2005	40	0	34,98	3,2	7,2	1,7	9,8	1,24	0,13	9	Botney Cut
8	VTG Friesland	54,0000	04,5000	28.08.2005	40	0	34,52	4,2	6,1	1,9	4,6	1,74	0,18	8	VTG Friesland
7	Borkumriffgrund	54,0000	06,2500	28.08.2005	28	0	33,91	2,5	4,4	1,5	8,9	0,36	0,04	7	Borkumriffgrund
3	Tn.Elbe	54,0000	08,0650	29.08.2005	22	0	31,39	2,7	7,2	1,9	4,0	0,48	0,05	3	Tn.Elbe

**Tabelle A12: Ergebnisse der Radionuklide  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$ , und  $^{241}\text{Am}$  der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Pu 239,240	1 Sigma	Pu 238	1 Sigma	Am 241	1 Sigma
		DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%
1	STADE	53,3710	09,3280	10.08.2005	14	0	1,51	22,8	5	5,3	9	20,9	7
2	MEDEM-Reede	53,5250	08,4370	10.08.2005	19	0	20,92	12,1	11	4,8	17	9,8	9
10	TSS of Texel	52,5990	04,0000	11.08.2005	29	0	34,86	4,7	9	1,9	14	2,3	13
14	Outer Gabbard	51,5990	02,0000	11.08.2005	29	0	34,69	10,0	8	4,8	11	9,2	8
901	östl.Falls Gap	51,3000	02,0000	12.08.2005	45	0	34,94	8,9	9	3,0	14	3,6	13
902	Str. von Dover	51,0500	01,3000	12.08.2005	55	0	34,94	7,3	9	3,6	13	6,7	8
903	O-Meridian	50,3000	00,0000	12.08.2005	47	0	35,11	7,7	9	4,7	11	4,1	10
904	NE Casquettes	50,2000	-02,0000	12.08.2005	50	0	35,18	6,5	9	1,7	18	2,1	14
905	SSW-lich Start Point	49,5000	-04,0000	13.08.2005	74	0	35,32	6,9	10	3,5	14	3,3	23
906	NW-lich Ouessant	49,0000	-06,0000	13.08.2005	115	0	35,30	7,6	9	1,6	19	1,2	17
907	VTG-Ouessant	48,4000	-05,0000	13.08.2005	106	0	35,32	6,2	10	1,8	18	2,9	11
908	W-lich Guernsey	49,3000	-03,0000	14.08.2005	70	0	35,23	3,7	12	1,1	21	2,6	13
909	Cap de la Hague	49,5500	-01,5990	14.08.2005	90	0	35,12	13,0	7	5,9	11	4,2	9
910	N-lich Le Havre	50,0000	00,0000	14.08.2005	41	0	34,76	12,1	7	5,4	11	8,1	7
911	Cap Griz Nez	50,5000	01,3000	15.08.2005	33	0	34,66	17,2	10	3,0	23	5,6	18
13	Bligh Bank	51,4220	02,5140	15.08.2005	36	0	34,40	6,2	9	3,5	12	2,7	16
12	Maas Approach	51,5850	03,4400	15.08.2005	22	0	30,69	6,2	9	1,3	20	2,3	12
11	Ijmuiden Appr.	52,3000	04,2000	15.08.2005	17	0	31,51	4,8	11	2,1	15	2,0	15
15	Noord Hinder	52,3000	02,5000	16.08.2005	42	0	34,84	10,3	11	6,1	14	1,9	16
16	Dowsings	53,2000	01,4000	16.08.2005	28	0	34,71	18,7	9	5,8	15	3,2	17
46		59,0000	-01,3000	17.08.2005	98	0	35,29	6,3	8	2,5	12	2,9	11
53	E-lich Shetlands	60,0000	-00,3000	17.08.2005	120	0	35,31	6,4	8	1,7	15	3,7	22
52	Bergenbanken	60,0000	02,0000	18.08.2005	99	0	34,02	5,8	9	0,7	24	3,5	9
51	E-lich Bergenbank	60,0000	04,3000	18.08.2005	250	0	33,00	10,6	7	1,7	17	3,0	10
50	w-lich Boknafjord	59,0000	04,2900	18.08.2005	248	0	32,58	12,5	7	2,3	14	2,7	11
49	Utsiragrunnen	59,0000	03,0000	19.08.2005	131	0	34,01	6,2	9	2,2	15	3,7	10
48		59,0000	01,0000	19.08.2005	119	0	33,87	4,7	8	1,7	13	1,6	12

**Tabelle A12 (Fortsetzung): Ergebnisse der Radionuklide  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$ , und  $^{241}\text{Am}$  der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Pu 239,240	1 Sigma	Pu 238	1 Sigma	Am 241	1 Sigma
		DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%
47	E-lich Orkneys	59,0000	00,0000	19.08.2005	124	0	34,80	6,0	8	2,3	12	1,5	19
45	Bosies Bank	57,5950	-00,5990	20.08.2005	112	0	35,16	10,5	7	4,7	11	3,4	10
44	Andrew OilFiled	57,5990	01,3010	20.08.2005	101	0	35,17	11,3	6	4,0	9	1,8	12
43	Midtbanken	58,0000	03,0000	20.08.2005	73	0	33,16	6,1	7	2,2	12	1,5	13
42	Eigersundbanken	58,0000	04,5980	21.08.2005	120	0	32,55	6,4	7	2,4	11	2,7	11
41	SW-lich Listafjord	58,0000	06,0000	21.08.2005	300	0	30,87	6,4	10	1,3	21	2,5	15
40	Skagerrak	57,4850	08,0000	21.08.2005	512	0	29,12	6,4	8	2,8	12	1,4	19
39	Hanstholm	57,0000	07,5800	21.08.2005	30	0	31,45	9,0	7	2,2	14	2,1	14
38		57,0000	06,0000	22.08.2005	51	0	33,00	8,3	9	1,2	24	2,5	12
37		57,0000	05,0000	22.08.2005	56	0	33,44	8,4	10	1,0	27	1,3	21
36		56,5990	03,3040	22.08.2005	64	0	33,31	9,1	8	2,0	16	2,6	14
35	Banff Plattform	57,0010	01,2260	22.08.2005	99	0	34,95	12,4	7	1,5	20	3,3	19
34		57,0000	-01,0000	23.08.2005	70	0	34,97	32,1	5	9,8	8	3,4	13
33	Berwick Bank	56,0000	-01,0000	24.08.2005	60	0	34,87	23,1	6	6,4	10	3,4	12
32	Swallow Hole	56,0000	00,0000	24.08.2005	84	0	34,90	19,5	5	7,6	8	4,2	10
31	nörtl.EastBank	55,5970	00,5990	24.08.2005	72	0	34,97	18,7	5	4,1	10	3,3	13
30	N- lich Doggerbank	56,0000	02,0000	24.08.2005	83	0	34,90	17,4	5	4,5	9	2,9	10
29	N- lich Doggerbank	56,0000	03,0000	24.08.2005	70	0	35,01	13,2	6	2,4	12	2,3	11
28a	Roar Gas Field/Ente2	55,4580	04,1500	25.08.2005	37	0	34,94	12,2	6	2,8	11	3,1	10
28	Coffee Soil	56,0000	05,0000	25.08.2005	40	0	34,73	9,4	8	3,2	13	2,5	13
27		56,0000	06,0000	25.08.2005	46	0	33,97	7,1	7	3,5	10	2,5	10
26	W-lich Ringköbing	56,0000	07,4300	25.08.2005	27	0	32,67	4,0	9	1,6	14	2,2	17
25	Lister Tief	55,0000	08,1500	26.08.2005	13	0	30,81	6,6	9	3,1	12	4,2	9
23	Sylt 2	55,0000	07,3500	26.08.2005	25	0	32,10	5,6	8	0,8	20	2,7	10
22	Weisse Bank	55,0000	06,1500	26.08.2005	42	0	34,25	6,5	8	2,7	13	4,0	22
21	Nordschillgrund	55,0600	05,0000	26.08.2005	37	0	34,93	10,6	6	3,5	11	5,2	19
20	Elbow Spit	55,0000	04,0000	26.08.2005	46	0	34,99	11,1	7	6,0	9	4,3	20

**Tabelle A12 (Fortsetzung): Ergebnisse der Radionuklide  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$ , und  $^{241}\text{Am}$  der großen Nordseereise, Gauß 446 a vom 10.08.2005 bis 28.08.2005.**

Station	Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Pu 239,240	1 Sigma	Pu 238	1 Sig- ma	Am 241	1 Sigma
		DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%
19	Dogger Bank	55,0000	02,0000	27.08.2005	25	0	34,83	17,7	6	6,0	9	6,0	17
18	Barmada Bank	55,0000	00,0000	27.08.2005	72	0	34,80	16,8	6	6,6	9	2,9	12
17	Neptune Gas Field	54,0000	01,0000	27.08.2005	43	0	34,73	11,2	8	4,3	12	1,4	18
9	Botney Cut	54,0000	03,0000	28.08.2005	40	0	34,98	8,2	11	6,0	13	4,0	13
8	VTG Friesland	54,0000	04,5000	28.08.2005	40	0	34,52	8,9	17	2,9	30	5,5	18
7	Borkumriffgrund	54,0000	06,2500	28.08.2005	28	0	33,91	6,1	12	1,6	23	3,5	21
3	Tn.Elbe	54,0000	08,0650	29.08.2005	22	0	31,39	5,8	17	2,4	25	3,6	25



**Tabelle A13: Ergebnisse der Radionuklide  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und  $^3\text{H}$  der Anschlussfahrt über die Deutsche Bucht, Gauß 446 b vom 29.08.2005 bis 04.09.2005.**

Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Cs 137	1 Sigma	Sr 90	1 Sigma	Tc 99	1 Sigma	H 3	1 Sigma
	DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	%	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/m <sup>3</sup>	Bq/l	%
Elbe1	54,0000	08,0600	29.08.2005	24	0	30,47	2,6	6,4	1,8	3,5	0,48	0,05	4,12	1,03
UFSDDB	54,1070	07,2600	30.08.2005	38	0	32,88	2,5	5,4	1,7	3,2	0,66	0,07	3,59	1,15
AMRU1	54,3000	08,1000	30.08.2005	14	0	30,66	3,2	10,0	1,9	7,0	0,49	0,05	4,5	1,03
SYLT1	55,0000	08,0000	31.08.2005	15	0	31,13	2,6	5,7	1,9	4,9	0,46	0,05	4,72	0,98
URST3	55,0000	06,4700	01.09.2005	34	0	33,47	3,0	5,6	1,7	6,0	0,76	0,08	2,94	1,24
URST5	55,2300	06,1510	01.09.2005	49	0	34,35	4,0	4,1	1,9	5,0	1,75	0,18	1,36	2,07
WBANK	54,4000	06,1500	01.09.2005	40	0	34,38	4,0	6,8	2,0	4,1	1,84	0,18	1,09	2,45
ENTE1	55,2400	04,4500	02.09.2005	45	0	35,02	2,9	7,6	1,6	5,8	1,50	0,15	0,24	7,97
SWWBA	54,4000	05,3000	02.09.2005	41	0	34,71	4,4	6,8	1,9	6,5	2,61	0,26	0,44	5,1
NEFB	54,2000	05,4000	02.09.2005	40	0	34,57	4,8	5,5	1,9	4,8	2,08	0,21	0,78	3,35
NGW8	54,2000	06,4700	03.09.2005	36	0	33,56	3,2	7,4	1,7	5,5	0,49	0,05	3,26	1,26
BRGRU	53,5650	06,1200	03.09.2005	29	0	33,54	2,0	8,3	1,6	3,7	0,24	0,03	3,37	1,16
BRIFF	53,4050	06,2500	04.09.2005	24	0	32,50	2,1	7,2	1,6	5,5	0,20	0,02	3,7	1,14
NORDE	53,4800	07,1000	04.09.2005	22	0	32,20	3,0	10,7	1,8	2,8	0,38	0,04	3,65	1,14
WESER	53,5090	08,0000	04.09.2005	19	0	31,60	2,4	6,7	1,9	7,3	0,54	0,06	4,11	1,06

**Tabelle A14: Ergebnisse der Radionuklide  $^{1238}\text{Pu}$ ,  $^{239, 240}\text{Pu}$ , und  $^{241}\text{Am}$  der Anschlussfahrt über die Deutsche Bucht, Gauß 446 b vom 29.08.2005 bis 04.09.2005.**

Name	Lat	Lon	Date	depth	S-depth	Sal	Pu 239,240	1 Sigma	Pu 238	1 Sigma	Am 241	1 Sigma
	DD.MMmm	DD.MMmm		m	m	PSU	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%	mBq/m <sup>3</sup>	%
Elbe1	54,0000	08,0600	29.08.2005	24	0	30,47	3,8	9	1,2	15	2,8	10
UFSD8	54,1070	07,2600	30.08.2005	38	0	32,88	6,7	8	4,2	10	2,3	11
AMRU1	54,3000	08,1000	30.08.2005	14	0	30,66	4,0	9	2,2	12	2,5	10
SYLT1	55,0000	08,0000	31.08.2005	15	0	31,13	3,0	10	1,0	17	2,8	9
URST3	55,0000	06,4700	01.09.2005	34	0	33,47	4,4	10	1,5	16	4,3	11
URST5	55,2300	06,1510	01.09.2005	49	0	34,35	4,1	10	1,7	15	2,2	10
WBANK	54,4000	06,1500	01.09.2005	40	0	34,38	6,9	8	1,5	17	4,6	27
ENTE1	55,2400	04,4500	02.09.2005	45	0	35,02	12,6	6	2,9	12	1,9	16
SWWBA	54,4000	05,3000	02.09.2005	41	0	34,71	5,5	10	2,1	15	1,0	21
NEFB	54,2000	05,4000	02.09.2005	40	0	34,57	4,1	16	1,6	25	1,2	25
NGW8	54,2000	06,4700	03.09.2005	36	0	33,56	4,2	9	1,6	15	1,7	12
BRGRU	53,5650	06,1200	03.09.2005	29	0	33,54	4,3	8	2,2	11	3,9	9
BRIFF	53,4050	06,2500	04.09.2005	24	0	32,50	6,1	15	2,6	23	2,7	22
NORDE	53,4800	07,1000	04.09.2005	22	0	32,20	6,2	18	2,3	29	2,8	15
WESER	53,5090	08,0000	04.09.2005	19	0	31,60	10,6	13	4,8	20	8,4	13

## Literaturnachweis

- Aarkrog, A., Boelskifte, S., Dahlgaard, H., Duniec, S., Hallstadius, L., Holm, E. und Smith, J. N. (1987): Technetium-99 and Cesium-134 as long distance tracers in Arctic waters. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 24, 637-647.
- Aldahan, A., Alfimov, V. und Possnert, G. (2007): The  $^{129}\text{I}$  anthropogenic budget: sources and sinks, *Applied Geochemistry*, 22, 606-618.
- Alfimov, V., Aldahan, A., Possnert, G., Meili, M. und Kekli, A. (2002): Iodine-129 in seawater along a transect from the North Atlantic to the Baltic Sea, paper presented at 9th Int. Conf. on Accelerator Mass Spectrometry, Nagoya, Japan, September 9-13, 2002, <http://www.teknik.uu.se/jonfysik/reprints.html>
- Alfimov, V., Aldahan, A., Possnert, G., Kekli, A. und Meili, M. (2004a): Concentrations of  $^{129}\text{I}$  along a transect from the North Atlantic to the Baltic Sea, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B*, 223-224, 446-450.
- Alfimov, V., Aldahan, A., Possnert, G. und Winsor, G. (2004b): Anthropogenic  $^{129}\text{I}$  in seawater along a transect from the Norwegian Coastal Current to the North Pole, *Marine Poll. Bull.*, 49 1097–1104.
- Alfimov, V. (2005): Accelerator Mass Spectrometry of  $^{36}\text{Cl}$  and  $^{129}\text{I}$  Analytical Aspects and Applications, Dissertation, Universität Uppsala
- Alfimov, V., Possnert, G. und Aldahan, A. (2006): Anthropogenic iodine-129 in the Arctic Ocean and Nordic Seas: numerical modelling and prognoses, *Marine Pollution Bulletin*, 52, 4, 380-385.
- Anderson, T. (1978): Methodology for determination of environmental I-129 and Tc-99, Conf. of the Am. Soc. for Testing and Materials on Effluent Monitoring in Environm. Rad. Surveillance, Johnson, Vermont
- Anderson, T. J. (1980): Methodology for the Determination of Environmental I-129 and Tc-99, in *Effluent and Environmental Radiation Surveillance*, ASTM STP 698, edited by Kelly, J. J., pp. 84-94, American Society for Testing and Materials.
- Andersson, L. und Rydberg, L. (1988): Trends in nutrient and oxygen conditions within the Kategatt: Effects of local nutrient supply, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 26, 559-579.
- Anonymous (1992): Background concentrations of natural compounds in rivers, sea water, atmosphere and mussels, 84 pp, Tidal Waters Division, Gravenage, Netherlands, DGW-92.033.
- Anonymous (1994): Environmental science and Technology Department annual report 1993, 96 pp, RISØ National Laboratory, Roskilde, RISØ-R-7449EN.
- Anonymous (2003): *Monitoring of the quality of the marine environment*, 2000-2001, CEFAS Lowestoft, 56: 37pp; <http://www.cefas.co.uk/default.aspx>
- Anonymus Vorhaben StSch 4481, Kartierung von  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  im Oberflächenwasser der Nordsee, in *Strahlenschutzforschung - Programmreport 2005*, edited by al., I. B. e., BfS-SCHR-40/2006.

- AREVA, C. Établissement de La Hague, Rapport Environnement 2003, <http://www.cogemalahague.fr>.
- AREVA (2006): Rapport environnemental, social et sociétal 2005, Établissement de La Hague, <http://www.cogemalahague.fr>.
- Atarashi-Andoh, M., Schnabel, C., Cook, G., MacKenzie, A. B., Dougans, A., Ellam, R. M., Freeman, S., Maden, C., Olive, V., Synal, H.-A. und Xu, S. (2007):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios in surface waters of the English Lake District, *Applied Geochemistry*, 22 628–636.
- Bachhuber, H. und Bunzl, K. (1992): 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. Environmental Radioactivity*, 16 77-89.
- Beasley, T. M. und Lorz, H. V. (1984): A Review of the Biological and Geochemical Behaviour of Technetium in the Marine Environment, in *Technetium in the Environment*, edited by Myttenaere, G. D. a. C., pp. 197- 216, Elsevier Applied Science Publishers, London & New York.
- BMU (2006): Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung 2006, Jahresberichte, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn. [http://www.bfs.de/de/bfs/druck/uus/JB\\_archiv.html/#2006](http://www.bfs.de/de/bfs/druck/uus/JB_archiv.html/#2006)
- BNFL (1999): Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment, British Nuclear Fuel.
- Bois, P. B. und Dumas, F. (2005): Fast hydrodynamic model for medium- and long-term dispersion in seawater in the English Channel and southern North Sea, qualitative and quantitative validation by radionuclide tracers, *Ocean Modelling*, 9, 169-210.
- Bonka, H. (1982): *Strahlenexposition durch radioaktive Emissionen aus kerntechnischen Anlagen im Normalbetrieb*, Verlag TÜV Rheinland.
- Brown, J. E., Iospje, M., Kolstad, K. E., Lind, B., Rudjord, A. L. und Strand, P. (2002): Temporal trends for  $^{99}\text{Tc}$  in Norwegian coastal environments and spatial distribution in the Barents Sea.
- BSH (2005): H. Nies & J. Herrmann: Radioaktive Stoffe, in *Nordseezustand 2003*, edited, pp. 173-183, Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie, Hamburg und Rostock.
- Buraglio, N., Aldahan, A. und Possnert, G. (1999): Distribution and inventory of  $^{129}\text{I}$  in the central Arctic Ocean, *Geophysical Research Letters*, 26, 1011-1014.
- Buraglio, N. (2000): Accelerator mass spectrometry of  $^{129}\text{I}$  and its applications in natural water systems, Dissertation, University of Uppsala, Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology 570
- Buraglio, N., Aldahan, A. und Possnert, G. (2000a):  $^{129}\text{I}$  measurement at the Uppsala tandem accelerator, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 161-163, 240-244.
- Buraglio, N., Aldahan, A. und Possnert, G. (2000b): Analytical techniques and applications of  $^{129}\text{I}$  in natural water, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172, 518-523.

- Buraglio, N., Aldahan, A. und Possnert, G. (2001a):  $^{129}\text{I}$  in lakes of the Chernobyl fallout region and its environmental implications, *Applied Radiation and Isotopes*, 55 715-720.
- Buraglio, N., Aldahan, A., Possnert, G. und Vintersved, I. (2001b):  $^{129}\text{I}$  from the Nuclear Re-processing Facilities Traced in Precipitation, *Environmental Science & Technology*, 35 8, 1579-1586.
- Carter, M. und Moghissi, A. (1977): Three decades of nuclear testing, *Health Physics*, 33 55-71.
- Cecil, L. D., Hall, L. F. und Green, J. R. Reevaluation of Background Iodine-129 Concentrations in Water from the Eastern Snake River Plain Aquifer, Idaho, 2003, U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 03-4106.
- Chamberlain, A. (1991): *Radioactive Aerosols*, Cambridge University Press.
- Chameides, W. L. und Davis, D. D. (1980): Iodine: its possible role in tropospheric photochemistry, *Journal of Geophysical Research*, 85, C12, 7383.
- Cogema, W. (Feb. 1, 2001): pers. comm. with Schnabel, C.
- Cogema (2003): [www.cogemalahague.com](http://www.cogemalahague.com).
- Dahlgaard, H. (1995): Transfer of European Coastal Pollution to the Arctic: Radioactive Tracers, *Mar. Poll. Bull.*, 31, 3, 3-7.
- Dahlgaard, H. (1994): Sources of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{99}\text{Tc}$  in the East Greenland Current, *J. Environmental Radioactivity*, 85, 37-55.
- Dahlgaard, H., Chen, Q., Herrmann, J., Nies, H., Ibbett, R. D. und Kershaw, P. J. (1995): On the background level of  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the North Atlantic, *Journal of Marine Systems*, 6, 5-6, 571-578.  
<http://www.sciencedirect.com/science/article/B6VF5-3YYTMH0-F/2/4db2833f38e8402920ed1bacb4ea0c78>
- DIN (Ed.) (2000a): *Deutsches Institut für Normung e.V.: DIN 25482-10: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen: Allgemeine Anwendungen*, Beuth Verlag, Berlin.
- DIN (2000b): *Deutsches Institut für Normung e.V.: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen: Allgemeine Anwendungen, DIN 25482-10, Beuth Verlag, Berlin.*
- Dowd, C. D., Jimenez, J. L., Bahreini, R., Flagan, R. C., Seinfeld, J. H., Hämerl, K., Pirjola, L., Kulmala, M., Jennings, S. G. und Hoffmann, T. (2002): Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions. *Nature* 417 632-636.
- Edwards, R. (1962): Iodine-129: Its occurrence in nature and its utility as a tracer, *Science* 137 851-853.
- Edwards, R. und Rey, P. (1968): Terrestrial occurrence and distribution of  $^{129}\text{I}$ , Atomic Energy Commission, NYO-3624-3.
- Eisenbud, M. und Gesell, T. (1997): *Environmental Radioactivity*, 4 ed., Academic Press, San Diego.

- Elmore, D., Gove, H. E., Ferraro, R., Kilius, L. R., Lee, H. W., Chang, K. H., Beukens, R., Litherland, A. E., Russo, C. J., Purser, K. H., Murrel, M. T. und Finkel, R. C. (1980): Determination of  $^{129}\text{I}$  using tandem accelerator mass spectrometry, *Nature* 286 138-140.
- Elsholz, M. und Berger, H. (1998): Oberirdische Gewässer Nr. 6/98, Hydrologische Landschaften im Raum Lower Saxony, Niedersächsisches Landesamt für Ökologie, www.nloe.de and [http://193.218.216.17/crome/projekt6/downloads/D619194\\_1.pdf](http://193.218.216.17/crome/projekt6/downloads/D619194_1.pdf).
- England, T. R. und Rider, B. F. (1994): Evaluation and Compilation of Fission Product Yields, Los Alamos National Laboratory, LA-UR-94-3106.
- Ernst, T. (2003): Anthropogenes Iod-129 als Tracer für Umweltprozesse: Ein Beitrag zum Verhalten von Spurenstoffen bei der Migration in Böden und beim atmosphärischen Transport, Dissertation, Universität Hannover.  
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh04/37628126X.pdf>.
- Ernst, T., Szidat, S., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Schnabel, C., Synal, H., Santos Arevalo, F. J., Benne, I., Boess, J., Gehrt, E., Capelle, A., Schneider, J., Schäfer, W. und Böttcher, J. (2003): Migration of iodine-129 and iodine-127 in soils, *Kerntechnik* 68, 4, 155-167.
- Fabryka-Martin, J. T., Bentley, H., Elmore, D. und Airey, P. (1984): Natural iodine-129 as an environmental tracer, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49 337-347.
- Fabryka-Martin, J. T., Davis, S. und Elmore, D. (1987): Applications of I-129 and Cl-36 in Hydrology, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 29 361-371.
- Fehn, U., Holdren, G., Elmore, D., Brunelle, T., Teng, R. und Kubik, P. (1986): Determination of natural and anthropogenic  $^{129}\text{I}$  in marine sediments, *Geophysical Research Letters*, 13 137-139.
- Fehn, U., Tullai, S., Teng, R. T. D., Elmore, D. und Kubik, P. W. (1987): Determination of  $^{129}\text{I}$  in heavy residues of two crude oils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 29, 380-382.
- Fehn, U., Peters, E., Tulli-Fitzpatrick, S., Kubik, P., Sharma, P., Teng, R., Gove, H. und Elmore, D. (1992): Iodine-129 and Cl-36 concentrations in water of the eastern Clear Lake area, California: Residence times and source ages of hydrothermal fluids, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56 2069-2079.
- Fehn, U., Moran, J., Teng, R. und Rao, U. (1994): Dating and tracing of fluids using I-129 and Cl-36: results from geothermal fluids, oil fields brine and formation waters, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 92, 380-384.
- Fehn, U. und Snyder, G. (2000):  $^{129}\text{I}$  in the Southern Hemisphere: Global redistribution of an anthropogenic isotope, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 172, 366-371.
- Fehn, U., Snyder, G. T. und Varekamp, J. C. (2002): Detection of recycled marine sediment components in crater lake fluid using  $^{129}\text{I}$ , *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 115 3-4, 451-460.
- Finkel, R. und Suter, M. (1993): AMS in the earth sciences: techniques and applications, *Advances in Analytical Geochemistry*, 1-114.

- Fréchou, C. (2000): Optimisation des protocoles de mesurage de  $^{129}\text{I}$  et  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ . Etablissement d'une méthodologie aux échantillons de l'environnement, Dissertation, Université de Paris XI-Orsay, CEA-R-5947/ISSN 0429-3460
- Fréchou, C., Calmet, D., Bouisset, P., Piccot, D., Gaudry, A., Yiou, F. und Raisbeck, G. M. (2001):  $^{129}\text{I}$  and  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio determination in environmental biological samples by RNAA, AMS and direct gamma-X spectrometry measurements, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249 133-138.
- Fréchou, C., Calmet, D., Bertho, X. und Gaudry, A. (2002):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio measurement in bovine thyroids from the North Cotentin area, *The Science of the Total Environment*, 293 59-67.
- Fréchou, C. und Calmet, D. (2003):  $^{129}\text{I}$  in the environment of the La Hague nuclear fuel reprocessing plant - from sea to land, *Journal of Environmental Radioactivity*, 70 43-59.
- Fuge, R. und Johnson, C. (1986): The geochemistry of iodine - a review, *Environmental Geochemistry and Health*, 8, 2, 31.
- Gäbler, H.-E. und Heumann, K. G. (1993a): Determination of atmospheric iodine species using a system of specifically prepared filters and IDMS, *Fresenius J. Analytica. Chemistry*, 345 53-59.
- Gäbler, H.-E. und Heumann, K. G. (1993b): Determination of particulate iodine in aerosols from different regions by size fractionating impactor sampling and IDMS, *Intern. J. Analytica. Chemistry* 50, 129-146.
- Gascard, J.-C., Raisbeck, G., Sequeira, S., Yiou, F. und Mork, K. A. (2004): The Norwegian Atlantic Current in the Lofoten basin inferred from hydrological and tracer data ( $^{129}\text{I}$ ) and its interaction with the Norwegian Coastal Current, *Geophysical Research Letters*, 31 L01308 doi:10.1029/2003GL018303.
- Gravenhorst, G. (1975): The sulphate component in aerosol samples over North Atlantic, *Meteor Forsch.-Ergebnisse Reihe B*, 10 22 - 31.
- Gray, J., Jones, S. und Smith, A. (1995): Discharges to the environment from the Sellafield Site 1951 - 1992, *Journal of Radiological Protection*, 15, 2, 99-131.
- Groupe Radioécologie Nord-Cotentin (1999): Inventaire des rejets radioactifs des installations nucléaires, Volume 1: Historique des rejets.
- Guderian, R. e. (2000): Handbuch der Umweltveränderungen und Ökotoxikologie, edited by pp. 76 - 82, Springer Verlag
- Gvardjancic, L., Kosta, L. und Dermelj, M. (1980): Determination of iodine in reference materials by activation analysis, *Journal of Radioanalytical Chemistry*, 58 359-365.
- Handl, J., Oliver, E., Jakob, D., Johanson, K. und Schuller, P. (1993): Errata zu: Biospheric I-129 Concentration in the prenuclear and nuclear age, *Health Physics*, 65 3, 265-271.
- Handl, J. (1996): Concentration of Iod-129 in the biosphere, *Radiochimica Acta*, 72 33-38.
- HERRMANN, J., KERSHAW, P. J., BAILLY DU BOIS, P. und GUEGUENIAT, P. (1994): The distribution of artificial radionuclides in the English Channel, southern North Sea, Skagerrak and Kattegat, 1990-1993, MAST-CT9000052.

- HERRMANN, J. K., P.J.; BAILLY DU BOIS, P.; GUEGUENIAT, P. (1995): The distribution of artificial radionuclides in the English Channel, southern North Sea, Skagerrak and Kattegat, 1990-1993, *Journal of Marine Systems*, 6, 5/6, 427-456.
- Holm, E., Rioseco, J., Aarkrog, A., Dahlgaard, H., Hallstadius, L., Bjurman, B. und Hedvall, R. (1984): Technetium-99 in Algae from Temperate and Arctic Waters of the North Atlantic, in *Technetium in the Environment*, edited by Desmet, G. und Myttenaere, C., pp. 53- 59, Elsevier Applied Science Publishers, London & New York.
- Holm, E., Rioseco, J., Aarkrog, A., Dahlgaard, H., Hallstadius, L., Bjurman, B., Hedvall, R. und Desmet, G. M. (1986): Technetium-99 in Algae from Temperate and Arctic Waters of the North Atlantic, in *Technetium in the Environment*, edited by Myttenaere, E. D., Elsevier Appl.Science Publishers, London and New York.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H., Rietz, B., Jacobsen, U., Nielsen, S. P. und Aarkrog, A. (1999): Determination of  $^{129}\text{I}$  in seawater and some environmental materials by neutron activation analysis, *Analyst* 124 1109-1114.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H. und Nielsen, S. P. (2000a): Iodine-129 time series in Danish, Norwegian and northwest Greenland coast and the Baltic Sea by seaweed, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 51, 5, 571-584.
- Hou, X. L., Yan, X. und Chai, C. (2000b): Chemical species of iodine in some seaweeds - II. Iodine-bound biological macromolecules, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 245 3, 461-467.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H. und Nielsen, S. P. (2001): Chemical speciation analysis of  $^{129}\text{I}$  in seawater and a preliminary investigation to use it as a tracer for geochemical cycle study of stable iodine, *Marine Chemistry*, 74 2-3, 145-155.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H., Nielsen, S. P. und Kucera, J. (2002a):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  and  $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$  in the Norwegian coastal current from 1980 to 1998, *Journal Environmental Radioactivity*, 60 61-71.
- Hou, X. L., Dahlgaard, H., Nielsen, S. P. und Kucera, J. (2002b): Level and origin of Iodine-129 in the Baltic Sea, *Journal of Environmental Radioactivity*, 61, 3, 331-343.
- Hou, X. L., Melencheko, A. F., Kucera, J., Dahlgaard, H. und Nielsen, S. P. (2003): Iodine-129 in thyroid and urine in Uk precipitation and Denmark, *The Science of the Total Environment*, 302 63-73.
- Hou, X. L., Aldahan, A., Nielsen, S. P., Possnert, G., Nies, H. und Hedfors, J. (2007): Speciation of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in Seawater and Implications for Sources and Transport Pathways in the North Sea, *Env. Sci. Techn.*
- IAEA (2001): Generic Models for the Use in Assessing the Impact of Discharges of Radioactive Substances to the Environment, IAEA Safety Report Series No. 19, IAEA, Vienna
- IAEA (1985): Sediment  $K_d$ s and Concentration Factors for Radionuclides in the Marine Environment, Technical Reports Series, IAEA, Vienna.
- ISO (1995): International Organization for Standardization; Guide to the expression of uncertainty in measurement, corrected and reprinted.



- ISO (2005): ISO 11929-7: Determination of detection limit decision threshold for ionizing radiation measurements. Part 7: Fundamentals and general applications.
- Jackson, D., Lambers, B. und Gray, J. (2000): Radiation doses to the members of the public near to Sellafield, Cumbria, from liquid discharges 1952-98, *Journal of Radiological Protection / Society for Radiological Protection (UK)*: 20 139-167.
- Karcher, M. J., Gerland, S., Harms, I. H., Iosjpe, M., Heldal, H. E., Kershaw, P. J. und Sickel, M. (2004b): The dispersion of  $^{99}\text{Tc}$  in the Nordic Seas and the Arctic Ocean: a comparison of model results and observations, *J. Environm. Radioactivity*, 74 185 - 198. <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6VB2-4BYR5H2-2/2/8158d4d991fb3927cf09ba6b8d97fb8a>
- Karl, H. und Münkner, W. (1997): Iodbestimmung in Fischen und Fischerzeugnissen, *Lebensmittelchemie* 51 89.
- Karl, H. und Münkner, W. (1998): Iod in Fischen und Fischerzeugnissen, *Informationen für die Fischwirtschaft aus der Fischereiforschung*, 45 3, 115-118.
- Karl, H. und Münkner, W. (1999): Jod in marinen Lebensmitteln, *Ernährungs-Umschau*, 46 8, 288-291.
- Kautsky, H. (1973): The distribution of the radio nuclide Caesium 137 as an indicator for North Sea water mass transport, *Dt. hydrogr. Z.*, 241-246.
- Kautsky, H. (1976): The Caesium 137 content in the water of the North Sea during the years 1969 to 1975, *Dt. hydrogr. Z.*, 29/30, 217-221.
- Kekli, A., Aldahan, A., Meili, M., Possnert, G., Buraglio, N. und Stepanauskaus, R. (2003):  $^{129}\text{I}$  in Swedish rivers: distribution and sources, *The Science of the Total Environment*, 309 161-172.
- Keogh, S. M., Aldahan, A., Possnert, G., Finegan, P., Vintró, L. L. und Mitchell, P. I. (2007): Trends in the spatial and temporal distribution of  $^{129}\text{I}$  and  $^{99}\text{Tc}$  in coastal waters surrounding Ireland using *Fucus vesiculosus* as a bio-indicator, *Journal of Environmental Radioactivity*, 95 23–38.
- Kershaw, P. J., Heldal, H. E., Mork, K. A. und Rudjord, A. L. (2004), Variability in the supply, distribution and transport of the transient tracer  $^{99}\text{Tc}$  in the NE Atlantic, *Journal of Marine Systems*, 44 55– 81.
- Kilius, L., Rucklidge, J. und Soto, C. (1994): The dispersal  $^{129}\text{I}$  from the Columbia River estuary, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 92, 393-397.
- Klipsch, K. (2005): Bestimmung von  $^{129}\text{I}$  und  $^{127}\text{I}$  in Umweltproben zwecks der Ermittlung radioökologischer Parameter des  $^{129}\text{I}$  auf seinem Weg von Quellen durch die Nahrungskette bis zum Menschen, Dissertation, Universität Hannover.
- Knowles, J. F., Smith, D. L. und Winpenny, K. (1998): A Comparative Study of the Uptake, Clearance and Metabolism of Technetium in Lobster (*Hommarus Gammarus*) and Edible Crab (*Cancer Pagurus*): *Rad. Prot. Dosimetry*, 75, 125.
- Kocher, D. C. (1981): On the long-term-behaviour of Iodine-129 in the terrestrial environment, IAEA-SM-257/56.

- Kohman, T. P. und Edwards, R. R. (1966):  $^{129}\text{I}$  as a geochemical and ecological tracer, Department of Chemistry, Carnegie Institute of Technology, NYO-3624-1.
- Korzh, V. D. (1984): Ocean as a source of atmospheric iodine, *Atmospheric Environment*, 18 12, 2707-2710.
- Kriews, M. (1992): Charakterisierung mariner Aerosole in der Deutschen Bucht sowie Prozessstudien zum Verhalten von Spurenmetallen beim Übergang Atmosphäre/ Meerwasser, 4-6 pp, Dissertation, Universität Hamburg, Schriftenreihe Angewandte Analytik Nr.15
- Krupp, G. und Aumann, D. (1999): Iodine-129 in precipitation fall over Germany, *Journal of Environmental Radioactivity*, 46 287-299.
- Landsberger, S., Basuani, M. S. und Iskander, F. (2001): Halogen determination in Arctic aerosols by neutron activation analysis with Compton suppression methods, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249 2, 303-305.
- Leblanc, C., Colin, C., Cosse, A., Delage, L., a Barre, S., Morin, P., Fiévet, B., Voiseux, C., Ambroise, Y., Verhaeghe, E., Amouroux, D., Donard, O., Tessier, E. und Potin, 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.
- LEONARD, K. S., MCCUBBIN, D., BROWN, J., BONFIELD, R. und BROOKS, T. (1997): Distribution of Technetium-99 in UK Coastal Waters, *Marine Pollution Bulletin*, 34, 8, 628-363.
- LEONARD, K. S., MCCUBBIN, D., EMERSON, H. S. und BONFIELD, R. A. (1999): The behaviour of  $^{99}\text{Tc}$  in UK waters, 1995-1996, paper presented at Marine pollution, Monaco, 5-9 October 1998, IAEA-TECDOC-1094.
- LEONARD, K. S., MCCUBBIN, D., MCDONALD, P., SERVICE, M., BONFIELD, R. und CONNEY, S. (2004): Accumulation of technetium-99 in the Irish Sea? *Science of the Total Environment*, 322, 1-3, 255-270.
- Lodge, J. P. und Chan, T. L. (1986): Cascade Impactor Sampling & Data Analysis, American Industrial Hygiene Association.
- Lopez-Gutierrez, J. M., Garcia-Leon, M., Schnabel, C., Schmidt, A., Michel, R., Synal, H. und Suter, M. (1999): Determination of  $^{129}\text{I}$  in atmospheric samples by accelerator mass spectrometry, *Applied Radiation and Isotopes*, 51 315-322.
- Lopez-Gutierrez, J. M., Garcia-Leon, M., Garcia-Tenorio, R., Schnabel, C., Suter, M., Synal, H. und Szidat, S. (2000a):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios and  $^{129}\text{I}$  concentrations in a recent sea sediment core and in rainwater from Sevilla (Spain) by AMS, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 172, 574-578.
- Lopez-Gutierrez, J. M., Synal, H., Suter, M., Schnabel, C. und Garcia-Leon, M. (2000b): Accelerator mass spectrometry as a powerful tool for the determination of  $^{129}\text{I}$  in rainwater, *Applied Radiation and Isotopes*, 53 b, 81-85.
- López-Gutiérrez, J. M., García-León, M., Schnabel, C., Suter, M., Synal, H., Szidat, S. und García-Tenorio, R. (2004): Relative influence of  $^{129}\text{I}$  sources in a core from the Kattegat area, *Science of the Total Environment*, 323 195-210.

- MAFF (1997): Radioactivity in Food and the Environment, Ministry of Agriculture, Fisheries and Food, Scottish Environment Protection Agency.
- Magill, J., Pfennig, G. und Galy, J. (2007): Karlsruher Nuklidkarte, 7. Auflage.
- MASSON, M., WEERS, A. W. V., GROOTHUIS, R. E. J., DAHLGAARD, H., IBBETT, R. D. und LEONARD, K. S. (1995): Time series for sea water and seaweed of  $^{99}\text{Tc}$  and  $^{125}\text{Sb}$  originating from releases at La Hague, *Journal of Marine Systems*, 6, 5/6, 397-413.
- MCCARTNEY, M. und RAJENDRAN, K. (1999): Historical levels of  $^{99}\text{Tc}$  in the Irish Sea, paper presented at Marine pollution, Monaco, 5-9 October 1998, IAEA-TECDOC-1094
- MCCUBBIN, D., LEONARD, K. S., J. B., KERSHAW, P. J., BONFIELD, R. A. und PEAK, T. (2002): Further studies of the distribution of technetium-99 and caesium-137 in UK and European coastal waters, *Continental Shelf Research*, 22, 10, 1417-1445.
- MCCUBBIN, D., LEONARD, K. S., MCDONALD, P., BONFIELD, R. und BOUST, D. (2006): Distribution of Technetium-99 in sub-tidal sediments of the Irish Sea, *Continental Shelf Research*, 26, 4, 458-473.
- MCDONALD, P., BUSBY, R. G. und MCCARTNEY, M. (1999): Temporal and spatial responses of the bioindicator *Fucus* to discharges of  $^{99}\text{Tc}$  in the eastern Irish Sea, paper presented at Marine pollution, IAEA, Monaco, 5-9 October 1998, IAEA-TECDOC-1094.
- Michel, R. (1999): Long-lived radionuclides as tracers in terrestrial and extraterrestrial Matter, *Radiochimica Acta*, 87 47-73.
- Michel, R., Szidat, S., Handl, J., Jakob, D., Synal, H. und Suter, M. (2000): Status and trends of iodine-129 abundances in the European environment, paper presented at Proceedings IRPA10, CD-ROM, Code P-4a-229, Hiroshima, May 14-19.
- Michel, R., Ernst, T., Jakob, D., Klipsch, K., Szidat, S., Synal, H. und Schnabel, C. (2002a): Long-lived radionuclides in the environment: The case of iodine-129, paper presented at EUROSAFE 2002, Berlin
- Michel, R., Ernst, T., Szidat, S., Schnabel, C. und Synal, H. (2002b): Iodine-129 as a long-lived tracer in the environment, paper presented at Int. Conf. on the Study of Environmental Change using Isotope Techniques, IAEA-CSP 13/P, Wien, 23.-27.4 2001.
- Michel, R., Handl, J., Ernst, T., Botsch, W., Szidat, S., Schmidt, A., Jakob, D., Beltz, D., Romantschuk, L., Synal, H., Schnabel, C. und López-Gutiérrez, J. (2002c): Fallout and migration of iodine-129 in contaminated areas of Northern Ukraine (extended abstract), paper presented at Int. Conf. Radioactivity in the Environment, Monaco, September, 1-5, 2002.
- Michel, R., Ernst, T., Szidat, S., Schnabel, C. und Synal, H. (2003a): Langfristige Entwicklung vom Iod-129 in der Umwelt, paper presented at Klausurtagung der Strahlenschutzkommission 2001, München 49 (BMU).
- Michel, R., Huthmacher, K.-E. und Landfermann, H.-H. (2003c): Assessment of the human impact on the abiotic environment - indicators for a sustainable development, paper presented at International Conference on Protection of the Environment from the Effects of Ionizing Radiation, Stockholm, 6-10 October 2003, IAEA-CN-109.

- Michel, R., Huthmacher, K.-E. und Landfermann, H.-H. (2004a): Protection of the abiotic environment, paper presented at Proceedings IRPA 11, 23.-28.05.2004.
- Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D., Vahlbruch, J., Synal, H.-A. und Schnabel, C. (2004b): Ableitung von radioökologischen Parametern aus dem langfristigen Eintrag von Iod-129 (in German) Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben StSch 4285, Schriftenreihe Reaktorsicherheit and Strahlenschutz, www.zsr.uni-Hanover.de, <http://www.bmu.de/strahlenschutz/doc/6872.php>, BMU - 2004 - 650, ISSN 1612-6386.
- Michel, R., Klipsch, K., Ernst, T., Gorny, M., Jakob, D., Vahlbruch, J., Synal, H.-A. und Schnabel, C. (2005a): Long-lived Radionuclides in the Environment: On the Radioecology of Iodine-129, *Radioprotection* 40, Suppl. 1, S269-S276.
- Michel, R., Handl, J., Ernst, T., Botsch, W., Szidat, S., Schmidt, A., Jakob, D., Beltz, D., Romantschuk, L. D., Synal, H. A., Schnabel, C. und Lopez-Gutierrez, J. M. (2005b): Iodine-129 in soils from Northern Ukraine and the retrospective dosimetry of the iodine-131 exposure after the Chernobyl accident, *Science of the Total Environment*, 340, 1-3, 35-55, <Go to ISI>://000228342000004
- Michel, R., Daraoui, A., Gorny, M., Jakob, D., Sachse, R. und Tosch, L. (2006): Radioökologie des Iod-129: Die Rolle des Meeres, paper presented at Überwachung der Meeresumwelt, Hamburg-Sülldorf, 1. November 2006, Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie.
- Miyake, Y. und Tsunogai, S. (1963): Evaporation of iodine from the ocean, *Journal of Geophysical Research*, 68 3989-3993.
- Moran, J. E., Oktay, S., Santschi, P. H. und Schink, D. R. (1997): Surface <sup>129</sup>Iodine/<sup>127</sup>Iodine ratios: Marine vs. terrestrial, in *Applications of Accelerators in Research and Industry*, edited by J.L. Duggan, I. L. M., pp. 807-810, AIP Press, New York.
- Moran, J. E., Fehn, U. und Teng, R. T. D. (1998): Variations in <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I ratios in recent marine sediments: evidence for a fossil organic component, *Chemical Geology*, 152 193-203.
- Moran, J. E., Oktay, S., Santschi, P. H. und Schink, D. R. (1999): Atmospheric Dispersal of <sup>129</sup>Iodine from nuclear reprocessing facilities, *Environmental Science and Technology*, 33, 15, 2536-2542.
- Muramatsu, Y. und Ohmomo, Y. (1988): Tracer Experiments for the Determination of Chemical Forms of Radioiodine in Water Samples, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 124 123-134.
- Muramatsu, Y. und Wedepohl, K. (1998): The distribution of iodine in the earth's crust, *Chemical Geology*, 147 201.
- Muramatsu, Y., Yoshida, S., Fehn, U., Amachi, S. und Ohmomo, Y. (2004): Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment, *Journal of Environmental Radioactivity*, 74 221-232.
- Nies, H. und Kanisch, G. (2002): European Maritime Areas and Marine Fish, paper presented at Stakeholders' Conference on „Approaches to the Management of Environmental Radioactivity“, European Commission, Luxembourg, 2-3 December 2002, [http://europa.eu.int/comm/energy/nuclear/radioprotection/doc/conference/shc\\_2003\\_09\\_19\\_proceedings\\_en.pdf](http://europa.eu.int/comm/energy/nuclear/radioprotection/doc/conference/shc_2003_09_19_proceedings_en.pdf).

- Nies, H., Obrikat, D. und Herrmann, J. (2000): Recent radionuclide concentrations in the North Sea as a result of discharges from nuclear installations, *Kerntechnik*, 65, 4, 195-200.
- Nies, H. und Wedekind, C. (1987a): The Contamination of the North Sea and Baltic Sea by the Chernobyl Fallout, in *Radionuclides: A Tool for Oceanography*, edited by J.C. Guary, P. G.-g., R.J. Pentreath, pp. 227-239, Elsevier Applied Science, London and New York (1988).
- Nies, H. und Wedekind, C. (1987b): Die Kontamination von Nord- und Ostsee durch den Reaktorunfall von Tschernobyl, *Dt. hydrogr. Z.*, 40 6, 277-288.
- O'Dowd, C. D., Jimenez, J. L., Bahreini, R., Flagan, R. C., Seinfeld, J. H., Hämeri, K., Pirjola, L., Kulmala, M., Jennings, S. G. und Hoffmann, T. (2002): Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions, *Nature* 417 632-636.
- Oktyay, S. D., Santschi, P. H., Moran, J. E. und Sharma, P. (2000): The Iodine-129 bomb pulse recorded in Mississippi River Delta sediments: Results from isotopes of I, Pu, Cs, Pb, and C, *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 64, 6, 989-996.
- ORRE, S., GAO, Y., DRANGE, H. und NILSEN, J. E. O. (2007): A reassessment of the dispersion properties of <sup>99</sup>Tc in the North Sea and the Norwegian Sea, *Journal of Marine Systems*, 68, 1/2, 24-38.
- OSPAR (1992): OSPAR Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic.
- OSPAR (2008): Annual Meeting of the Radioactive Substance Committee, [www.ospar.org](http://www.ospar.org).
- OSPARCOM (1997): OSPAR Commission. Annual Report 1997, [www.ospar.org](http://www.ospar.org).
- Parker, T. (2001, May 11): pers. comm. with Schnabel, C.
- Paul, M., Fink, D., Hollos, G., Kaufman, A., Kutschera, W. und Mararitz, M. (1987): Measurement of iod-129 concentration in the environment after the Chernobyl reactor accident, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 29, 341-345.
- Povinec, P. P. (2000): AMS measurement of <sup>14</sup>C and <sup>129</sup>I in seawater around radioactive waste dump sites, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 172, 672-678.
- Rahn, K. A. e. a. (1976): Tropospheric halogen gases: inorganic and organic components, *Science*, 192 549-550.
- Raisbeck, G., Yiou, F., Zhou, Z. und Kilius, L. (1995): <sup>129</sup>I from nuclear fuel facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France); potential as an oceanographic tracer, *Journal of Marine Systems*, 6, 561-570.
- Raisbeck, G. M. und Yiou, F. (1999): <sup>129</sup>I in the oceans: origins and applications, *The Science of the Total Environment*, 237/238, 31-41.
- Raisbeck, G. M. (2002): Use of <sup>129</sup>I as an oceanographic tracer in the Nordic Seas, paper presented at 5th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic, St. Petersburg (Russia).

- Reithmeier, H., Lazarev, V., Rühm, W., Blinov, W., Huber, T., Kubo, T. und Nolte, E. (2001): I-131 dose reconstruction in the former Soviet-Union (FSU) by measurement of I-129, Jahresbericht des Beschleunigerlaboratoriums der Universität und der Technischen Universität München.
- RIME (1971): *Radioactivity in the Marine Environment*, National Academy of Sciences, USA, Washington D.C.
- Roberts, M. L., Caffee, M. W. und Proctor, I. D. (1997):  $^{129}\text{I}$  interlaboratory comparison, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 123*, 367-370.
- Roberts, M. und Caffee, M. W. (2000):  $^{129}\text{I}$  interlaboratory comparison: Phase II results, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 172*, 388-394.
- Rucklidge, J., Kilius, L. und Fuge, R. (1994):  $^{129}\text{I}$  in moss down-wind from the Sellafield nuclear fuel reprocessing plant, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 92*, 417-420.
- Salbu, B., Skipperud, L., Germain, P., Guéguéniat, P., Strand, P., Lind, O. C. und Christensen, G. (2003): Radionuclide speciation in effluent from La Hague Reprocessing Plant in France, *Health Physics, 85* 3, 311-322.
- Santschi, P. H., Schink, D. R., Corapcioglu, O., Oktay-Marshall, S., Fehn, U. und Sharma, P. (1996): Evidence for elevated levels of iodine-129 in the Deep Western Boundary Current in the Middle Atlantic Bight, *Deep-Sea Research I, 43*, 2, 259-265.
- Santschi, P. H., Moran, J. E., Oktay, S., Hoehn, E. und Sharma, P. (1999):  $^{129}\text{I}$  Iodine: A new tracer for surface water/groundwater interaction, AEA-SM-361/10.
- Santschi, P. H. und Schwehr, K. A. (2004):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  as a new environmental tracer or geochronometer for biogeochemical or hydrodynamic processes in the hydrosphere and geosphere: the central role of organo-iodine, *Science of the Total Environment, 321*, 257-271.
- Sattler, B. (1999): Zur Messung der Aktivitätsverteilung bei der Radioiodtherapie der Schilddrüse, Dissertation, Technische Universität Ilmenau
- Schäfer, M. (1994): Iod-Dynamik im Boden, Dissertation, Technische Universität München
- Scheffer, F. und Schachtschnabel, P. (1998): *Lehrbuch der Bodenkunde*, 14., neu bearbeitete und erweiterte Auflage ed., Ferdinand Enke Verlag.
- Schink, D. R., Santschi, P. H., Corapcioglu, O. und Fehn, U. (1995): Prospects for "iodine-129 dating" of marine organic matter using AMS, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 99*, 524-527.
- Schmidt, A. (1998): Iod-129 and stabiles iodine in Umweltsamples - Qualitätskontrolle von Analysemethoden and investigations zur Radioökologie and zur retrospektiven Dosimetrie, Dissertation, Universität Hannover
- Schmidt, A., Schnabel, C., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H. A., Lopez, J. M. und Suter, M. (1998): On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography, *The Science of The Total Environment, 223*, 2-3, 131-156.

- Schnabel, C., Lopez-Gutierrez, J. M., Szidat, S., Sprenger, M., Wernli, H., Beer, J. und Synal, H. (2001), On the origin of  $^{129}\text{I}$  in rain water near Zürich, *Radiochimica Acta*, 89, 815-822.
- Schnabel, C., Olive, V., Atarashi-Andoh, M., Dougans, A., Ellam, R. M., Freeman, S., Maden, C., Stocker, M., Synal, H., Wacker, L. und Xu, S. (2007):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios in Scottish coastal surface sea water: Geographical and temporal responses to changing emissions, *Applied Geochemistry, Halogens and Their Isotopes in Marine and Terrestrial Systems*, 22, 619-627.
- SCHÖNFELD, W. (1995): Numerical simulation of the dispersion of artificial radionuclides in the English Channel and the North Sea, *Journal of Marine Systems*, 6, 5/6, 529-544.
- Sharma, P., Elmore, D., Miller, T. und Vogt, S. (1997): The  $^{129}\text{I}$  AMS program at PRIME Lab, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 123, 347-351.
- Sheppard, M. I. und Thibault, D. H. (1992): Chemical behaviour of iodine in organic and mineral soil, *Applied Geochemistry*, 7, 265-272.
- Sheppard, S. C. (2003a): An index of radioecology, what has been important?, *Journal of Environmental Radioactivity*, 69 1-10.
- Sheppard, S. C. (2003b): Interpolation of solid/liquid partition coefficients,  $K_d$ , for iodine in soils, *Journal of Environmental Radioactivity*, 70 21-27.
- Shi, J., Gäggeler, H. W., Görlich, W., Wagner, M., Synal, H. und Suter, M. (1992):  $^{129}\text{I}$  determination in primary reactor water.
- Shinonaga, T., Gerzabek, M. H., Strebl, F. und Muramatsu, Y. (2001): Transfer of iodine from soil to cereal grains in agricultural areas of Austria, *The Science of the Total Environment*, 267 33-40.
- Shiraishi, K., Muramatsu, Y., Los, I. P., Korzun, V. N., Tsigankov, N. Y. und Zamostyan, P. V. (1999): Estimation of dietary iodine and bromine intakes of Ukrainians, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 242 199-202.
- Smith, D. L., Knowles, J. F. und Winpenny, K. (1998a): The Accumulation, retention and distribution of  $^{99m}\text{Tc}$  in crab (*Cancer pagurus* L.) and lobster (*Homarus gammarus* L.). a comparative study, *Journal of Environmental Radioactivity*, 40, 2, 113-135, <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6VB2-3V50RX0-1/2/14fa44817103823cbb0d82186f1cbf51>
- Smith, J. N., Ellis, K. M. und Kilius, L. R. (1998b):  $^{129}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  tracer measurements in the Arctic Ocean, *Deep-Sea Research I*, 45, 6, 959-984.
- Smith, J. N., Ellis, K. M. und Boyd, T. (1999): Circulation features in the central Arctic Ocean revealed by nuclear fuel reprocessing tracers from Scientific Ice Expeditions 1995 and 1996, *Journal of Geophysical Research*, 104, 29663-29677
- Smith, D. L., Knowles, J. F. und Winpenny, K. (2003): A model for the bioaccumulation of  $^{99}\text{Tc}$  in lobsters (*Homarus gammarus*) from the West Cumbrian coast, *Journal of Environmental Radioactivity*, 67, 3, 219-233.
- Smith, J. N., Jones, E. P., Moran, S. B., Smethie, W. M. und Kieser, W. E. (2005): Iodine-129/CFC 11 transit times for Denmark Strait Overflow Water in the Labrador and Irminger Seas, *J. Geo-phys. Res.*, 110, C05006, doi:10.1029/2004JC002516.

- Stewart, S. P. und Wilkins, B. T. (Date not available): Areal distribution of  $^{129}\text{I}$  in West Cumbrian soils, 'National Radiological Protection Board, Chilton, Didcot, Oxon, OX11 ORQ (United Kingdom).
- Stocker, M., Döbeli, M., Grajcar, M., Suter, M., Synal, H. und Wacker, L. (2005): A universal and competitive compact AMS facility, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B*, **240**, 483-489
- Strachnov, V., Valkovich, V., Danesi, P. R., Larosa, J., Dekner, R. und Zeisler, R. (1993): Intercomparison run IAEA-375: Determination of radionuclides in soil sample IAEA-375, Vienna, Dec. 1993.
- Sültenfuß, J. (1998): Das Radionuklid Tritium im Ozean. Messverfahren und Verteilung von Tritium im Südatlantik und im Wedellmeer, Dissertation, Universität Bremen, Berichte Polarforschung, Nr. 256
- Synal, H. A., Beer, J., Bonani, G., Suter, M. und Wölfli, W. (1990): Atmospheric transport of bomb-produced  $^{36}\text{Cl}$ , *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* **52**, 483.
- Szidat, S. (2000): Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien, Dissertation, Universität Hannover.  
<http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e002/32217211X.pdf>
- Szidat, S., Michel, R., Handl, J., Jakob, D., Synal, H. und Suter, M. (2000a): Status and trends of iodine-129 abundances in the European environment, Hiroshima (Japan).
- Szidat, S., Schmidt, A., Handl, J., Jakob, D., Botsch, W., Michel, R., Synal, H., Schnabel, C., Suter, M., Lopez-Gutierrez, J. M. und Städe, W. (2000b): Iodine-129: Sample preparation, quality control and analyses of pre-nuclear materials and of natural waters from Lower Saxony, Germany, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* **172**, 699-710.
- Szidat, S., Schmidt, A., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H., Schnabel, C., Suter, M. und Lopez-Gutierrez, J. M. (2000c): RNAA and AMS of iodine-129 in environmental materials - comparison of analytical methods and quality assurance, *Kerntechnik* **65** 160-167.
- Szidat, S., Schmidt, A., Handl, J., Jakob, D., Michel, R., Synal, H. und Suter, M. (2000d): Analysis of iodine-129 in environmental materials: Quality assurance and applications, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **244** 45-50.
- Szidat, S., Michel, R., Schnabel, C. und Synal, H. L. J. M. (2001): Prospects of  $^{129}\text{I}$  as an environmental tracer, PSI Scientific Report 2000, 187 pp.
- Tracy, B. (2002): Long range atmospheric transport of iodine-129 from nuclear facilities in Eurasia to the Canadian arctic, paper presented at 5th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic, St. Petersburg (Russia).
- Truesdale, V. W., Bale, A. J. und Woodward, E. M. S. (2001a): The meridional distribution of dissolved iodine in near-surface waters of the Atlantic Ocean, *Progr. Oceanogr.*, **45** 387-400.
- Truesdale, V. W., Nausch, G. und Baker, A. (2001b): The distribution of iodine in the Baltic Sea during summer, *Mar. Chem.*, **74** 87-98.



- Tsunogai, S. und Sase, T. (1969): Formation of iodide-iodine in the ocean, *Deep Sea Research*, 16 489.
- UNSCEAR (1982): United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Report to the General Assembly of the United Nations.
- UNSCEAR (1988): United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Ionizing Radiation: sources and biological effects.
- UNSCEAR (2000): United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Sources and Effects of Ionizing Radiation, 2000 Report to the General Assembly, United Nations, New York.
- UNSCEAR (2004): United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Radioecology and Methodologies for dose assessment, 52. Session, Vienna, 26-30 April 2004.
- Vahlbruch, J. (2004): Über den Transfer von natürlichen Radionukliden in terrestrischen Ökosystemen und die realistische Modellierung der natürlichen Strahlenexposition in Deutschland, Dissertation, Universität Hannover
- Wagner, M., Dittrich-Hannen, B., Synal, H., Suter, M. und Schotterer, U. (1996): Increase of  $^{129}\text{I}$  in the environment, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 113 490-494.
- Wershofen, H. und Aumann, D. (1989): Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VII. Concentration and chemical forms of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in the atmosphere, *Journal of Environmental Radioactivity*, 10 141-156.
- Whitehead, D. C. (1984): The distribution and transformation of iodine in the environment, *Environment International*, 10 321.
- Wikipedia (2008): Technetium, Version 15. Juli <http://de.wikipedia.org/wiki/Technetium>.
- Wong, G. T. F. (1991): The Marine Geochemistry of Iodine, *Reviews in Aquatic Sciences*, 4, 45-73.
- Wong, G. T. F. und Cheng, X.-H. (1998): Dissolved organic iodine in marine waters: Determination, occurrence and analytical implications, *Marine Chemistry*, 59 271-281.
- Yiou, F. (2002): Temporal and spatial records of  $^{129}\text{I}$  input into the Arctic from the nuclear fuel reprocessing facilities at Sellafield (UK) and La Hague (France), paper presented at The 5th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic, St. Petersburg (Russia).
- Yiou, F., Raisbeck, G. M., Zhou, Z. Q. und Kilius, L. R. (1994):  $^{129}\text{I}$  from nuclear fuel reprocessing, potential as an oceanographic tracer, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 92, 436-439.
- Yiou, F., Diel, K., Martin, F. und Raisbeck, G. (2000): Preparation of microgram quantities of carrier-free iodine for AMS analysis, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 172, 395-398.

- Yiou, F., Raisbeck, G. M., Christensen, G. C. und Holm, E. (2002):  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$  and  $^{129}\text{I}/^{99}\text{Tc}$  in the Norwegian coastal current from 1980 to 1998, *Journal of Environmental Radioactivity*, 60, 61-71.
- Yoshida, S., Muramatsu, Y. und Uchida, S. (1992): Studies on the sorption of iodide and iodate onto andosols, *Water, Air, and Soil Pollution*, 63, 321-329.
- Yoshida, S. und Muramatsu, Y. (1995): Determination of organic, inorganic and particulate iodine in the coastal atmosphere of Japan, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 196 2, 295-302.



# | Verantwortung für Mensch und Umwelt |

**Kontakt:**

Bundesamt für Strahlenschutz

Postfach 10 01 49

38201 Salzgitter

Telefon: + 49 30 18333 - 0

Telefax: + 49 30 18333 - 1885

Internet: [www.bfs.de](http://www.bfs.de)

E-Mail: [ePost@bfs.de](mailto:ePost@bfs.de)

Gedruckt auf Recyclingpapier aus 100 % Altpapier.



**Bundesamt für Strahlenschutz**