

Fakultät für Physik der Technischen Universität München, E15

**^{129}I in Umweltproben als Tracer für die
atmosphärischen ^{131}I -Freisetzungen in Majak**

Herbert Reithmeier

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen
Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. P. Ring

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr. E. Nolte (schriftliche Beurteilung)
Univ.-Prof. Dr. L. Oberauer (mündliche Prüfung)
2. Univ.-Prof. Dr. R. Krücken

Die Dissertation wurde am 28.04.2005 bei der Technischen Universität München
eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 30.05.2005 angenommen.

Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen in der Plutonium-Produktionsanlage Majak (Rußland) während der frühen Betriebsjahre (1949-1952). Sie wurde über ^{129}I -Messungen in Umweltproben durchgeführt. Die für die rechnerische Rekonstruktion in dieser Arbeit verwendete mittlere Abklingzeit von 35 d basiert auf der einzigen bekannten Abwasserprobe, deren Radionuklidzusammensetzung kürzlich reanalysiert werden konnte. Sie stammt vom September 1951. Mit der Abklingzeit, der Bestrahlungszeit der Brennelemente und der thermischen Leistung der Plutonium-Produktionsreaktoren ist das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung festgelegt. Es wurde für den betrachteten Zeitraum zu 50 berechnet.

Zur Identifizierung der frühen ^{131}I -Freisetzungen aus Majak wurden ^{129}I -Messungen an Proben von einem Eisbohrkern vom Beluchagletscher (Sibirischer Altai, Rußland) durchgeführt. Dazu wurden in diesem Bohrkern die ^{129}I -Konzentrationen von 18 Einzelproben aus verschiedenen Tiefen, entsprechend dem Zeitbereich von 1941 bis 2001, mit Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) analysiert.

Der ^{129}I -Untergrund aus anderen Quellen als aus der Produktionsanlage Majak wurde rechnerisch bestimmt. Der globale und lokale ^{129}I -Fallout aus den oberirdischen Kernwaffenexplosionen zeigte sich als vernachlässigbar. Die ^{129}I -Freisetzung aus den europäischen und ehemals sowjetischen Aufarbeitungsanlagen wurde über eine Rekonstruktion des Reaktorbetriebes, des Aufarbeitungsbetriebes und über Annahmen zur Iodfiltereffizienz abgeschätzt. Demzufolge wurde aus den europäischen und ehemals sowjetischen Aufarbeitungsanlagen bislang eine ^{129}I -Aktivität von 3,8 TBq gasförmig abgegeben.

Mit Hilfe eines atmosphärischen Transportmodells wurde die globale Ausbreitung des abgegebenen ^{129}I beschrieben. Das verwendete Modell hat eine Boxengröße von $5^\circ \times 5^\circ$. Die Zuverlässigkeit des Transportmodells wurde anhand einer Vielzahl von Proben überprüft. Dazu wurden die ^{129}I -Konzentrationen in Seewasserproben aus Europa, Asien, Afrika, Südamerika und Neuseeland mit AMS bestimmt und ^{129}I -Konzentrationen zwischen $5 \cdot 10^5$ at/l und $8 \cdot 10^8$ at/l gemessen. Mit Hilfe von Seemodellen, die Parameter wie Seetiefe und Wasserverweilzeit berücksichtigen, wurde für jeden See individuell auf die lokale ^{129}I -Deposition geschlossen. Für die meisten Seen ergab sich eine gute Übereinstimmung zwischen dem Meßergebnis und der Vorhersage des Transportmodells.

Für den Beluchagletscher ergab sich, daß 44 % des gemessenen ^{129}I aus Majak, 33 % aus Tomsk-7, 15 % aus Krasnojarsk-26 und 8 % aus den europäischen Aufbereitungsanlagen stammen.

Das bei der AMS-Messung für den Teilchennachweis verwendete Detektorsystem wurde verbessert. Über die Inbetriebnahme eines zweiten Micro-Channel-plate-Detektors konnte die Halbwertsbreite des Flugzeitsignals um 20 % auf etwa 440 ps reduziert werden. Dadurch wurde die Verwendung höherer Ionenenergien mit deutlich höherer Ionentransmission möglich. Mit demselben Aufbau wurden AMS-Messungen an ^{210}Bi zur Bestimmung des thermischen Wirkungsquerschnitts der Reaktion $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210m}\text{Bi}$ durchgeführt.

^{129}I -Messungen an einem Eisbohrkern vom Fiescherhorngletscher (Schweiz) zeigen einen deutlich geringeren ^{129}I -Depositionsfluß als Regenwasserproben der entsprechenden Jahre aus Zürich, der bereits früher bestimmt wurde. Der beobachtete Unterschied beträgt im Mittel einen Faktor 6, er wird auf einen Verdünnungseffekt mit zunehmender Höhe zurückgeführt.

Für die Abschätzung der Radioiodfreisetzung in Majak wurde derselbe Verdünnungseffekt auch für den Beluchagletscher angenommen. Bis Sommer 1952 wurde die ^{129}I -Freisetzung in Majak zu 12,5 GBq rekonstruiert. Daraus läßt sich eine ^{131}I -Freisetzung von 179 PBq ableiten. Die Unkenntnis der exakten Abklingzeiten vor Aufarbeitung der bestrahlten Brennelemente und bedeutende spätere ^{129}I -Freisetzungen erwiesen sich als Hauptprobleme bei einer derartigen Rekonstruktion.

Inhaltsverzeichnis

1	Iodvorkommen und -ausbreitung	7
1.1	Iodvorkommen in der Umwelt	7
1.2	Bedeutung von Iod für den Menschen	8
1.3	^{129}I -Quellen	8
1.3.1	Natürliches ^{129}I	8
1.3.2	Uranproduktion	9
1.3.3	Nutzung der Kernspaltung	9
1.4	^{129}I -Ausbreitungspfade	12
1.4.1	Rezirkulation der flüssigen ^{129}I -Freisetzungen	12
1.4.2	Gasförmige ^{129}I -Ausbreitung	13
2	^{129}I-Produktion und -Freisetzung	16
2.1	Radioiodproduktion im Kernreaktor	16
2.1.1	^{239}Pu -Produktion im Reaktor	16
2.1.2	Spaltprodukte im Reaktor	18
2.1.3	Näherung für kleinen Abbrand	20
2.1.4	Großer Abbrand: der Tschernobylreaktor	21
2.2	^{129}I -Quellen in Europa	22
2.2.1	^{129}I in Windscale/Sellafield	23
2.2.2	^{129}I in Marcoule	24
2.2.3	^{129}I in La Hague	24
2.2.4	Europäische Testanlagen	26
2.3	^{129}I - und ^{239}Pu -Produktion in der ehemaligen Sowjetunion	27
2.3.1	Majak	27
2.3.2	Tomsk-7 und Krasnojarsk-26	34
2.4	Aufarbeitung in anderen Ländern	35
2.4.1	USA	35
2.4.2	Andere Atomkräfte	36
2.4.3	Japan	37
3	Abschätzung der ^{129}I-Produktion	38
3.1	^{129}I in den ehem. sowjetischen Anlagen	38
3.1.1	Sowjetische Pu-Produktion	38

3.1.2	Anlage RT-1	38
3.1.3	^{129}I -Freisetzungen bei der sowjetischen Aufarbeitung	40
3.1.4	Abschätzung der ^{131}I Produktion in Majak	42
3.2	^{129}I in Windscale	43
3.3	^{129}I in Marcoule	44
4	Meßmethoden	46
4.1	Probenaufbereitung	46
4.2	^{129}I -Messung mit AMS	48
4.3	^{129}I -Standard	50
4.4	^{127}I -Messung	51
5	^{129}I-Messungen in Umweltproben und Interpretation	53
5.1	^{129}I im Eis vom Fiescherhorngletscher	53
5.1.1	Vergleich mit den europäischen ^{129}I -Emissionen	56
5.1.2	Vergleich mit Regenwasser aus Zürich	57
5.1.3	Kernwaffenfallout am Fiescherhorngletscher	60
5.2	^{129}I -Messungen am Beluchagletscher	60
5.3	^{129}I in bayerischem Regenwasser	63
5.4	^{129}I in Süßwasserseen	66
5.4.1	^{129}I -Messungen in Seewasser: Süddeutschland	67
5.4.2	^{129}I -Messungen in Seewasser: Schweiz und Italien	68
5.4.3	^{129}I in Seen um St. Petersburg	68
5.4.4	^{129}I in asiatischen Seen	70
5.4.5	Seen weitab von großen ^{129}I -Quellen	72
6	Rekonstruktion der ^{131}I-Freisetzungen aus Majak	75
6.1	$^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis	75
6.2	Notwendigkeit der Zeitauflösung	77
6.3	^{129}I -Untergrund am Beluchagletscher	78
6.3.1	Kernwaffen-Fallout	78
6.3.2	Tomsk-7 und Krasnojarsk-26	79
6.4	^{129}I -Freisetzung aus Majak	80
6.5	^{131}I -Freisetzung aus Majak	81
7	$^{210\text{m}}\text{Bi}$-Messung mit AMS	84
A	Transportmodell	88
B	Seedaten	90

Einleitung

In der ehemals sowjetischen Plutonium-Produktionsanlage Majak wurden in den frühen Betriebsjahren (1948-1955) große Mengen an hochaktiven Spaltprodukten bei der Aufarbeitung von Kernbrennstoff freigesetzt. In der dabei besonders stark belasteten Region um Tscheljabinsk wurden verschiedene Bevölkerungsgruppen schon in den 50-er Jahren regelmäßig auf gesundheitliche Folgen untersucht. Diese Kollektive wurden über einen längeren Zeitraum mehr oder weniger konstant exponiert. Sie stellen unabhängige Vergleichsgruppen dar, um die strahleninduzierten Folgen des Kollektivs der Überlebenden in Hiroshima und Nagasaki zu verifizieren, die im Gegensatz dazu einer einmaligen Strahlenexposition ausgesetzt waren.

Freigesetztes Radioiod wird vor allem über die Nahrungskette vom Menschen aufgenommen. Es reichert sich aufgrund des Iodmetabolismus in der Schilddrüse an. Von den bei der Kernspaltung anfallenden Iodisotopen mit hoher spezifischer Aktivität hat nur ^{131}I ($T_{1/2}=8,02\text{ d}$) eine ausreichend große Halbwertszeit, um in bedeutenden Mengen in die Schilddrüse zu gelangen. Die in Majak freigesetzte ^{131}I -Aktivität ist vor allem für zwei Kollektive von Bedeutung:

- Für die Anwohner am Tetscha Fluß, in den während der frühen Betriebsjahre flüssige radioaktive Abfälle eingeleitet wurden. Für dieses Kollektiv wurde eine überarbeitete Dosisrekonstruktion (TRDS-2000) veröffentlicht [1]. Unter Benutzung der dort angegebenen Dosen ergeben sich deutlich höhere Risikoschätzungen für solide Tumore als aus den Analysen an den Überlebenden von Hiroshima und Nagasaki zu erwarten wäre. Eine mögliche Erklärung dafür ist der im TRDS-2000 nicht berücksichtigte Beitrag kurzlebiger Spaltprodukte. Die ^{131}I -Freisetzung kann möglicherweise einen Teil dieser Diskrepanz schließen [2].
- In Osjorsk wurde eine deutlich erhöhte Schilddrüsenkrebshäufigkeit bei Personen festgestellt, die vor ihrem 15. Lebensjahr zumindest ein Jahr in Osjorsk gelebt hatten [3]. Der Rekonstruktion von Schilddrüsendosen in diesem Kollektiv liegt eine Abschätzung der ^{131}I -Freisetzungen in Majak zugrunde [4].

In der vorliegenden Arbeit wird eine mögliche Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen aus Majak über ^{129}I -Messungen diskutiert. Dazu wurden ^{129}I -Messungen

an verschiedenen Umweltproben durchgeführt.

Für die Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen aus Majak wird die Tatsache benutzt, daß ^{131}I und ^{129}I im Brutreaktor nach Ende der Bestrahlung in einem festen Isotopenverhältnis vorliegen, das bei kleinem Abbrand ausschließlich von der Bestrahlungszeit abhängt. Nach einer Abklingzeit werden die bestrahlten Brennelemente aufbereitet, wobei die leicht flüchtigen Iodisotope anfallen.

In den frühen Betriebsjahren, die radiologisch relevant sind, wurde mit einer kurzen Abklingzeit gearbeitet [5]. Später wurde dann trotz steigendem Durchsatz an bestrahlten Brennelementen die freigesetzte ^{131}I -Aktivität stark reduziert [6]. Diese Reduktion ist vor allem auf eine längere Abklingzeit und auf den Einsatz verbesserter Iodfiltertechnik zurückzuführen. Für eine Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen ist also neben der freigesetzten Menge an ^{129}I auch eine Zeitauflösung der ^{129}I -Freisetzungen essentiell, um die geringen Freisetzungen der frühen Jahre von den hohen Freisetzungen der späten Jahre abzutrennen. Dazu wurde ein Eisbohrkern vom Beluchagletscher (Sibirischer Altai, Rußland) verwendet.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen gegliedert:

- In Kapitel 1 wird eine Übersicht über die Inventare und Konzentrationen von stabilem Iod in verschiedenen Umweltkompartimenten gegeben. Ein Überblick über die verschiedenen ^{129}I -Quellen wird gegeben und die Hauptausbreitungspfade werden vorgestellt.
- Kapitel 2 beschreibt die Zusammensetzung der Spalt- und Brutprodukte im Reaktorkern. Eine detaillierte Beschreibung aller bekannten Aufarbeitungsanlagen wird gegeben, ferner ein Überblick über die Aufarbeitungsaktivitäten in Amerika, China, Indien und Japan.
- Eine eigene Abschätzung der bislang unbekanntenen ^{129}I -Freisetzungen aus den sowjetischen Aufarbeitungsanlagen und der Anlage Marcoule (Frankreich) wird in Kap. 3 vorgestellt, ebenso wie eine Abschätzung der frühen ^{129}I -Freisetzungen aus Windscale (Großbritannien).
- In Kapitel 4 werden die angewendeten Meßmethoden und die chemische Probenaufarbeitung beschrieben.
- Die ^{129}I -Messungen der betrachteten Umweltproben werden in Kapitel 5 vorgestellt und interpretiert.
- Die Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen in Majak wird in Kapitel 6 durchgeführt.
- Als eine weitere Anwendung des vorgestellten AMS-Systems wird in Kap. 7 eine ^{201m}Bi -AMS besprochen.

Kapitel 1

Iodvorkommen und -ausbreitung

Iod ist das 4. Element der VII. Hauptgruppe des Periodensystems, es gehört somit zu den Halogenen. Es wurde 1811 von Courtois entdeckt und 1814 von Gay-Lussac als neues Element identifiziert [7]. Das einzige stabile Iodisotop ist ^{127}I . Abgesehen vom ^{129}I ($T_{1/2} = 15,7 \text{ Ma}$) ist ^{131}I mit einer Halbwertszeit von 8,02 d das mit Abstand langlebigste Radioiodisotop, das bei der Kernspaltung anfällt.

1.1 Iodvorkommen in der Umwelt

Das Iodinventar in der Erdkruste wird auf etwa $8 \cdot 10^{15} \text{ kg}$ geschätzt, es dominiert zu 99 % die anderen Inventare an der Erdoberfläche [8]. In der Lithosphäre gebundenes Iod ist für Austauschprozesse aber nur schwer zugänglich, das Hauptreservoir für den globalen Iodkreislauf stellen deswegen mit etwa $8 \cdot 10^{13} \text{ kg}$ die Ozeane dar.

Der Iodkreislauf findet im wesentlichen über die Hydrosphäre und die Atmosphäre statt. Die Inventare der am Iodkreislauf beteiligten Umweltkompartimente sind in Tab. 1.1 aufgeführt. Im Boden wird atmosphärisch eingetragenes Iod

	Atmosphäre	Boden	oberer Ozean	Tiefenwasser	Ref.
m [kg]	10^8	$6,0 \cdot 10^{11}$	$1,4 \cdot 10^{12}$	$8,1 \cdot 10^{13}$	[9]
m [kg]	$5 \cdot 10^8$	$7,3 \cdot 10^{11}$		$7,9 \cdot 10^{13}$	[8]
c [mg/kg]	0,001	4-8		0,058	[8]

Tabelle 1.1: Iodinventare und Iodkonzentrationen in verschiedenen Umweltkompartimenten, die an Iodaustauschprozessen beteiligt sind [8, 9].

angereichert. Die mittleren Iodkonzentrationen im Boden liegen deutlich oberhalb der mittleren Iodkonzentrationen seiner Muttergesteine [8].

In Organismen kann Iod stark angereichert werden, es wird deswegen auch als biophil bezeichnet. Bei der Verbrennung fossiler Energieträger werden jährlich etwa 5000 t Iod in die Atmosphäre abgegeben. Dieser Eintrag liegt allerdings deutlich unterhalb der Iodfreisetzung aus den Ozeanen [8].

1.2 Bedeutung von Iod für den Menschen

Der Mensch nimmt mit der Nahrung etwa $80 \mu\text{g}$ Iod am Tag auf. Der Großteil davon wird in der Schilddrüse eingelagert. Das ständige Iodinventar in der Schilddrüse beträgt etwa 8 mg [7].

Auch die Radioiodisotope werden vom Körper bereitwillig aufgenommen und in der Schilddrüse gespeichert. Von den Radioiodisotopen hat vor allem ^{131}I große radiologische Bedeutung für den Menschen, da seine Halbwertszeit ausreichend groß ist, um mit der Nahrung (v.a. über Milch, Salat und Gemüse) aufgenommen zu werden. Bei einer biologischen Halbwertszeit von 120 d zerfällt das gesamte vom Körper aufgenommene ^{131}I auch im Körper; die mittlere β^- -Energie beim Zerfall beträgt 0,3 MeV. Die Eindringtiefe von Elektronen dieser Energie liegt im Bereich von 1 mm, sie deponieren ihre komplette Energie also in der Schilddrüse.

Infolge des Tschernobyl-Unfalls sind in einigen Regionen der Ukraine und Weißrußlands hohe ^{131}I -Depositionsfluenzen aufgetreten. Studien in den besonders betroffenen Regionen zeigten eine erhöhte Schilddrüsenkrebshäufigkeit in der Bevölkerung [10, 11].

^{129}I hat hingegen, wegen seiner langen Halbwertszeit, selbst in Regionen erheblicher ^{129}I -Depositionsfluenzen keine radiologische Bedeutung [12, 13].

1.3 ^{129}I -Quellen

^{129}I ist das bei weitem langlebigste Radioiodisotop, seine Halbwertszeit ist aber zu kurz, als daß es noch primordial vorliegen könnte. Das heutige ^{129}I -Inventar ist überwiegend anthropogenen Ursprungs.

1.3.1 Natürliches ^{129}I

Aufgrund der Spontanspaltung von ^{238}U ($T_{sf} = 6,02 \cdot 10^{15} a$) kommt es mit einem Spaltanteil von etwa 1 % zu einem natürlichen Eintrag an ^{129}I . Im Gleichgewicht beträgt das $^{129}\text{I}/^{238}\text{U}$ -Verhältnis $2,6 \cdot 10^{-11}$, einer Tonne Uran entspricht somit eine ^{129}I -Aktivität von 91 Bq.

Uran kommt auf der Erde im Gestein der Lithosphäre gebunden und in gelöster Form in den Weltmeeren vor. Wie Messungen an uranhaltigen Erzen zeigen [14], kann das in der Lithosphäre produzierte ^{129}I nicht aus dem Erz entweichen. Es stellt also keine Quelle für das freie prä nukleare ^{129}I -Inventar dar. Die

Spaltprodukte in den Ozeanen mischen sich hingegen mit dem stabilen Iodinventar der Meere.

Mit der Urankonzentration im Meerwasser von $3 \mu\text{g/l}$ [15] folgt die natürliche ^{129}I -Konzentration im Meerwasser zu $2 \cdot 10^5 \text{at/l}$. Bei der mittleren ^{127}I -Konzentration von $58 \mu\text{g/l}$ [8] resultiert ein $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von $7 \cdot 10^{-13}$. Isotopenverhältnisse dieser Größenordnung wurden in Grundwasserproben vom Great Artesian Basin (Australien) [16] und in altem Tiefenwasser des Nordpolarmeeres gemessen [17]. Kosmogen atmosphärisch produziertes ^{129}I spielt im Vergleich zum bei der Spontanspaltung von ^{238}U produzierten ^{129}I eine untergeordnete Rolle.

Über das Wasservolumen der Ozeane $V_M = 1,37 \cdot 10^{18} \text{m}^3$ [8] ergibt sich das freie natürliche ^{129}I -Inventar zu 390 GBq. Davon sind wegen der langen Austauschzeiten der Tiefenwässer in den Ozeanen nur 2,4% an kurzskaligen Austauschprozessen beteiligt [9], also nur etwa 9 GBq in einem Zeitraum von 100 a zugänglich.

1.3.2 Uranproduktion

Nach Entdeckung der Kernspaltung 1938 hat der großtechnische Abbau von Uranerzen begonnen. Ende der 40-er Jahren des vergangenen Jahrhunderts wurden noch wenige 1000 t/a abgebaut, v.a. in Zaire (ehemals Belgisch Kongo) und in den Vereinigten Staaten. Bis Anfang der 60-er Jahre ist die Uranproduktion allein in den OECD Staaten auf über 30000 t/a angestiegen [18]. Bis einschließlich 1996 wurden weltweit etwa 1,9 Mt Uran produziert, bei einer durchschnittlichen Produktionsrate von etwa 35000 t/a [18, 19].

Bei der Herstellung von Yellowcake (U_3O_8) wird das in den Uranerzen enthaltene ^{129}I freigesetzt. Aus der weltweiten Uranproduktion bis 1996 läßt sich ein zusätzlicher ^{129}I -Eintrag von 0,15 GBq abschätzen. Dieser Eintrag ist nur lokal von Bedeutung.

1.3.3 Nutzung der Kernspaltung

Bei der mit thermischen Neutronen induzierten Spaltung von ^{235}U wird ^{129}I mit einer Spaltausbeute von 0,78% erzeugt. Seit Beginn der militärischen Nutzung der Kernspaltung gegen Ende des 2. Weltkriegs und der wesentlich späteren Nutzung der Kernspaltung für zivile Anwendungen stieg das ^{129}I -Inventar in der Umwelt um viele Größenordnungen an. Im Eis vom Fiescherhornletscher (Schweiz) wurde der deutliche Anstieg seit 1950 beobachtet [9].

Bis in die 60-er Jahre hinein war der wesentliche anthropogene ^{129}I -Eintrag militärischer Natur. Neben den oberirdischen Atombombenversuchen war vor allem die militärische Aufarbeitung bestrahlter Brennelementen die Hauptquelle für Radioiod in der Umwelt.

Kernwaffenversuche

Nach dem ersten amerikanischen Kernwaffentest im Juli 1945 und dem Einsatz der beiden Kernwaffen in Hiroshima und Nagasaki im August 1945 kam es noch zu 540 weiteren oberirdischen Kernwaffenexplosionen. Der größte Teil davon wurde von den USA und der ehemaligen Sowjetunion bis Ende 1962 gezündet [20]. Global wurden dabei etwa 580 GBq an ^{129}I in die Atmosphäre eingetragen, wie sich aus den freigesetzten Spaltenergieen der einzelnen Explosionen rekonstruieren läßt. In Abb. 1.1 sind die resultierenden ^{129}I -Depositionsflüsse bei 50° nördlicher

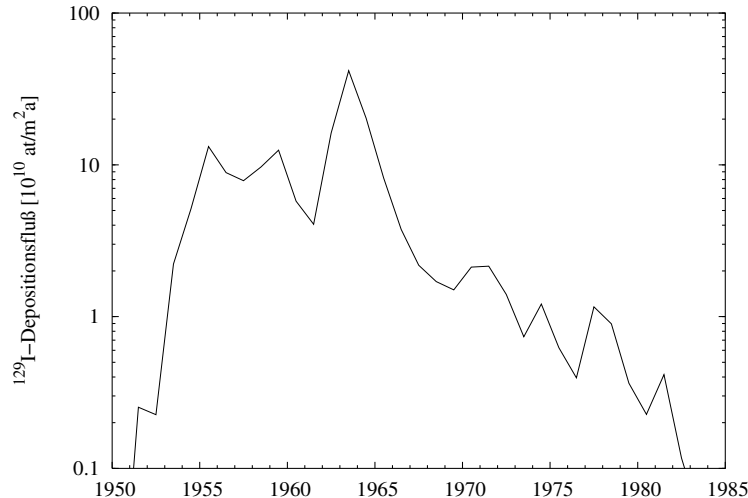


Abbildung 1.1: Modellrechnung der ^{129}I -Depositionsflüsse bei 50° Nord infolge der oberirdischen Kernwaffentests.

Breite angegeben. Sie wurden mit einem atmosphärischen Ausbreitungsmodell berechnet [21]. Wesentlich ist hier der Peak im Jahr 1963 und der abrupte Abfall der ^{129}I -Depositionsflüsse seit Inkrafttreten des Atombombentestmoratoriums, in dem sich die USA und die Sowjetunion zum Verzicht auf oberirdische Kernwaffenversuche verpflichteten. Für den betrachteten Breitengrad ergibt sich die ^{129}I -Depositionsfluenz aus den Kernwaffentests zu $2 \cdot 10^{12}$ at/m².

Die unterirdischen Kernwaffentests wurden für den Eintrag an ^{129}I nicht in Betracht gezogen, da hieraus kein stratosphärischer ^{129}I -Eintrag resultiert und sie somit nicht zum atmosphärischen ^{129}I -Inventar beitragen.

Aufarbeitung von Kernbrennstoff

Die Gewinnung von ^{239}Pu zur Herstellung von Kernwaffen war der wesentliche Grund für den Start der Aufarbeitung von Kernbrennstoff. Erst in den 60-er Jahren hat man damit angefangen, das noch in den abgebrannten Brennelementen von Leistungsreaktoren enthaltene ^{235}U und ^{239}Pu zur weiteren Energieproduktion zu recyceln.

Aufarbeitung für militärische Zwecke wurde von den Atommächten USA, Sowjetunion, Großbritannien, Frankreich und China in großem Umfang betrieben, Indien und Pakistan als weitere offizielle Atommächte verfügen nur über geringe Aufarbeitungskapazitäten. Von Israel und einigen Schwellenländern wird der Besitz von Kernwaffen vermutet, die vorhandenen Aufarbeitungskapazitäten sind aber von geringer Bedeutung. Es gibt keine verlässlichen Angaben zur ^{129}I -Freisetzung aus der militärischen Aufarbeitung.

Die Rückgewinnung von spaltbarem Material für zivile Anwendungen wird großtechnisch nur von Großbritannien, Frankreich und Rußland betrieben. In den USA, Belgien und Deutschland wurde die Wiederaufarbeitung nach mehrjährigem Betrieb von Testanlagen konzeptionell verworfen. In Japan wurde im Dezember 2004 der Testbetrieb einer industriellen Aufarbeitungsanlage aufgenommen.

Es gibt keine Angaben zur ^{129}I -Freisetzung aus der russischen Aufarbeitungsanlage RT-1 in Majak. Von den beiden noch betriebenen europäischen Aufarbeitungsanlagen Sellafield und La Hague gibt es offizielle Angaben zu den ^{129}I -Freisetzungen erst seit den 70-er Jahren [20]. Zwischen 1995 und 2003 sind in Sellafield und La Hague 0,34 TBq an ^{129}I gasförmig in die Troposphäre und 18,5 TBq in flüssiger Form ins Meer abgegeben worden [22, 23, 24, 25, 26]. Von Marcoule, einer weiteren französischen Aufarbeitungsanlage, die bis Anfang der 90-er Jahre auch für die militärische Plutoniumproduktion eingesetzt wurde, gibt es offizielle Angaben zu den freigesetzten Mengen an ^{129}I erst ab 1988. Aus dieser deutlich kleineren Aufarbeitungsanlage wurde zwischen 1988 und seiner Stilllegung im Jahr 1997 eine ^{129}I -Aktivität von 0,45 TBq gasförmig freigesetzt [27, 28]. Eine ausführliche Diskussion der ^{129}I -Einträge aus den einzelnen Aufarbeitungsanlagen erfolgt in Kap. 2.2.

Betrieb von Kernkraftwerken

^{129}I -Freisetzungen während des Regelbetriebs von Kernkraftwerken (KKW) sind demgegenüber unbedeutend. Eine Abschätzung für die ^{129}I -Freisetzung aus Kernkraftwerken erhält man über die beim KKW Betrieb in Deutschland freigesetzte ^{131}I -Aktivität. Zwischen 1995 und 1999 lag die mittlere ^{131}I -Freisetzung aus allen deutschen Kernkraftwerken bei 324 MBq/a [22]. Setzt man für das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Verhältnis bei der Freisetzung aus den Kernkraftwerken das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Verhältnis im Tschernobylreaktor zum Zeitpunkt des Unfalls von 15,2 an [29], so liegt die gesamte ^{129}I -Freisetzung der deutschen Kernkraftwerke im Regelbetrieb bei 7 Bq/a.

Selbst beim Tschernobyl-Unfall wurde mit einer ^{129}I -Freisetzung von etwa 13 GBq [20] nur 1/6 der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den europäischen Wiederaufarbeitungsanlagen im Jahr 1986 erreicht. Für das globale ^{129}I -Inventar hat der Tschernobyl-Unfall also keine Bedeutung.

1.4 ^{129}I -Ausbreitungspfade

Da die Aufarbeitungsanlagen den jährlichen ^{129}I -Eintrag um viele Größenordnungen dominieren, sind die Hauptausbreitungspfade dieser Einträge von großer Bedeutung. Die direkten gasförmigen ^{129}I -Emissionen werden meist als Hauptquelle für das atmosphärische ^{129}I -Inventar in Europa angesehen [30, 31, 32].

1.4.1 Rezirkulation der flüssigen ^{129}I -Freisetzungen

Der überwiegende Anteil der derzeitigen ^{129}I -Abgaben in die Umwelt passiert in flüssiger Form, vor allem aus La Hague in den Englischen Kanal und aus Sellafield in die Irische See (s.a. Kap. 2.2). Ein Teil des ins Meer eingetragenen ^{129}I kann in die Atmosphäre entweichen, bevor es bei Grönland in das arktische Tiefenwasser absinkt [32].

Mit Hilfe der in [32] beschriebenen Modellierung kann der atmosphärische ^{129}I -Eintrag aus dem Meer abgeschätzt werden. Abb. 1.2 zeigt diesen Eintrag im Vergleich zum direkten, gasförmigen ^{129}I -Eintrag aus den europäischen Aufarbeitungsanlagen. Der atmosphärische ^{129}I -Eintrag über Rezirkulation aus dem

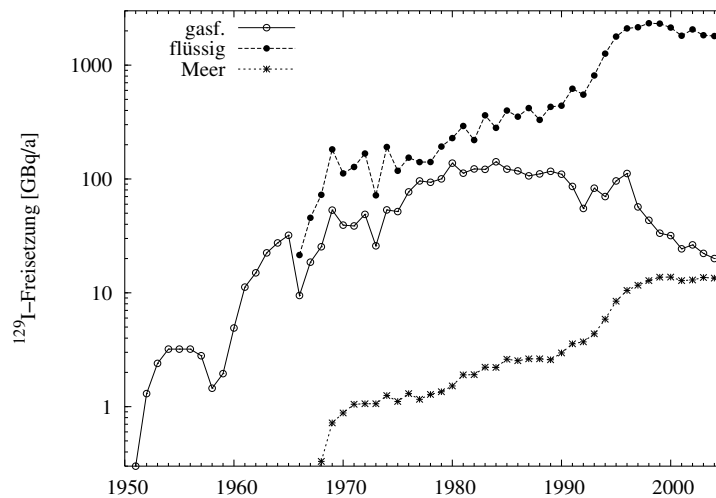


Abbildung 1.2: ^{129}I -Freisetzungen in Europa im Vergleich: gasförmige (\circ) und flüssige (\bullet) Abgaben bei der Aufarbeitung und rezirkulierte Freisetzungen aus dem Meer (*).

Meer war bis in die 90-er Jahre hinein für das atmosphärische ^{129}I -Inventar in Zentraleuropa ohne Bedeutung. Infolge des starken Anstiegs der flüssigen ^{129}I -Freisetzungen gegen Anfang der 90-er Jahre und einer bedeutenden Reduktion der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen in den späten 90-er Jahren gewann der aus dem Meer rezirkulierte ^{129}I -Anteil stark an Bedeutung. Mittlerweile trägt er schon

zu etwa 1/3 zum atmosphärischen ^{129}I -Inventar in Europa bei. Sollte in den kommenden Jahren auch in Sellafield eine zur Anlage in La Hague vergleichbare Iodrückhaltung erreicht werden, dann wird die Hauptquelle an atmosphärischem ^{129}I in den rezirkulierten flüssigen Abgaben in das Meer zu finden sein.

1.4.2 Gasförmige ^{129}I -Ausbreitung

Ein Beispiel für die großräumige Ausbreitung von gasförmig freigesetztem ^{129}I stellt die Umgebung der amerikanischen Aufarbeitungsanlage am Savannah River Site (SRS) dar. In [12] wurden Bodenproben im Umkreis von 180 km der Anlage analysiert. Die erhaltenen ^{129}I -Depositionsfluenzen sind weitgehend radialsymmetrisch um die Anlage verteilt. Sie sind exponentiell vom Abstand zur Anlage abhängig, etwa die Hälfte der freigesetzten ^{129}I -Aktivität (etwa 0,17 TBq) wurde im Umkreis von 200 km deponiert [12].

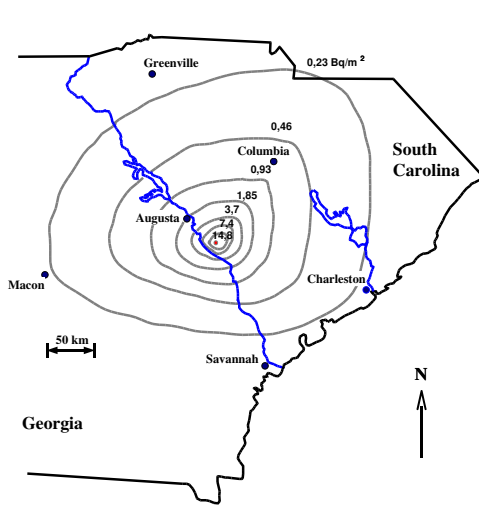


Abbildung 1.3: ^{129}I -Isodepositionslinien am Savannah River Site (SRS) [12].

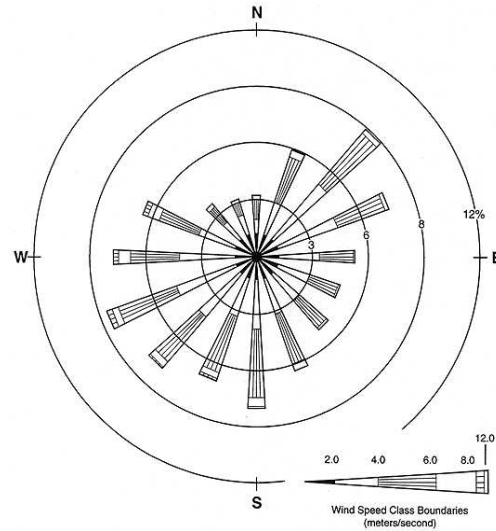


Abbildung 1.4: Windrose am SRS (Mittelwert 1987-1991) [33].

In Abb. 1.5 sind die gemessenen ^{129}I -Depositionsfluenzen in radialer Richtung für drei Windrichtungen über der Entfernung vom Freisetzungsort aufgetragen. Verwendet wurden die Richtungen Nord-Nordost als Hauptwindrichtung (\times), Süd als die Richtung mit stark unterdrückter Ausbreitung (+) und Ost als Maß für eine mittlere Ausbreitung (*). Die beobachteten ^{129}I -Depositionsfluenzen lassen sich gut mit einer Funktion der Form

$$f(r) = \frac{A}{r} \cdot \exp(-r/a) + \frac{B}{r} \cdot \exp(-r/b)$$

beschreiben. Als Fit-Parameter für die mittlere Ausbreitung ergeben sich: $A = 1,32 \cdot 10^{17}$ at/m, $a=25$ km, $B = 3,5 \cdot 10^{16}$ at/m und $b=471$ km.

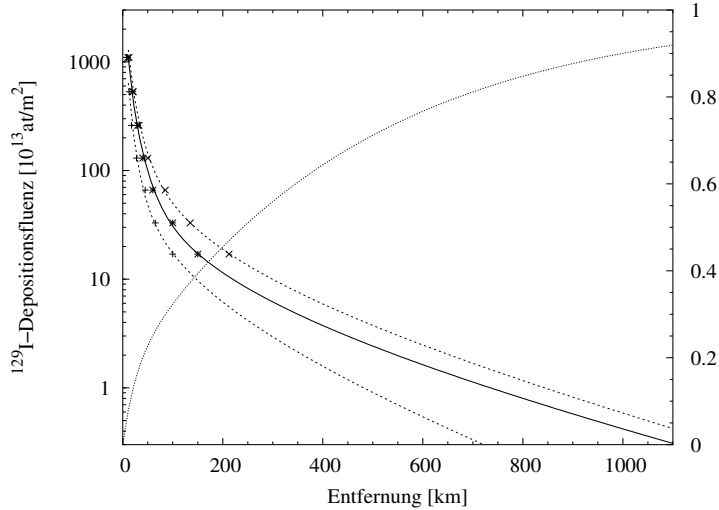


Abbildung 1.5: Gemessene ^{129}I -Depositionsfluenzen an der Savannah River Anlage [12] in Radialrichtung über der Entfernung zum Depositionsort aufgetragen. Die durchgezogene Linie entspricht einem Fit an die mittleren ^{129}I -Depositionsfluenzen (*). Die gepunktete Kurve gibt den innerhalb eines Kreises mit Radius r deponierten ^{129}I -Anteil an.

Diese Fit-Parameter berücksichtigen $\int_0^\infty \int_0^{2\pi} f(r) dr d\varphi = 0,17 \text{ TBq}$, alles freigesetzte ^{129}I wird auch in endlicher Zeit wieder auf der Erdoberfläche deponiert. Innerhalb von 200 km Umkreis der Anlage werden etwa 46 % der ^{129}I -Freisetzung deponiert, in guter Übereinstimmung mit [12].

Für die Form der Fit-Funktion $f(r)$ wurde angenommen, daß die ^{129}I -Deposition direkt proportional zur ^{129}I -Konzentration in der Luft ist und die ^{129}I -Konzentration der Luft indirekt proportional mit dem Abstand von der Anlage fällt. Die Überlagerung von zwei Funktionen der Form $g(r) \sim \frac{1}{r} \cdot \exp(-r/\rho)$ kann man als eine mehrkomponentige ^{129}I -Freisetzung verstehen, deren beide Einzelkomponenten die entsprechenden Ausfallzeiten aufweisen. Die in Frage kommenden Komponenten sind an Aerosole gebundenes, elementares (I_2) und organisches (v.a. CH_3I) Iod, von denen in [34] berichtet wird.

Der Anteil des im Umkreis r der Anlage deponierten ^{129}I relativ zur gesamten Freisetzung ist Abb. 1.5 hinzugefügt (gepunktete Linie). Daran ist die große Reichweite des freigesetzten ^{129}I gut zu erkennen, im Umkreis von 1000 km wurden demnach nur etwa 90 % der ^{129}I -Freisetzung deponiert.

Dieses Ausbreitungsszenario läßt sich auch auf andere Aufarbeitungsanlagen übertragen, falls man eine mittlere ^{129}I -Deposition in der Umgebung einer ^{129}I -Quelle beschreiben will. Für eine Abschätzung der Radioiod-Deposition infolge einer kurzandauernden Freisetzung wie beim Tschernobyl-Unfall, ist dieses Ausbreitungsszenario aber unbrauchbar, da hier die räumliche Verteilung der Depositionen von der Wetterlage zum Zeitpunkt der Freisetzung bestimmt wird.

Außerdem wird die Anwendbarkeit dieses Ausbreitungsmodells von einer ausgeprägten Vorzugsrichtung der vorherrschenden Winde und von einer wesentlichen Abweichung von der durchschnittlichen Windgeschwindigkeit und der Freisetzungskomposition am Savannah River Plant vom betrachteten Freisetzungsort begrenzt.

Kapitel 2

^{129}I -Produktion und -Freisetzung

Seit Beginn der Aufarbeitung bestrahlter Brennelemente ist das ^{129}I -Inventar in der Umwelt, verglichen zum natürlichen ^{129}I -Inventar, um viele Größenordnungen angestiegen. In diesem Kapitel wird versucht, die ^{129}I Produktion im Kernreaktor zu beschreiben und die bei der Aufarbeitung angefallene ^{129}I -Aktivität zu rekonstruieren. Damit lassen sich die ^{129}I -Freisetzungen abschätzen und die Bedeutung der einzelnen Beiträge bestimmen.

2.1 Radioiodproduktion im Kernreaktor

Die radioaktiven Iodisotope fallen im Reaktor im wesentlichen bei der Spaltung von ^{235}U und ^{239}Pu an. Unter der Annahme einer homogenen Neutronenflußverteilung mit einem stark dominierenden Anteil thermischer Neutronen lassen sich einfache Aussagen über das Reaktorinventar folgern.

2.1.1 ^{239}Pu -Produktion im Reaktor

^{239}Pu wird im Kernreaktor über die Einfangreaktion $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U}$ und quasi-instantanen zweifachen β^- -Zerfall erzeugt. Die ^{239}Pu -Produktionsrate ist gegeben über $R_{\oplus}^{Pu-9} = N^{U-8} \cdot \sigma_{n,\gamma}^{U-8} \cdot \Phi$. Mit der Rate

$$R_{\ominus}^{Pu-9} = -(\lambda^{Pu-9} + \sigma_{inel.}^{Pu-9} \Phi) \cdot N^{Pu-9} = -\lambda_*^{Pu-9} N^{Pu-9}$$

wird es gleichzeitig abgebaut. Wegen der langen Halbwertszeit von ^{239}Pu ($T_{1/2} = 2,411 \cdot 10^4 a$) ist der natürliche ^{239}Pu -Zerfall im Reaktor unbedeutend. Das ^{239}Pu -Inventar wird also durch folgende Differentialgleichung beschrieben:

$$\frac{d}{dt} N^{Pu-9} = \sigma_{n,\gamma}^{U-8} \cdot \Phi(t) \cdot N^{U-8} - \sigma_{inel.}^{Pu-9} \cdot \Phi(t) N^{Pu-9} \quad (2.1)$$

Sei $\hat{\Phi}(t)$ die Stammfunktion von $\Phi(t)$ mit $\hat{\Phi}(t) = \int_0^t \Phi(\tau) d\tau$, dann löst

$$N^{Pu-9} = N^{U-8} \cdot \frac{\sigma_{n,\gamma}^{U-8}}{\sigma_{inel.}^{Pu-9}} \cdot \left[1 - \exp \left(- \sigma_{inel.}^{Pu-9} \cdot \hat{\Phi}(t) \right) \right] \quad (2.2)$$

die Gleichung (2.1). Wegen $\dot{N}^{U-5} = -\sigma_{inel}^{U-5} \cdot \Phi \cdot N^{U-5}$ und $\frac{N^{U-5}}{N_0^{U-5}} = 1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}$ folgt $\sigma_{inel}^{U-5} \cdot \hat{\Phi}(t) = -\ln(1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0})$. Hiermit ergibt sich der in Abb. 2.1 dargestellte Zusammenhang zwischen Reaktorinventar an ^{239}Pu und dem ^{235}U Abbrand $\frac{\Delta\eta}{\eta_0}$:

$$N^{Pu-9} = N^{U-8} \cdot \frac{\sigma_{n,\gamma}^{U-8}}{\sigma_{inel}^{Pu-9}} \cdot \left[1 - \left(1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0} \right)^{\frac{\sigma_{inel}^{Pu-9}}{\sigma_{inel}^{U-5}}} \right]. \quad (2.3)$$

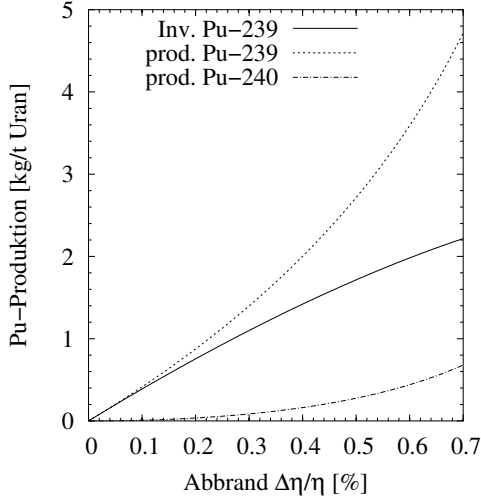


Abbildung 2.1: Gesamte im Reaktor erbrütete Menge an ^{239}Pu und ^{240}Pu und das ^{239}Pu -Reaktorinventar.

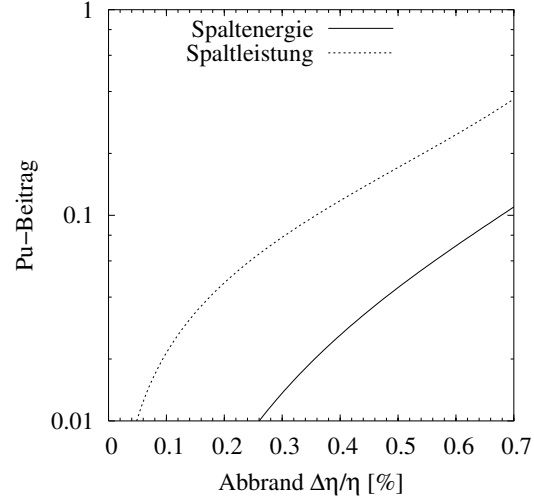


Abbildung 2.2: Anteil der ^{239}Pu -Spaltleistung an der gesamten Spaltleistung und Anteil der Energie aus ^{239}Pu -Spaltung an der gesamten freigesetzten Spaltenergie.

Für die Leistung des Reaktors resultiert ein ^{239}Pu -Spaltbeitrag von $R_{\ominus}^{Pu-9} = -\lambda^{Pu-9,*} N^{Pu-9}$. Relativ zu der bei der ^{235}U -Spaltung freigesetzten Leistung P_f^{U-5} beträgt er:

$$\frac{P_f^{Pu-9}}{P_f^{U-5}} = \frac{\sigma_f^{Pu-9}}{\sigma_f^{U-5}} \cdot \frac{\sigma_{n,\gamma}^{U-8}}{\sigma_{inel}^{Pu-9}} \cdot \frac{1}{\eta_0} \cdot \left[1 - \left(1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0} \right)^{\frac{\sigma_{inel}^{Pu-9}}{\sigma_{inel}^{U-5}}} \right] \cdot \left(\frac{1}{1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}} \right).$$

Mit zunehmendem Abbrand gewinnt P_f^{Pu-9} an Bedeutung, in Abb. 2.2 ist der Leistungsanteil aus ^{239}Pu -Spaltung an der gesamten freigesetzten Spaltleistung dargestellt.

Die gesamte während des Betriebs im Reaktor produzierte Menge an ^{239}Pu ist gegeben zu

$$N_{\Sigma}^{Pu-9} \approx N^{U-8} \cdot \sigma_{n,\gamma}^{U-8} \cdot \hat{\Phi}_{th} = N^{U-8} \cdot \frac{\sigma_{n,\gamma}^{U-8}}{\sigma_{inel}^{U-5}} \cdot \ln \left(\frac{1}{1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}} \right). \quad (2.4)$$

Die Differenz $N_{\Sigma}^{Pu-9} - N^{Pu-9}$ ist direkt proportional zur produzierten Menge an ^{240}Pu und zur Menge an gespaltenem ^{239}Pu . Die Spaltung von ^{239}Pu trägt relativ zur gesamten freigesetzten Energie aus ^{235}U -Spaltung zu

$$\frac{E_f^{Pu-9}}{E_f^{U-235}} = \frac{1}{\eta_0} \cdot \frac{\sigma_{\gamma}^{U-235}}{\sigma_{inel.}^{Pu-239}} \cdot \frac{\sigma_f^{Pu-239}}{\sigma_{inel.}^{Pu-239}} \cdot \frac{\sigma_{inel.}^{U-235}}{\sigma_f^{U-235}} \cdot \left[\left(1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}\right)^{\frac{\sigma_{inel.}^{Pu-239}}{\sigma_{inel.}^{U-235}}} - 1 - \frac{\sigma_{inel.}^{Pu-239}}{\sigma_{inel.}^{U-235}} \cdot \ln\left(1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}\right) \right]$$

bei. Der resultierende Anteil aus der ^{239}Pu -Spaltung an der gesamten freigesetzten Spaltenergie ist in Abb. 2.2 eingetragen. Man erkennt den wesentlichen ^{239}Pu -Beitrag an der erzeugten Spaltenergie bei größerem Abbrand. Bei Leistungsreaktoren wird ein Abbrand zwischen 60 und 70 % erreicht. Damit stammt 10 bis 20 % der freigesetzten Spaltenergie aus der ^{239}Pu -Spaltung.

Vernachlässigt man den Abbau von ^{240}Pu durch die Neutroneneinfangreaktion $^{240}\text{Pu}(n,\gamma)^{241}\text{Pu}$, so kann man die produzierte Menge an ^{240}Pu abschätzen:

$$N_{\Sigma}^{Pu-0} = N^{U-235} \cdot \sigma_{\gamma} \cdot \left(\frac{1}{\sigma_{inel.}^{U-235}} \cdot \ln\left(\frac{1}{1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}}\right) - \frac{1}{\sigma_{inel.}^{Pu-239}} \cdot \left[1 - \left(1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}\right)^{\frac{\sigma_{inel.}^{Pu-239}}{\sigma_{inel.}^{U-235}}} \right] \right) \cdot \frac{\sigma_{\gamma}^{Pu-239}}{\sigma_{inel.}^{Pu-239}}$$

N_{Σ}^{Pu-0} ist in Abb. 2.1 eingetragen, es stellt eine Obergrenze für das ^{240}Pu -Reaktorinventar dar. Damit ergibt sich auch eine Obergrenze für das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnis in Abhängigkeit vom Abbrand (Abb. 2.3). Als kernwaffenfähig wird Plutonium bezeichnet, dessen ^{240}Pu Anteil unter 6 % liegt [35]. In den frühen Betriebsjahren der Plutonium-Produktionsreaktoren lag der Abbrand der Brennelemente bei 1 % bis 3 %. Das entspricht einem spezifischen Abbrand zwischen 70 und 200 Mwd pro Tonne Uran.

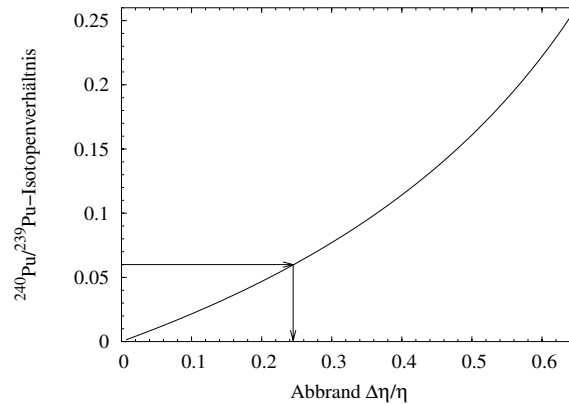


Abbildung 2.3: Obergrenze für das $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ -Verhältnis im Reaktor.

2.1.2 Spaltprodukte im Reaktor

Die Spaltprodukte (FF) fallen mit Neutronenüberschuß entsprechend ihrer Spaltausbeuten y^{FF} im Reaktor an und bilden dann über β^- -Kaskaden die stabileren

Spaltprodukte. Sie werden mit der Rate $R_{\oplus}^{FF} = y^{FF} \cdot N^{U-5} \cdot \sigma_f^{U-5} \cdot \Phi$ erzeugt.

ohne Abbau im Reaktor

Wird das betrachtete Isotop nicht wieder in bedeutendem Maße abgebaut, dann gilt wegen $\dot{N}^{U-5} = -\sigma_{inel}^{U-5} \cdot \Phi \cdot N^{U-5}$ und $\frac{N^{U-5}}{N_0^{U-5}} = 1 - \frac{\Delta\eta}{\eta_0}$:

$$N^{FF}(t) = y^{FF} \cdot N_0^{U-5} \cdot \frac{\sigma_f^{U-5}}{\sigma_{inel}^{U-5}} \cdot \frac{\Delta\eta}{\eta_0}. \quad (2.5)$$

Das Spaltproduktinventar nimmt also linear mit dem Abbrand zu. Aufgrund seiner langen Halbwertszeit und seines kleinen Neutroneneinfangsquerschnitts ($\sigma_{n,\gamma}^{I-9} = 31 b$) wird ^{129}I im Reaktor nur in sehr geringem Maße abgebaut, das ^{129}I -Inventar läßt sich also mit Gleichung (2.5) beschreiben. Da jedoch eines der Mutternuklide von ^{129}I , nämlich ^{129}Te , einen mit 20,5 % bevölkerten angeregten Zustand mit einer Halbwertszeit $T_{1/2}^{Te-129m} = 33,6 \text{ d}$ besitzt, ist in Gleichung (2.5) noch eine kleine Korrektur nötig.

	$^{235}\text{U}_{th}$	$^{235}\text{U}_s$	$^{238}\text{U}_s$	$^{239}\text{Pu}_{th}$	$^{239}\text{Pu}_s$
y^{129}	0,779	0,827	1,000	1,393	1,526
y^{131}	2,884	3,180	3,239	3,847	3,870

Tabelle 2.1: Spaltausbeuten [%] für die Massen 129 u und 131 u.

In Gleichung (2.5) ist nicht berücksichtigt, daß bei zunehmendem Abbrand die Spaltung von ^{239}Pu wichtig für die freigesetzte Spaltleistung wird (Abb. 2.2). Somit ist bei großem Abbrand der Spaltanteil an ^{239}Pu zu berücksichtigen, falls die ^{235}U - und ^{239}Pu -Spaltausbeuten des betrachteten Spaltprodukts nicht gleich groß sind. Die Spaltausbeuten für die Massen 129 u und 131 u sind in Tab. 2.1 angegeben.

mit Abbau im Reaktor

Falls das betrachtete Isotop aufgrund seines natürlichen Zerfalls oder einer Neutroneneinfangreaktion mit nicht verschwindender Rate im Reaktor abgebaut wird, dann gilt für seine Abbaurrate:

$$R_{\ominus}^{FF} = -(\lambda^{FF} + \sigma_{n,\gamma}^{FF} \Phi) \cdot N^{FF} = -\lambda_*^{FF} N^{FF}.$$

Ist die Zeitkonstante $\frac{1}{\lambda_*}$ des Abbaus klein gegenüber der Bestrahlungszeit, dann findet das betrachtete Spaltprodukt nach einigen Halbwertszeiten zum Gleichgewichtsinventar $N_{GG}^{FF} = \frac{R_{\oplus}^{FF}}{\lambda_*}$, wo $R_{\oplus}^{FF} = R_{\ominus}^{FF}$. Das gilt auch für ^{131}I , das nach einigen Halbwertszeiten zu seinem Gleichgewichtsinventar N_{GG}^{I-131} findet:

$$N_{GG}^{I-131} = \frac{y^{131} \cdot R_f}{\lambda^{I-131}}. \quad (2.6)$$

2.1.3 Näherung für kleinen Abbrand

Um waffenfähiges Plutonium herzustellen muß der Abbrand der Brennelemente im Produktionsreaktor klein sein (s.a. Abb. 2.3). Für kleinen Abbrand kann während der Betriebszeit der Neutronenfluß Φ_0 und die thermische Leistung P als konstant angenommen werden. Das führt auf eine zeitlich konstante ^{239}Pu -Produktionsrate und somit auf ein ^{239}Pu -Inventar von

$$N^{Pu-9}(t) = N^{U-8} \cdot \frac{\sigma_{n,\gamma}^{U-8}}{\sigma_{inel}^{Pu-9}} \cdot (1 - \exp(-\sigma_{inel}^{Pu-9} \cdot \Phi_0 \cdot t)) \approx N^{U-8} \cdot \sigma_{n,\gamma}^{U-8} \cdot \Phi_0 \cdot t. \quad (2.7)$$

Bei konstanter Leistung beträgt das ^{131}I -Inventar in den Brennelementen:

$$N^{I-131}(t) = y^{I-131} \cdot R_f / \lambda_*^{I-131} \cdot (1 - \exp(-\lambda_*^{I-131} \cdot t)).$$

Da das ^{129}I -Inventar linear mit der Bestrahlungszeit t_B wächst, ergibt sich für das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis in den Brennelementen der Zusammenhang (Abb. 2.4):

$$\frac{N^{I-129}}{N^{I-131}}(t) = \frac{y^{I-129}}{y^{I-131}} \cdot \lambda_*^{I-131} \cdot \frac{t_B}{1 - \exp(-\lambda_*^{I-131} \cdot t_B)}.$$

Er geht für Zeiten $t_B \gg \tau^{I-131}$, also nachdem das ^{131}I seine Gleichgewichtskonzentration erreicht hat, in einen linearen Zusammenhang über. Für eine Bestrahlungszeit $t_B=120\text{d}$, die in den frühen Betriebsjahren der Produktionsreaktoren in Majak berichtet wird [5], ergibt sich nach der ^{129m}Te Korrektur ein $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von 2,6. In diesem Beispiel liegen etwa 8% der Spaltprodukte mit Masse 129 noch als ^{129m}Te vor.

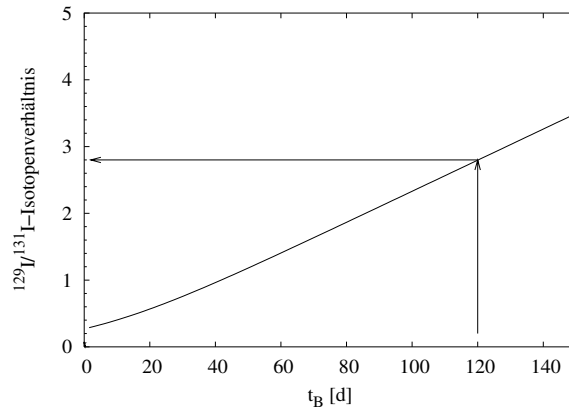


Abbildung 2.4: $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Reaktor (ohne ^{129m}Te Korrektur).

Bei geringem Abbrand trägt die Spaltung des produzierten ^{239}Pu nicht nennenswert zur freigesetzten Spaltleistung bei. Eine Korrektur der Spaltausbeuten ist hier also nicht erforderlich. Zugleich folgt für das $^{129}\text{I}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnis

in den Brennelementen $\frac{N^{I-129}}{N^{Pu-239}} \approx const. = y^{I-129} \cdot \frac{\sigma_f^{U-235}}{\sigma_{n,\gamma}^{U-238}} \cdot \eta$. Das bedeutet für das Inventar eines Natururanreaktors ein ^{129}I -Atom auf etwa 80 ^{239}Pu -Atome, also 44 GBq an ^{129}I pro produzierter Tonne ^{239}Pu . Aus den waffenfähigen Pluto-

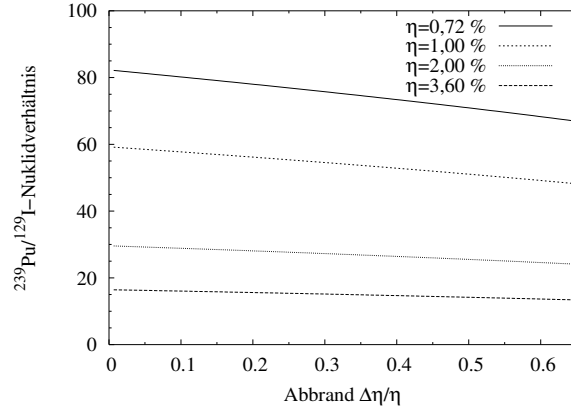


Abbildung 2.5: $^{239}\text{Pu}/^{129}\text{I}$ -Verhältnis im Reaktor.

niuminventaren der Atomkräfte läßt sich also die bei der Plutoniumextraktion angefallene ^{129}I -Aktivität berechnen.

2.1.4 Großer Abbrand: der Tschernobylreaktor

Der Abbrand der Brennelemente in Leistungsreaktoren liegt deutlich höher wie in den Plutoniumproduktionsreaktoren. Brennelemente in westlichen Leichtwasserreaktoren haben einen Abbrand von etwa 30 GWd/tU. In der ehemaligen Sowjetunion war für Druckröhrenreaktoren (RBMK) ein Abbrand um 10 GWd/tU üblich, der Tschernobylreaktor hatte zum Zeitpunkt des Unfalls einen Abbrand zwischen 10 und 11 GWd/tU [36].

Der Tschernobylreaktor eignet sich gut für eine Probe der berechneten Zusammensetzung des Reaktorkerns. Er war mit 192 t Uran bei $\eta_0=2\%$ beladen, zum Zeitpunkt des Unfalls betrug der Abbrand $\frac{\Delta\eta}{\eta_0} = 67,6\%$. Es ergibt sich nach Gleichung (2.3) ein ^{239}Pu -Inventar von $m^{Pu-9}=415\text{ kg}$ ([36]: 413 kg). Die gesamte während des Betriebs im Reaktor produzierte Menge an ^{239}Pu ist über Gleichung (2.4) gegeben zu 860 kg, aus dem in Tab. 2.2 angegebenen Plutoniuminventar des Kerns berechnet sie sich zu

$$N_{\Sigma, Tsch.}^{Pu-9} \approx N^{Pu-9} + N^{Pu-0} \cdot \frac{\sigma_{inel.}^{Pu-9}}{\sigma_{n,\gamma}^{Pu-9}} + N^{Pu-1} + N^{Pu-2} \cdot \frac{\sigma_{inel.}^{Pu-1}}{\sigma_{n,\gamma}^{Pu-1}} + \dots = 907\text{ kg}.$$

Das ^{129}I -Inventar betrug nach Gleichung (2.5) 61,6 GBq. Bei einem Abbrand von $\frac{\Delta\eta}{\eta}=67,6\%$ trägt die Spaltung des produzierten ^{239}Pu zu 12% zur gesamten im Reaktor freigesetzten Spaltenergie bei. Wegen der höheren Spaltausbeute von

	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu
m_{Pu} [kg]	2,05	413	118	47,2

Tabelle 2.2: Plutonium-Inventar des Tschernobylreaktors zum Zeitpunkt der Freisetzung [36].

^{129}I aus der ^{239}Pu -Spaltung gegenüber der ^{235}U -Spaltung liegt das ^{129}I -Inventar deswegen um 9,5 % höher, also bei 67,4 GBq ([36]: 81 GBq).

Das ^{131}I -Gleichgewichtsinventar bei voller Leistung ($3,2\text{GW}_{th}$) des Tschernobylreaktors beträgt 2885 PBq. Bei Korrektur um die höhere ^{239}Pu -Spaltausbeute berechnet sich das ^{131}I -Gleichgewichtsinventar zu 3010 PBq ([36]: 3080 PBq). Das führt zu einem $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von 16,0 zum Zeitpunkt der Freisetzung. Bei Messungen in Boden und Regenwasser wurde das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Verhältnis zu 12 ± 3 bzw. $15,2\pm 4,7$ bestimmt [29, 37].

Der Vergleich des hier abgeschätzten Coreinventars im Tschernobylreaktor mit früheren Abschätzungen und Messungen zeigt eine gute Übereinstimmung. Trotz stark vereinfachender Annahmen bei der Herleitung der Nuklidkomposition im Reaktorkern erscheint die Abschätzung zuverlässig.

2.2 ^{129}I -Quellen in Europa

Beträchtliche Mengen an ^{129}I werden heutzutage nur bei der Aufarbeitung abgebrannter Brennelemente freigesetzt. In Europa sind Großbritannien und Frank-



Abbildung 2.6: Die Lage der europäischen Aufarbeitungsanlagen Sellafield, La Hague und Marcoule.

reich die Zentren der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen. Ausgangspunkt für

die Aufarbeitung war in beiden Fällen die Herstellung von kernwaffenfähigem Plutonium in den 50-er Jahren. Beide Atommächte betreiben mittlerweile ihre Aufarbeitungsanlagen vorwiegend für zivile Zwecke.

2.2.1 ^{129}I in Windscale/Sellafield

Die großtechnische Aufarbeitung von Kernbrennstoffen in Europa startete in Großbritannien 1951 mit Inbetriebnahme der Anlage B204 in Windscale (später umbenannt in Sellafield). Diese Aufarbeitungsanlage mit einer Kapazität von 300 t/a wurde bis 1964 betrieben. In diesem Zeitraum wurden insgesamt 3,6 t waffenfähiges Plutonium gewonnen [38]. Es gibt keine gesicherten Angaben zu den ^{129}I -Freisetzungen. Für die in B204 freigesetzte ^{129}I -Aktivität kann man über das bestrahlte Brennstoffinventar eine Obergrenze finden (Kap. 3.2). Die erhaltenen jährlichen ^{129}I -Freisetzungen sind in Abb. 2.7 angegeben. Dazu wurde eine Freisetzung des gesamten bei der Aufarbeitung angefallenen ^{129}I ausgegangen. Die hier abgeschätzten Freisetzungen stellen also eine Obergrenze für die ^{129}I -Abgaben dar.

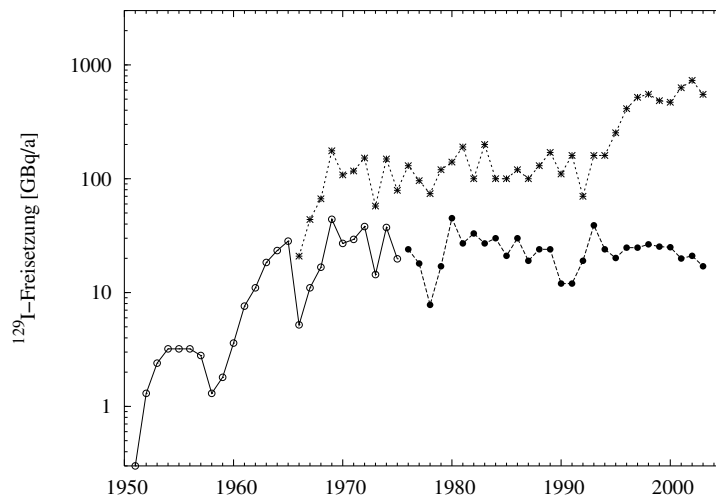


Abbildung 2.7: ^{129}I -Freisetzungen aus Windscale/Sellafield: bekannte gasförmige Abgaben (●), rekonstruierte gasförmige Abgaben (○) und flüssige Abgaben (*). Die Emissionen der Jahre 1951-1965 wurden aus den Leistungen und Kerninventaren der Plutoniumproduktionsreaktoren abgeschätzt, die flüssigen Emissionen zwischen 1966-1975 stammen aus einer Rekonstruktion von [39], die gasförmigen Emissionen zwischen 1966-1975 wurden aus den flüssigen Emissionen abgeschätzt, die Emissionen zwischen 1976-2003 sind aus [20, 22, 23, 24, 40] entnommen.

Die Anlage B204 wurde 1964 durch den deutlich größeren Nachfolger B205 ersetzt, wo erstmals auch Brennelemente aus zivilen Leistungsreaktoren aufgearbeitet wurden. B205 wurde für die Aufarbeitung von Brennelementen aus den

britischen Magnox-Reaktoren gebaut, seine Kapazität liegt bei 1500 t/a. Die jährlichen ^{129}I -Freisetzungen aus B205 sind erst seit 1976 veröffentlicht, die flüssigen ^{129}I -Abgaben vor 1976 wurden in [39] über Messungen in Seetang rekonstruiert. Diese wurden verwendet, um die gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen zwischen 1966 und 1975 abzuschätzen. Dabei wurde davon ausgegangen, daß 20% der insgesamt freigesetzten ^{129}I -Aktivität gasförmig eingebracht wurde. Da dieser Anteil zwischen 1976 und 1985 im Mittel 17% betrug, erscheint diese Annahme sinnvoll. Die resultierenden ^{129}I -Freisetzungen sind in Abb. 2.7 hinzugefügt.

Die Anlage THORP wurde für die Aufarbeitung von Uranoxid-Brennelementen errichtet. Sie ging 1994 mit einer Kapazität von 1200 t/a in Betrieb. Die ^{129}I -Freisetzungen aus THORP und B205 sind in Abb. 2.7 für die Jahre ab 1994 zusammengefaßt.

Bei der Aufarbeitung in Windscale/Sellafield wurden bis zum Jahr 2003 insgesamt etwa 1 TBq an ^{129}I gasförmig abgegeben, weitere 8 TBq an ^{129}I wurden in flüssiger Form in die Irische See abgegeben.

2.2.2 ^{129}I in Marcoule

Die erste großtechnische französische Aufarbeitungsanlage war die Plutonium-Extraktionsanlage Marcoule (UP1¹), die in der Region Languedoc-Roussillon (Südfrankreich) liegt. Sie war zwischen 1959 und 1997 in Betrieb, ihre Kapazität lag zwischen 800 und 1000 t/a [41]. Bis Anfang der 90-er Jahre wurde UP1 vorwiegend für die militärische Plutoniumextraktion eingesetzt. Offizielle Angaben zu den radioaktiven Freisetzungen gibt es erst ab 1988 [27, 28]. Die ^{129}I -Freisetzungen vor 1988 kann man allerdings aus den aufbereiteten Mengen an Kernbrennstoff und den dabei gewonnenen Mengen an Plutonium abschätzen (Kap. 3.3). Der Zeitverlauf der ^{129}I -Freisetzung ist in der Abb.2.8 dargestellt.

Zwischen 1988 und 1997 ist eine gasförmige ^{129}I -Freisetzung aus Marcoule von 448 GBq bekannt [22, 27, 28]. Weitere 600 GBq wurden der Abschätzung in Kapitel 3.3 zufolge in UP1 vor 1988 gasförmig freigesetzt, bei einer flüssigen ^{129}I -Freisetzung von etwa 300 GBq in die Rhône.

Zumindest für den Zeitraum zwischen 1988 und dem Betriebsende 1997 wird deutlich, daß die gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus UP1 einen wesentlichen Beitrag zum atmosphärischen ^{129}I -Inventar in Europa lieferten. Ein weiterer wesentlicher Beitrag in den Jahren vor 1988 erscheint zwingend.

2.2.3 ^{129}I in La Hague

Die Aufarbeitungsanlage La Hague liegt in der Normandie, etwa 20 km westlich von Cherbourg (Frankreich). Sie ist derzeit die weltweit größte Aufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe, zeitweise wurden dort drei Anlagen zeitgleich betrieben.

¹franz.: Usine d'extraction du Plutonium

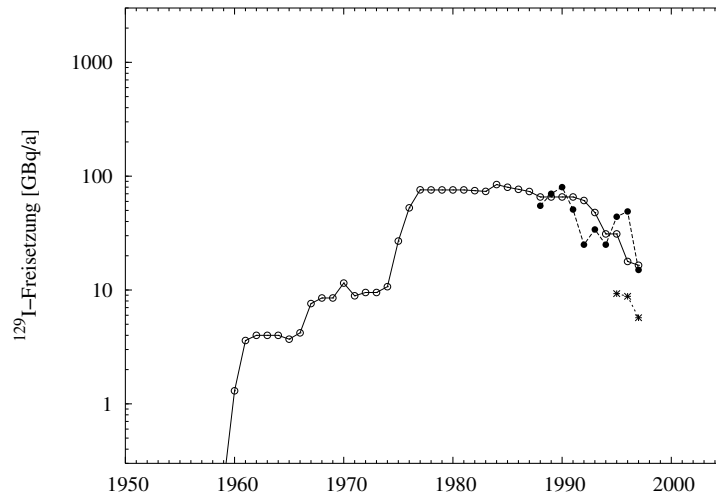


Abbildung 2.8: ^{129}I -Freisetzungen aus Marcoule. Veröffentlicht sind nur die gasförmigen Freisetzungen ab 1988 (\bullet) und die flüssigen Freisetzungen von 1995 bis 1997 ($*$). Die bekannten ^{129}I -Freisetzungen sind der Abschätzung in Kap. 3.3 (\circ) gegenübergestellt. Die Aufarbeitung in Marcoule wurde 1997 eingestellt.

Die Anlage UP2 wurde für die Aufarbeitung von Brennelementen aus den französischen Natururan-Reaktoren konzipiert. Sie ist 1966 mit einer Kapazität von 400 t/a in Betrieb gegangen. Mitte der 70-er Jahre wurde UP2 derart modifiziert, daß dort auch Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren aufbereitet werden konnten. Im August 1994 wurde UP2 dann auf eine Kapazität von 800 t/a aufgerüstet (seither UP2-800). Die in UP2-800 aufbereiteten Brennelemente stammen aus den Reaktoren von Électricité de France (EDF) [25].

Die mittlerweile stillgelegte Anlage AT1² nahm 1967 den Betrieb auf. Dort wurden die Brennelemente der schnellen Brutreaktoren aufbereitet [25].

Die Brennelemente aus deutschen, japanischen, schweizerischen, niederländischen und belgischen Reaktoren werden in der Anlage UP3-800 aufbereitet. Sie ist seit November 1989 mit einer Kapazität von 800 t/a in Betrieb [25].

Erst seit der Inbetriebnahme einer Aufarbeitungslinie für die Behandlung hochaktiver Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren im Jahr 1976 sind Daten zur ^{129}I -Freisetzung zugänglich [41].

Die jährlichen ^{129}I -Freisetzungen aus der Aufarbeitungsanlage La Hague sind in Abb. 2.9 zusammengefaßt. Bis Mitte der 90-er Jahre sind die flüssigen ^{129}I -Abgaben exponentiell angestiegen, bei etwa gleich bleibenden gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen seit Ende der 70-er Jahre. Durch die Installation eines Aktivkohlefilters 1997 wurde die gasförmige ^{129}I -Freisetzung um eine Größenordnung reduziert.

²franz.: Atelier pilote de Traitement des combustibles de la filière à neutrons rapides

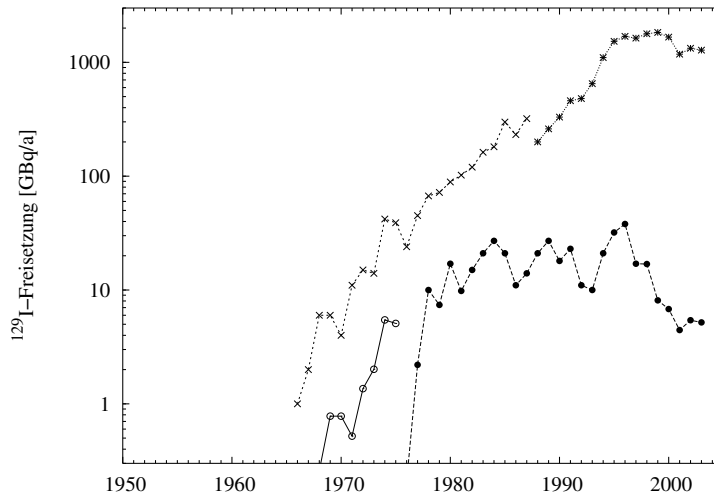


Abbildung 2.9: ^{129}I -Freisetzungen aus La Hague [20, 22, 25, 26, 42].

Seit Inbetriebnahme der Aufarbeitungsanlage in La Hague wurden bis einschließlich 2004 insgesamt etwa 0,42 TBq an ^{129}I gasförmig freigesetzt. Die integrale flüssige ^{129}I -Freisetzung in den Englischen Kanal liegt bei etwa 19 TBq.

2.2.4 Europäische Testanlagen

In Deutschland wurde zwischen 1971 und 1990 eine Testanlage mit einer Kapazität von 35 t/a betrieben. In Belgien war eine ähnlich dimensionierte Anlage im Zeitraum 1966-1974 in Betrieb [18].

In der Nähe der großen europäischen Aufarbeitungsanlagen spielen diese Testanlagen aber nur auf regionaler Skala eine Rolle, wie im folgenden am Beispiel der deutschen Testanlage nahe Karlsruhe (WAK) gezeigt wird. Mit Hilfe des aus [12] abgeleiteten Ausbreitungsmodells (siehe Kap. 1.5) kann man die lokale ^{129}I -Depositionsfluenz nahe der WAK abschätzen. Die WAK hat während ihrer Betriebszeit etwa 7,3 GBq an ^{129}I gasförmig abgegeben [43]. Im Umkreis von 2 km zum Anlagengelände läßt sich damit eine mittlere ^{129}I -Depositionsfluenz von $6,2 \cdot 10^{15}$ at/m² erwarten. In einer Bodenprobe im Abstand 1 km zur WAK wurde 1985 die ^{129}I -Depositionsfluenz zu $4,5 \cdot 10^{15}$ at/m² bestimmt [43]. Bereits in 50 km Entfernung ist der Abschätzung zufolge der WAK Beitrag allerdings schon auf $3,9 \cdot 10^{13}$ at/m² abgefallen.

Die Beiträge der großen europäischen Aufarbeitungsanlagen zur lokalen ^{129}I -Depositionsfluenz in der Region um Karlsruhe lassen sich mit einem atmosphärischen Transportmodell (s.a. Anhang A) zu etwa $9,1 \cdot 10^{13}$ at/m² abschätzen. Hieraus wird deutlich, daß in unmittelbarer Umgebung der WAK sein Beitrag an der lokalen ^{129}I -Depositionsfluenz klar dominiert. Dieser Beitrag fällt jedoch schon in 50 km Entfernung auf nur noch 30 % der lokalen ^{129}I -Depositionsfluenz ab.

2.3 ^{129}I - und ^{239}Pu -Produktion in der ehemaligen Sowjetunion

Alles waffenfähige Plutonium der ehemaligen Sowjetunion wurde in den südrussischen Produktionsanlagen Tscheljabinsk-65, Tomsk-7 und Krasnojarsk-26 produziert (Abb. 2.10). In diesen Anlagen wurde sowohl das ^{239}Pu in Kernreaktoren

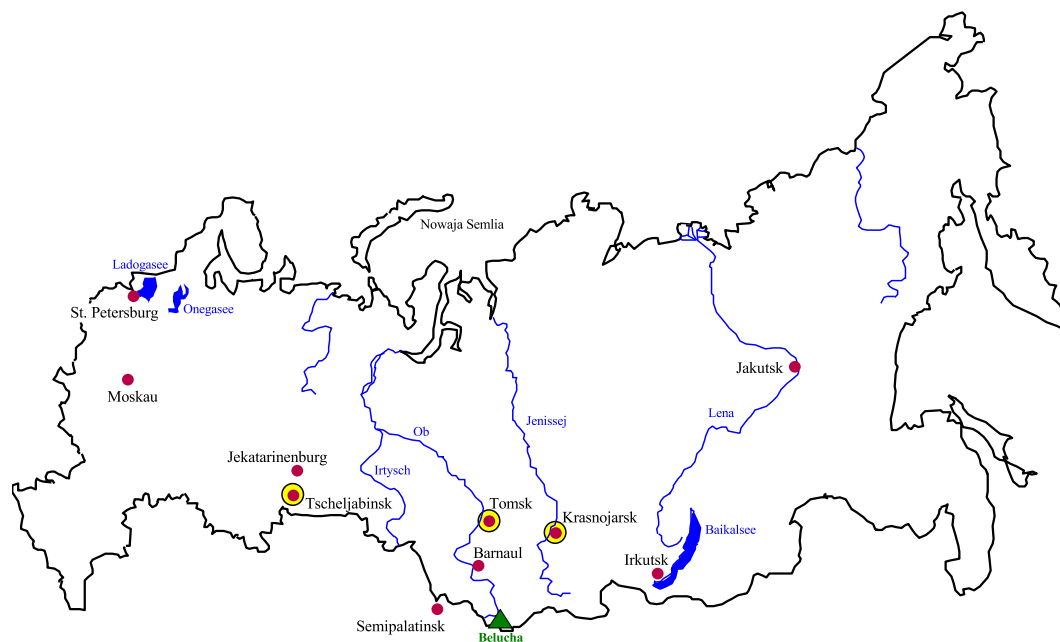


Abbildung 2.10: Alle Plutonium-Produktionsanlagen der ehemaligen Sowjetunion lagen in Süd-Rußland: Tscheljabinsk-65 (Majak), Tomsk-7 und Krasnojarsk-26.

erbrütet, als auch das erbrütete Plutonium in Aufarbeitungsanlagen aus den bestrahlten Brennelementen gewonnen. Vor allem bei der Aufarbeitung der Brennelemente aus den Plutonium-Produktionsreaktoren und aus zivilen Leistungsreaktoren waren dort große ^{129}I -Aktivitäten angefallen.

2.3.1 Majak

Die Produktionsanlage Majak ist ein ehemals geheimer militärischer Industriekomplex zur Plutoniumproduktion. Sie liegt am Süduural, etwa 70 km nördlich der Millionenstadt Tscheljabinsk (Abb. 2.10) und 15 km östlich von Kyschtym. Majak ist auch unter ihren früheren Codenamen Tscheljabinsk-40 (bis 1990) und Tscheljabinsk-65 bekannt. Seit Mitte der 90-er Jahre wird dafür auch Osjorsk verwendet, das ist der Name der Wohnstadt der in Majak beschäftigten Arbeiter.

Bereits gegen Ende 1945 wurde mit dem Bau von Majak begonnen. Die Anlage besteht unter anderem aus mehreren Kernreaktoren zur Plutonium- und Tritiumproduktion, aus zeitweise mehreren gleichzeitig betriebenen Aufarbeitungsanlagen zur Plutoniumgewinnung und aus Behandlungs- und Lageranlagen für radioaktive Abfälle.

Plutonium-Produktionsreaktoren

Auf dem Majak Gelände waren 5 graphitmoderierte Plutonium Produktionsreaktoren im Einsatz. Als erster Reaktor ging der A-Reaktor mit einer thermischen Leistung von 100 MW_{th} im Juni 1948 in Betrieb. Später wurde er auf 500 MW_{th} aufgerüstet, sein Betriebsende war 1987. Die 3 konstruktiv ähnlichen Reaktoren AV-1, AV-2 und AV-3 gingen im Juli 1950, April 1951 bzw. September 1952 mit je 250 MW_{th} (später auf etwa $2,1 \text{ GW}_{th}$ aufgerüstet) in Betrieb. Der kleinere IR-Reaktor (65 MW_{th} , später 500 MW_{th}) wurde neben der Plutoniumproduktion auch für Forschungszwecke eingesetzt. Betrieben wurde er zwischen Dezember 1952 und Mai 1987.

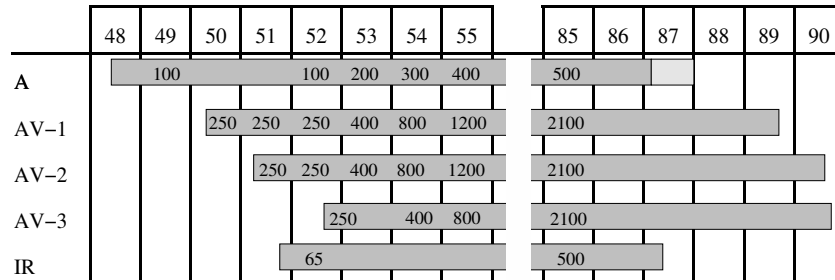


Abbildung 2.11: Betriebszeiten der Plutonium-Produktionsreaktoren in Majak. Die eingetragenen Werte sind eine Abschätzung der jeweiligen Reaktorleistung.

Eine konservative Abschätzung der ^{239}Pu -Produktion in den 5 Reaktoren erhält man unter der Annahme, daß die AV-Reaktoren mit einer Leistung von 250 MW_{th} in Betrieb gingen und innerhalb von 6 Jahren schrittweise auf ihre wahrscheinliche Solleistung von $2,1 \text{ GW}_{th}$ hochgefahren wurden. Abb. 2.11 zeigt die Betriebszeiten der Reaktoren. Die für die Abschätzung angenommenen Leistungen sind dort zusätzlich eingetragen. Die Betriebsverfügbarkeit wurde zu 0,5 im ersten Jahr, zu 0,6 im zweiten und ab dem dritten Jahr zu 0,8 angenommen.

Aus der Reaktorleistung ergibt sich der nötige Neutronenfluß $\Phi = 2 \cdot 10^{13} \frac{1}{\text{cm}^2 \text{ s}}$, mit einer Bestrahlungszeit der Brennelemente von $t_B = 120 \text{ d}$ [5] erhält man dann den Abbrand der Brennelemente über $\frac{\Delta \eta}{\eta_0} = \sigma_f^{U-235} \cdot \Phi \cdot t_B$. Mit Kapitel 2.1.3 lassen sich hieraus die produzierten Mengen an ^{239}Pu berechnen. Diese sind in der Tab. 2.3 angegeben. Die abgeschätzte ^{239}Pu -Produktion Anfang der 50-er Jahre liegt teilweise deutlich unter der Abschätzung von [44], da hier eine langsamere Leistungssteigerung der Produktionsreaktoren angesetzt wurde. Die in [44]

	1948-50	1951	1952	1953	1954	1955	
m_{Pu} [kg]	62	82	153	297	475	690	[diese Arbeit]
	78	121	350	505	766	1074	[44]

Tabelle 2.3: Abschätzung der in Majak produzierten Mengen an ^{239}Pu .

gegebene Abschätzung wird im folgenden als Obergrenze für die produzierten Plutonium- und Iodmengen verwendet.

Aufarbeitungsanlagen

Die Aufarbeitung der bestrahlten Brennelemente begann im Dezember 1948 in der Anlage B. 1959 ging die modernere Anlage BB in Betrieb, die in den folgenden Jahren die gesamte Aufarbeitung übernahm. Sie sollte einen stabileren und sichereren Betrieb gewährleisten. Die Anlage BB wurde wahrscheinlich 1987 stillgelegt, damit ging die militärische Aufarbeitung der Brennelemente aus den Plutonium-Produktionsreaktoren in Majak in dieser Zeit auf die Aufarbeitungsanlage in Tomsk-7 über.

Mitte der 70-er Jahre wurde auf dem Gelände der Anlage B eine neue Aufarbeitungsanlage installiert, wo die HEU-Brennelemente der Plutoniumproduktionsreaktoren, in der Marine eingesetzte Brennelemente und Brennelemente aus den zivilen Leistungsreaktoren aufbereitet wurden. Heute ist sie als Anlage RT-1 bekannt, sie hat eine Kapazität von etwa 400 t/a und ist noch zur Aufarbeitung von Material aus den VVER-440 Reaktoren eingesetzt. Bis in die 90-er Jahre hinein wurden dort auch Brennelemente aus den ehemals sowjetischen Satellitenstaaten und Finnland aufbereitet.

Abfallentsorgung

Beim Anlagenstart 1948 wurde der hochradioaktive flüssige Abfall in die Speicheranlagen C geleitet und der weniger aktive Abfall direkt in die Tetscha abgegeben. Die Speicheranlagen für hochaktive Abfälle mußten wegen der anfallenden Zerfallswärme gekühlt werden. Das Kühlwasser wurde der Tetscha entnommen und anschließend dort auch wieder eingespeist. In mehreren Fällen wurden Undichtigkeiten im Kühlsystem festgestellt, was zu direkten Einleitungen der hochaktiven Abfälle mit dem Kühlwasser führte [45]. Bei einem Ausfall der Kühlwasserversorgung kam es zum Kyschtym-Unfall.

Bis September 1951 wird auch von routinemäßigen direkten Einleitungen hochaktiver Abfälle in die Tetscha berichtet [5, 44, 45].

Als im Herbst 1951 das Ausmaß der Kontaminierung offensichtlich wurde ging man dazu über, routinemäßige flüssige Freisetzungen in den Karatschaisee einzuleiten. Weniger aktive Abfälle wurden aber noch bis 1956 in die Tetscha

eingeleitet. 1953 wurde damit begonnen, die unlöslichen Spaltprodukte vor der Einleitung in den Karatschaisee auszufällen. Die Rückstände wurden in Edelstahl tanks deponiert.

Von Dezember 1948 bis 1956 betrug die Einleitungen in die Tetscha etwa 100 PBq an β -Aktivität, schätzungsweise 95 % davon zwischen März 1950 und November 1951 [44].

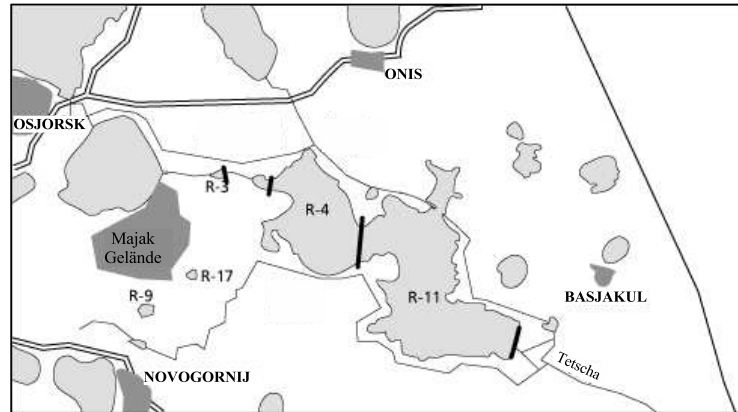


Abbildung 2.12: Am Oberlauf der Tetscha angelegte, künstliche Rückhaltereservoirs (R-3, R-4, R-9, R-11, R-17). Die verminderte Fließgeschwindigkeit erhöhte die Sedimentationsrate. Das Reservoir 9 ist der Karatschaisee.

Die Sedimente der Tetscha waren infolge der Einleitungen hochkontaminiert. Um die Ausbreitung dieser Sedimente in den Unterstrom zu behindern wurden zwischen 1951 und 1964 mehrere künstliche Reservoirs geschaffen (Abb. 2.12). Die geringe Fließgeschwindigkeit in den Reservoirs führte zu einer bevorzugten Ablagerung der mitgeführten Sedimente in den Reservoirs.

Bedeutende gasförmige Aktivitätsfreisetzungen traten zwischen 1948 und 1957 auf, die größte radiologische Bedeutung wird dabei den ^{131}I -Freisetzungen zugeschrieben [4, 6]. Erste Messungen der gasförmigen ^{131}I -Freisetzung wurden 1957 durchgeführt, in dieser Zeit wurden zwischen 50 und 200 TBq/Monat freigesetzt [4]. Derzeit wird eine integrale ^{131}I -Freisetzung aus Majak von etwa 15 PBq angenommen [6].

Bekannte Aktivitätsfreisetzungen

Neben den üblichen Aktivitätsfreisetzungen kerntechnischer Anlagen kam es in Majak zu enormen Emissionen an Aktivität, im wesentlichen während den frühen Betriebsjahren.

- In den ersten Betriebsjahren weiß man von direkter Freisetzung von gasförmiger Aktivität in die Luft und flüssiger Aktivität in den Fluß Tetscha und in einige natürliche und künstliche Seen im Umland.

- Ein Lagertank für hochaktive flüssige Abfälle hat sich im September 1957 durch eine Störung des Kühlsystems soweit erhitzt, bis er explodiert ist. Dabei ist zwar der größte Teil der freigesetzten Aktivität in der unmittelbaren Umgebung der Lageranlage wieder niedergegangen, aber schätzungsweise 74 PBq wurden in den angrenzenden Distrikten großräumig verteilt. Die besonders stark kontaminierten Gebiete werden als Osturalspur (EURT) bezeichnet. Der Vorfall wurde als Kyschtym-Unfall bekannt.
- Mehrere Jahre großer Trockenheit hatten dazu geführt, daß der Wasserpegel im Karatschaisee, in den große Mengen an flüssiger Aktivität offen eingeleitet wurden, stark gefallen war. Starke Winde verteilten im Jahr 1967 die kontaminierten Sedimentstäube in der weiteren Umgebung. Man schätzt die Aktivität der kontaminierten Stäube auf etwa 22 TBq.

Die routinemäßigen Spaltproduktsfreisetzungen der frühen Betriebsjahre sind aufgrund der Höhe und Zusammensetzung von großer radiologischer Bedeutung. In Kapitel 6 wird der Beitrag von ^{131}I zur Gesamtaktivität rekonstruiert.

Folgen für die Bevölkerung: Epidemiologie

Aufgrund der Arbeitsabläufe in Majak traten bei vielen Arbeitern in der Produktionsanlage strahlenbedingte Krankheiten auf, vor allem bei den Beschäftigten in den frühen Anlagen A,B und C³ [44]. Die Freisetzung von Spaltprodukten in den frühen Betriebsjahren setzte ferner die Bewohner von Osjorsk und von den an der Tetscha liegenden Ortschaften zum Teil hohen Strahlendosen aus.

Entsprechend den Hauptpfaden, über die eine Strahlenbelastung auftrat, wurden die möglicherweise betroffenen Menschen in Kohorten eingeteilt [46].

- Die Arbeiter-Kohorte umfaßt 18830 Personen, die in Majak zwischen 1948 und 1972 beschäftigt waren,
- die Tetscha-Kohorte 25183 Menschen, die zumindest zeitweise in an der Tetscha gelegenen Ortschaften lebten,
- zur TROC (Techa River Offspring Cohort) wurden 26500 Personen zusammengefaßt, von denen zumindest ein Elternteil in der Tetscha-Kohorte geführt wurde,
- die EURT-Kohorte besteht aus 25684 Personen, die in der beim Kyschtym Unfall kontaminierten Region lebten oder noch dort leben,
- die Majak-Kinder-Kohorte: 72185 Personen, die vor ihrem 15. Lebensjahr mindestens ein Jahr lang in Osjorsk lebten

Vor allem in der Majak-Kinder-Kohorte und in der Tetscha-Kohorte ist eine gasförmige ^{131}I -Freisetzung in den frühen Betriebsjahren von Bedeutung.

³Das sind der A-Reaktor, die Aufarbeitungsanlage B und die Speicheranlagen C.

Epidemiologie: die Tetscha-Kohorte

Infolge der flüssigen Freisetzungen in die Tetscha wurde das Flußwasser und die Bodensedimente kontaminiert [47, 48]. Am Unterlauf der Tetscha bis zu ihrer Mündung in die Iset gab es 1949 noch 38 Ortschaften mit über 28000 Bewohnern (Abb. 2.13). Die Bevölkerung verwendete das Flußwasser zum Teil als Trinkwasser und als Brauchwasser, das Aufhalten in den Flußauen führte zu zusätzlicher externer Strahlenbelastung [44, 49].



Abbildung 2.13: Am Unterlauf der Tetscha gelegene Siedlungen.

Ab 1951 wurde die Bevölkerung vom Biophysikalischen Institut des sowjetischen Gesundheitsministeriums medizinisch untersucht [45, 49]. Dabei wurden bei mehreren hundert Menschen Symptome von chronischer Strahlenkrankheit festgestellt, die sich später in 66 Fällen bestätigten. Daraufhin kam es zu einer umfassenden Umsiedlungsaktion ab 1952, in Majak wurde ein später in das Urals Research Center for Radiation Medicine (URCRM) eingegliedertes Medizinzentrum gegründet und für die nicht umgesiedelte Bevölkerung wurden Brunnen für die Trinkwasserversorgung gebohrt und die Flußlandschaft der Tetscha gesperrt.

Die betroffene Bevölkerung wurde viele Jahrzehnte vom URCRM medizinisch überwacht. Ein Anstieg von Leukämien und von soliden Tumoren mit der Strahlendosis wurde beobachtet [45].

Im aktuellen Dosimetrie-System TRDS-2000 wurde für die Tetscha-Anwohner eine Rekonstruktion der erhaltenen Strahlendosen durchgeführt. Zusammen mit diesen Dosen ergaben die epidemiologischen Studien eine Dosis-Wirkungs-Beziehung, die gegenüber den Überlebenden der Atombombenexplosionen in Japan

eine deutlich höhere Strahlenschädlichkeit aufweist [2, 50].

	Dosis [Sv] inf.		
	intern	extern	Haut
Metlino	2,3	1,2-6,9	7,1
Muslyumovo	0,5	0,5-2,0	1,3

Tabelle 2.4: Dosisabschätzung für die Bewohner von Metlino und Muslyumovo (7 km bzw. 75 km flußabwärts von Majak) infolge der flüssigen Einleitungen [49]. Angegeben ist die 50-Jahre-Folgedosis durch interne und externe Exposition und die Hautdosis.

Diese Inkonsistenz könnte zum Beispiel daran liegen, daß die Dosen unterschätzt wurden. Daher wurde bereits auf Schwachstellen im TRDS-2000 hingewiesen [2, 5, 47, 48, 49], die vor allem in der möglicherweise unzureichenden Rekonstruktion der Radionuklidzusammensetzung der hochaktiven Einleitungen, in der Transportrechnung der kontaminierten Tetscha-Sedimente und im Expositionsszenario der Anwohner liegen. Auch eine zusätzliche Strahlendosis über hohe gasförmige Freisetzungen kurzlebiger Radionuklide in den frühen Betriebsjahren kann diese Diskrepanz möglicherweise verringern. ^{131}I , als eine der Hauptkomponenten der gasförmigen radioaktiven Freisetzungen, kann hierbei eine wichtige Rolle spielen [2].

Epidemiologie: die Majak-Kinder-Kohorte

In Osjorsk, etwa 10 km vom Majak-Gelände entfernt, wohnen die in Majak Beschäftigten mit ihren Angehörigen. Die Einwohnerzahl wurde 1991 auf etwa 83500 beziffert [44].

Für die Jahre von 1949 bis 1956 wird über 96 % der erhaltenen Strahlendosis in Osjorsk ^{131}I zugeschrieben [4]. Radioiod wird beim Verzehr kontaminierter Lebensmittel (z.B. Milch, Gemüse) vom Körper aufgenommen und in der Schilddrüse angereichert. Deswegen ist es für eine zuverlässige Dosisrekonstruktion nötig, die Herkunft der frischen Lebensmittel zu kennen. Es wird berichtet, daß Osjorsk vor allem mit Milch aus Betrieben beliefert wurde, deren Weidebestände zwischen 20 und 100 km von Majak entfernt liegen. Eine aktuelle Dosisrekonstruktion ergibt Schilddrüsendosen bis etwa 4 Sv [4].

In der Majak-Kinder-Kohorte wurde, verglichen mit der durchschnittlichen Rate in Rußland, eine 3 bis 4-fach erhöhte Schilddrüsenkrebshäufigkeit festgestellt; bezogen auf die mittlere Schilddrüsenkrebshäufigkeit in der Region Tscheljabinsk ist sie noch um 50-100 % erhöht [3].

Infolge von ^{131}I -Freisetzungen in Hanford wurden Schilddrüsendosen rekonstruiert, die mit den Dosen in der Majak-Kinder-Kohorte vergleichbar sind. In der Umgebung der Hanford Anlage wurde allerdings keine Dosisabhängigkeit der

Schilddrüsenkrebshäufigkeit festgestellt [51]. Das ist möglicherweise ein Hinweis dafür, daß die für die Majak-Kinder-Kohorte ermittelten Schilddrüsendosen deutlich unterschätzt wurden.

2.3.2 Tomsk-7 und Krasnojarsk-26

Neben Majak wurden in Sibirien noch zwei weitere militärische Aufarbeitungsanlagen betrieben, nämlich die Anlagen Tomsk-7 und Krasnojarsk-26. Die dort betriebenen Kernreaktoren wurden zur Plutoniumproduktion und teilweise auch zur Strom- und Fernwärmeversorgung der Umgebung eingesetzt. Die Brennelemente der insgesamt 8 Graphit-moderierten Reaktoren bestanden zu 98,5 % aus Natururan und zu 1,5 % aus HEU (Anreicherungsgrad 90 %). Die hochangereicherten Brennelemente aus Tomsk-7 und Krasnojarsk-26 wurden in RT-1 aufbereitet [44].

Die Plutoniumproduktionsanlage Tomsk-7 ist seit 1994 auch als Sewersk bekannt. Sie liegt etwa 15 km nord-westlich von Tomsk (Abb. 2.10) am Fluß Tom, ein Zufluß der Ob. Neben 5 Graphit-moderierten Produktionsreaktoren für Plutonium war seit ungefähr 1956 auch eine Aufarbeitungsanlage in Betrieb. Dort wurden neben allen in den Sewersk-Reaktoren angefallenen Brennelementen ab 1987 auch die in Majak bestrahlten Brennelemente aufbereitet. Bei der Aufarbeitung in Sewersk war schätzungsweise eine ^{129}I -Aktivität von 3,1 TBq angefallen (Kap. 3.1), wovon etwa 290 GBq gasförmig freigesetzt wurde.

Krasnojarsk-26, heute auch als Schelesnogorsk bekannt, liegt etwa 50 km nord-östlich von Krasnojarsk (Abb. 2.10) am Jenissej. Unter anderem besteht die Anlage aus 3 Graphit-moderierten Reaktoren zur Plutoniumproduktion und einer Aufarbeitungsanlage. Der gesamte Produktionskomplex liegt etwa 250-300 m tief unter der Erdoberfläche.

Der erste Produktionsreaktor in Schelesnogorsk ging schon im Sommer 1958 in Betrieb, die Aufarbeitungsanlage allerdings erst 1964. Wahrscheinlich wurden deshalb die zwischen 1958 und 1964 bestrahlten Brennelemente in Majak oder Sewersk aufbereitet. Insgesamt ist bei der Aufarbeitung in Schelesnogorsk schätzungsweise eine ^{129}I -Aktivität von 1,8 TBq angefallen (Kap. 3.1), wovon wiederum etwa 150 GBq gasförmig freigesetzt wurde.

1984 wurde mit dem Bau einer zweiten zivilen, russischen Aufarbeitungsanlage in Schelesnogorsk begonnen, in der abgebrannte Brennelemente aus den VVER-1000 Reaktoren aufgearbeitet werden sollten. Der Bau der Anlage RT-2 mit einer Sollkapazität von 1500 t/a wurde aber aus finanziellen Gründen 1989 eingestellt.

Für RT-2 war eine Iodrückhaltung von 95 % angestrebt [44], man kann also für die früheren Aufarbeitungsanlagen von einer wesentlich schlechteren Iodrückhaltung ausgehen. Die gasförmige Freisetzung von 15-30 % der angefallenen ^{129}I -Aktivität erscheint realistisch.

Derzeit werden noch zwei Produktionsreaktoren in Tomsk-7 und einer in

Krasnojarsk-26 betrieben, nach offiziellen Angaben ausschließlich zur regionalen Strom- und Fernwärmeversorgung. In diesen Reaktoren werden dabei etwa 1,4 t waffentaugliches Plutonium pro Jahr produziert [52]. Über die Aufarbeitung der anfallenden Brennstäbe ist nichts bekannt, die russische Regierung hatte aber 1995 die Einstellung der Plutoniumproduktion erklärt. Hier wird davon ausgegangen, daß damit auch der Betrieb der Aufarbeitungsanlagen Tomsk-7 und Krasnojarsk-26 eingestellt wurde.

2.4 Aufarbeitung in anderen Ländern

Außerhalb Europas und der Sowjetunion wurden abgebrannte Brennelemente nur von den weiteren Atommächten und Japan in nennenswertem Umfang aufbereitet.

2.4.1 USA

In den Vereinigten Staaten hat die Produktion von kernwaffenfähigem Plutonium in den 40-er Jahren begonnen. Die weltweit erste großtechnische Aufarbeitungsanlage zur Plutoniumextraktion, nämlich die Anlage T in Hanford Reservation (nahe Richland, Washington), ist 1944 in Betrieb gegangen. Sie war die erste von mindestens 5 amerikanischen Aufarbeitungsanlagen, die in Hanford und in der Savannah River Anlage (Aikon, South Carolina) zur Produktion von Waffenplutonium in Betrieb waren.

In den Hanford und in den Savannah River Anlagen sind etwa 5 TBq an ^{129}I angefallen⁴, wovon schätzungsweise 0,85 TBq gasförmig in die Umwelt abgegeben wurde. Das entspricht einer mittleren Iodrückhaltung von 83 %, bei einer Freisetzung von über 70 % der ^{129}I -Aktivität bis 1963. In [12] wird von einer ^{129}I -Freisetzung in der Savannah River Anlage von etwa 170 GBq innerhalb der ersten 25 Betriebsjahre berichtet. Das entspricht einer gasförmigen Freisetzung von etwa 12 % der bis dahin angefallenen ^{129}I -Aktivität. Hierbei muß noch berücksichtigt werden, daß die Savannah River Anlage erst seit Mitte der 50-er Jahre betrieben wird, also die modernere militärische Aufarbeitungsanlage der USA ist.

Das Idaho Chemical Processing Plant (ICPP) wird in Idaho Falls (Idaho) seit 1953 zum ^{235}U -Recycling von in der Marine und in Forschungsreaktoren eingesetzten Brennelementen aus hochangereichertem Uran (HEU) betrieben. Hier wurden bis 1984 knapp 30 t HEU-Brennelemente aufbereitet [35], wobei etwa 130 GBq an ^{129}I angefallen sind. Davon dürften etwa 20 GBq in die Atmosphäre abgegeben worden sein.

Zwischen 1966 und 1972 wurde in West Valley (New York) eine zivile Aufarbeitungsanlage mit einer Kapazität von 300 t/a betrieben. In diesem Zeitraum wurden etwa 600 t abgebrannter Brennelemente aus zivilen Leistungsreaktoren

⁴Die ^{129}I -Aktivität ist aus dem erbrüteten Plutonium [35] abgeleitet.

aufbereitet [35, 53], wobei eine ^{129}I -Aktivität von etwa 310 GBq angefallen ist. Eine atmosphärische ^{129}I -Freisetzung von 30 GBq ist anzunehmen.

2.4.2 Andere Atommächte

Von den Aufarbeitungsaktivitäten Chinas, Indiens, Israels, Pakistans und Nord Koreas ist nur wenig bekannt. In Tab. 2.5 ist eine Abschätzung der dort produzierten Mengen an waffenfähigem Plutonium [18, 52] angegeben, damit läßt sich die produzierte ^{129}I -Aktivität ebenfalls abschätzen. Die nachfolgende Beschreibung der Atomprogramme in diesen Ländern ist aus [18] entnommen.

	^{239}Pu [kg]	^{239}Pu [kg]	^{129}I [GBq]
	1995 [18]	2003 [52]	2003
China	2500	4800	210
Israel	330	580	25
Indien	290	380	16
Pakistan	-	40	2
Nord Korea	-	15-40	<2

Tabelle 2.5: Produziertes ^{239}Pu [18, 52] und dabei angefallene ^{129}I -Aktivität.

Chinas erster Kernwaffentest wurde am 16. Oktober 1964 durchgeführt. Der Spaltstoff in dieser und den nachfolgenden Bomben bestand aus ^{235}U . Erst Ende der 60-er Jahre wurden in Jiuquan und Guangyan Aufarbeitungsanlagen in Betrieb genommen, die geschätzte Aufarbeitungskapazität liegt bei wenigen 100 t/a.

Das beim indischen Bombentest 1974 eingesetzte ^{239}Pu wurde im Atomforschungszentrum Bhabha in Trombay zwischen 1966 und 1974 produziert. 1979 wurde in Tarapur eine Aufarbeitungsanlage in Betrieb genommen, wo zumindest zeitweise auch Brennelemente aus indischen Leistungsreaktoren aufbereitet wurden. Die Kapazität der Tarapur-Anlage beträgt 100 t/a.

Israel hat offiziell den Besitz von Kernwaffen nie bestätigt, dennoch gilt es als sicher, daß Israel in der Negev Wüste nahe Beersheba eine Anlage zur Produktion von Kernwaffen betreibt. Die Aufarbeitungsanlage hat eine geschätzte Kapazität von 40 kg Plutonium pro Jahr.

Pakistan hat wahrscheinlich seit 1986 die Infrastruktur für die Herstellung von Kernwaffen, dazu gehört eine Aufarbeitungsanlage zur Produktion von 10-20 kg Plutonium pro Jahr.

In Argentinien und Brasilien wurde die Aufarbeitung von Kernbrennstoffen nur bis zur Entwicklung von Pilotanlagen vorangetrieben. Iran und Nordkorea werden verdächtigt, jeweils ein Nuklearprogramm durchzuführen. Möglicherweise beschränkt sich die Aktivität Irans auf die Anreicherung von ^{235}U .

Nachdem die Aufarbeitung bestrahlter Brennelemente in Nordkorea lange vermutet wurde [52], behauptet Nordkorea mittlerweile offiziell, im Besitz von Kernwaffen zu sein (FAZ 10.2.05).

2.4.3 Japan

Japan betreibt seit 1977 die Testanlage Tokai-Mura, in der bis 2002 etwa 5,4 t Plutonium gewonnen wurden. Der durchschnittliche Durchsatz lag bei 90 t/a. Die gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen im Zeitraum von 1977 bis 1997 liegen zwischen 0,1 GB/a und 2,3 GB/a, insgesamt wurden in diesem Zeitraum 8,4 GBq gasförmig abgegeben [20]. Die wesentlich größere Anlage Rokkasho-mura mit einer Kapazität von 800 t/a nahm im Dezember 2004 den Testbetrieb auf.

Kapitel 3

Abschätzung der ^{129}I -Produktion

3.1 ^{129}I in den ehem. sowjetischen Anlagen

Die ehemals sowjetischen Aufarbeitungsanlagen zur Produktion von kernwaffenfähigem Plutonium¹ sind von der vorwiegend zivil genutzten Anlage RT-1 in Majak zu unterscheiden. In den ersteren wurde ausschließlich Brennelemente mit geringem Abbrand aufbereitet, der durch die Produktion von ^{240}Pu beschränkt war. In RT-1 wurden hingegen in der Marine eingesetzte Kernbrennstoffe, die HEU-Brennelemente der Produktionsreaktoren und Brennelemente aus den russischen VVER-440 und BN-350/600 Reaktoren aufbereitet, alle mit einem Abbrand von über 60%.

3.1.1 Sowjetische Pu-Produktion

In den Aufarbeitungsanlagen zur Extraktion von kernwaffenfähigem Plutonium lassen sich die angefallenen ^{129}I -Aktivitäten mit Hilfe der in [44] abgeschätzten Mengen an produziertem ^{239}Pu abschätzen. Ein geringer Abbrand der Brennelemente kann angenommen werden, das $^{129}\text{I}/^{239}\text{Pu}$ -Isotopenverhältnis nach der Bestrahlung ist dann bekannt (Kap. 2.1.2). Die erhaltenen ^{129}I -Aktivitäten sind in Abb. 3.1 angegeben. Unter Berücksichtigung der Informationen zu den Betriebszeiten der Aufarbeitungsanlagen (Kapitel 2.3.2) und Annahmen zur mittleren Abklingzeit erhält man die bei der Aufarbeitung angefallenen ^{129}I -Aktivitäten in den ehemals sowjetischen Plutonium-Produktionsanlagen.

3.1.2 Anlage RT-1

Die in der Anlage RT-1 aufbereiteten Mengen an abgebrannten Kernbrennstoffen sind für die 90-er Jahre nur teilweise bekannt (Tab. 3.1). Zwischen 1976 und 1991 lag der mittlere Durchsatz in RT-1 bei 200 t/a, bis einschließlich 2001

¹Anlagen B und BB in Majak, Aufarbeitungsanlagen in Sewersk und Schelesnogorsk

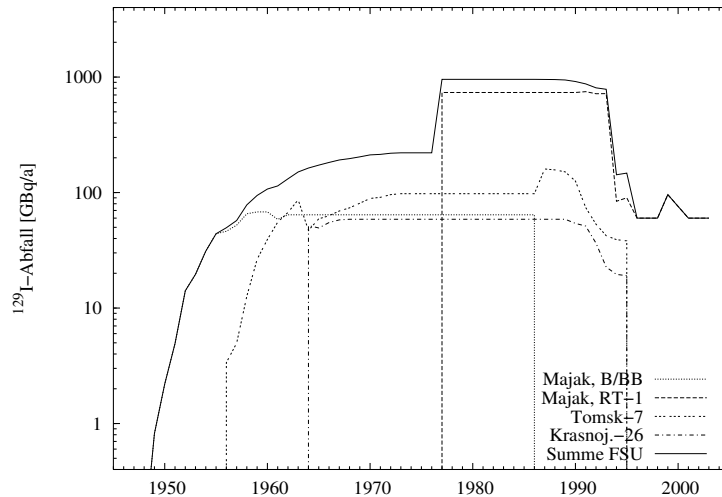


Abbildung 3.1: Abschätzung der in den sowjetischen Aufarbeitungsanlagen angefallenen ^{129}I -Aktivität. Die in den Reaktoren produzierten Plutoniummengen sind aus [44] entnommen.

Jahr	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	00
m [t]	-	170	120	124	160	≈ 150	100	-	-	160	126

Tabelle 3.1: In Majak aufbereitete Brennelemente [38, 44].

wurden in der Anlage RT-1 3500 t Uran aufgearbeitet, davon 3100 t aus den VVER-440 Reaktoren [38]. VVER-440 Reaktoren haben einen typischen ^{235}U -Anreicherungsgrad von 3,6 % und einen Abbrand von 80 % (entsprechend etwa 35 GWd/t). Alleine aus den VVER-440 Reaktoren ergibt sich eine angefallene ^{129}I -Aktivität von 2,3 TBq.

Von der Aufarbeitung bestrahlter Brennelemente aus sowjetischen Brutreaktoren² wird berichtet [44], wobei bis 1992 insgesamt etwa 4 t Plutonium gewonnen wurden. Nimmt man an, daß es aus dem Brutmantel gewonnen wurde, so folgt über einen Vergleich der ^{238}U -Wirkungsquerschnitte $\sigma_{n,\gamma}$ und σ_f eine angefallene ^{129}I -Aktivität von 1 GBq. Dieser zusätzliche ^{129}I -Aktivitätsanfall ist unbedeutend. Eine bedeutende ^{129}I -Aktivität könnte bei der Aufarbeitung von Material aus der Spaltzone der Brutreaktoren angefallen sein. Darüber ist aber nichts bekannt.

Es gibt keine Angaben zum Durchsatz an HEU-Elementen aus den Plutonium-Produktionsreaktoren. Die angefallenen HEU-Elemente kann man folgendermaßen abschätzen:

²Ein BN-350 Reaktor war in Kasachstan 1973 in Betrieb gegangen, ein BN-600 Reaktor 1980 in Rußland.

- die meisten Plutonium-Produktionsreaktoren waren konstruktiv sehr ähnlich mit einer thermischen Leistung von etwa 2 GW_{th} und einem Uraninventar von 390 t. Bei einer Bestrahlung von 500 MWd/t ergibt sich ein Abbrand von 6 % und eine Bestrahlungszeit von $t_B = 90 \text{ d}$.
- bei einer Betriebsverfügbarkeit von 90 % folgen 3,7 Betriebszyklen pro Jahr und Reaktor.
- bei einem Abbrand der HEU-Elemente von 60 % werden sie gewechselt³, also nach 10 Bestrahlungszyklen. Das bedeutet 0,37 Wechsel der HEU-Elemente pro Jahr.
- die kumulierte thermische Spaltenergie beträgt etwa 564 GWa [44]. Damit ergibt sich eine Betriebszeit der 11 Hauptreaktoren von etwa 26 Jahren bei 2 GW_{th} .
- 1,5 % des Kerninventars bestehen aus HEU-Elementen, das sind 5,9 t Uran pro Kerninventar. Insgesamt sollten in den Plutonium-Produktionsreaktoren also rund 620 t an HEU angefallen sein.
- bei dem angenommenen Abbrand der HEU-Elemente von 60 % werden $\frac{12,9 \text{ GBq}(^{129}\text{I})}{t_{HEU}}$ produziert, insgesamt also etwa 8,6 TBq an ^{129}I .
- Seit Anfang der 90-er Jahre werden keine HEU Brennelemente mehr in RT-1 aufbereitet [44].

Es gibt keine Angaben zum Durchsatz an Reaktormaterial aus den nuklear angetriebenen U-Booten und Eisbrechern. Verglichen mit den angefallenen ^{129}I -Inventaren aus stationären Reaktoren wird der ^{129}I Beitrag durch bestrahlte Brennelemente aus mobilen Reaktoren als gering angenommen.

3.1.3 ^{129}I -Freisetzungen bei der sowjetischen Aufarbeitung

Über die produzierten Mengen an Plutonium ist eine Abschätzung der in Majak angefallenen ^{129}I -Aktivität möglich.

	B	BB	RT-1	alle
^{129}I [TBq]	0,3	1,8	11	13,1

Tabelle 3.2: Bei der Aufarbeitung in Majak angefallene ^{129}I -Aktivität.

In Tab. 3.2 sind die geschätzten ^{129}I -Aktivitäten angegeben, die bei der Aufarbeitung von Kernbrennstoffen in den einzelnen Majak-Aufarbeitungsanlagen

³HEU Brennelemente mit einem Abbrand von bis zu 75 % wurden in RT-1 aufgearbeitet.

angefallen sind. Abbildung 3.2 zeigt den Zeitverlauf des ^{129}I -Anfalls in den Majak-Aufarbeitungsanlagen. Hieraus läßt sich die ^{129}I -Freisetzung über weitere Annahmen zur Effektivität der in Majak eingesetzten Iodfilter abschätzen. Für die An-

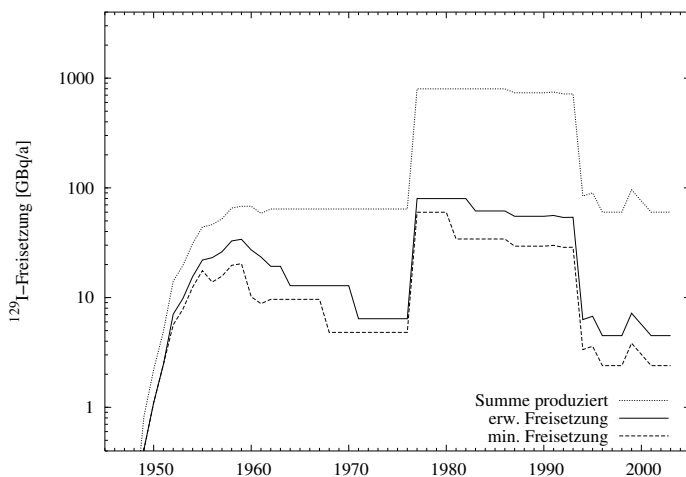


Abbildung 3.2: Abschätzung der gesamten in Majak angefallenen ^{129}I -Aktivität. Zusätzliche Annahmen zur Effektivität der in Majak eingesetzten Iodfilter liefern die ^{129}I -Freisetzungen.

lage B wurde angenommen, daß sie anfangs über keine und später nur über mangelhafte Iodfilter verfügte. Eine wesentliche Verbesserung bis zu ihrer Stilllegung wurde nicht angenommen. Anlage BB ist wahrscheinlich schon mit Iodfiltertechnik in Betrieb gegangen, die während der Betriebszeit Verbesserungen erfahren hat. Angenommen wurde in den ersten Betriebsjahren der Anlage BB eine Iodrückhaltung von 40 %, die später auf 80 % verbessert wurde. Als minimale Freisetzung aus der Anlage BB kann eine gasförmige Iodfreisetzung von anfangs 30 % angenommen werden, die noch in den 60-er Jahren auf nur 15 % reduziert wurde. Als modernste Aufarbeitungsanlage der Sowjetunion wurden in der Anlage RT-1 schätzungsweise nur noch 10-20 % der angefallenen ^{129}I -Aktivität in die Atmosphäre freigesetzt. Die aus diesen Annahmen resultierenden ^{129}I -Freisetzungen sind ebenfalls in Abb. 3.2 dargestellt.

Analoge Abschätzungen, wie hier für Majak besprochen, wurden auch für die Produktionsanlagen Tomsk-7 und Krasnojarsk-26 durchgeführt. Abb. 3.1 zeigt die berechneten Beiträge der einzelnen Aufarbeitungsanlagen am gesamten ^{129}I -Anfall. Damit kann ein realistisches ^{129}I -Freisetzungsszenario aus den ehemals sowjetischen Aufarbeitungsanlagen entwickelt werden (Abb. 3.3) und es lassen sich wesentliche Schlußfolgerungen ableiten:

- bis einschließlich 1958 ist Majak für über 90 % der in den sowjetischen Aufarbeitungsanlagen angefallenen ^{129}I -Aktivität verantwortlich. Aufgrund der

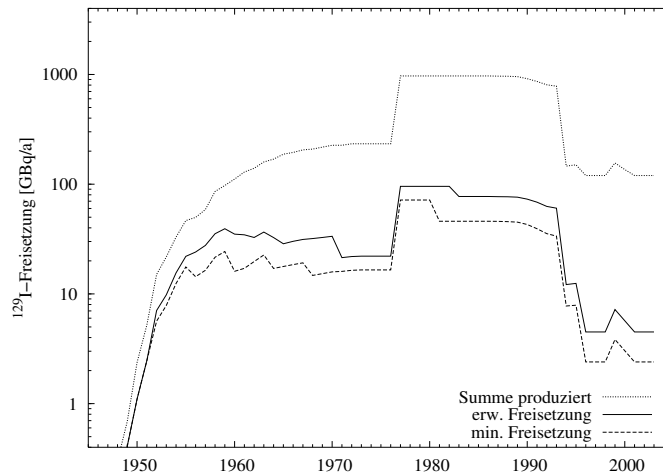


Abbildung 3.3: Abschätzung der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen.

mangelhaften Iodfilter in der Anlage B stammen im Jahr 1958 wahrscheinlich sogar noch über 95 % der sowjetischen ^{129}I -Freisetzungen aus Majak.

- bis Mitte der 70-er Jahre reduziert sich der Beitrag an den ^{129}I -Freisetzungen aus Majak auf knapp 30 % der angefallenen Aktivität. Unter der Annahme vergleichbarer Iodfiltertechnik in den einzelnen Aufarbeitungsanlagen gilt das auch für die ^{129}I -Freisetzungen.
- mit Inbetriebnahme von RT-1 Mitte der 70-er Jahre wird Majak wieder zur dominierenden ^{129}I -Quelle in der Sowjetunion. Hier fallen über 70 % der gesamten ^{129}I -Aktivität an. Selbst bei einer optimistischen Iodrückhaltung von 90 % in RT-1 führt das zu einem sprunghaften Anstieg der ^{129}I -Freisetzung in der ehemaligen Sowjetunion um einen Faktor 3 (Abb. 3.3).

3.1.4 Abschätzung der ^{131}I Produktion in Majak

Der Anfall an ^{131}I bei der Bestrahlung der Brennelemente läßt sich mit Gleichung (2.6) aus den Leistungen der Produktionsreaktoren abschätzen. Pro Bestrahlungsperiode ergibt sich ein ^{131}I -Inventar von 90 PBq im A-Reaktor. Das ^{131}I -Inventar in den AV-Reaktoren müßte, wegen ihrer höheren Leistung, bei etwa 225 PBq pro Bestrahlungsperiode liegen. Da eine Periode in den frühen Betriebsjahren etwa 4 Monate dauerte [5], waren pro Jahr nicht mehr als 3 Kampagnen möglich. In Tab. 3.3 sind Obergrenzen für die in der Anlage B angefallenen ^{131}I -Aktivitäten angegeben, die sich bei einer Bestrahlungszeit von 4 Monaten und einer Betriebsverfügbarkeit der Produktionsreaktoren von 100 % ergeben. Für 1948 wurde eine Bestrahlungsperiode angenommen.

Von 1949 bis 1950 konnte in der Anlage B, nach einer mittleren Abklingzeit

	1948	1949	1950	1951	1952
^{131}I -Inventar [PBq]	90	270	637	1397	1780

Tabelle 3.3: Obergrenzen für das in den Majak-Reaktoren produzierte ^{131}I -Inventar. Für die Abschätzung wurden die in Abb. 2.11 angegebenen Betriebszeiten und Leistungen der Produktionsreaktoren verwendet.

von 35 d, bei der Aufarbeitung der Brennelemente aus dem A-Reaktor maximal eine ^{131}I -Aktivität von etwa 26 PBq anfallen. Bei einer wahrscheinlichen Betriebsverfügbarkeit des A-Reaktors von 0,9 liegt die in der Anlage B angefallene ^{131}I -Aktivität entsprechend bei 23 PBq. Die berechnete ^{131}I -Aktivität liegt um 64 % über der in [49] abgeschätzten ^{131}I -Aktivität aus dem A-Reaktor von 14 PBq in diesem Zeitraum.

Bis einschließlich 1952 fiel bei den oben verwendeten Randbedingungen bei der Aufarbeitung vermutlich maximal eine ^{131}I -Aktivität von 181 PBq an. Davon wurden möglicherweise über 90 % gasförmig freigesetzt [49].

3.2 ^{129}I in Windscale

Zur Plutoniumproduktion in Großbritannien wurden die gasgekühlten Natururanreaktoren (GCR) Windscale Pile 1+2, Calder Hall A-D, Chapelcross A-D, Berkeley A+B und Bradwell A+B eingesetzt. Der ^{129}I -Anfall in den Windscale-Aufarbeitungsanlagen läßt sich aus den Betriebszeiten der Produktionsreaktoren, ihren thermischen Leistungen und den Abklingzeiten vor Aufarbeitung der Brennelemente abschätzen. Zugrunde liegen folgende Annahmen:

- Die Windscale Reaktoren hatten eine Solleistung von je 180 MW_{th} , die Calder Hall Reaktoren von je 268 MW_{th} , die Chapelcross Reaktoren von je 248 MW_{th} , die Bradwell Reaktoren von je 531 MW_{th} und die Berkeley Reaktoren von je 556 MW_{th} [54].
- Für alle Reaktoren wurde eine Betriebsverfügbarkeit von 0,9/a angenommen. Die Abklingzeit der Brennelemente aus den Windscale Reaktoren wurde zu 6 Monaten angenommen, die Abklingzeit der Brennelemente aus den weiteren Reaktoren zu 18 Monaten.

Die Aufarbeitungsanlage B204 wurde bis 1964 mit einer Kapazität von 300 t/a betrieben. In diesem Zeitraum wurden insgesamt 3,6 t waffenfähiges Plutonium gewonnen, davon etwa 400 kg aus den Windscale Reaktoren und 3 t aus den Calder Hall und Chapelcross Reaktoren [38].

Abb. 3.4 zeigt die Betriebszeiten der Produktionsreaktoren. Die in den einzelnen Reaktoren produzierte ^{129}I -Aktivität und die in B204 angefallene ^{129}I -

Pu-Produktion [t]		1950	1951	1952	1953	1954	1955	1956	1957	1958	1959	1960	1961	1962	1963	1964	1965
410	Windscale Pile 1	0,1	0,5	0,8	1,6	1,6	1,6	1,6	1,2								
	Windscale Pile 2		0,2	0,8	1,6	1,6	1,6	1,6	1,2								
1548	Calder Hall A							0,1	1,2	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4
	Calder Hall B								0,6	1,2	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4
	Calder Hall C										0,6	1,2	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4
	Calder Hall D										0,6	1,2	2,4	2,4	2,4	2,4	2,4
1159	Chapelcross A-D										1,7	3,9	8,8	8,8	8,8	8,8	8,8
635	Berkeley A+B													2,5	5,0	9,9	9,9
635	Bradwell A+B													2,5	5,0	9,9	9,9
I-129 Anfall [GBq]	B204/B205		0,3	1,3	2,4	3,2	3,2	3,2	2,8	1,3	1,8	3,6	7,6	11,0	18,4	23,4	28,3

Abbildung 3.4: Betriebszeiten der britischen Produktionsreaktoren. Eingetragen ist die jährliche ^{129}I -Produktion und die gesamte bis 1965 produzierte Menge an ^{239}Pu in den einzelnen Reaktoren. Mit einer Abklingzeit von 6 Monaten für die Windscale Reaktoren und 18 Monaten für die weiteren GCR folgt der ^{129}I -Anfall in den Anlagen B204/B205.

Aktivität sind dort gleichfalls angegeben. Die in den Windscale Reaktoren produzierte Menge an Plutonium läßt sich gut rekonstruieren, ebenso wie die gesamte in B204 angefallene Menge an Plutonium. Aus Abb. 3.4 ist ferner ersichtlich, daß in [55] die gasförmige ^{129}I -Freisetzung mit 22 GBq/a bis 1962 deutlich überschätzt wurde. Ab Mitte der 60-er Jahre stimmt diese Abschätzung aber mit der in [55] gegebenen Abschätzung gut überein.

3.3 ^{129}I in Marcoule

Auf dem Gelände der Plutonium-Produktionsanlage Marcoule waren bis 1997 zwei großtechnische Aufarbeitungsanlagen in Betrieb, nämlich die Anlagen UP1 (ab 1959) und APM (ab 1962).

Die in UP1 angefallenen Mengen an ^{129}I kann man aus den Betriebszeiten der UNGG-Reaktoren⁴, aus den Reaktorleistungen und Annahmen zur Abklingzeit ableiten. Der erhaltene Zeitverlauf der ^{129}I -Produktion ist in der Abb. 2.8 dargestellt. Für diese Abschätzung wurden folgende aus [41] entnommene Angaben verwendet:

- Bis Ende 1965 wurde in UP1 ausschließlich Brennmaterial aus den drei Plutonium-Produktionsreaktoren G1, G2 und G3 aufbereitet. Der G1 Reaktor war von Januar 1956 bis Oktober 1968 mit einer thermischen Leistung von etwa 40 MW_{th} in Betrieb. G2 und G3 gingen im Juli 1958 bzw. Juni 1959 mit je 200 MW_{th} in Betrieb, sie wurden in den Folgejahren auf

⁴In Frankreich wurden zur Plutoniumproduktion gasgekühlte, graphitmoderierte Natururanreaktoren (UNGG) eingesetzt.

250 MW_{th} aufgerüstet. Der G2 Reaktor wurde im Jahr 1980 abgeschaltet, G3 wurde 1984 stillgelegt.

- Die Betriebsverfügbarkeit von G1, G2 und G3 wird zu 0,9 angenommen. 1964 waren G2 und G3 für 3 Monate außer Betrieb [41].
- Zwischen 1959 und 1977 wurden 9910 t abgebrannter Brennelemente aus G1, G2 und G3 in UP1 aufbereitet und weitere 335 t aus anderen UNGG Reaktoren.
- Im Chinon-1 Reaktor wurden zwischen 1963 und 1973 bei einer Leistung von 300 MW_{th} Brennelemente aus Natururan bestrahlt [56] und wahrscheinlich zeitnah in UP1 aufbereitet .
- Im Jahr 1970 wurden 50 kg Plutonium aus Brennelementen gewonnen, die im Célestin-1 Reaktor bestrahlt wurden.
- Zwischen 1976 und 1986 wurden aus Célestin-Brennelementen 500 kg Plutonium gewonnen, die Plutonium Produktion der Célestin-Reaktoren wurde 1991 eingestellt [56].
- Ab 1976 wurde die Aufarbeitung aller Brennelemente aus UNGG Reaktoren auf UP1 übertragen, da UP2 (La Hague) auf Brennelemente aus Leichtwasserreaktoren umgerüstet wurde. Der Hauptbeitrag der abgebrannten Brennelemente stammt hier aus den Reaktoren St.Laurent-des-Eaux A1+A2 und Bugey 1, die erst Anfang der 90-er Jahre stillgelegt wurden [22, 54].
- Ab 1974 wurde der Phénix-Mantel aus abgereichertem Uran in UP1 aufbereitet. Bis 1995 wurden hierbei etwa 1,15 t Plutonium gewonnen [57].
- Zwischen 1975 und 1995 wurden in UP1 1655 t Brennelemente aus dem spanischen UNGG-Reaktor Vandellós-1 aufbereitet [57].

Zwischen 1958 und 1967 sind dieser Abschätzung zufolge in UP1 etwa 41 GBq an ¹²⁹I angefallen. 1967 werden die ersten Versuche zur Rückhaltung von Radioiod berichtet [41], bis zu dieser Zeit kann von der Freisetzung des kompletten ¹²⁹I-Inventars in den aufbereiteten Brennelementen ausgegangen werden. Für das Jahr 1963 wird von einer Abklingzeit von 100 d berichtet [41]. Zeitgleich mit der ¹²⁹I-Freisetzung folgt eine bis 1963 freigesetzte ¹³¹I-Aktivität von 0,7 PBq.

Offizielle Angaben zu den ¹²⁹I-Freisetzungen aus UP1 gibt es seit 1988, ein Vergleich der gasförmigen und der flüssigen ¹²⁹I-Freisetzungen in den Jahren 1995 bis 1997 zeigt, daß in diesem Zeitraum 80 % der Freisetzungen gasförmig stattfanden [22]. Das widerspricht einer wesentlichen Iodrückhaltung. Ein Vergleich mit der Abschätzung des angefallenen ¹²⁹I-Inventars kann als weiteres Indiz für diese Annahme gewertet werden (vgl. Abb. 2.8). Eine Iodrückhaltung von 20 % seit 1967 erscheint realistisch.

Kapitel 4

Meßmethoden

Im Rahmen dieser Arbeit wurden ^{127}I - und ^{129}I -Konzentrationen in verschiedenen wässrigen Umweltproben bestimmt. Nach Entnahme einer Teilprobe für die Bestimmung des Gehalts an stabilem Iod wurde eine chemische Probenaufbereitung der Wasserproben durchgeführt um störende Elemente abzutrennen und das Iod in eine für die Messung mit Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) geeignete Form (AgI) überzuführen. Die AMS-Messung wurde am Maier-Leibnitz-Labor (MLL) in Garching durchgeführt.

4.1 Probenaufbereitung

Die Iodkonzentrationen in Süßwasserproben lagen im Bereich weniger μg pro Liter (s.a. Kap. 5), in Meerwasser wurden sie im Mittel zu $63\mu\text{g/l}$ angegeben [15]. Um bei Probenmengen zwischen 10 ml und 2 l eine ausreichende Menge an Probenmaterial für die AMS-Messung zu erhalten¹ wurde zwischen 0,2 und 2 mg ^{127}I -Träger zur Wasserprobe zugesetzt. Das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis der erhaltenen Probe wurde deswegen einzig durch den ^{129}I -Gehalt in der Wasserprobe und die zugegebene Trägermenge festgelegt. Aus der anschließenden AMS-Messung war folglich ein Rückschluß auf die ^{129}I -Konzentration in den Wasserproben möglich.

Die Proben wurden filtriert, und Probenmengen über 100 ml wurden in einem Vakuum-Rotationsverdampfer aufkonzentriert. Die Iodextraktion wurde nach einem in [58] beschriebenen Verfahren durchgeführt. Abb. 4.1 zeigt eine Übersicht über das chemische Aufbereitungsverfahren.

Im Oberflächenwasser gelöstes Iod liegt als Iodid (I^-) und Iodat (IO_3^-) vor. Für Flußwasser wurde zum Beispiel ein mittleres I^-/IO_3^- -Ionenverhältnis von 9 angegeben [8]. Um beide Iodformen zu berücksichtigen wurde in einem ersten Schritt alles Iod zu Periodat (IO_4^-) aufoxidiert. Dabei wurde auch eine gute Durchmischung von Proben- und Trägeriod sichergestellt.

¹Eine AgI -Masse ab 0,2 mg war für die AMS-Messung ausreichend.

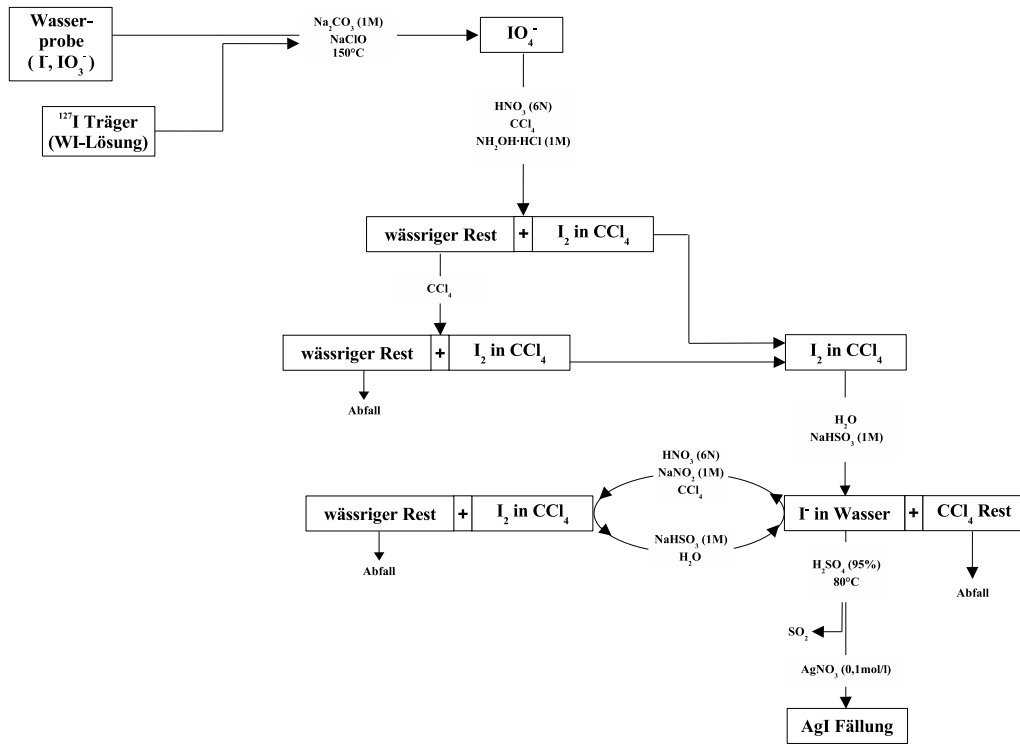


Abbildung 4.1: Chemische Aufarbeitung zur Iodextraktion aus wässrigen Proben.

Das enthaltene Iod wurde dann mit einer 2-Phasen-Extraktionsmethode als I^- in destilliertem Wasser aufkonzentriert und von Anionen gereinigt, die mit dem I^- bei der anschließenden Fällung mit Silbernitrat ($AgNO_3$) um die Ag^+ -Ionen konkurrieren würden. Dazu wurde die unterschiedliche Löslichkeit von I^- in Wasser und I_2 in Tetrachlorkohlenstoff (CCl_4) ausgenutzt.

Der Ausfall an AgI wurde mit einer Zentrifuge abgetrennt und in einem Vakuumofen getrocknet. Das erhaltene Material wurde mit Silberpulver gemischt und in Probenhalter für die AMS-Messung verpreßt. Eine ausführliche Beschreibung des angewandten Verfahrens ist in [32] und [58] zu finden.

Als ^{127}I -Träger wurde Woodward-Iod (WI) verwendet, das in einer Iodmine der Woodward Iodine Corp. (Oklahoma) gewonnen wurde. Es wurde als Träger verwendet, da dieses elementare Iod das niedrigste bisher gemessene $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnis aufweist [59]. Der ^{129}I -Eintrag über den zugesetzten Träger im Vergleich zum in der Probe enthaltenen ^{129}I war unbedeutend. Durch Erwärmen und Zugabe von Natriumhydrogensulfit ($NaHSO_3$) wurde das elementare WI in deionisiertem Wasser gelöst [9], was eine einfache Dosierung ermöglichte.

Das $^{129}I/^{127}I$ -Verhältnis von WI wurde mit AMS zu $(2,3 \pm 0,7) \cdot 10^{-14}$ bestimmt, in guter Übereinstimmung mit $(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-14}$ aus einer früheren Messung [59].

Parallel zu den Proben wurden Chemie-Blanks hergestellt um den ^{129}I -Eintrag bei der Probenaufarbeitung zu bestimmen. Pro Probe wurde ein ^{129}I -Eintrag zwischen $2 \cdot 10^5$ und $2 \cdot 10^6$ at festgestellt. Sein Ursprung konnte nicht geklärt werden. Ein ^{129}I -Eintrag über die verwendeten, hochreinen Chemikalien konnte ausgeschlossen werden. Möglicherweise stammt zumindest ein Teil des ^{129}I -Eintrags aus der Raumluft, da die gemessene Verunreinigung auf konstant kleiner $6 \cdot 10^5$ at pro Probe reduziert werden konnte, nachdem die Probenchemie unter Stickstoffatmosphäre durchgeführt wurde.

4.2 ^{129}I -Messung mit AMS

Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ Isotopenverhältnisse der chemisch aufbereiteten Proben wurden am Maier-Leibnitz-Labor in Garching mit Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) bestimmt.

Aus einer Cs-Sputterionenquelle werden dabei negative Ionen extrahiert und durch die Kombination aus einem Magneten und einer elektrostatischen Ablenkung nach einfach negativ geladenen Ionen der Masse 129 vorselektiert. Da das einzige stabile Isobar von ^{129}I , nämlich ^{129}Xe , keine negative Ionen bildet, ist eine aufwendige Isobarenunterdrückung bei ^{129}I -AMS nicht nötig.

Nach dem Durchlaufen einer 150 kV Vorbeschleunigung erfolgt im Tandem Beschleuniger bei einer Terminalspannung von 10,5 MV die Beschleunigung auf hohe Energien. Da bei der Umladung der Ionen im Terminal alle Moleküle zerstört werden, gibt es bei AMS keinen molekularen Untergrund.

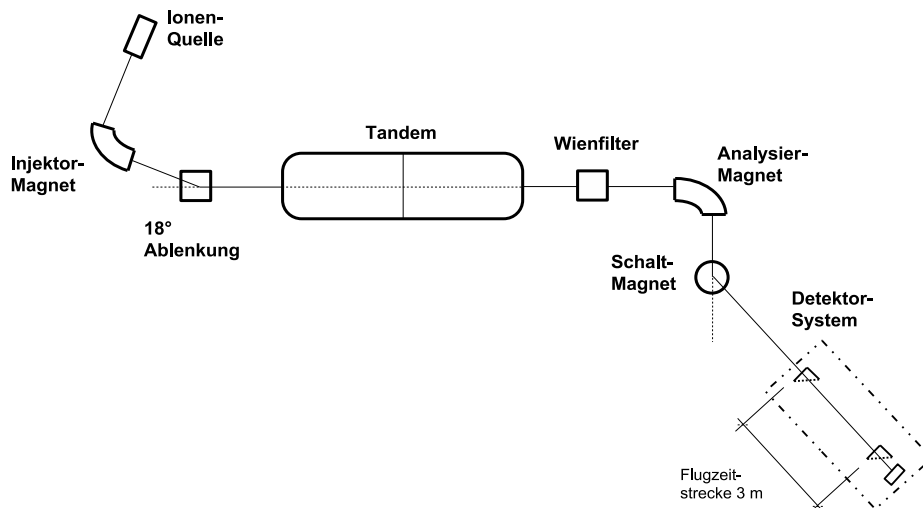


Abbildung 4.2: Strahlführung durch das AMS-System am MLL.

Auf der Hochenergieseite des Beschleunigers durchlaufen die Ionen einen Geschwindigkeitsfilter (Wien-Filter) und werden dann in einem hochauflösenden Magneten nach ihrer magnetischen Steifigkeit $\frac{p}{q}$ selektiert. Hier wird der Ladungszustand 11^+ mit einer Ionenenergie von 128 MeV ausgewählt. Ein Schaltmagnet lenkt den Strahl zum Meßplatz. In Abb. 4.2 ist das AMS-System schematisch dargestellt.

Da keine Isobarenunterdrückung im Detektorsystem nötig ist, kann ^{129}I dort durch Bestimmen der Ionenenergie und der Ionengeschwindigkeit eindeutig identifiziert werden. Das hierfür verwendete Detektorsystem besteht aus zwei Channelplate-Detektoren für eine Flugzeitmessung (TOF) und einer Frischgitter-Ionisationskammer (IK).

Die Konstruktion der verwendeten IK ist eng an eine in [60] beschriebene IK angelehnt. Die Reichweite der ^{129}I -Ionen beträgt in der mit Iso-Butan beschickten IK bei einem Kammerdruck von 80 mbar etwa 85 mm. Die Ionen deponieren auf dieser Strecke ihre komplette Energie im Detektorgas. Das über einen Vor- und einen Hauptverstärker geführte IK-Signal wird vom Datenaufnahmesystem aufgezeichnet. Für die Datennahme und -analyse wird das Softwarepaket MARaBOU [61] verwendet. Die Energieauflösung der Frischgitter-Ionisationskammer beträgt etwa 2 %. Sie ist ausreichend, um im Vergleich zu ^{129}I leichtere Ionen mit ähnlicher magnetischer Steifigkeit abtrennen zu können (Abb. 4.3a).

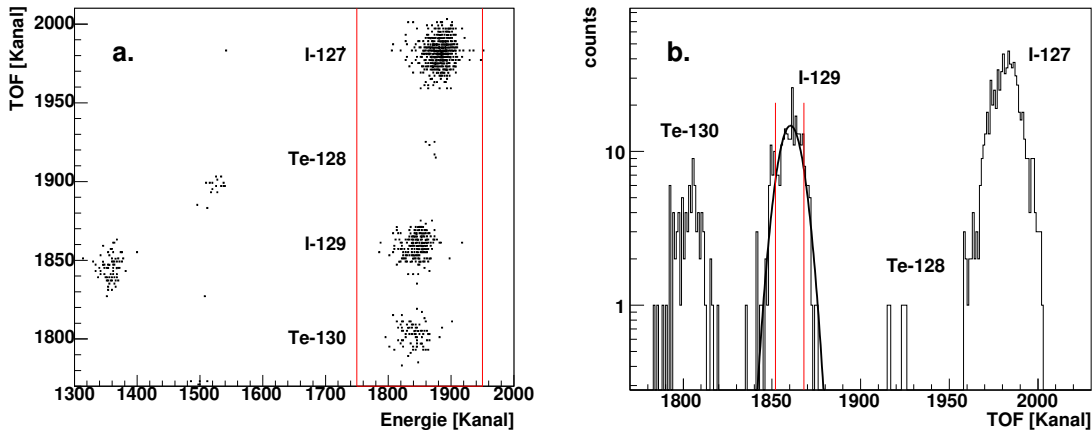


Abbildung 4.3: Typische Spektren eines Eichstandards: a) Flugzeitsignal über der Energie. Da Start- und Stoppsignal der Channelplate-Detektoren vertauscht sind, liegen langsamere Ionen bei höheren TOF-Kanalnummern. Ein Energiecut auf die ^{129}I -Energie liefert das Flugzeitspektrum (b). Deutlich getrennt sind ^{130}Te , ^{129}I , ^{128}Te und ^{127}I (von links nach rechts) zu erkennen. Am ^{129}I -Peak ist die Halbwertsbreite durch vertikale Linien markiert und ein Gauß-Fit angewendet.

Im Channelplate-Detektor werden beim Durchgang durch eine dünne Kohlenstoffolie ($d \approx 10 \mu\text{m}$) Elektronen freigesetzt, in einem elektrostatischen Feld beschleunigt und auf ein Microchannel-Plate (Hamamatsu F1094-21) reflektiert. An

einer Anodenplatte werden die vervielfachten Elektronen gesammelt. Das erhaltene Signal generiert ohne Vorverstärkung ein logisches Signal in einem Constant-Fraction-Trigger [32, 62]. Die Zeitdifferenz zwischen den logischen Signalen beider Channelplate-Detektoren wird über einen Time-to-Amplitude-Converter in ein Spannungssignal gewandelt und vom Datenaufnahmesystem aufgezeichnet. Als Mastergate fungiert das Signal des in Flugrichtung zweiten Channelplate-Detektors. Abb. 4.3b zeigt ein typisches Flugzeitspektrum eines Eichstandards, das über den in Abb. 4.3a markierten Cut (vertikale Linien) auf die ^{129}I Energie erhalten wurde.

Für jede Probe wurde die ^{129}I -Zählrate im Detektor und der Strom an stabilem Iod in einem Faradaycup vor dem Eintritt in den Tandem-Beschleuniger gemessen. Ein Vergleich mit der ^{129}I -Zählrate und dem stabilen Iodstrom eines Standards mit bekanntem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis liefert das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis der Meßprobe.

Bei der ^{129}I -AMS wurde eine TOF-Auflösung von 440 ps erreicht. Mit einer $^{129}\text{I}^{11+}$ -Ionenenergie von 128 MeV beträgt bei der verwendeten Flugzeitstrecke von 3 m zwischen den beiden Channelplate-Detektoren der Flugzeitunterschied zwischen $^{129}\text{I}^{11+}$ und den für die ^{129}I -AMS-Messung kritischen $^{128}\text{Te}^{11+}$ - und $^{130}\text{Te}^{11+}$ -Isotopen jeweils 1,7 ns. Die Abtrennung von diesen im TOF-Spektrum benachbarten Isotopen war ausreichend (Abb. 4.3).

Bei früherer ^{129}I -AMS am MLL wurde für die Flugzeitmessung ein Channelplate-Detektor in Kombination mit einem Oberflächensperrschicht-Zähler verwendet [32]. Durch die Inbetriebnahme des zweiten Channelplate-Detektors für die Flugzeitmessung wurde die TOF-Auflösung um 20 % verbessert.

4.3 ^{129}I -Standard

Beschleunigermassenspektrometrie ist eine relative Meßmethode, die das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis relativ zu einem Eichstandard liefert. Der Standard ist für die Messung deswegen von großer Bedeutung. Für die Messungen wurden Standards mit einem $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis von 10^{-9} , 10^{-10} , 10^{-11} und 10^{-12} aus einer kalibrierten ^{129}I -Lösung (Amersham) durch mehrfaches Verdünnen hergestellt.

Üblicherweise wurde für die AMS Messung der 10^{-11} -Standard verwendet. Die $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse der anderen Standards wurden relativ zu diesem bestimmt. Abb. 4.4 zeigt die erhaltenen Meßwerte.

Ein weiterer AMS-Standard mit einem Nominalverhältnis von $4,72 \cdot 10^{-10}$ [63] wurde zu $(4,1 \pm 0,6) \cdot 10^{-10}$ bestimmt. Er wird an der PSI/ETH AMS-Anlage² in Zürich (Schweiz) als Standard für AMS-Messungen verwendet. In Abb. 4.4 ist der Meßwert, als D1 markiert, hinzugefügt. Im Rahmen der Meßfehler stimmen die gemessenen $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse mit ihren Nominalwerten perfekt überein.

²Beschleunigerlabor des Paul-Scherrer-Instituts und der Eidgenössischen Technischen Hochschule Zürich an der ETH Höggerberg

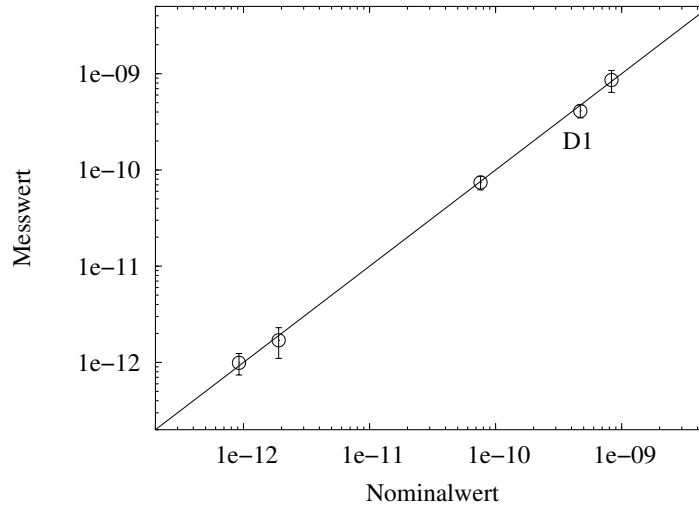
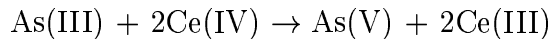


Abbildung 4.4: Für die einzelnen Standards gemessene $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse relativ zur ihren Nominalwerten. Die mit D1 markierte Probe wird am PSI/ETH als Standard für ^{129}I -AMS verwendet.

4.4 ^{127}I -Messung

Um neben der ^{129}I -Konzentration einer Wasserprobe auch ihr ursprüngliches $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis zu bestimmen, wurde ihre ^{127}I -Konzentration über eine photometrische Methode nach [58] bestimmt. Hier wurde die Reaktion:



ausgenutzt, bei der I^- als Katalysator wirkt. Das gelbe Ce(IV) wird dabei zu transparentem Ce(III) reduziert, wobei die Reaktionsgeschwindigkeit direkt proportional zur Iodidkonzentration in der Probe ist.

Zur Wasserprobe wurde arsenige Säure (As(OH)_3 , 0,1 M) im Überschuß zugegeben. Neben seiner Rolle als Elektronendonator für die Ce(IV) -Ionen reduzierte As(OH)_3 auch IO_3^- zu I^- . Dadurch wurde sichergestellt, daß der gesamte Iodgehalt der Probe bestimmt wurde. Bei Zugabe von Ammoniumcersulfat ($(\text{NH}_4)_4\text{Ce(SO}_4)_4$, 20 mM) startet die Reaktion.

Mehrmals innerhalb von einer Stunde wurden davon Teilproben entnommen und der Ce(IV) -Abbau abrupt durch Zugabe von Brucin ($\text{C}_{23}\text{H}_{26}\text{N}_2\text{O}_4$, 14 mM) gestoppt. Es bildete sich eine chemische Verbindung, deren Färbung zur Ce(IV) -Ionenkonzentration proportional war. Die Absorption bei 454 nm wurde anschließend für alle Teilproben über eine photometrische Messung bestimmt (Abb.4.5). Aus der zeitlichen Abnahme der Absorption A folgte die Reaktionsgeschwindigkeit.

Die ^{127}I -Konzentration einer Probe resultierte aus einem Vergleich seiner Reaktionsgeschwindigkeit mit den Reaktionsgeschwindigkeiten von Standardlösun-

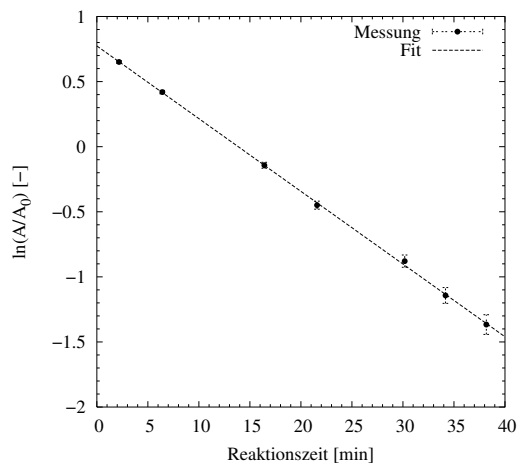


Abbildung 4.5: Zeitverlauf der Absorptionsabnahme einer typischen Probe relativ zur Absorption in deionisiertem Wasser. Aus der Steigung folgt die Reaktionsgeschwindigkeit.

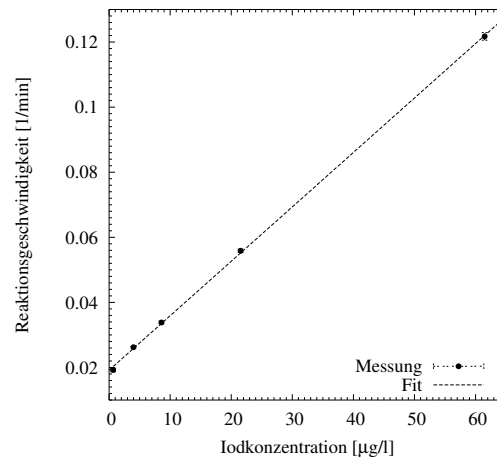


Abbildung 4.6: Eichkurve: Reaktionsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Iodkonzentration in den verwendeten Standardlösungen.

gen mit bekannten Iodkonzentrationen. Eine typische Eichkurve ist in Abb.4.6 dargestellt.

Kapitel 5

^{129}I -Messungen in Umweltproben und Interpretation

In Europa läßt sich die Ausbreitung von gasförmig in die Umwelt eingebrachtem ^{129}I studieren. Die gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den Aufarbeitungsanlagen La Hague (Frankreich) und Sellafield (Großbritannien) sind für die vergangenen 30 Jahre bekannt. Abgesehen von den Proben aus der unmittelbaren Umgebung der Testanlage WAK bei Karlsruhe [43, 64, 65] wurde der Anstieg der ^{129}I -Konzentrationen in europäischen Umweltproben den ^{129}I -Freisetzungen dieser beiden Aufarbeitungsanlagen zugeschrieben [31, 37, 66, 67, 68, 69, 70]. Auf die Bedeutung der Aufarbeitungsanlage Marcoule (Frankreich) für die Interpretation der ^{129}I -Konzentrationen im Wasser der Rhône, des Mittelmeeres [58] und in Regenwasser aus Bayern [71] wurde schon hingewiesen. Die atmosphärischen ^{129}I -Freisetzungen aus dieser Anlage sind allerdings nur für die letzte Dekade bekannt (s.a. Kap. 2.2.2).

5.1 ^{129}I im Eis vom Fiescherhorngletscher

Ein Eisbohrkern vom Fiescherhorngletscher wurde schon früher als Reservoir für eine zeitaufgelöste Messung der ^{129}I -Depositionen verwendet [9]. Die Messungen in [9] decken nur den Zeitbereich von 1950 bis 1986 ab, in dem die ^{129}I -Emissionen der europäischen Aufarbeitungsanlagen nur teilweise bekannt sind. Eine daran anschließende Messung am Fiescherhorngletscher sollte den Zusammenhang zwischen den ^{129}I -Freisetzungen und den ^{129}I -Depositionen klären.

Am Fiescherhorngletscher im Berner Oberland (Schweiz) wurde im Dezember 2002 ein 150 m langer Bohrkern entnommen [72]. Er wurde in 4-5 cm lange Teilproben unterteilt. Die oberen 108 m des Bohrkerns wurden über die saisonale Variation von NH_4^+ , Ca^{2-} , ^2H und ^{18}O datiert. Die Unsicherheit in der Zeiteichung beträgt 1-2 a [73, 74].

Hiervon wurde uns vom Paul Scherrer Institut (PSI) in Villigen (Schweiz)

Probenmaterial für die Bestimmung der ^{129}I -Konzentrationen zur Verfügung gestellt, das den Zeitbereich zwischen 1975 und 2002 abdeckt. Das Probenmaterial wurde je nach verfügbarer Menge und abgeschätztem ^{129}I -Gehalt in Jahres- bzw. 2-Jahresproben zusammengefaßt.

Die AMS Messung des aufbereiteten Probenmaterials lieferte $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse zwischen $6 \cdot 10^{-13}$ und $2 \cdot 10^{-11}$, in der Regel lag das $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnis in den aufbereiteten Proben bei einigen 10^{-12} . Die Meßwerte der zugehörigen Blankproben lieferten $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse zwischen $5 \cdot 10^{-14}$ und $2 \cdot 10^{-13}$, immer deutlich unterhalb der $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse in den Proben. Die nach der Blankkorrektur resultierenden ^{129}I -Konzentrationen sind in Tab. 5.1 aufgeführt.

Jahr	Probe [ml]	Tiefe [m wä]	^{129}I -Konz. [10^8at/l]	^{129}I -Dep. [$10^{12}\text{at/m}^2\text{a}$]
1970/71	43	64,18	$1,21 \pm 0,19$	$0,19 \pm 0,03$
1972/73	69	60,96	$0,58 \pm 0,16$	$0,15 \pm 0,04$
1974	31	55,71	$1,47 \pm 0,10$	$0,24 \pm 0,02$
1975/76	35	54,10	$0,61 \pm 0,31$	$0,1 \pm 0,05$
1977/78	54	50,95	$3,04 \pm 0,50$	$0,7 \pm 0,12$
1979/80	42	46,32	$2,12 \pm 0,47$	$0,39 \pm 0,09$
1981	27	42,63	$0,54 \pm 0,20$	$0,08 \pm 0,03$
1982	21	41,11	$1,44 \pm 0,26$	$0,16 \pm 0,03$
1983	20	40,02	$10,8 \pm 0,44$	$1,85 \pm 0,08$
1984	26	38,32	$6,11 \pm 1,18$	$0,87 \pm 0,17$
1985	34	36,90	$1,63 \pm 0,76$	$0,25 \pm 0,12$
1986	19	35,34	$6,34 \pm 2,53$	$0,61 \pm 0,24$
1987	47	34,38	$8,39 \pm 1,25$	$1,82 \pm 0,27$
1988	41	32,21	$4,58 \pm 0,57$	$0,9 \pm 0,11$
1989/90	39	28,21	$1,65 \pm 0,24$	$0,33 \pm 0,05$
1991	43	26,27	$1,27 \pm 0,22$	$0,24 \pm 0,04$
1992/93	56	22,78	$0,81 \pm 0,27$	$0,15 \pm 0,05$
1994/95	49	18,94	$2,79 \pm 0,41$	$0,48 \pm 0,07$
1996	31	17,29	$2,27 \pm 0,57$	$0,45 \pm 0,11$
1997	31	15,29	$1,23 \pm 0,17$	$0,37 \pm 0,05$
1998	26	12,27	$1,11 \pm 0,29$	$0,27 \pm 0,07$
1999/00	52	7,40	$0,77 \pm 0,14$	$0,18 \pm 0,03$
2001/02	55	2,71	$1,23 \pm 0,21$	$0,32 \pm 0,06$

Tabelle 5.1: Aufbereitete Probenmenge, Unterkante der betrachteten Eisschicht in m wasseräquivalent (m wä), gemessene ^{129}I -Konzentrationen und resultierende ^{129}I -Depositionsflüsse.

Die im Fiescherhorngletscher gemessenen ^{129}I -Konzentrationen sind zusam-

men mit den ^{129}I -Konzentrationen aus [9] in Abb. 5.1 dargestellt. Die beiden

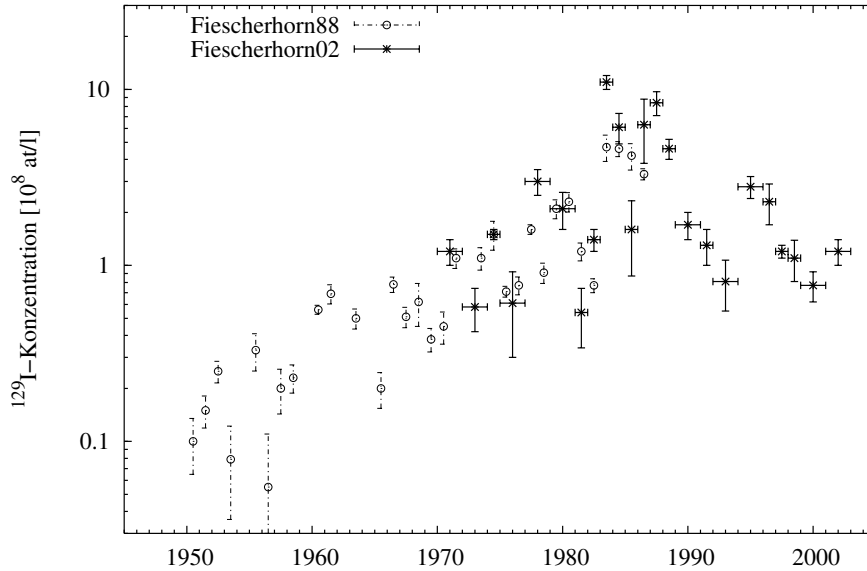


Abbildung 5.1: Am Fiescherhorn gemessene ^{129}I -Konzentrationen (*) im Vergleich mit den in [9] veröffentlichten Werten (o).

Meßreihen zeigen im Überlappbereich eine im wesentlichen gute Übereinstimmung, einzelne Abweichungen deuten auf einen kleinen Unterschied in der Zeitskala. Eine aussagekräftigere Vergleichsgröße ist die mittlere ^{129}I -Konzentration, da hier die relative Abweichung in der Datierung weniger ins Gewicht fällt.

Die mittlere ^{129}I -Konzentration wurde im Überlappbereich (1975-1986) der beiden Bohrkerne bestimmt. Für den hier gemessenen Bohrkern ergab sich die mittlere ^{129}I -Konzentration in diesem Zeitbereich zu $(2,5 \pm 0,8) \cdot 10^8 \text{ at/l}$, für den früheren Bohrkern [9] zu $(2,1 \pm 0,3) \cdot 10^8 \text{ at/l}$. Die mittleren ^{129}I -Konzentrationen stimmen im Rahmen der Fehler perfekt überein.

Da die beiden Bohrkerne teilweise große Unterschiede in den jährlichen Eis-Akkumulationsraten aufwiesen, war die Übereinstimmung der zugehörigen ^{129}I -Depositionsflüsse in diesem Zeitbereich weniger gut wie die der ^{129}I -Konzentrationen. Zwischen 1975 und 1986 akkumulierte der in dieser Arbeit gemessene Bohrkern 19,72 m wä, der in [9] beschriebene hingegen nur 16,78 m wä. Daraus resultierte für den ersteren eine ^{129}I -Fluenz von $(5,0 \pm 1,6) \cdot 10^{12} \text{ at/m}^2$, im Vergleich zu $(3,5 \pm 0,4) \cdot 10^{12} \text{ at/m}^2$ für den letzteren. Diese Abweichung ist vollständig auf die unterschiedlichen Eisakkumulationsraten zurückzuführen.

Abb. 5.2 zeigt die hier ermittelten ^{129}I -Depositionsflüsse kombiniert mit den in [9] veröffentlichten ^{129}I -Depositionsflüssen der Jahre 1950 bis 1974. Da auch in diesem Zeitbereich die Akkumulationsraten der beiden Bohrkerne mit 37,77 m wä und 33,29 m wä deutlich unterschiedlich waren, wurden in Abb. 5.2 die in [9]

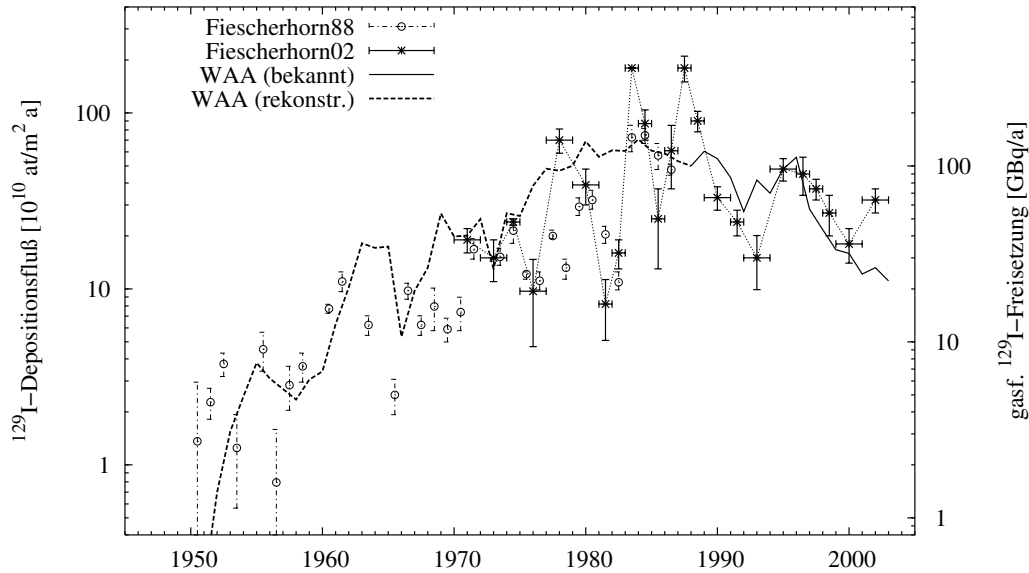


Abbildung 5.2: Am Fiescherhorn gemessene ^{129}I -Depositionsflüsse (*), ergänzt mit den in [9] veröffentlichten Werten (\circ). Letztere wurden mit dem Verhältnis der Akkumulationsraten im Zeitbereich 1950 bis 1974 hochskaliert.

angegebenen ^{129}I -Depositionsflüsse mit dem Verhältnis der Akkumulationsraten korrigiert.

5.1.1 Vergleich mit den europäischen ^{129}I -Emissionen

Für einen Vergleich der im Fiescherhorngletscher gemessenen ^{129}I -Depositionsflüsse mit den ^{129}I -Emissionen wurde in Abb. 5.2 die Summe der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den europäischen Aufarbeitungsanlagen hinzugefügt. Den ^{129}I -Freisetzungen der Jahre vor 1988, wo die Freisetzungen aus Marcoule nicht bekannt sind, liegt die Abschätzung in Kap. 2.2 zugrunde. Die flüssigen ^{129}I -Freisetzungen der Anlagen in Sellafield und La Hague waren im Gegensatz zu den gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen in der letzten Dekade etwa konstant geblieben (s.a. Abb. 1.2).

Tendenziell stimmen die ^{129}I -Depositionsraten und die gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen überein. Die Messungen am Fiescherhorngletscher bestätigen, daß die gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den europäischen Aufarbeitungsanlagen als die wesentliche Quelle für atmosphärisches ^{129}I in Mitteleuropa anzusehen sind [31, 71].

Die ^{129}I -Depositionsraten weisen aber eine Substruktur auf, die allein aus dem Verlauf der ^{129}I -Freisetzungen nicht verstanden werden kann.

- Zwischen 1994-2000 erkennt man eine gute Korrelation zwischen den gasfö-

migen ^{129}I -Emissionen der europäischen Aufarbeitungsanlagen und den ^{129}I -Depositionsflüssen am Fiescherhorngletscher.

- Zwischen 1988 und 1993 scheint der ^{129}I -Freisetzungsverlauf in den ^{129}I -Depositionsraten erkennbar, relativ zu den Jahren 1994-2000 liegen die beobachteten ^{129}I -Depositionsraten aber um einen Faktor 2-3 niedriger als aus den ^{129}I -Freisetzungen erwartet wurde.
- Vor 1988 sind in den ^{129}I -Depositionsraten scharf ausgeprägte Maxima und Minima zu erkennen. Die Minima liegen noch unterhalb der erwarteten Werte, selbst wenn der abgeschätzte Marcoule-Beitrag vernachlässigt wird. Die Maxima liegen deutlich über den erwarteten Werten, selbst wenn man die maximal zulässigen ^{129}I -Freisetzungen aus Marcoule ansetzt. Über bedeutende Betriebsstörungen in diesen Jahren ist nichts bekannt.

Neben Fluktuationen in den Eisakkumulationsraten und in den Trajektorien der ^{129}I -Ausbreitung mit dem Wind kann möglicherweise auch die Eisgenese für die beobachtete Substruktur in den ^{129}I -Depositionsraten verantwortlich gemacht werden.

Der untersuchte Bohrkern wurde im Rahmen des VITA-Projekts des NCCR-Climat¹ auch auf partielles Anschmelzen und Absickern des Schmelzwassers in tiefere Schichten untersucht [74]. Nach einer Vorstudie am Fiescherhorngletscher liegen die Eistemperaturen in den oberen 5 m nämlich nur wenig unter 0 °C. Erst ab Tiefen von etwa 60 m liegen die Eistemperaturen zwischen -3 und -7 °C [72]. Ein Anschmelzen der oberen Eisschicht kann durch eine längere Periode mit erhöhter Lufttemperatur oder durch größere atmosphärische Staubeinträge ausgelöst werden [74]. Als Folge wird in tieferen Eisschichten die Bildung von Eislin sen beobachtet. In [74] wurden für den Zeitraum zwischen 1974 und 2002 Variationen in den Konzentrationen an NH_4^+ und SO_4^- mit Staubhorizonten im Eis und mit dem Auftreten von Eislin sen in tieferen Schichten in Verbindung gebracht.

In Abb. 5.3 sind Schichten mit Eislin sen (grau schattiert), mit Staubhorizonten (Dreiecke) und mit erhöhten Ionengehalten (horizontale Linien) hervorgehoben. Ein Vergleich mit Abb. 5.2 zeigt eine markante Übereinstimmung zwischen den vermuteten Anschmelzhorizonten und den geringen ^{129}I -Depositionsraten einerseits, und zwischen den Eislin senhäufungen und den hohen ^{129}I -Depositionsraten andererseits. Im Eis vom Fiescherhorngletscher muß eine nicht vernachlässigbare Abwärtsmigration des deponierten ^{129}I angenommen werden. Diese kann möglicherweise die Substruktur in den gemessenen ^{129}I -Depositionsraten erklären.

5.1.2 Vergleich mit Regenwasser aus Zürich

In den Jahren 1994 bis 1997 wurde in Dübendorf nahe Zürich (Schweiz) Regenwasser auf seinen ^{129}I -Gehalt hin analysiert und für die betrachteten Zeitberei-

¹National Center of Competence in Research on Climate

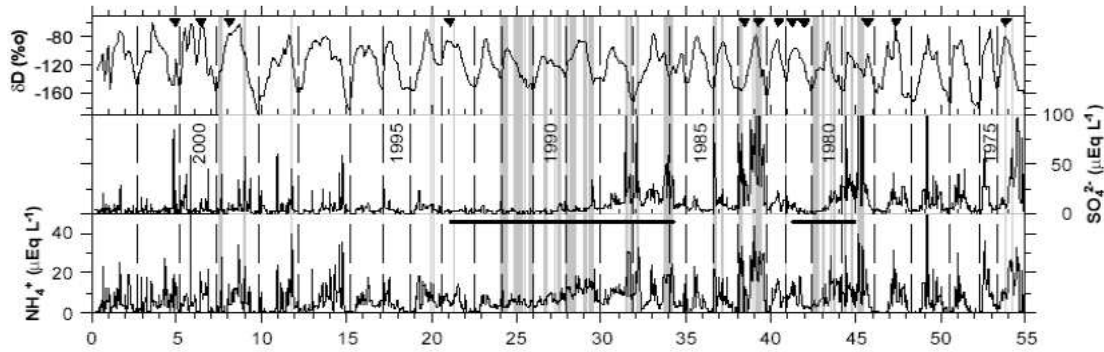


Abbildung 5.3: Variationen von ^2H , SO_4^{2-} und NH_4^+ im Fiescherhornbohrkern in Abhängigkeit von der Schichttiefe [m wä]. Eisschichten mit Eislinsen sind grau schattiert dargestellt, Dreiecke markieren Staubschichten im Eis [74].

che die resultierenden ^{129}I -Depositionsflüsse angegeben [31]. Die dort gemessenen ^{129}I -Depositionsflüsse sind in Tab. 5.2 mit den am Fiescherhorngletscher bestimmten ^{129}I -Depositionsflüssen gegenübergestellt. Auch die aus den Regenwasserproben bestimmten ^{129}I -Depositionsflüsse zeigen einen Abfall zwischen 1994 und 1997. Ein wesentlicher Unterschied in den entsprechenden ^{129}I -Depositionsflüssen ist aber offensichtlich. Für den betrachteten Zeitbereich liegt der mittlere ^{129}I -Depositionsfluß am Fiescherhorngletscher um etwa einen Faktor 6 niedriger als im züricher Regenwasser.

Regenwasser, Dübendorf	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]	^{129}I -Dep.-fluß [10^{12} at/m ² a]	Fiescherhorn- gletscher	^{129}I -Dep.-fluß [10^{12} at/m ² a]
02/94-12/94	31,6	3,8	1994/95	0,48
01/95-09/95	26,3	2,7	1996	0,45
08/96-06/97	33,1	1,7	1997	0,37

Tabelle 5.2: ^{129}I -Konzentrationen in Regenwasser aus Dübendorf und resultierende ^{129}I -Depositionsflüsse [31] verglichen mit den Messungen am Fiescherhorn.

Die mittlere ^{127}I -Konzentration in Regenwasser von 15 unterschiedlichen Sammelstellen auf der Nordhalbkugel betrug $3,0 \mu\text{g/l}$ [8]. Demgegenüber ergab eine Sammelprobe vom Fiescherhorngletscher aus dem Zeitbereich 1963 bis 2002 einen ^{127}I -Gehalt von $< 0,6 \mu\text{g/l}$. Das deutet darauf hin, daß zwischen den ^{127}I -Konzentrationen im Gletschereis und im Regenwasser auch ein ähnlicher Faktor liegt, wie er für ^{129}I gefunden wurde.

Drei mögliche Erklärungen für die im Vergleich zum Regenwasser geringere Iod-Konzentration in Gletschereis sind denkbar:

- Die Iod-Konzentration der Luft bleibt bei zunehmender Höhe konstant, aber die absolute Luftfeuchtigkeit fällt. Dabei wird die Iod-Konzentration in den mitgeführten Wassertropfen verdünnt. Die Iod-Deposition bleibt dabei höhenunabhängig.
- Die Iod-Konzentration der Luft nimmt mit zunehmender Höhe ab, da zum Beispiel ein Großteil des mitgeführten Iods schon in tieferen Lagen ausgewaschen wurde. Es folgt eine mit zunehmender Höhe reduzierte Iod-Konzentration im Schnee und auch eine reduzierte Deposition an Iod.
- Die Iod-Deposition ist von der Höhe des betrachteten Ortes unabhängig. Infolge von Photooxidation ($\text{I}^- + h\nu \rightarrow 0,5 \cdot \text{I}_2$ [75]) oder bei der Eisgenese entweicht mit dem Schnee deponiertes Iod.

Für stabiles Iod wurde eine Abnahme der Konzentration mit zunehmender Höhe schon früher beschrieben [8]. Hier wurde darauf hingewiesen, daß der Iodgehalt der Atmosphäre in 1000 müNN nur noch 40 % vom Iodgehalt auf Meeresniveau beträgt. Ein vergleichbarer Effekt wurde auch für SO_4^- -Ionen beobachtet [76].

Es kann also angenommen werden, daß nur ein kleiner Teil des in den Wolken der unteren Troposphäre mitgeführten ^{129}I in höhere Schichten gelangt, die die Gletschereisbildung speisen.

Ein direkter Vergleich der ^{129}I -Depositionsflüsse, die aus Gletschereisproben bestimmt wurden, und solchen, die aus Regenwasserproben in tieferen Lagen bestimmt wurden, ist damit nicht möglich. Um von den Messungen in Gletschereis auf eine ^{129}I -Deposition in tieferen Lagen schließen zu können ist eine Korrektur um den Höhenfaktor F_h nötig. Zwischen dem Fiescherhorn-gletscher (3900 müNN) und der züricher Tallage (408 müNN) gilt $F_h = 6$.

Im Gletschereis vom Iniltschek (4100 m üNN, Kirgistan) wurde eine ^{129}I -Depositionsfluenz von $6,1 \cdot 10^{12}$ at/m² gemessen [77]. Aus der in dieser Arbeit bestimmten ^{129}I -Konzentration im nahe gelegenen Issyk Kul (1600 m üNN, Kirgistan) folgt eine ^{129}I -Depositionsfluenz von $(16 \pm 1) \cdot 10^{12}$ at/m². Berücksichtigt man ferner noch die mit 1,9 m wasseräquivalent pro Jahr deutlich höhere Akkumulationsrate am Iniltschekgletscher [78], dann folgt hier sogar ein Höhenfaktor $F_H=8$.

Aus der ^{129}I -Depositionsfluenz von $(1,14 \pm 0,06) \cdot 10^{13}$ at/m² am Fiescherhorn-gletscher resultiert nach Berücksichtigung von F_h eine ^{129}I -Depositionsfluenz in Zürich von $(8,5 \pm 0,4) \cdot 10^{13}$ at/m². Dieser Wert deckt sich gut mit der aus dem Transportmodell erwarteten ^{129}I -Depositionsfluenz von $7,6 \cdot 10^{13}$ at/m².

5.1.3 Kernwaffenfallout am Fiescherhorngletscher

Die bei der Explosion einer Atombombe freigesetzte Energie stammt im wesentlichen aus der Spaltung von ^{238}U und der Fusion von ^2H und ^3H . Dabei fallen die Spaltprodukte entsprechend ihrer Spaltausbeuten bei der Kernspaltung an. Sie wurden, zumindest bei den größeren oberirdischen Kernwaffenexplosionen, mit dem Explosionskern in die Stratosphäre eingetragen. Dort konnten sie sich global ausbreiten ehe sie auf der Erdoberfläche deponiert wurden [79].

Die Spaltprodukte ^{129}I und ^{137}Cs werden bei der mit schnellen Neutronen induzierten Spaltung von ^{238}U produziert. Für ^{137}Cs wurde eine Spaltausbeute von 5,57 % angegeben [20]. Mit den Spaltausbeuten der benachbarten Radionuklide aus [20] wurde die Spaltausbeute von ^{129}I zu 1,58 % interpoliert. Unter Berücksichtigung der Zerfallskorrektur für ^{137}Cs ist nach etwa 35 a seit der Deposition ein $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Verhältnis von 1,6 zu erwarten.

Am Fiescherhornbohrkern von 1988 wurden die ^{137}Cs -Depositionsraten bestimmt [80]. Da die ^{129}I -Messungen dieses Bohrkerns bei den Jahren 1954, 1959 und 1962 Lücken aufwiesen [9], wurden diese Jahre für den Vergleich von ^{129}I und ^{137}Cs aus dem Kernwaffenfallout nicht berücksichtigt. Es wurde ferner angenommen, daß bis 1963 die ^{129}I -Depositionsraten am Fiescherhorngletscher vom Kernwaffenfallout dominiert wurden. Unter diesen Randbedingungen wurden die Depositionsfluenzen von ^{129}I und ^{137}Cs am Fiescherhorngletscher im betrachteten Intervall zu $(4,0 \pm 0,3) \cdot 10^{11}$ at/m² bzw. $(2,5 \pm 0,1) \cdot 10^{12}$ at/m² bestimmt. Es resultiert im betrachteten Bereich ein $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Verhältnis von $6,3 \pm 0,5$, das signifikant über dem erwarteten $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$ -Verhältnis von 1,6 liegt. Es wurde also mit dem Bombenfallout um einen Faktor 4 weniger ^{129}I am Fiescherhorngletscher deponiert, als aus den ^{137}Cs -Depositionen erwartet worden wäre.

Unter Berücksichtigung der gegenüber ^{137}Cs reduzierten ^{129}I -Deposition läßt sich mit Hilfe des Transportmodells also der Beitrag des Kernwaffenfallout an den ^{129}I -Depositionsraten am Fiescherhorngletscher berechnen. Er wurde in Abb. 5.2 mit der Abschätzung der frühen ^{129}I -Freisetzungen aus den europäischen Aufarbeitungsanlagen (gepunktete Linie) kombiniert. Die ^{129}I -Depositionshistorie der Bohrkerns vom Fiescherhorngletscher kann hiermit zufriedenstellend beschrieben werden.

5.2 ^{129}I -Messungen am Beluchagletscher

Im Juli 2001 wurde von einem schweizerisch-russischen Expeditionsteam am Beluchagletscher im sibirischen Altai (Rußland) in 4062 m ü.NN. ein Eisbohrkern entnommen [81]. Der 140 m lange Bohrkern wurde in gefrorenem Zustand in die Schweiz transportiert und dort über die ^{210}Pb Aktivitäten und den Tritiumpeak aus dem Bomben-Fallout 1963 datiert [82]. Die oberen 86 m dieses Kerns decken den Zeitraum zwischen 1941 und Sommer 2001 ab.

Von diesem Kern wurden vom PSI Teilproben für die ^{129}I -Messung mit AMS zur Verfügung gestellt. Die Proben aus dem Zeitbereich von 1941 bis 1981 hatten am PSI bereits eine chemische Behandlung zur Plutoniumextraktion [82] durchlaufen. Sie waren in Intervalle von 2,6 bis 4,4 a zusammengefaßt.

Zeitbereich	Probe [ml]	Eis-Akk. [m wä]	^{129}I -Konz. [10^8at/l]	^{129}I -Dep. [$10^{10}\text{at/m}^2\text{a}$]
1940,9 - 49,4	515	3,71	$0,06 \pm 0,02$	$0,24 \pm 0,08$
1949,4 - 52,4	267	1,32	$0,11 \pm 0,06$	$0,49 \pm 0,27$
1952,4 - 55,2	223	1,27	$0,29 \pm 0,09$	$1,31 \pm 0,41$
1955,2 - 59,0	77	1,76	$0,52 \pm 0,27$	$2,41 \pm 1,25$
1959,0 - 62,4	81	1,61	$0,52 \pm 0,23$	$2,47 \pm 1,11$
1962,4 - 65,7	77	1,59	$0,78 \pm 0,19$	$3,77 \pm 0,91$
1965,7 - 69,0	75	1,59	$2,64 \pm 0,55$	$12,7 \pm 2,66$
1969,0 - 72,0	71	1,49	$0,85 \pm 0,42$	$4,20 \pm 2,10$
1972,0 - 75,0	68	1,49	$0,62 \pm 0,33$	$3,08 \pm 1,62$
1975,0 - 77,9	32	1,41	$2,29 \pm 0,64$	$10,9 \pm 3,03$
1977,9 - 81,0	31	1,42	$3,72 \pm 0,86$	$17,2 \pm 3,98$
1981,0 - 84,4	27	1,42	$3,13 \pm 1,02$	$13,0 \pm 4,23$
1984,4 - 86,8	21	1,39	$2,00 \pm 0,35$	$11,6 \pm 2,03$
1986,8 - 89,8	32	1,73	$1,63 \pm 0,67$	$9,33 \pm 3,84$
1989,8 - 92,4	31	1,13	$0,54 \pm 0,05$	$2,37 \pm 0,22$
1992,4 - 96,5	30	1,64	$1,08 \pm 0,32$	$4,36 \pm 1,29$
1996,5 - 98,8	32	1,26	$0,66 \pm 0,3$	$3,56 \pm 1,61$
1998,8 - 01,5	35	1,47	$0,36 \pm 0,1$	$1,99 \pm 0,57$
1940,9 - 01,5	-	28,68	$1,13 \pm 0,10$	$5,35 \pm 0,48$

Tabelle 5.3: Zeitbereiche der Einzelproben, aufbereitete Probenmenge, Eis-Akkumulation in m wasseräquivalent (m wä), gemessene ^{129}I -Konzentrationen und resultierende ^{129}I -Depositionsflüsse. Die Meßwerte des Zeitbereichs 1941-75 wurden um einen chemischen Verlustfaktor korrigiert (siehe Text).

Proben von 1975-2001 stammen von unbehandelten Eisaliquots, die für die Bestimmung der enthaltenen Ionenkomponenten zurückgehalten wurden. Die Einzelproben wurden dann in Sammelproben von 2,5-4 a Intervalle zusammengefaßt. Um den Iodverlust bei der am PSI durchgeführten chemischen Behandlung zu bestimmen, wurden zwei Proben (1975-1978 und 1978-1981) mit und ohne Behandlung gemessen. Bei beiden Proben wurde ein Verlust an ^{129}I von 70% gemessen. Um diesen Verlustfaktor wurden alle Meßwerte des Zeitbereichs 1941-75 korrigiert.

In Tab. 5.3 sind die den Eisschichten entsprechenden Zeitintervalle mit den akkumulierten Eismengen [83] aufgeführt. Die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen

und die resultierenden ^{129}I -Depositionsflüsse in diesen Zeiträumen sind ebenfalls in der Tab. 5.3 angegeben.

Mit den vorhandenen Probenmengen konnten ^{129}I -Konzentrationen zwischen $6 \cdot 10^6 \text{at/l}$ und $4 \cdot 10^8 \text{at/l}$ im Gletschereis zuverlässig analysiert werden.

Die im Beluchaeis gemessenen ^{129}I -Konzentrationen sind im Zeitverhalten und den absoluten Werten sehr ähnlich zu den im Fiescherhorn gemessenen ^{129}I -Konzentrationen (s.a. Kap. 5.1). Wegen vergleichbaren ^{129}I -Einträgen und vergleichbaren Quelle-Depositionsort Entfernungen ist das auch zu erwarten. Die mittlere ^{129}I -Konzentration im betrachteten Zeitbereich liegt am Belucha bei $(1,1 \pm 0,1) \cdot 10^8 \text{at/l}$ gegenüber $(1,6 \pm 0,5) \cdot 10^8 \text{at/l}$ am Fiescherhorn zwischen 1961 und 2002.

Die ^{129}I -Depositionsflüsse sind in Abb. 5.4 dargestellt. Sie zeigen, wegen der zeitlich relativ konstanten Eis-Akkumulationsraten am Belucha, das gleiche Zeitverhalten wie die ^{129}I -Konzentrationen. Die ^{129}I -Depositionsflüsse werden bis Mit-

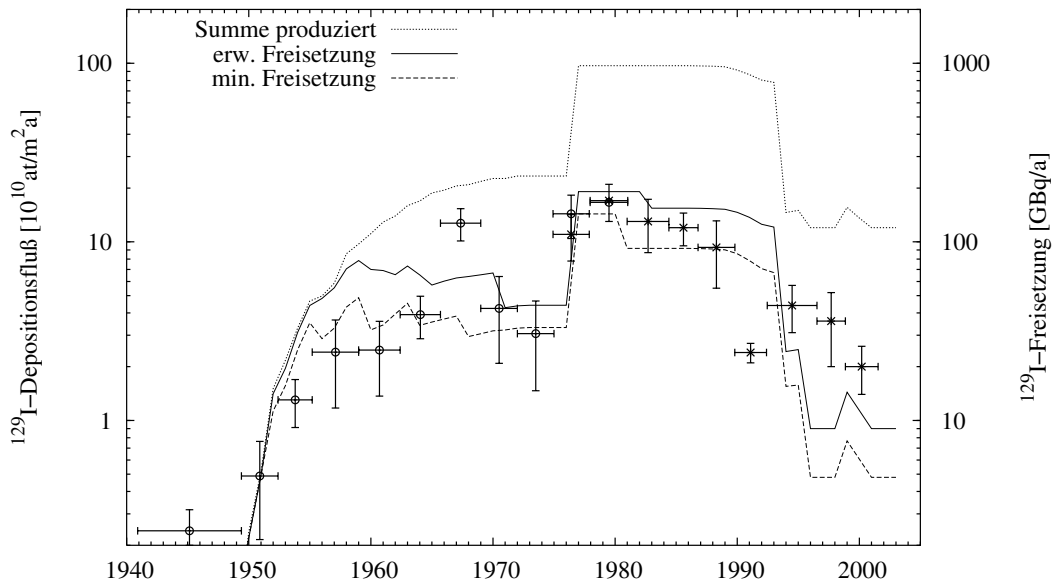


Abbildung 5.4: Am Beluchagletscher gemessene ^{129}I -Depositionsflüsse.

te der 60-er Jahre geprägt durch den stark steigenden Durchsatz in den sowjetischen Aufarbeitungsanlagen. Daran schließt ein Plateau konstanter Depositionsrate, das bei weiter deutlich steigendem Durchsatz in den Aufarbeitungsanlagen wahrscheinlich auf bessere Filterausbeuten zurückzuführen ist. Mitte der 70-er Jahre ist der ^{129}I -Depositionsfluß dann um etwa einen Faktor 3 angestiegen, eine Folge der Inbetriebnahme der Anlage RT-1 in Majak, wo erstmals Brennelemente mit hohem Abbrand aufbereitet wurden. Wegen des politischen Umbruchs in der Region wurden nach dem Zusammenbruch der Sowjetunion keine abgebrannten Brennelemente der Anrainerstaaten Rußlands mehr eingeführt. Zu

dieser Zeit wurde auch die Aufarbeitung von HEU-Elementen aus den Plutonium-Produktionsreaktoren in RT-1 gestoppt [44]. Bis Mitte der 90-er Jahre wurden wahrscheinlich alle verbliebenen militärischen Aufarbeitungsanlagen in Rußland geschlossen. Die einzige verbliebene, bedeutende ^{129}I -Quelle in Rußland ist die Anlage RT-1, deren Auslastung allerdings weit von ihrer Kapazität entfernt ist [38].

Am Beluchagletscher ergibt sich bis Sommer 2001 eine ^{129}I -Depositionsfluenz von $(3,2 \pm 0,3) \cdot 10^{12} \text{at/m}^2$. Unter der Annahme, daß am Beluchagletscher eine zum Fiescherhornletscher vergleichbare Konzentrationsabnahme mit der Höhe auftritt (vgl. Kap. 5.1.2), folgt für die Altai-Region eine ^{129}I -Depositionsfluenz von $(19,4 \pm 1,8) \cdot 10^{12} \text{at/m}^2$. Sie stimmt sehr gut mit der erwarteten ^{129}I -Depositionsfluenz überein, die mit dem atmosphärischen Transportmodell für die Altai-Region zu $1,9 \cdot 10^{13} \text{at/m}^2$ berechnet wurde.

5.3 ^{129}I in bayerischem Regenwasser

In Stierberg (Oberbayern) wurde zwischen Juli 2003 und Oktober 2004 Regenwasser gesammelt und zumeist in Monatsproben zusammengefaßt. Durch Kom-

	Niederschlag [l/m ²]	^{129}I -Konz. [10 ⁸ at/l]	^{127}I -Konz. [µg/l]	^{129}I -Deposition [10 ¹⁰ at/m ²]
Jul 03	42	18 ± 2	2,6 ± 0,6	7,6 ± 0,8
Aug 03	56	20 ± 2	2,5 ± 0,5	11 ± 0,8
Sep 03	113	22 ± 4	1,2 ± 0,7	25 ± 5
Okt 03	55	13 ± 3	< 0,8	7,1 ± 1,4
Nov/Dez 03	50	7,8 ± 2	< 1,0	3,9 ± 0,8
07-12/03	316	15 ± 2	2,2 ^{+0,3} _{-1,2}	47,4 ± 6,3
Jan 04	156	11 ± 6		17 ± 9
Feb/Mrz 04	59	4,8 ± 2,3		2,8 ± 1,4
Apr 04	29	14 ± 2		4,1 ± 0,7
Mai 04	39	50 ± 7,7		20 ± 3
Jun 04	81	15 ± 3,3		11 ± 4
01-06/04	364	19 ± 1,6		69,2 ± 5,8
Jul 04	77	21 ± 2,3		17 ± 2
Aug/Sep 04	77	6,9 ± 1,0	0,9 ^{+0,6} _{-0,7}	5,3 ± 0,8
Sep/Okt 04	94	8,1 ± 1,3		7,6 ± 1,2
07-10/04	248	11 ± 1,8		27,3 ± 4,5

Tabelle 5.4: Niederschlagsraten, ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen in oberbayerischem Regenwasser aus dem Zeitraum zwischen Juli 2003 bis Oktober 2004.

bination der Proben entsprechend ihren Niederschlagsraten wurden zusätzlich Sammelproben der Zeiträume Juli-Dezember 2003, Januar-Juni 2004 und Juli-Oktober 2004 hergestellt.

Alle Proben wurden über einen $0,2 \mu\text{m}$ Filter gereinigt. Wegen der hohen ^{129}I -Konzentrationen im Regenwasser war eine Probenmenge von 10 ml pro Probe ausreichend, um mit Trägermengen von 0,4 mg bis 0,7 mg zu arbeiten. In den Proben aus 2003 wurde neben den ^{129}I -Konzentrationen auch der ^{127}I -Gehalt bestimmt.

In Tabelle 5.4 sind die Niederschlagsraten mit den gemessenen Konzentrationen an ^{129}I und ^{127}I zusammengestellt. Die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen lagen zwischen $4,8 \cdot 10^8 \text{ at/l}$ und $50 \cdot 10^8 \text{ at/l}$. Die Schwankungsbreite der einzelnen Niederschlagsereignisse kann wesentlich größer sein, wie Messungen in Sevilla zeigten [84].

Zwischen Juli 2003 und Juni 2004 lag die mittlere ^{129}I -Konzentration im Regenwasser bei $(17 \pm 2) \cdot 10^8 \text{ at/l}$. Für diesen Zeitraum wurde ein ^{129}I -Depositionsfluß von $(1.2 \pm 0.1) \cdot 10^{12} \frac{\text{at}}{\text{m}^2 \text{a}}$ abgeleitet.

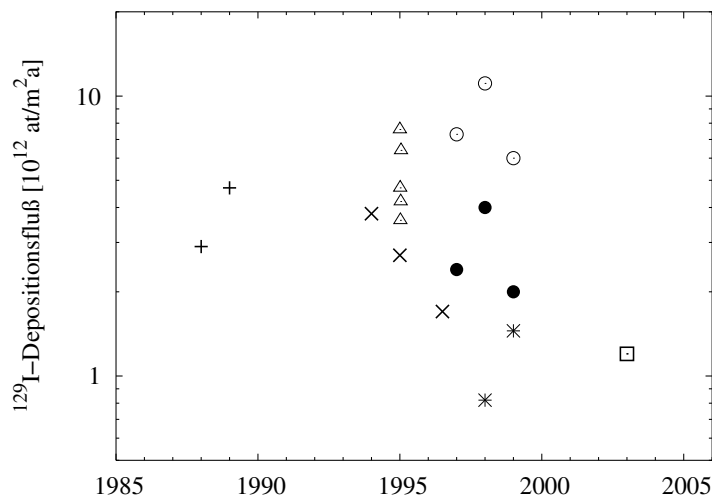


Abbildung 5.5: In oberbayrischem Niederschlag gemessener ^{129}I -Depositionsfluß (□) im Vergleich mit früheren Messungen (●, ○ [30], × [31], + [67], △ [68], * [70]).

Abb. 5.5 zeigt einen Vergleich des gemessenen ^{129}I -Depositionsflusses mit den Ergebnissen früherer Messungen [30, 31, 67, 68, 70]. Abgesehen von den Messungen in Uppsala (Schweden) [70], liegt der hier gemessene ^{129}I -Depositionsfluß um einen Faktor 2 bis 10 niedriger wie die verfügbaren Literaturwerte [30, 31, 67, 68]. Ein derartiger Vergleich hat aber nur bedingte Aussagekraft, da die lokalen ^{129}I -Depositionen verschiedener Jahre stark von folgenden Parametern abhängen:

- von den ^{129}I -Freisetzungen in den betrachteten Jahren

	1988	1989	1995	1995	2003
$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} [10^{-8}]$	62 ± 42	96 ± 52	72 ± 29	97 ± 39	15^{+8}_{-3}
Referenz	[67]	[67]	[68]	[68]	

Tabelle 5.5: Mittlere $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Verhältnisse in Regenwasser aus Süddeutschland.

- vom Transportweg zwischen den ^{129}I -Quellen und dem Depositionsort
- von der Niederschlagsmenge am Ort der Probennahme

Ein vergleichbarer Transportweg und ähnliche Niederschlagsraten können für Süddeutschland angenommen werden. Die in Mappenberg (Oberpfalz) [67], Schauinsland (Baden-Württemberg) und Brotjackriegel (Niederbayern) [68] gemessenen ^{129}I -Konzentrationen sind in Abb. 5.6 zusammen mit dem hier ermittelten Wert eingetragen. Ein deutlicher Rückgang der mittleren ^{129}I -Konzentration im Regen-

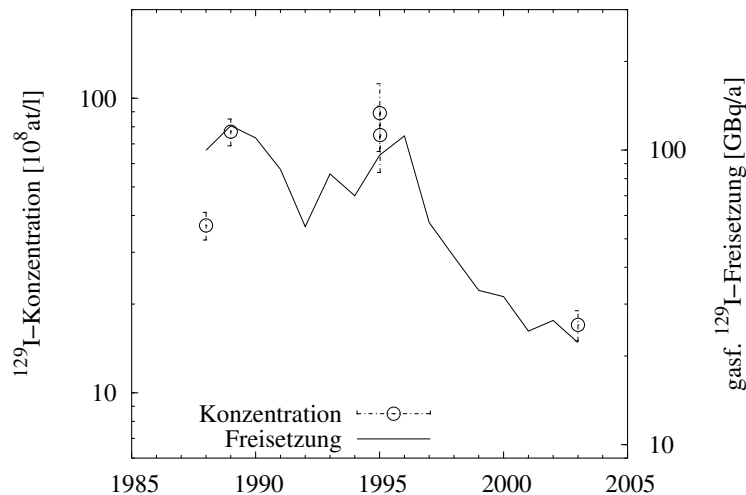


Abbildung 5.6: Mittlere ^{129}I -Konzentrationen im Regenwasser aus Süddeutschland [67, 68] im Vergleich mit der Summe der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den europäischen Aufarbeitungsanlagen in Sellafield, La Hague und Marcoule.

wasser ist festzustellen. Ein Vergleich der ^{129}I -Konzentrationen mit der Summe der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den europäischen Aufarbeitungsanlagen in Sellafield, La Hague und Marcoule im betreffenden Zeitraum zeigt eine gute Übereinstimmung.

Auch im $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis läßt sich der deutliche Abfall gegenüber den früheren Messungen in Süddeutschland [67, 68] erkennen (Tab. 5.5).

5.4 ^{129}I in Süßwasserseen

Seewasser wurde schon früher als Reservoir für gelöste Ionen verwendet [21]. Im Gleichgewichtszustand kompensiert der Wassereintrag in den See den Wasserverlust Q . Der dem Seevolumen V_S entsprechende Wasserkörper wird innerhalb einer Verweilzeit t_V komplett erneuert.

$$t_V \cdot Q = V_S$$

Das Wasservolumen eines Sees stellt somit ein Reservoir dar, mit dem für den Zeitraum innerhalb einer Austauschzeit Aussagen über den Ioneneintrag möglich sind.

Viele ^{129}I -Messungen in Bodenproben haben gezeigt, daß deponiertes ^{129}I im Boden aufakkumuliert wird [29, 30, 37, 85]. Der Boden filtert also einen Großteil des mit dem Niederschlag deponierten ^{129}I aus dem Regenwasser heraus. Mit einer Auswaschzeit $\tau=4000$ a wird das im Boden gespeicherte ^{129}I von dort wieder ausgespült [86].

Geht man davon aus, daß nur über der Seefläche A_S deponiertes ^{129}I direkt mit dem Regenwasser in den Seekörper gelangt und das Erdreich für über Land deponiertes ^{129}I ein Reservoir darstellt, so folgt für das ^{129}I -Inventar $I = c_S \cdot V_S$ im See:

$$\frac{dI}{dt} = \Phi \cdot A_S + \hat{\Phi} \cdot \frac{A_E}{\tau} - \frac{I}{t_V}. \quad (5.1)$$

Hier sind Φ der lokale ^{129}I -Depositionsfluß, $\hat{\Phi}$ die integrale ^{129}I -Depositionsfluenz und A_E das Einzugsgebiet des Sees. Eine Obergrenze für die zu erwartende ^{129}I -Konzentration $c_S = I/V_S$ im Seewasser erhält man für $\tau \rightarrow \infty$. Das ist gleichbedeutend mit der Annahme, daß kein über Land deponiertes ^{129}I den Seekörper erreicht. Die Gleichung (5.1) geht dann über in:

$$\frac{dI}{dt} = \Phi \cdot A_S - \frac{I}{t_V}. \quad (5.2)$$

Kennt man also die ^{129}I -Depositionsflüsse im Einzugsgebiet, dann läßt sich mit den Gleichungen (5.1) und (5.2) auf die im Seewasser zu erwartende ^{129}I -Konzentration schließen.

Die Gleichungen (5.1) und (5.2) wurden numerisch gelöst. Die dabei verwendeten ^{129}I -Depositionsflüsse lieferte ein atmosphärisches Transportmodell (Anh. A), in dem die jeweils dominierenden Aufarbeitungsanlagen als ^{129}I -Quellen berücksichtigt wurden. Die der Berechnung zugrunde gelegten Seeparameter sind in Anh. B angegeben. Die Lösungen der Gleichungen (5.1) und (5.2) spannen einen Bereich auf, in dem die ^{129}I -Konzentrationen der betrachteten Seewasserproben zu erwarten sind.

5.4.1 ^{129}I -Messungen in Seewasser: Süddeutschland

Die ^{129}I -Konzentrationen von Seewasserproben aus Süddeutschland wurden bestimmt (Tab. 5.6). Sie liegen alle in einem engen Band zwischen $1,3 \cdot 10^8$ at/l und $2,6 \cdot 10^8$ at/l. Diese Konzentrationen liegen um etwa eine Größenordnung niedriger als die ^{129}I -Konzentrationen in den oben beschriebenen Regenwasserproben.

	Proben- nahme	Proben- tiefe	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]	^{127}I -Konz. [$\mu\text{g/l}$]	ber. ^{129}I -Konz. [10^8 at/l]
Ammersee	10/00	OF	$1,5 \pm 0,2$		1,2-2,0
	10/03	OF	$1,8 \pm 0,4$		1,0-1,4
	10/03	10 m	$2,0 \pm 0,3$		1,0-1,4
	05/04	40 m	$2,4 \pm 0,5$		0,8-1,0
	08/04	10 m	$5,8 \pm 0,6$		0,8-1,0
Bodensee	09/98		$2,1 \pm 0,5$	< 0,7	1,2-2,2
Chiemsee	05/00	35 m	$2,6 \pm 0,2$		2,0-4,8
	04/04		$1,3 \pm 0,4$		1,8-2,6
Starnberger S.	09/00		$2,5 \pm 0,9$	$2,0 \pm 0,3$	6,8-8,5
	08/04	10 m	$2,5 \pm 0,3$		6,0-7,5

Tabelle 5.6: Messergebnisse der Seewasserproben aus Süddeutschland: Datum der Probennahme, Iod-Konzentrationen und erwartete ^{129}I -Konzentrationen.

Diese Verdünnung weist deutlich darauf hin, daß nur ein Teil des mit dem Regen im Einzugsgebiet deponierten ^{129}I in den Seekörper gelangt. Sie bestätigt die Annahme, daß der überwiegende Teil des über Land deponierten ^{129}I im Erdreich aufakkumuliert wird.

Die in Ammersee, Bodensee und Chiemsee gemessenen ^{129}I -Konzentrationen passen gut zu den aus der Berechnung erwarteten ^{129}I -Konzentrationen. Im Chiemsee spiegelt sich in der gegenüber dem Probenjahr 2000 deutlich geringeren ^{129}I -Konzentration des Probenjahrs 2004 der starke Rückgang der gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen aus den französischen Aufarbeitungsanlagen wieder. Der beobachtete Rückgang in der ^{129}I -Konzentration des Chiemsees läßt sich rechnerisch nur erklären, wenn der Beitrag des aus dem Boden des Einzugsgebiets ausgewaschenen ^{129}I überschätzt wurde. Der Grund dafür könnte z.B. in einer geringeren Iodadsorptionsfähigkeit im Boden seines Einzugsgebiets liegen, was den Beitrag über Auswaschen aus dem Boden stark verringern würde.

Die ^{129}I -Konzentrationen im Starnberger See liegen deutlich unter den erwarteten Werten. Die Abweichung beträgt einen Faktor 2-3. Möglicherweise weist das auf eine schlechte Durchmischung des Seevolumens hin.

5.4.2 ^{129}I -Messungen in Seewasser: Schweiz und Italien

Die ^{129}I -Konzentrationen in Seewasserproben aus Norditalien liegen im selben Bereich wie die ^{129}I -Konzentrationen in Seewasserproben aus Süddeutschland (Tab. 5.7). Verwendet man die oben beschriebene Abschätzung für die ^{129}I -Konzentrationen, dann passen auch hier erwartete und gemessene ^{129}I -Konzentrationen gut zusammen.

	Proben- nahme	Proben- tiefe	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]	^{127}I -Konz. [$\mu\text{g/l}$]	ber. ^{129}I -Konz. [10^8 at/l]
Genfer See	01/99	80-300 m	$8,1 \pm 0,9$		1,5-2,4
Comer See	10/98	100 m	$1,3 \pm 0,3$	$0,8 \pm 0,5$	1,0-2,1
Garda See	10/98	100 m	$2,4 \pm 0,3$	$2,1 \pm 0,5$	2,4-3,1
	05/04		$1,6 \pm 0,4$		2,0-2,6
Luganer See	11/98	75-150 m	$3,1 \pm 0,5$		1,5-2,2
L.Maggiore	10/98	80-300 m	$2,2 \pm 0,2$	$1,3 \pm 0,4$	1,0-1,5

Tabelle 5.7: Messergebnisse der europäischen Seewasserproben: Datum der Probenahme, ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen und erwartete ^{129}I -Konzentrationen.

Am Genfer See (Schweiz/Frankreich) wurden die ^{129}I -Konzentrationen von 3 Einzelproben bestimmt. Zwei Proben stammen von unterschiedlichen Entnahmestellen² aus vergleichbarer Tiefe (80 bzw. 100 m). Die dritte Probe wurde in der Seemitte aus 300 m Tiefe entnommen.

Die ^{129}I -Konzentrationen der beiden aus 80 bzw. 100 m Tiefe entnommenen Proben stimmen mit $(6,8 \pm 1,1) \cdot 10^8$ at/l bzw. $(7,1 \pm 0,8) \cdot 10^8$ at/l im Rahmen der Meßfehler überein. Die ^{129}I -Konzentration der Probe aus 300 m Tiefe liegt mit $(1,0 \pm 0,1) \cdot 10^9$ at/l kaum höher. Es kann deswegen von einer guten Durchmischung des Seekörpers ausgegangen werden. In Tab. 5.7 ist das arithmetische Mittel der Einzelmessungen angegeben. Die ^{129}I -Konzentration im Genfer See liegt deutlich über allen anderen hier betrachteten europäischen Seen und auch deutlich über der Erwartung. Es kann auf eine 4-6 fach höhere ^{129}I -Depositionsrate am Genfer See gegenüber den Seen in Süddeutschland und Norditalien geschlossen werden. Die deutlich geringere Distanz zur Aufarbeitungsanlage in Marcoule ist die wahrscheinlichste Ursache hierfür.

5.4.3 ^{129}I in Seen um St. Petersburg

Für kleine zeitliche Änderungen des ^{129}I -Seeinventars $\dot{I} \approx 0$ folgt aus Gleichung (5.2) eine grobe Abschätzung für die mittlere ^{129}I -Depositionsrate $\bar{\Phi}$ während

²Seemitte-100 und kleiner See-80

einer Austauschzeit:

$$\bar{\Phi} = \frac{c_S \cdot V_S}{A_S \cdot t_V}.$$

Nahe St. Petersburg liegen Ladogasee, Onegasee und Ilmensee relativ nahe beieinander. Deswegen sollten sie bei vergleichbarer Verweilzeit (s.a. Anh. B) eine ähnliche ^{129}I -Depositionsrates $\bar{\Phi}$ aufweisen. Sie liegt für den Ladogasee, Onegasee und den Ilmensee aber bei 12 bzw. 5,3 und $5,0 \cdot 10^{11} \text{ at/m}^2\text{a}$.

Die scheinbar höhere ^{129}I -Depositionsrates $\bar{\Phi}$ im Ladogasee kann auf Retentionseffekte im Einzugsgebiet zurückgeführt werden. Die Seen Onega, Ilmen und Saimaa (Finnland) entwässern nämlich jeweils in den Ladogasee, mit Verweilzeiten von 16 a, 3,8 a bzw. 4,4 a. Modelliert man die ^{129}I -Konzentrationen in diesen Seen für $\tau \rightarrow \infty$ unter Berücksichtigung des Zulaufs in den Ladogasee, dann lassen sich die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen gut erklären (Tab. 5.8). Der für die Berechnung verwendete jährliche ^{129}I -Eintrag in der Region um St. Petersburg stammt aus dem atmosphärischen Transportmodell (Anh. A). Hier wurden alle europäischen und sowjetischen Aufarbeitungsanlagen als ^{129}I -Quellen berücksichtigt. Das Transportmodell liefert einen vernachlässigbaren Beitrag der sowie-

	Proben- nahme	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]	^{127}I -Konz. [$\mu\text{g/l}$]	ber. ^{129}I -Konz. [10^8 at/l]
Ladogasee	09/99	$3,0 \pm 0,2$	$1,5 \pm 0,4$	3,0
Onegasee	08/01	$3,0 \pm 0,4$	$1,8 \pm 0,4$	3,8
Ilmensee	12/01	$2,9 \pm 0,4$		2,9

Tabelle 5.8: Messergebnisse Seewasserproben um St. Petersburg: Datum der Probenahme, ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen und erwartete ^{129}I -Konzentrationen bei Berücksichtigung der Mutter-Tochter-Verhältnisse.

tischen Emissionen zur ^{129}I -Depositionsfluenz in der Region um St. Petersburg von etwa 3 %. Die dortige ^{129}I -Depositionsfluenz wurde zu $2,1 \cdot 10^{13} \text{ at/m}^2$ bis zum Jahr 2003 berechnet. Bis einschließlich 1996 läßt sich die ^{129}I -Depositionsfluenz zu $1,9 \cdot 10^{13} \text{ at/m}^2$ folgern. Sie liegt im Rahmen früherer Messungen in der Moskauer Region, wo über Messungen in Bodenproben die ^{129}I -Depositionsfluenzen zu 2,2 bzw. $3,8 \cdot 10^{13} \text{ at/m}^2$ bestimmt wurden [87].

Im Wasser vom Ilmensee waren wegen seiner kurzen Verweilzeit von 3,8 a schon kaum mehr Spuren der Marcoule-Freisetzen zu erwarten³. Bildet man den Quotienten A_N :

$$A_N = \frac{\bar{E}}{\bar{\Phi}}$$

aus der mittleren ^{129}I -Freisetzung $\bar{E}=33,3 \text{ GBq/a}$ zwischen 1998 und 2001 aus Selafeld und La Hague und der mittleren ^{129}I -Depositionsrates $\bar{\Phi}$ am Ilmensee, so

³Die Aufarbeitung in Marcoule wurde 1997 eingestellt.

erhält man eine Normierungsfläche A_N von $4,8 \cdot 10^{13} \text{ m}^2$. Diese kann herangezogen werden, um einen Zusammenhang zwischen der gasförmigen ^{129}I -Freisetzung und der lokalen ^{129}I -Depositionsfluenz herzustellen. Eine vergleichbare Normierungsfläche $A_N^*=4,0 \cdot 10^{13} \text{ m}^2$ kann auch aus dem Transportmodell abgeleitet werden.

5.4.4 ^{129}I in asiatischen Seen

Die ^{129}I -Konzentrationen in mehreren Seen aus der ehemaligen Sowjetunion wurden bestimmt. Wegen der geringen ^{129}I -Konzentrationen in den Proben wurden sie nach Zugabe von ^{127}I -Träger und anschließendem Filtern in einem Vakuumrotationsverdampfer aufkonzentriert.

	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]		^{129}I -Konz. [10^8 at/l]		^{129}I -Konz. [10^8 at/l]
N/m-200	$0,24 \pm 0,08$			S-200	$0,28 \pm 0,06$
N-500	$0,37 \pm 0,05$	m-800	$0,45 \pm 0,06$	S-600	$0,26 \pm 0,06$
N-800	$0,50 \pm 0,08$	m-1500	$0,21 \pm 0,03$	S-1300	$0,28 \pm 0,04$

Tabelle 5.9: ^{129}I -Konzentrationen im Baikalsee (Probennahme: 08/98).

Vom Baikalsee (Rußland) wurden die ^{129}I -Konzentrationen von insgesamt 8 Einzelproben analysiert. Die erhaltenen ^{129}I -Konzentrationen sind in Tab. 5.9 angegeben.

Das arithmetische Mittel der 8 Einzelmessungen liegt bei $(3,2 \pm 0,6) \cdot 10^8 \text{ at/l}$. Aus Gleichung (5.2) folgt für große Verweilzeiten t_V : $\hat{\Phi} = \frac{c_S \cdot V_S}{A_S}$. Damit ergibt sich die integrale ^{129}I -Depositionsfluenz $\hat{\Phi}$ am Baikalsee zu $(22 \pm 4) \cdot 10^{12} / \text{m}^2 \text{a}$.

Der Baikalsee ist in drei große Becken unterteilt, die einen Massenaustausch nur zwischen ihren oberen 300 m zulassen. Tiefere Wassermassen können nicht untereinander austauschen [88]. Der Wasseraustausch kann mit Hilfe der Austauschzeiten aus [88] durch ein Boxenmodell beschrieben werden. Dazu wurden für das Zeitverhalten der Einträge die am Beluchagletscher ermittelten ^{129}I -Depositionsflüsse verwendet. Tab. 5.10 zeigt einen Vergleich der aus der Tab. 5.9

	Nord	Mitte	Süd	Nord	Mitte	Süd
0-300 m	0,24		0,28	0,34	0,30	0,25
>300 m	0,44	0,33	0,27	0,40	0,35	0,29

Tabelle 5.10: ^{129}I -Konzentrationen [10^8 at/l] im Baikalsee für die betrachteten 6 Boxen. Die mittleren Meßwerte (links) sind dem Resultat des Boxenmodells (rechts) gegenübergestellt. Die Meßwerte wurden aus den in Tab. 5.9 angegebenen ^{129}I -Konzentrationen abgeleitet.

abgeleiteten mittleren Meßwerte in den betrachteten Boxen mit dem Ergebnis des Boxenmodells. Im Rahmen der Meßfehler stimmen die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen gut mit den berechneten ^{129}I -Konzentrationen überein.

In Tab. 5.11 sind die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen in den betrachteten asiatischen Seen mit den aus der Transportrechnung und aus dem Seenmodell resultierenden, berechneten ^{129}I -Konzentrationen gegenübergestellt. Die ^{129}I -Konzentrationen in Baikalsee, Balchaschsee und Issyk Kul können hiermit bis auf einen Faktor 2 genau abgeschätzt werden.

Die ^{129}I -Konzentrationen zweier weiterer asiatischer Seen können aber nicht direkt mit den atmosphärischen ^{129}I -Einträgen erklärt werden.

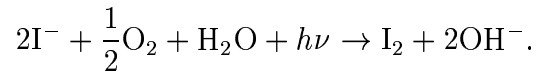
Chubsugul Nur (Mongolei) liegt nur einige 100 km westlich vom Südende des Baikalsees. Auch seine Abflußzeit ist mit mehreren hundert Jahren vergleichbar zur Abflußzeit des Baikalsees. Die am Chubsugul Nur bestimmte ^{129}I -Depositionsfluenz $\hat{\Phi}$ liegt jedoch um einen Faktor 7 niedriger als die am Baikalsee. In früheren Messungen wurde auch eine Abweichung beider Seen beim ^{36}Cl Eintrag aus dem globalen Bombenfallout beobachtet. Sie wurde auf eine in dieser Region vorherrschenden Wetterlage zurückgeführt [21]. In den Wintermonaten ist nämlich ein troposphärischer Austausch der Luftmassen durch ein stabiles Hochdruckgebiet behindert, das aus der Stratosphäre gespeist wird. Die Stratosphäre ist im Vergleich zur Troposphäre sehr arm an ^{129}I , woraus ein deutlich verringerter ^{129}I -Eintrag in den See folgt. Da der Chubsugul Nur auf einer Höhe von 1600 müNN liegt, läßt sich ein Teil des geringeren ^{129}I -Eintrags auch auf den Verdünnungseffekt mit zunehmender Höhe zurückführen (vgl. Kap. 5.1).

	Proben- nahme	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]	^{127}I -Konz. [$\mu\text{g/l}$]	ber. ^{129}I -Konz. [10^8 at/l]
Baikalsee	08/98	$0,32 \pm 0,06$	$0,8 \pm 0,3$	0,16-0,29
Balchaschsee (Ost)	06/01	$2,1 \pm 0,3$	$7,1 \pm 0,6$	3,2-5,0
Balchaschsee (West)	06/01	$3,2 \pm 1,2$	$11,3 \pm 0,4$	3,2-5,0
Chubsugul Nur	10/01	$0,24 \pm 0,03$	$< 0,7$	0,9-1,0
Issyk Kul	06/01	$0,5 \pm 0,4$	$84,3 \pm 3,1$	0,28-0,31
	06/04	$0,58 \pm 0,05$		0,28-0,31
Ubsa Nur	06/01	$1,1 \pm 0,2$	$7,8 \pm 0,6$	21-32

Tabelle 5.11: ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen in den betrachteten Seen aus der ehemaligen Sowjetunion.

Eine sehr starke Abweichung der gemessenen ^{129}I -Konzentration von der erwarteten ^{129}I -Konzentration zeigt der Ubsa Nur (Mongolei). Neben denselben Argumenten, die eben schon für den Chubsugul Nur diskutiert wurden, weist der Ubsa Nur weitere Besonderheiten auf. Sie liegen in der geringen mittleren Tiefe ($\bar{h} = 6 \text{ m}$) und der sehr niedrigen Niederschlagsrate im Einzugsgebiet (Tab. B.1).

Die geringe mittlere Seetiefe begünstigt das Entweichen von ^{129}I aus dem Wasserkörper. Im Wasser gelöstes Iodid kann photochemisch aufoxidiert werden [75]:



Zudem wird über Bioaktivität im See organisches Iod (v.a. CH_3I) gebildet. Aufgrund der geringen Löslichkeit von I_2 und CH_3I in Wasser entweichen diese Iodverbindungen aus dem Seekörper. Für das Entweichen von Iod aus dem Meer wurde eine Rate von 0,12 m/a angegeben [32], was pro Jahr dem Entweichen des kompletten Iodinventars aus den oberen 12 cm des Ozeans entspricht. Bei seichten Seen kann dieser Verlustmechanismus möglicherweise die Iodkonzentration im Wasser begrenzen.

5.4.5 Seen weitab von großen ^{129}I -Quellen

Die ^{129}I -Konzentrationen von einigen Seen der Südhemisphäre wurden bestimmt. Die Lage der betrachteten Seen ist in Abb. 5.7 markiert. Sie liegen alle weit entfernt von den dominierenden ^{129}I -Quellen. Die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen

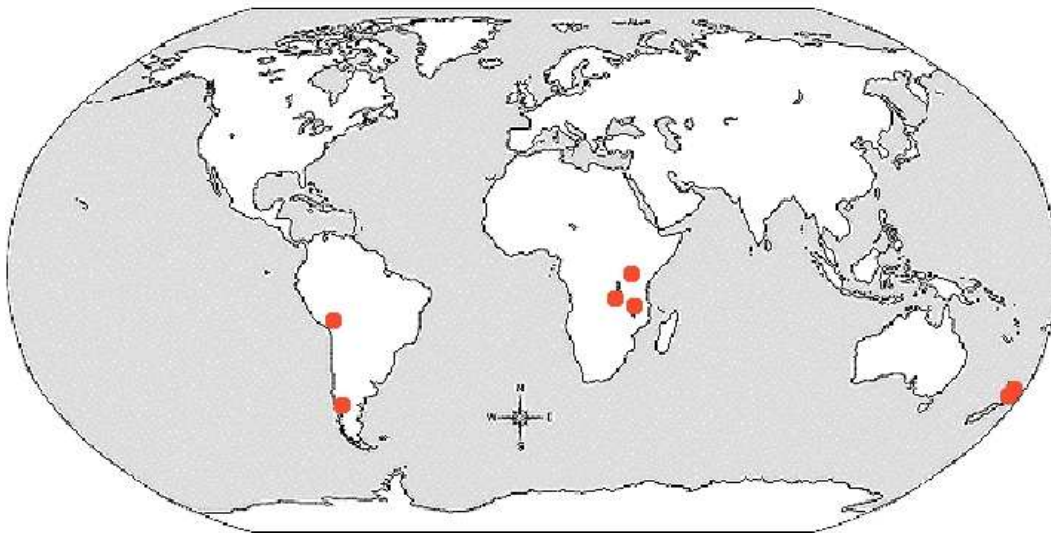


Abbildung 5.7: Übersichtskarte: Lage der betrachteten Seen aus Afrika, Südamerika und Neuseeland.

liegen deutlich niedriger als in den europäischen und in den asiatischen Seen (siehe Kap. 5.4.4). Sie reichen von einigen 10^5 at/l in Seewasser aus Neuseeland bis mehrere 10^6 at/l in Wasserproben aus Afrika und Südamerika (Tab. 5.12). Mit der ^{127}I -Konzentration im Tauposee aus [89] resultiert das niedrigste, in dieser Arbeit beobachtete, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ -Isotopenverhältnis einer Wasserprobe von etwa 10^{-11} . Die in [89] angegebene ^{127}I -Konzentration im Tauposee von 10^7 at/l konnte nicht bestätigt werden.

Die ^{129}I -Konzentrationen in den betrachteten Seen können nicht allein mit den Freisetzungen aus den Aufarbeitungsanlagen erklärt werden. Das atmosphärische Transportmodell liefert für diese ^{129}I -Quellen deutlich zu niedrige ^{129}I -Depositionsflüsse. Mit ihnen würde die in den betrachteten Seenregionen erwarteten ^{129}I -Konzentrationen zum Teil um mehrere Größenordnungen unterschätzt werden. Die Größenordnung der beobachteten ^{129}I -Konzentrationen läßt sich erst unter

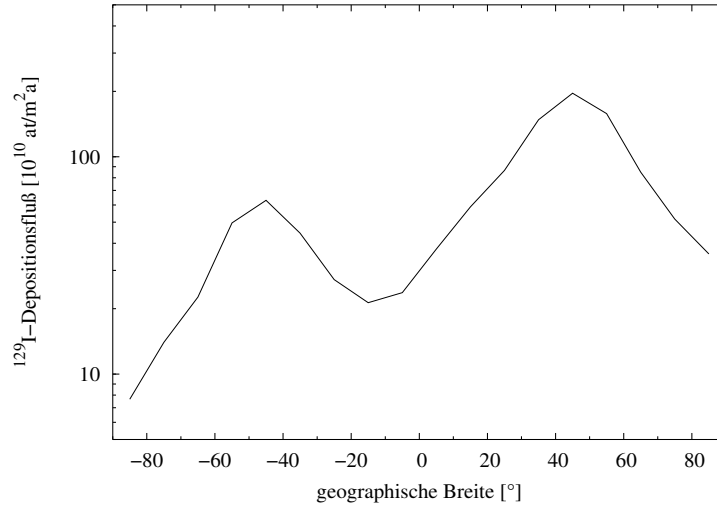


Abbildung 5.8: ^{129}I -Depositionsfluenzen infolge des Atombombenfallouts.

Einbeziehung des ^{129}I -Bombenfallouts verstehen. Die ^{129}I -Depositionsfluenz in Abhängigkeit des betrachteten Breitengrades ist in Abb. 5.8 gegeben. Auf der Südhalbkugel beträgt sie im Mittel $3 \cdot 10^{11}$ at/m².

Für kleine ^{129}I -Depositionsflüsse $\Phi \ll \hat{\Phi} \frac{A_E}{A_S \cdot \tau}$ im Einzugsgebiet geht Gleichung (5.1) über in:

$$\frac{dI}{dt} = \hat{\Phi} \cdot \frac{A_E}{\tau} - \frac{I}{t_V}. \quad (5.3)$$

Die ^{129}I -Depositionsfluenz auf der Südhemisphäre wird vom Bombenfallout $\hat{\Phi}_B$ dominiert. Näherungsweise wurde angenommen, daß der gesamte Bombenfallout 1963 deponiert worden war. Damit ist die Anfangsbedingung $I(1963) = \hat{\Phi} A_S$ festgelegt.

Die Funktion $I(t) = \hat{\Phi}_B A_E \frac{t_V}{\tau} \cdot \left(1 - \frac{1}{t_V} \left(\frac{A_S \tau}{A_E} - 1\right) \cdot \exp(-t/t_V)\right)$ löst Gleichung (5.3) unter Berücksichtigung der Anfangsbedingung. Diese Lösung wurde zur Berechnung der ^{129}I -Konzentration $c_S = I/V_S$ in den hier betrachteten Seen verwendet. Sie ist in Tab. 5.12 den gemessenen ^{129}I -Konzentrationen gegenübergestellt. Die gemessenen ^{129}I -Konzentrationen lassen sich größenordnungsmäßig mit dem globalen Bombenfallout erklären.

	Proben- nahme	^{129}I -Konz. [10^8 at/l]	^{127}I -Konz. [$\mu\text{g/l}$]	ber. ^{129}I -Konz. [10^8 at/l]
Afrika				
Malawisee	03/01	$< 0,046$	$2,4 \pm 0,4$	0,013
Mwerusee	02/01	$0,058 \pm 0,016$	$2,0 \pm 0,4$	
Victoria See	02/01	$0,027 \pm 0,006$	$9,4 \pm 0,4$	0,036
Südamerika				
Nahuel Huapi	07/02	$0,037 \pm 0,008$		0,001
Titicacasee	03/00	$0,102 \pm 0,049$	$8,0 \pm 0,4$	0,058
Neuseeland				
Lake Rotorua	05/03	$< 0,005$		0,001
Lake Taupo	05/03	$0,005 \pm 0,004$	11,4 [89]	0,002

Tabelle 5.12: ^{129}I - und ^{127}I -Konzentrationen in Seewasserproben der Südhemisphäre.

Kapitel 6

Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen aus Majak

Routinemäßige Messungen der ^{131}I -Freisetzung wurden in Majak erst ab 1957 durchgeführt [4]. Wegen der kurzen Halbwertszeit von ^{131}I ($T_{1/2}=8,02\text{ d}$) können die ^{131}I -Freisetzungen der frühen Betriebsjahre heute nicht mehr direkt nachgewiesen werden, ^{129}I kann jedoch als Tracer für die ^{131}I -Freisetzung fungieren. Dazu ist es erforderlich, das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung zu kennen.

6.1 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis

Kennt man die Bestrahlungszeit im Brutreaktor und die Abklingzeit vor Aufarbeitung der Brennelemente, dann läßt sich das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung bestimmen. Da sich alle Radioiodisotope chemisch gleich verhalten wirken auch die Iodfilter in gleichem Maße auf die Isotope. Die Unkenntnis der wirklichen Filterausbeuten kann so umgangen werden. Maßgeblich für diese Rekonstruktionsmethode ist jedoch, daß es keine Nebenzweige mit retardierender Freisetzung gab. Kann man also die ^{129}I -Freisetzung bestimmen, ist daraus ein Rückschluß auf die ^{131}I -Emissionen möglich.

Das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis im Kernbrennstoff nach Ende der Bestrahlung t_0 hängt bei kleinem Abbrand ausschließlich von der Bestrahlungszeit t_B ab (siehe Kap. 2.1.3). Die Bestrahlungszeit wird in der Literatur zu 120 d angegeben [5, 45]. Nach Bestrahlungsende folgt ein $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis von 2,6. Zu diesem Zeitpunkt liegen noch 8% der Spaltprodukte mit Masse 129 als ^{129m}Te vor.

Nach der Abklingzeit t_A werden die bestrahlten Brennelemente aufbereitet, wobei die leicht flüchtigen Iodisotope anfallen. Es wurde von üblichen Abklingzeiten zwischen 25 und 45 Tagen in den frühen Betriebsjahren von Majak berichtet, bei einem Mittelwert von 35 d [5]. Eine Neubewertung der Aktivitätsmessung ei-

ner Abwasserprobe vom 24. und 25. September 1951¹ ist mit einer Abklingzeit von 35 d kompatibel [5].

Setzt man $t_A=35$ d an, dann beträgt das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Aufarbeitung 55,6, der auch der Zeitpunkt der Freisetzung ist. Wie im folgenden gezeigt wird, überschätzt dieses Isotopenverhältnis jedoch das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung.

Die Häufigkeiten der Abklingzeiten $t_A \in [25 \text{ d}; 45 \text{ d}]$ sind nicht bekannt. Vergleicht man aber verschiedene Häufigkeitsverteilungen, deren mittlere Abklingzeiten bei 35 d liegen, dann läßt sich eine Aussage über das wahrscheinlichste $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung folgern.

- **Gaußverteilung:** die Häufigkeiten der $t_A \in [25 \text{ d}; 45 \text{ d}]$ sind normalverteilt mit einem Erwartungswert $\mu=35$ d und einer Standardabweichung $\sigma=5,1$ d. Damit liegen 95 % der Abklingzeiten im Intervall $t_A \in [25 \text{ d}; 45 \text{ d}]$.

$$\frac{N^{I-131}}{N^{I-129}}(t_A) = \frac{N^{I-131}}{N^{I-129}}(t_0) \cdot \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \int_{25 \text{ d}}^{45 \text{ d}} e^{(-\lambda^{I-131}t)} \exp\left(-\left(\frac{t-\mu}{4\sigma}\right)^2\right) dt = \frac{1}{51,3}$$

- **Gleichverteilung:** alle $t_A \in [25 \text{ d}; 45 \text{ d}]$ haben gleiche Häufigkeit.

$$\frac{N^{I-131}}{N^{I-129}}(t_A) = \frac{N^{I-131}}{N^{I-129}}(t_0) \cdot \int_{25 \text{ d}}^{45 \text{ d}} H \exp(-\lambda^{I-131}t) dt = \frac{1}{49,3}$$

mit $(45 \text{ d} - 25 \text{ d}) \cdot H = 1$.

- eine Untergrenze für das $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung erhält man im Fall, daß nur die Abklingzeiten $t_A \in \{25 \text{ d}; 45 \text{ d}\}$ aufgetreten sind. Sie ergibt sich zu

$$\frac{N^{I-131}}{N^{I-129}}(t_A) = \frac{N^{I-131}}{N^{I-129}}(t_0) \cdot \left[\exp(-\lambda^{I-131}25 \text{ d}) + \exp(-\lambda^{I-131}45 \text{ d}) \right] = \frac{1}{39,8}$$

Dieses Aufarbeitungsszenario erscheint jedoch sehr unwahrscheinlich zu sein.

Man sieht, daß die $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Verhältnisse aus den beiden wahrscheinlicheren Szenarien, der Gleichverteilung und der Normalverteilung der Abklingzeiten, nur unwesentlich voneinander abweichen. Beide liegen allerdings um etwa 10 % niedriger als mit einer gleichbleibenden Abklingzeit von 35 d erwartet. Für die Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen aus Majak wird im folgenden ein $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung von 50 angesetzt.

¹Das ist die einzige verfügbare Aktivitätsmessung der frühen Jahre.

6.2 Notwendigkeit der Zeitauflösung

Noch Mitte der 50-er Jahre wurde die in Majak freigesetzte ^{131}I -Aktivität stark reduziert [6], obwohl sich der Brennelementdurchsatz bis etwa 1960 stark erhöhte (vgl. Abb. 3.1). Diese Reduktion ist, neben dem Einsatz von effizienterer Iodfiltrertechnik, vor allem auf eine längere Abklingzeit zurückzuführen². Das bedeutet aber auch, daß der Depositionsanteil der frühen Betriebsjahre, die radiologisch relevant sind, an der heute meßbaren integralen ^{129}I -Depositionsfluenz nur einen sehr geringen Anteil hat. Eine zeitaufgelöste Messung der ^{129}I -Depositionsflüsse ist also zur Identifikation der frühen ^{129}I -Depositionen unumgänglich.

Für die Bestimmung der frühen ^{129}I -Freisetzungen aus Majak braucht man ein geeignetes Archiv, das konservativ in den enthaltenen ^{129}I -Konzentrationen ist um die Zeitinformation zu erhalten. Da sich Gletschereis als geeignetes Archiv für eine zeitaufgelöste ^{129}I -Messung erwiesen hatte (Kap. 5.1, [9]), wurde es auch als Depositionsarchiv in der ehemaligen Sowjetunion gewählt.

Der hier verwendete Eisbohrkern stammt vom Beluchagletscher (49,81° Nord, 86,58° Ost) im sibirischen Altai (Rußland). Der Beluchagipfel ist mit 4506 m die höchste Erhebung im sibirischen Altai. Er liegt von Tscheljabinsk aus gesehen etwa 1800 km in Richtung West-Südwest (Abb.2.10). Die beiden Hauptgipfel des



Abbildung 6.1: Im Sattel zwischen den beiden Hauptgipfeln des Belucha wurde der Eisbohrkern entnommen.

Belucha sind in Abb. 6.1 dargestellt, im Sattel dazwischen wurde die Eisbohrung durchgeführt. Die verwendeten Eisproben und ihre ^{129}I -Messungen wurden in Kap. 5.2 beschrieben.

²Bereits eine Verlängerung der Abklingzeit von 35 d auf 2 Monate bringt eine Reduktion der ^{131}I -Freisetzungen um etwa einen Faktor 9.

6.3 ^{129}I -Untergrund am Beluchagletscher

Am Beluchagletscher wird das ^{129}I -Signal aus Majak von den ^{129}I -Signalen aus mehreren weiteren Quellen überlagert. Neben den Aufarbeitungsanlagen Tomsk-7 und Krasnojarsk-26 ist hier der ^{129}I -Eintrag aus dem Kernwaffen-Fallout zu betrachten.

6.3.1 Kernwaffen-Fallout

Aus den bei den oberirdischen Kernwaffenexplosionen durch Kernspaltung freigesetzten Energien läßt sich der ^{129}I -Eintrag in die Nordhemisphäre zu etwa 345 GBq abschätzen.

Mit Hilfe des atmosphärischen Ausbreitungsmodells (Anhang A) berechnet sich die mittlere ^{137}Cs -Depositionsfluenz bei 50°N zu $5,2\text{ kBq/m}^2$. Sie steht in guter Übereinstimmung mit einer früheren Abschätzung [20]. Nach der Niederschlagskorrektur (Anhang A) folgt für die Altai-Region eine ^{137}Cs -Depositionsfluenz aus dem globalen Fallout von $2,9\text{ kBq/m}^2$. Sie paßt gut zu ^{137}Cs Messungen in der Altai-Region (Tab. 6.1). ^{134}Cs Messungen in der Altai-Region zeigten einen

Probenort	Altai-Region	Altai-Region	Ak-kem	Iniltschek
Probenart	Boden	Boden	Boden	Gletschereis
Probenentnahme	1992		2001	2000
^{137}Cs -Dep. Fluenz	$2,2\text{ kBq/m}^2$	$2,0\text{ kBq/m}^2$	$1,9\text{ kBq/m}^2$	$1,8\text{ kBq/m}^2$
Referenz	[90]	[91]	[92]	[78]

Tabelle 6.1: ^{137}Cs Messungen in Zentralasien.

nicht vernachlässigbaren Spaltproduktseintrag beim Tschernobyl-Unfall [91]. Damit wurde der ^{137}Cs Eintrag beim Tschernobyl-Unfall für diese Region zu 18-28 % der ^{137}Cs -Depositionsfluenz angegeben. Skaliert man sie mit den jeweiligen Spaltausbeuten, so erwartet man in der Altai-Region eine ^{129}I -Depositionsfluenz aus dem Kernwaffen-Fallout von etwa $7,6 \cdot 10^{11}\text{ at/m}^2$. ^{129}I - und ^{137}Cs -Messungen am Fiescherhorngletscher zeigten jedoch, daß die ^{129}I -Deposition aus dem Bombenfallout im Gletschereis noch um einen Faktor 4 geringer ist als erwartet (vgl. Kap. 5.1.3). Die um diesen Faktor reduzierten ^{129}I -Depositionsflüsse am Beluchagletscher aus dem Kernwaffen-Fallout wurden in Abb. 6.2 im Vergleich zu den Meßwerten dargestellt. Aus Abb. 6.2 ist ersichtlich, daß für die radiologisch interessanten Jahre vor 1953 der ^{129}I -Eintrag aus dem globalen Kernwaffen-Fallout ohne Bedeutung ist.

Der lokale ^{137}Cs -Fallout in der Altai-Region aus den Kernwaffenexplosionen am Semipalatinsk-Testgelände wurde in früheren Arbeiten untersucht [90, 91]. Dazu wurde der ^{137}Cs Gehalt in einer Vielzahl von Bodenproben analysiert. Bei-

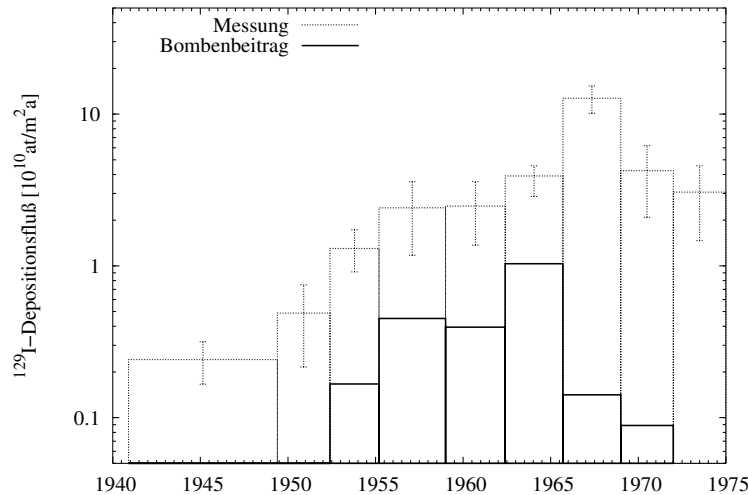


Abbildung 6.2: Abschätzung des erwarteten Beitrags aus dem Bombenfallout an den ^{129}I -Depositionsflüssen am Beluchagletscher.

de Arbeiten fanden eine bimodale Häufigkeitsverteilung der ^{137}Cs -Depositionsfluenzen mit Peaks bei 1,9 und 4,4 kBq/m² [90] bzw. bei 2,2 und 4,3 kBq/m² [91]. Der Peak bei niedrigerer ^{137}Cs -Depositionsfluenz wird dem globalen Kernwaffen-Fallout zugeschrieben. Der Peak bei höherer ^{137}Cs -Depositionsfluenz entspricht dann der Überlagerung aus dem globalen und dem lokalem Fallout. Der Vergleich der ^{137}Cs -Depositionsfluenz aus dem globalen Fallout mit der in Ak-kem³ gemessenen ^{137}Cs -Depositionsfluenz zeigt, daß dort kein signifikanter Beitrag zur ^{137}Cs -Depositionsfluenz aus den Kernwaffenexplosionen am Semipalatinsk-Testgelände stattgefunden haben kann. Der ^{129}I Beitrag aus dieser Quelle wird deswegen am Beluchagletscher vernachlässigt.

6.3.2 Tomsk-7 und Krasnojarsk-26

Die Beiträge aus den Aufarbeitungsanlagen Tomsk-7 und Krasnojarsk-26 zur ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher wurden mit dem atmosphärischen Ausbreitungsmodell (Anhang A) bestimmt. Als ^{129}I -Quellen wurden alle europäischen und sowjetischen Aufarbeitungsanlagen berücksichtigt. Aus dem Transportmodell lassen sich die Beiträge der einzelnen ^{129}I -Quellen an der ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher ableiten (Tab. 6.2). Über das Einführen von Normierungsflächen A_N^* läßt sich ein einfacher Zusammenhang zwischen den atmosphärischen ^{129}I -Freisetzungen aus den einzelnen Aufarbeitungsanlagen und der resultierenden ^{129}I -Deposition am Betrachtungsort herstellen. A_N^* ist dabei gleichzusetzen mit derjenigen Fläche, auf der sich eine gasförmige ^{129}I -Freisetzung

³Ak-kem (49,95°Nord, 86,53°Ost) liegt 7 km nördlich vom Belucha.

	AA in Europa	Majak	Tomsk-7	Krasnojarsk-26
^{129}I -Freis. [GBq]	2500	890	290	150
^{129}I -Dep. [10^{13} at/m ²]	0,3	1,5	1,1	0,5
Beitrag [%]	8	44	33	15
A_N^* [10^{12} m ²]	624	42,5	18,5	21,5

Tabelle 6.2: Ergebnisse aus dem atmosphärischen Ausbreitungsmodell unter Verwendung der angegebenen ^{129}I -Freisetzung. Beiträge der einzelnen ^{129}I -Quellen an der ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher und Normierungsflächen A_N^* .

gleichförmig verteilen müßte, um die beobachtete ^{129}I -Depositionsfluenz am Betrachtungsort zu erhalten. Unter Zuhilfenahme von A_N^* ist von einer ^{129}I -Depositionsfluenz auch ein Rückschluß auf die integrale ^{129}I -Freisetzung der betrachteten Quelle möglich.

Betrachtet man zwei verschiedene Quelle-Depositionsort-Systeme, dann ist zu erwarten, daß bei vergleichbarem Abstand und vergleichbarer Orientierung zwischen jeweiliger Quelle und Depositionsort auch ein ähnlicher Wert für die Normierungsflächen resultiert, falls ein vergleichbarer Massentransport vermutet werden kann. Sellafield und La Hague als ^{129}I -Quellen mit dem Seensystem Ladoga, Onega und Ilmen als betrachteter ^{129}I -Depositionsregion und Majak als ^{129}I -Quelle mit dem Beluchagletscher als ^{129}I -Depositionsort sollten dafür in Frage kommen. Beide Systeme weisen eine vergleichbare Distanz zwischen Quelle und Depositionsort auf, der Depositionsort liegt jeweils vorwiegend in Westrichtung von der Quelle und beide liegen in von Westwinden dominierten geographischen Breiten. Aus Messungen im Wasser vom Ilmensee wurde in Kap. 5.4.3 auf eine experimentelle Normierungsfläche $A_N = 4,8 \cdot 10^{13}$ m² relativ zu Sellafield und La Hague als Quellen geschlossen. Sie paßt gut zu der hier berechneten Normierungsfläche $A_N^* = 4,3 \cdot 10^{13}$ m² für Majak als Quelle und den Beluchagletscher als Depositionsort.

6.4 ^{129}I -Freisetzung aus Majak

Die Einzelbeiträge der unterschiedlichen Aufarbeitungsanlagen an der ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher wurden bereits in Abschnitt 6.3.2 bestimmt. Dementsprechend stammen knapp 44% der am Beluchagletscher gemessenen ^{129}I -Deposition aus den Majak-Aufarbeitungsanlagen. Das entspricht einer ^{129}I -Depositionsfluenz von $8,3 \cdot 10^{12}$ at/m².

Über die ebenfalls in Abschnitt 6.3.2 eingeführte Normierungsfläche A_N^* läßt sich aus der ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher auf eine atmosphärische ^{129}I -Freisetzung von 493 GBq in Majak schließen. Das entspricht einer atmosphärischen ^{129}I -Freisetzung von etwa 4% des in Majak angefallenen ^{129}I .

Inventars von 13,1 TBq (siehe Kap. 2.3.1).

Aus der im Bohrkern enthaltenen Zeitinformation der ^{129}I -Deposition folgt, daß etwa 1,1 % der gesamten ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher bis Mitte 1952 deponiert wurde. In Kap. 6.3.1 wurde dargelegt, daß für diesen Zeitraum ein Beitrag über Fallout aus den Kernwaffentests nicht zu erwarten ist. Da die weiteren sowjetischen Aufarbeitungsanlagen, Tomsk-7 und Krasnojarsk-26, zu der Zeit noch nicht in Betrieb waren (s.a. Kap. 2.3.2), muß diese frühe Deposition allein aus den ^{129}I -Freisetzungen aus Majak stammen. Unter Zuhilfenahme der in Kap. 6.3.2 bestimmten Normierungsfläche A_N^* erhält man eine frühe ^{129}I -Freisetzung in Majak von 12,5 GBq.

Die im Eis vom Beluchagletscher enthaltene Zeitinformation ist für diese Rekonstruktion von entscheidender Bedeutung. Wären hier ^{129}I -Absickerungen infolge von partiellem Anschmelzen, wie sie am Bohrkern vom Fiescherhorngletscher beobachtet wurden (Kap. 5.1), möglich, dann könnten Einsickerungen aus späteren Jahren dazu führen, daß die ^{129}I -Depositionsflüsse im betrachteten Zeitbereich überschätzt werden würden.

Der Bohrkern vom Beluchagletscher wurde anhand der enthaltenen Lufteinschlüsse auf seinen Schmelzwasseranteil hin untersucht [93]. Demnach liegt der mittlere Schmelzwasseranteil für Eis, das der Zeit vor 1965 entspricht, im Bereich einiger Prozent der Eismasse. Für diesen Zeitbereich scheint eine Kontamination durch Einsickern von Schmelzwasser unbedeutend zu sein. Auch eine im Vergleich zum Fiescherhorngletscher wesentlich niedrigere Eistemperatur am Beluchagletscher (-17°C [81]) kann als Indiz dafür gewertet werden, daß keine Abwärtsmigration von ^{129}I am Beluchagletscher auftrat.

In den oberen 6 m wasseräquivalent, entsprechend dem Zeitbereich 2001 bis 1986, wurde allerdings eine deutliche Zunahme des Schmelzwasseranteils gegenüber tieferen Eisschichten beobachtet [93].

In Kapitel 3.1 wurden die jährlich in Majak angefallenen ^{129}I -Aktivitäten abgeschätzt. Demzufolge wurde bis Frühjahr 1952 im A-Reaktor eine ^{129}I -Aktivität von 14,1 GBq produziert. Geht man von einer nur mangelhaften Iodrückhaltung in der Anlage B aus, dann ist diese Abschätzung der ^{129}I -Freisetzung und die Rekonstruktion der ^{129}I -Freisetzung über die ^{129}I -Messungen im Beluchaeis von 12,5 GBq (siehe oben) in guter Übereinstimmung.

6.5 ^{131}I -Freisetzung aus Majak

In der Zeit vor Sommer 1952 wurde in dieser Arbeit für Majak eine freigesetzte ^{129}I -Aktivität von etwa 12,5 GBq abgeschätzt. Unter Benutzung des in Abschnitt 6.1 berechneten $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnisses zum Zeitpunkt der Freisetzung folgt im selben Zeitraum eine gasförmige ^{131}I -Freisetzung von 179 PBq. Das entspricht einer kompletten Freisetzung des bei der Aufarbeitung in Majak angefallenen ^{131}I (vgl. Kap. 3.1.4).

Diese Abschätzung liegt deutlich über der aktuell diskutierten integralen ^{131}I -Freisetzung aus Majak von etwa 15 PBq [4, 6]. Allerdings gibt es darin keine Hinweise zu den verwendeten Bestrahlungs- und Abklingzeiten. Die Abschätzung von Drozhko und Khokhryakov [4] basiert auf internen Berichten zur Prozeßführung in Majak aus den 50-er Jahren. Eine Kerngröße dieser Daten ist die Abklingzeit vor Aufarbeitung der Brennelemente. Sie wurde früher zu etwa 150 d angegeben [45], mittlerweile wird von der hier verwendeten Abklingzeit von 35 d berichtet [5]. Die in dieser Arbeit durchgeführte Abschätzung ergäbe den in [4, 6] angegebenen Wert von 15 PBq, wenn eine um 4 Halbwertszeiten größere Abklingzeit von etwa 64 d verwendet worden wäre.

Es muß darauf hingewiesen werden, daß von bedeutenden ^{131}I -Freisetzungen bis Sommer 1957 berichtet wird [4]. Aus dieser Zeit stammen erste Messungen zur ^{131}I -Freisetzung in Majak. Die Meßwerte lagen noch zwischen 50 und 200 TBq/Monat [4]. Für die Zeit zwischen 1952 und 1957 wurde hier aber keine Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen durchgeführt, da keine Angaben zu den Abklingzeiten für diesen Zeitraum vorliegen.

Mehrere Faktoren erwiesen sich in der Abschätzung als kritisch:

- Ein mögliches Problem bei der hier vorgestellten Rekonstruktion der ^{131}I -Freisetzungen besteht bei einer retardierten Freisetzung der Radioiodnuklide. Ein mögliches Szenario hierfür wäre etwa der Einsatz von Silberreaktoren als Filter für Radioiod. Falls diese nach einer festen Betriebszeit regeneriert werden würden, so könnte dabei das ^{129}I freigesetzt werden. Ein Rückschluß von der ^{129}I -Freisetzung auf die ^{131}I -Freisetzung wäre dann nicht mehr möglich. Das in Abschnitt 6.1 berechnete $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ -Isotopenverhältnis zum Zeitpunkt der Freisetzung wäre dann deutlich unterschätzt, die ^{131}I -Freisetzungen dementsprechend überschätzt. Von einem derartigen Vorgehen in Majak ist allerdings nichts bekannt.
- Der Korrekturfaktor F_H für die ^{129}I -Konzentrationsabnahme mit der Höhe könnte am Beluchagletscher größer sein als am Fiescherhorngletscher. Mögliche Erklärungen dafür wären:
 - Der Bohrkern vom Beluchagletscher wurde auf 4062 müNN entnommen, gegenüber einer Höhe von 3900 müNN am Fiescherhorngletscher. Der für SO_4^{2-} ermittelte Konzentrationsunterschied zwischen diesen Höhen liegt etwa bei einem Faktor 2 [76].
 - Die mittlere Eisakkumulationsrate am Beluchagletscher ist deutlich niedriger als am Fiescherhorngletscher [82]. Die starke Abhängigkeit der lokalen ^{129}I -Depositionsfluenz von der Eisakkumulationsrate wurde in Kap. 5.1 deutlich.
 - Die Sommermonate dominieren am Beluchagletscher stark bei der Eisbildung [81]. Im Fall reduzierter Eisbildung in den Wintermona-

ten ist eine Reduktion in der meßbaren ^{129}I -Depositionsfluenz am Beluchagletscher zu erwarten.

Auch der Vergleich der ^{129}I -Depositionsfluenzen am Iniltschekgletscher und am Issyk Kul (beide Kirgistan) deutet dort auf einen Korrekturfaktor $F_H=8$ (Kap. 5.1.2). Um den exakten Wert von F_H zu bestimmen wären Regenwasser- oder Bodenmessungen in der Altai-Region erforderlich.

- Da das Eis vom Beluchagletscher keine deutlich ausgeprägten Jahreshorizonte aufwies ist der Fehler in der Datierung des Bohrkerns nicht vernachlässigbar. Er wurde mit zunehmendem Abstand von Tritium-Peak zu mehreren Jahren angegeben [82].
- Die empfindlichste Größe in dieser Abschätzung ist die Abklingzeit, da sie exponentiell in die Abschätzung eingeht. Die hier angenommene Abklingzeit von 35 d erscheint zwar plausibel, eine davon abweichende Abklingzeit kann aber nicht ausgeschlossen werden.

Kapitel 7

^{210m}Bi -Messung mit AMS

Mit dem in Kapitel 4.2 beschriebenen AMS-Aufbau sind neben den ^{129}I -Messungen auch Messungen an anderen langlebigen Radioisotopen möglich, sofern sie keine langlebigen oder stabilen Isobare besitzen. Als eine weitere Anwendung wurde mit diesem AMS-System das $^{210m}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Isotopenverhältnis eines mit thermischen Neutronen bestrahlten Bi-Targets bestimmt.

Durch Einfang thermischer Neutronen in einem ^{209}Bi -Target werden ^{210}Bi im Grundzustand und metastabiles ^{210m}Bi ($T_{1/2} = 3,0 \cdot 10^6 \text{ a}$) produziert. Der Grundzustand von ^{210}Bi zerfällt mit einer Halbwertszeit von 5,013 d über β^- -Zerfall zu ^{210}Po ($T_{1/2} = 138,38 \text{ d}$). ^{210}Po und ^{210m}Bi sind in Spallationsquellen als beträchtliche Komponenten der kurz- bzw. langlebigen Aktivierungsprodukte von Pb/Bi-Targets von Bedeutung.

Am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble wurden die Wirkungsquerschnitte der Einfangreaktionen $^{209}\text{Bi}(n_{th},\gamma)^{210}\text{Bi}$ und $^{209}\text{Bi}(n_{th},\gamma)^{210m}\text{Bi}$ über eine prompte γ -Spektroskopie der direkten Abregungen des produzierten Compoundkerns zu $\sigma(^{209}\text{Bi}(n_{th},\gamma)^{210}\text{Bi}) = 17,9 \pm 2 \text{ mb}$ bzw. $\sigma(^{209}\text{Bi}(n_{th},\gamma)^{210m}\text{Bi}) = 17,1 \pm 2 \text{ mb}$ bestimmt [94].

Die Messung des $^{210m}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnisses einer bestrahlten ^{209}Bi -Probe erlaubt eine unabhängige Bestimmung des Wirkungsquerschnitts $\sigma^{Bi-210m}$. Dazu wurde am ILL im September 2001 ein ^{209}Bi Target für 7 d einem thermischen Neutronenfluß von $\Phi_{th} = 2,34 \cdot 10^{13} \frac{1}{\text{cm}^2\text{s}}$ ausgesetzt.

Zur Bestimmung des $^{210m}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnisses im ^{209}Bi Target wurde der auch für ^{129}I -AMS verwendete Aufbau verwendet. Bei einer Terminalspannung von 9 MV wurde am Analysiermagnet der Ladungszustand 7^+ mit einer Energie von 72 MeV ausgewählt. Da es keine ^{210m}Bi -Standards gibt, wurde eine Absolutmessung des $^{210}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnisses durchgeführt. Dazu wurden die Zählraten von ^{210m}Bi und von um den Faktor 10^3 abgeschwächtem ^{209}Bi im Detektorsystem verglichen.

Die Nachweisgrenze für das $^{210m}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis ist durch die erreichbare Unterdrückung von ^{209}Bi gegeben. Der relative Massenunterschied zwischen ^{210m}Bi und ^{209}Bi beträgt nur 0,47 %, deswegen konnte durch die Strahlführung

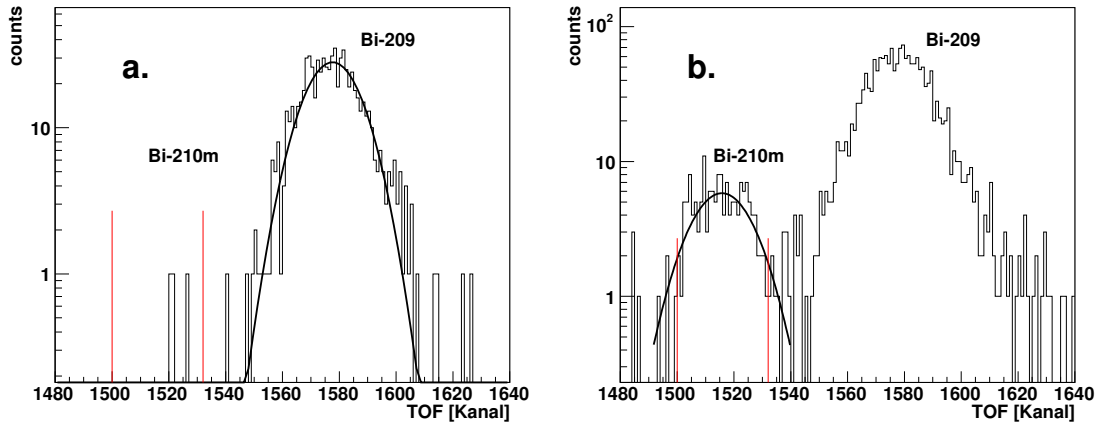


Abbildung 7.1: Typische Flugzeitspektren (Events über TOF-Kanalnummer): (a.) Blankmaterial mit Gauß-Fit für ²⁰⁹Bi. Die Position von ^{210m}Bi ist mit vertikalen Linien markiert. (b.) ^{210m}Bi (linker Peak) und ²⁰⁹Bi (rechter Peak) einer bestrahlten Probe sind deutlich getrennt zu erkennen. Am ^{210m}Bi Peak ist die Halbwertsbreite durch vertikale Linien markiert und ein Gauß-Fit angewendet.

nur eine ²⁰⁹Bi-Unterdrückung um etwa einen Faktor 10^6 erreicht werden. Sie wurde über einen Zählratenvergleich der ²⁰⁹Bi-Events im Detektor bei den Systemeinstellungen für ^{210m}Bi und für ²⁰⁹Bi (um Faktor 10^6 abgeschwächt) ermittelt.

Das verwendete Detektorsystem läßt ^{210m}Bi⁷⁺ und ²⁰⁹Bi⁷⁺ über die Flugzeitmessung prinzipiell voneinander abtrennen. Ein geringer Energieverlust der ²⁰⁹Bi⁷⁺-Ionen durch Streuung kann aber dazu führen, daß ²⁰⁹Bi⁷⁺ die Flugzeitstrecke mit einer Geschwindigkeit passiert, die ähnlich zur erwarteten ^{210m}Bi⁷⁺-Geschwindigkeit ist. Die Häufigkeit derartiger Einstreuungen limitiert die Abtrennung von ^{210m}Bi und ²⁰⁹Bi im Detektor.

Für eine Blankprobe bei den Systemeinstellungen für ^{210m}Bi wurden die fälschlicherweise ^{210m}Bi zugeschriebenen Events bestimmt. Ein Vergleich der Anzahl dieser Events mit der Anzahl der detektierten ²⁰⁹Bi-Events ergab die Häufigkeit für Einstreuungen zu $4 \cdot 10^{-4}$.

Es wurde eine ²⁰⁹Bi-Unterdrückung durch das AMS-System um einen Faktor $2,2 \cdot 10^8$ gefolgert, was einer Nachweisgrenze für das ^{210m}Bi/²⁰⁹Bi-Verhältnis von $5 \cdot 10^{-9}$ entspricht. Abbildung 7.1 zeigt die Flugzeitspektren einer Blankprobe (a.) und einer bestrahlten Probe (b.) im Vergleich. Bei der erreichten FWHM im Flugzeitsignal von 550 ps ist eine gute Abtrennung der beiden Bi-Isotope deutlich zu erkennen.

Im Unterschied zur ¹²⁹I-Messung besitzt ^{210m}Bi mit ²¹⁰Po ein Isobar, das in der Ionenquelle nicht unterdrückt wird. Das vorgestellte Detektorsystem kann nur die Massen der eintretenden Ionen bestimmen, es ist nicht in der Lage, Isobare voneinander abzutrennen. Das $(^{210m}\text{Bi} + ^{210}\text{Po})/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis der bestrahlten Probe wurde nach Abklingzeiten von 1,9 a, 2,5 a und 3,5 a mit AMS bestimmt

(Abb. 7.2). Eine Zeitabhängigkeit des gemessenen Isotopenverhältnisses wurde festgestellt, die mit dem ^{210}Po -Anteil in der bestrahlten Probe erklärt werden kann.

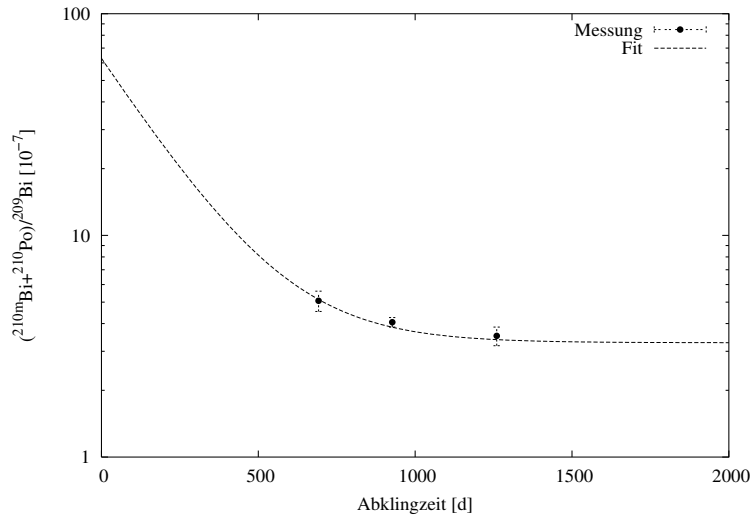


Abbildung 7.2: $(^{210m}\text{Bi}+^{210}\text{Po})/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis in der bestrahlten Probe nach unterschiedlichen Abklingzeiten. Die gestrichelte Linie stammt von einem Fit der Form $f(t) = A + B \cdot \exp(-\lambda^{Po-210} \cdot t_A)$ an die Meßdaten.

Eine Teilprobe wurde galvanisch von ^{210}Po gereinigt. Anschließend wurde das $^{210m}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis in dieser aufbereiteten Probe zu $(3,01 \pm 0,13) \cdot 10^{-7}$ bestimmt. Im Rahmen der Meßfehler zeigte sich eine gute Übereinstimmung zwischen der Originalprobe und der chemisch gereinigten Teilprobe.

Aus dem $^{210m}\text{Bi}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis in der Probe folgt ein thermischer Wirkungsquerschnitt von $\sigma(^{209}\text{Bi}(n_{th},\gamma)^{210m}\text{Bi}) = 21,3 \pm 0,9 \text{ mb}$. Unter Berücksichtigung der Meßfehler ist der erhaltene Wirkungsquerschnitt mit dem Meßwert aus der prompten γ -Spektroskopie am ILL verträglich.

Aus dem in Abb. 7.2 dargestellten Fit an die Meßdaten der nicht galvanisch aufbereiteten Probe folgt das $(^{210m}\text{Bi}+^{210}\text{Po})/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis nach Ende der Bestrahlung zu $(60 \pm 11) \cdot 10^{-7}$. Nach Abzug des in der Probe enthaltenen ^{210m}Bi verbleibt noch ein $^{210}\text{Po}/^{209}\text{Bi}$ -Verhältnis von $(57 \pm 11) \cdot 10^{-7}$. Das erhaltene Isotopenverhältnis ist deutlich höher wie $(2,49 \pm 0,28) \cdot 10^{-7}$, das sich aus der Aktivität des ^{210g}Bi ergibt. Dieser Unterschied kann folgendermaßen auf die verwendete Meßmethode zurückgeführt werden.

In der Cs-Sputterionenquelle werden die negativen Ionen produziert, die dann vom AMS-System analysiert werden. Das verwendete Sputtertarget besteht aus einer mit Silberpulver gemischtem Bismutmatrix. Da ^{209}Bi und ^{210m}Bi chemisch identisch sind, bilden sie mit gleicher Häufigkeit negative Ionen in der Sputterquelle. Eine gegenüber Bismut deutlich höhere negative Ionenausbeute von Polonium aus der Bismutmatrix kann den aus der AMS-Messung zu hoch bestimmten

^{210}Po Anteil in der Probe erklären. Damit kann das Verhältnis der relativen Sputterfaktoren für negative Ionen aus einer Bismutmatrix zu

$$\frac{\text{RSF}(\text{Bi})}{\text{RSF}(\text{Po})} = 24 \pm 4$$

angeben werden. Es liegt in derselben Größenordnung, wie es auch für die zu Bismut und Polonium homologen Elemente Antimon und Tellur aus unterschiedlichen Matrizen gefunden werden kann.

Anhang A

Transportmodell

Zur Beschreibung der atmosphärischen ^{129}I -Ausbreitung wurde ein Boxenmodell verwendet. Es basiert auf einem globalen Transportmodell, das aus 18 Breitengradstreifen mit je 4 stratosphärischen, einer troposphärischen und einer Archivbox bestand. Der diffusive Austausch zwischen den Breitengradboxen wurde über die ^{90}Sr -Depositionen aus dem Kernwaffenfallout normiert, als Depositionsmechanismen wurden Auswaschen mit dem Regen und trockene Sedimentation berücksichtigt [21]. Dieses Modell konnte die Ausbreitung und Deposition von bombenproduzierten Spalt- und Aktivierungsprodukten gut beschreiben. Abb. A.1 zeigt einen Vergleich zwischen gemessenen ^{137}Cs -Depositionsflüssen am Fiescherhornngletscher (Schweiz) [80] und dem berechneten ^{137}Cs -Fallout bei 45°N aus den oberirdischen Kernwaffenexplosionen. Eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ist offensichtlich.

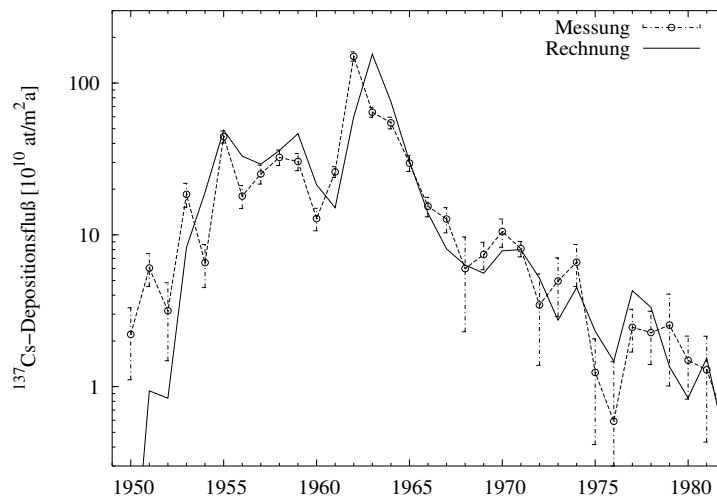


Abbildung A.1: Berechneter ^{137}Cs -Fallout bei 45°N im Vergleich zu ^{137}Cs -Messungen [80] am Fiescherhornngletscher (Schweiz).

Im Gegensatz zu den Radionukliden, die bei den Kernwaffenexplosionen produziert werden, werden die Abgase der Aufarbeitungsanlagen vorwiegend in die Troposphäre eingetragen. Das vorhandene Modell wurde zur Beschreibung des ^{129}I -Transports folgendermaßen modifiziert:

- Die Breitengradunterteilung wurde auf 36 Breitengradstreifen verdoppelt. Zusätzlich zur Breitengradunterteilung wurden die Boxen nach Längengraden unterteilt. Als Boxengröße wurde $5^\circ \times 5^\circ$ gewählt.
- Langfristige Mittelwerte der globalen Windgeschwindigkeiten in Breitengradrichtung [95] wurden als Maß für den typischen Massentransport zwischen zwei benachbarten Längengraden angenommen. Die erhaltene Transportmatrix wurde mit einem freien Parameter skaliert. Dieser Parameter wurde über einen Vergleich mit den nahe St. Petersburg gemessenen ^{129}I -Depositionsflüssen (Kap. 5.4.3) angepaßt, die aus den Freisetzungen der europäischen und russischen Aufarbeitungsanlagen resultieren.
- Die Austauschzeiten für den diffusiven Breitengradaustausch wurden skaliert. Analog zum Austausch zwischen den Breitengraden wurde zusätzlich diffusiver Austausch auch in Längengradrichtung zugelassen.

Das vorgestellte Modell kann den globalen atmosphärischen Transport von ^{129}I gut beschreiben, wie die ^{129}I -Messungen in Seewasserproben aus Europa, Afrika, Asien, Südamerika und Neuseeland zeigen. Auch frühere ^{129}I -Messungen in Bodenproben aus Norddeutschland und Rußland [30, 85] bestätigen die Anwendbarkeit dieses Modells.

Das Transportmodell kann aber aufgrund der verwendeten Boxengröße die ^{129}I -Deposition in der näheren Umgebung der ^{129}I -Quellen (300-400 km) nicht beschreiben. In Kombination mit einem Modell für den Nahbereich (Kap. 1.4.2) der ^{129}I -Emissionen ergibt sich jedoch ein konsistentes Gesamtmodell. Dazu wurde berücksichtigt, daß etwa die Hälfte der gesamten gasförmigen ^{129}I -Freisetzungen im Umkreis von 200 km deponiert wird [12]. Das verbleibende atmosphärische ^{129}I -Inventar wird großräumig verteilt, es dient als ^{129}I -Eintrag in das vorgestellte Transportmodell.

Im Transportmodell wurde eine breitengradabhängige, mittlere Niederschlagsrate p_m angesetzt. Eine Anpassung der Niederschlagsraten in Längengradrichtung wurde nicht durchgeführt. Die ^{129}I -Deposition Φ hängt aber stark von der Niederschlagsrate ab. Deswegen wurde eine nachträgliche Korrektur der berechneten ^{129}I -Depositionen Φ_m über die Niederschlagsrate p am betrachteten Ort durchgeführt:

$$\Phi = \Phi_m \frac{\frac{p}{18} + \frac{1}{36}}{\frac{p_m}{18} + \frac{1}{36}}.$$

Hiermit wurde die typische Zeitspanne von 36 d für trockene Deposition berücksichtigt und das Verhältnis von feuchter zu trockener Deposition von 2:1 [21].

Anhang B

Seedaten

	t_V [a]	A_E [km ²]	A_S [km ²]	V_S [km ³]	p [m/a]
Ammersee	2,7	993	46,6	1,77	1,0
Bodensee	4,5	10900	539	48,5	1,1
Chiemsee	1,26	14000	79,9	2,05	1,0
Starnberger See	20,9	315	56,0	3,00	1,0
Comer See	4,7	4520	146	22,5	1,7
Gardasee	26,6	2350	370	49,0	0,8
Genfer See	11,8	7980	584	88,9	1,0
Luganer See	8,19	307	27,9	4,40	1,7
Lago Maggiore	4	6400	213	37,5	1,7
Malawisee	750	65000	22500	6140	1,1
Mwerusee	-	-	4350	32	1,1
Victoria See	120	184000	68800	2750	1,3
Nahuel Huapi	12,3	4260	557	87,4	0,95
Titicacasee	1343	58000	8372	893	0,8
Lake Rotorua	1,2	402	79,8	0,87	1,2
Lake Taupo	10,6	3327	616	60,0	1,2
Baikalsee	385	560000	31500	23000	0,4
Balchaschsee	6,8	413000	18200	106	0,19
Chubsugul Nur	471	7700	2,76	381	0,38
Ilmensee	3,8	66500	1124	6,5	0,6
Issyk Kul	305	15800	6,24	1740	0,28
Ladogasee	12,3	70100	18100	908	0,6
Onegasee	16	51500	9890	280	0,6
Ubsa Nur	-	45,4	3,35	20,1	0,13

Tabelle B.1: Die aufgeführten Daten wurden entnommen aus [21, 96, 97].

Literaturverzeichnis

- [1] M.O. Degteva, L.R. Anspaugh, B.A. Napier, M.I. Vorobiova, E.I. Tolstykh, V.P. Kozheurov, A.V. Kozyrev, A.N. Kovtun, N.B. Shagina, E.A. Shishkina, E.E. Tokareva, and V.A. Taranenko. *Development of an improved dose reconstruction system for the general population affected by the operation of the Mayak Production Association, Final Report*. US-Russian Joint Coordinating Committee on Radiation Effects Research, 2000.
- [2] Y.G. Mokrov. A reconsideration of the external dose assessment for the Techa river population. *Radiation and Environmental Biophysics*, 41:303–306, 2002.
- [3] N.A. Koshurnikova, G.S. Muchkacheva, N.S. Shilnikova, E.I. Rabinovich, N.P. Petrushkina, P. Hall, M.G. Bolotnikova, D.L. Preston, and E. Ron. Studies on the Ozyorsk population: health effects. *Radiation and Environmental Biophysics*, 41:37–39, 2002.
- [4] E.G. Drozhko and V.V. Khokhryakov. *Reconstruction of Ozyorsk population exposure doses due to iodine-131 atmospheric releases from spent nuclear fuel reprocessing*. Report of the 1st stage of CRDF Projekt #RBO-20317. Ministry of Atomic Energy of the Russian Federation and Mayak Production Association, Ozyorsk, 2003.
- [5] Y.G. Mokrov. Reconstruction of the radionuclide spectrum of liquid radioactive waste released into the Techa river in 1949-1951. *Radiation and Environmental Biophysics*, 42:7–15, 2003.
- [6] V.V. Khokhryakov, E.G. Drozhko, Yu.V. Glagolenko, S.I. Rovny, E.K. Vasilenko, A. Suslov, L.R. Anspaugh, B.A. Napier, A. Bouville, V.F. Khokhryakov, K.G. Suslova, and S.A. Romanov. Studies on the Ozyorsk population: dosimetry. *Radiation and Environmental Biophysics*, 41:33–35, 2002.
- [7] H. Breuer. *Atlas zur Chemie, Allgemeine und Anorganische Chemie*. DTV, München, 1981.
- [8] R. Fuge and C.C. Johnson. The geochemistry of iodine - a review. *Environmental Geochemistry and Health*, 8:31–54, 1986.

- [9] M. Wagner. *Mittelschwere Radionuklide: Neue Nachweismethoden und Anwendungen von Nickel-59, Zinn-126 und Iod-129*. PhD thesis, ETH Zürich, 1995.
- [10] V.S. Kazakov, E.P. Demidchik, and L.N. Astakhova. Thyroid cancer after Chernobyl. *Nature*, 359:21–22, 1992.
- [11] I.A. Likhtarev, B.G. Sobolev, et al. Thyroid cancer in the Ukraine. *Nature*, 375:365, 1995.
- [12] M.V. Kantelo, B. Tiffany, and T.J. Anderson. Iodine-129 distribution in the terrestrial environment surrounding a nuclear fuel reprocessing plant after 25 years of operation. In *Environmental migration of long-lived radionuclides, Proceedings of an International Atomic Energy Agency conference, Knoxville (USA), 27-31 July 1981*, pages 495–500, Vienna (Austria), 1982. IAEA.
- [13] M.A. Robkin and B. Shleien. Estimated maximum thyroid doses from ^{129}I releases from the Hanford site for the years 1944-1995. *Health Physics*, 69:917–922, 1995.
- [14] F.P. Brauer and R.S. Strebin. Environmental concentration and migration of ^{129}I . In *Environmental migration of long-lived radionuclides, Proceedings of an International Atomic Energy Agency conference, Knoxville (USA), 27-31 July 1981*, pages 465–480, Vienna (Austria), 1982. IAEA.
- [15] P.G. Brewer. Minor elements in seawater. In J.P. Riley and G. Skirrow, editors, *Chemical Oceanography, Volume I, Second Edition*, NATO ASI Series, 2. Environment - Vol. 36, pages 415–496. Academic Press, 1975.
- [16] J. Fabryka-Martin, H. Bentley, D. Elmore, and P.L. Airey. Natural iodine-129 as an environmental tracer. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 49:337–347, 1985.
- [17] N. Buraglio, A. Aldahan, and G. Possnert. Distribution and inventory of ^{129}I in the central Arctic Ocean. *Geophysical Research Letters*, 26:1011–1014, 1999.
- [18] A. Mahijani, H. Hu, and K. Yih, editors. *Nuclear Wastelands*. MIT Press, Cambridge (Massachusetts), London (England), 1995.
- [19] OECD. *Uranium 1997: Resources, production and demand*. OECD Nuclear Energy Agency and International Atomic Energy Agency, 1997.
- [20] UN. *Sources and effects of ionizing radiation*. UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, annex C: Exposures from man-made sources of radiation. United Nations, New York, 2000.

- [21] V. Lazarev. *The cosmogenic and anthropogenic ^{36}Cl in the environment*. PhD thesis, TU München, 2003.
- [22] S.V. Stricht and A. Janssens, editors. *Radiation Protection 127. Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel reprocessing plants in the European Union, 1995-99*. European Commission Report, 1999.
- [23] BNFL. Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment. BNFL: Annual Report, 2001.
- [24] BNFL. Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment. BNFL: Annual Report, 2003.
- [25] Cogema. Rapport Environnement. Cogema La Hague, 2001.
- [26] Cogema. Rapport Environnement. Cogema La Hague, 2003.
- [27] Cogema. Rapport Environnement. Cogema Marcoule, 1997.
- [28] Cogema. Rapport Environnement. Cogema Marcoule, 2003.
- [29] V. Mironov, V. Kudrjashov, F. Yiou, and G.M. Raisbeck. Use of ^{129}I and ^{137}Cs in soils for the estimation of ^{131}I deposition in Belarus as a result of the Chernobyl accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 59:293–307, 2002.
- [30] S. Szidat. *Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien*. PhD thesis, Universität Hannover, 2000.
- [31] C. Schnabel, J.M. Lopez-Gutierrez, S. Szidat, M. Sprenger, H. Wernli, J. Beer, and H.-A. Synal. On the origin of ^{129}I in rain water near Zürich. *Radiochimica Acta*, 89:815–822, 2001.
- [32] H. Reithmeier. Messung von ^{129}I und retrospektive ^{131}I Dosimetrie in der ehemaligen Sowjetunion. Master's thesis, TU München, 2002.
- [33] M.W. Arnett, L.K. Karapatakis, and A.R. Mamatey. Savannah River Site environmental report for 1992, WSRC-TR-93-075. Westinghouse Savannah River Company, Aiken, SC., 1993.
- [34] J.V. Ramsdell. Atmospheric dispersion and deposition of ^{131}I . *Health Physics*, 71:572, 1996.
- [35] Th.B. Cochran, W.M. Arkin, R.S. Norris, and M.S. Hoenig. *Nuclear Weapons Databook, Volume II: U.S. Nuclear Warhead Production*. Ballinger Publishing Company, Cambridge (Massachusetts), 1984.

- [36] UN. *Sources and effects of ionizing radiation*. UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, annex J: Exposures and effects of the Chernobyl accident. United Nations, New York, 2000.
- [37] T. Straume, A.A. Marchetti, and L.R. Anspaugh. The feasibility of using I-129 to reconstruct I-131 deposition from the Chernobyl reactor accident. *Health Physics*, 71:733–740, 1996.
- [38] N. Bøhmer and T. Nilsen. Bellona report: Working paper 4: Reprocessing plants in Siberia. Bellona Foundation, 1995.
- [39] F. Yiou, G.M. Raisbeck, Z.Q. Zhou, L.R. Kilius, and P.J. Kershaw. Improved estimates of oceanic discharges of ^{129}I from Sellafield and La Hague. In *Proceedings of the 2nd International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic, Oslo, Norway*, pages 113–117, 1995.
- [40] BNFL. Annual Report on Discharges and Monitoring of the Environment. BNFL: Annual Report, 2002.
- [41] B. Barrillot and M. Davis. *Les déchets nucléaires militaires français*. Centre de Documentation et de Recherche sur la Paix et les Conflicts, Lyon (France), 1994.
- [42] Cogema. Rapport Environnement. Cogema La Hague, 2002.
- [43] E. Robens, J. Hauschild, and D.C. Aumann. Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: IV. ^{129}I and ^{127}I in undisturbed surface soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 9:17–29, 1989.
- [44] Th.B. Cochran, R.S. Norris, and O.A. Bukharin. *Making the Russian bomb: from Stalin to Yeltsin*. Westview Press, Boulder, 1995.
- [45] M.I. Vorobiova, M.O. Degteva, D.S. Burmistrov, N.G. Safronova, V.P. Kozheurov, L.R. Anspaugh, and B.A. Napier. Review of historical monitoring data on Techa river contamination. *Health Physics*, 76:605–618, 1999.
- [46] L.R. Anspaugh, M.O. Degteva, and E.K. Vasilenko. Mayak Production Association: Introduction. *Radiation and Environmental Biophysics*, 41:19–22, 2002.
- [47] Y.G. Mokrov. Radioactive contamination of bottom sediments in the upper reaches of the Techa river: analysis of the data obtained in 1950 and 1951. *Radiation and Environmental Biophysics*, 42:155–168, 2003.
- [48] Y.G. Mokrov. Radioactive contamination in the upper part of the Techa river: stirring-up of bottom sediments and precipitation of suspended particles. *Radiation and Environmental Biophysics*, 42:285–293, 2004.

- [49] Y.G. Mokrov. Dose assessment for the Metlino and Muslyumovo populations who lived along the Techa river from 1949-1954. *Radiation and Environmental Biophysics*, 43:209–218, 2004.
- [50] A.M. Kellerer. The Southern Urals radiation studies. *Radiation and Environmental Biophysics*, 41:307–316, 2002.
- [51] S. Davis, K.J. Kopecky, and T.E. Hamilton. *Hanford thyroid disease study, Final Report*. Fred Hutchinson Cancer Research Center, 2002.
- [52] D. Albright and K. Kramer. *Plutonium Watch: Tracking Plutonium Inventories*. Institute for Science and International Security, 2004.
- [53] U. Rao and U. Fehn. Sources and reservoirs of anthropogenic Iodine-129 in Western New York. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63:1927–1938, 1999.
- [54] CEC. *Radioactive effluents from nuclear power stations and nuclear fuel re-processing plants in the Community, discharge data 1969-1974*. Commission of the European Communities Report, 1975.
- [55] J. Gray, S.R. Jones, and A.D. Smith. Discharges to the environment from the Sellafield Site, 1951-1992. *Journal of Radiological Protection*, 15(2):99–131, 1995.
- [56] B. Barrillot. *Audit atomique*. Centre de Documentation et de Recherche sur la Paix et les Conflicts, Lyon (France), 1999.
- [57] M. Byrd Davis. *La france nucléaire: matières et sites*. WISE, Paris, 2002.
- [58] Z.Q. Zhou. *Evaluation des rejets marins d'iode-129 par les usines de retraitement de La Hague (France) et Sellafield (U.K.) en vue de leur utilisation comme traceur océanographique*. PhD thesis, Université Paris XI Orsay, 1995.
- [59] E. Boaretto, D. Berkovits, R. Delmas, R.R. Johnson, A. Kaufmann, and M. Magaritz. Measurements of anthropogenic radionuclides in environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 92:350–356, 1994.
- [60] C. Wallner. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Supernova-erzeugten Aktiniden*. PhD thesis, TU München, 2000.
- [61] R. Lutter, O. Schaile, et al. MARaBOU - a mbs and root based online offline utility. In *Proceedings of the 11. IEEE-Conference, Realtime Computing Applications in Nuclear and Plasma Science*, 1999.

- [62] D. Müller. Beschleunigermassenspektrometrie mit Flugzeitmessung. Master's thesis, TU München, 1989.
- [63] H.A. Synal. Persönliche Mitteilung, 2004.
- [64] E. Robens, J. Hauschild, and D.C. Aumann. Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: II. ^{129}I and ^{127}I contents of soils, forage plants and deer thyroids. *Journal of Environmental Radioactivity*, 7:265–274, 1988.
- [65] H. Wershofen and D.C. Aumann. Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VII. concentrations and chemical forms of ^{129}I and ^{127}I in the atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*, 10:141–156, 1989.
- [66] M. Paul, D. Fink, G. Hollos, A. Kaufman, W. Kutschera, and M. Magaritz. Measurement of ^{129}I concentrations in the environment after the Chernobyl reactor accident. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 29:341–345, 1987.
- [67] H. Bachhuber and K. Bunzl. Background levels of atmospheric deposition to ground and temporal variation of ^{129}I , ^{127}I , ^{137}Cs and ^7Be in a rural area of Germany. *Journal of Environmental Radioactivity*, 16:77–89, 1992.
- [68] G. Krupp and D.C. Aumann. Iodine-129 in rainfall over Germany. *Journal of Environmental Radioactivity*, 46:287–299, 1999.
- [69] N. Buraglio, A. Aldahan, and G. Possnert. Analytical techniques and applications of ^{129}I in natural water. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:518–523, 2000.
- [70] N. Buraglio, A. Aldahan, and G. Possnert. ^{129}I from the nuclear reprocessing facilities traced in precipitation and runoff in northern Europe. *The Science of the Total Environment*, 35:1579–1586, 2001.
- [71] H. Reithmeier, V. Lazarev, F. Kubo, W. Rühm, and E. Nolte. ^{129}I in precipitation using a new TOF system for AMS-measurements. submitted to: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2005.
- [72] T. Jenk, H.W. Gäggeler, A.A. Schwerzmann, and M. Schwikowski. Recovery of a 150 m ice core down to bedrock from the Fiescherhorn glacier. PSI, Labor für Radio- und Umweltchemie, Annual Report, 2002.
- [73] T. Jenk, H.W. Gäggeler, A.S. Palmer, M. Schwikowski, and M. Leuenberger. Temperature reconstruction from the Fiescherhorn 2002 ice core. PSI, Labor für Radio- und Umweltchemie, Annual Report, 2004.

- [74] A.S. Palmer, M. Schwikowski, and M. Leuenberger. Melt-water percolation events in the Fiescherhorn 2002 ice core. PSI, Labor für Radio- und Umweltchemie, Annual Report, 2004.
- [75] R. Vogt. Iodine compounds in the atmosphere. In *The Handbook of Environmental Chemistry Vol.4 Part E*, Berlin-Heidelberg, 1999. Springer-Verlag.
- [76] M. Schwikowski. Reconstruction of european air pollution from Alpine ice cores. In *Earth Paleoenvironments: Records preserved in Mid- and Low-Latitude Glaciers*, pages 95–119. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 2004.
- [77] H.A. Synal. Persönliche Mitteilung, 2005.
- [78] H.-A. Synal, D. Cecil, J. Green, D. Naftz, J. Santos, J. Beer, K. Kreutz, C. Wake, and V.B. Aizen. Status of radionuclide measurements in the ice of the South Inilchek glacier (Kyrghystan). PSI, Scientific Report 2001, Vol. I, Particles and Matter, 2001.
- [79] H. Sachsenhauser. Atmosphärischer Transport von Radionukliden. Master’s thesis, TU München, 1996.
- [80] L. Zerle, T. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, E. Nolte, J. Beer, and U. Schotterer. The ^{41}Ca bomb pulse and atmospheric transport of radionuclides. *Journal of Geophysical Research*, 102(D16):19–29, 1997.
- [81] S. Olivier, M. Schwikowski, S. Brütsch, S. Eyrikh, H.W. Gäggeler, M. Lüthi, T. Papina, M. Saurer, U. Schotterer, L. Tobler, and E. Vogel. Glaciochemical investigation of an ice core from Belucha glacier. *Geophysical Research Letters*, 30:2019–2022, 2003.
- [82] S. Olivier, S. Bajo, L.K. Fifield, H.W. Gäggeler, T. Papina, P.H. Santschi, U. Schotterer, M. Schwikowski, and L. Wacker. Plutonium from global fallout recorded in an ice core from the Belukha Glacier, Siberian Altai. *Environmental Science and Technology*, 38:6507–6512, 2004.
- [83] S. Olivier. Persönliche Mitteilung, 2002. PSI, Villigen (Schweiz).
- [84] J.M López-Gutiérrez et al. $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios and ^{129}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, 2000.
- [85] A. Schmidt, Ch. Schnabel, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, H.-A. Synal, J.M. Lopez, and M. Suter. On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectroscopy and ion chromatography. *The Science of the Total Environment*, 223:131–156, 1998.

- [86] D.C. Kocher. On the long-term behaviour of Iodine-129 in the terrestrial environment. In *Environmental migration of long-lived radionuclides, Proceedings of an International Atomic Energy Agency conference, Knoxville (USA), 27-31 July 1981*, pages 669–679, Vienna (Austria), 1982. IAEA.
- [87] A. Schmidt. *I-129 und stabiles Jod in Umweltproben - Qualitätskontrolle von Analysenmethoden und Untersuchungen zur Radioökologie und zur retrospektiven Dosimetrie*. PhD thesis, Universität Hannover, 1998.
- [88] F. Peeters, R. Kipfer, R. Hohmann, M. Hofer, D.M. Imboden, G.G. Kodenev, and T. Khozder. Modeling transport rates in Lake Baikal: gas exchange and deep water renewal. *Environmental Science and Technology*, 31:2973–2982, 1997.
- [89] U. Fehn, G. Snyder, and P.K. Egeberg. Dating of pore waters with ^{129}I : relevance for the origin of marine gas hydrates. *Science*, 289:2332–2335, 2000.
- [90] V.I. Kiselev and E.V. Zaitsev. Overview of the NATO/SCOPE-RADTEST advanced research workshop in Barnaul, Siberia. In *Nuclear tests, long-term consequences in the Semipalatinsk/Altai region*, NATO ASI Series, 2. Environment - Vol. 36, Berlin, Heidelberg, 1998. Springer.
- [91] F.V. Sukhorukov, V.M. Gavshin, I.N. Malikova, S.I. Kovalev, Yu.I. Malikov, and P.A. Romashkin. Cesium-137 in the environment of the Altai region. *Water, Air and Soil Pollution*, 118:395–406, 2000.
- [92] S. Olivier. *Atmospheric and climate history of the past two centuries from Belukha ice core, Siberian Altai*. PhD thesis, Universität Bern, 2004.
- [93] K.A. Henderson, M. Schwikowski, S. Olivier, H.W. Gäggeler, and T. Papina. Development of a summer temperature proxy from the ice-core melt history of Belukha Glacier, Siberian Altai. PSI Scientific Report 2003/Volume I: Particles and Matter, 2003.
- [94] A. Letourneau, E. Berthoumieux, O. Déruelle, M. Fadil, G. Fioni, F. Gunsing, F. Marie, L. Perrot, D. Ridikas, H. Boerner, H. Faust, P. Mutti, G. Simpson, and P. Schillebeeckx. Thermal neutron capture branching ratio of ^{209}Bi using a gamma-ray technique. In *Proceedings of the 11th Intern. Symposium on Capture γ -Ray Spectroscopy and Related Topics, Univ. Prague, 2-6 September 2002*, Prague (CZ), 2002. Scientific World.
- [95] Data Support Section. Atmospheric and oceanographic datasets. National Center for Atmospheric Research, <http://dss.ucar.edu/>, Boulder, 2004.

- [96] ILEC. World lake database. International Lake Environment Committee, <http://www.ilec.or.jp/>, 2004.
- [97] P. Kristensen and H.O. Hansen. *Physical lake characteristics and water quality data: European Rivers and Lakes*. European Environment Agency, Copenhagen, 1994.

Danksagung

Diese Arbeit fruchtet auf der Betreuung durch Prof. Dr. Eckehart Nolte. Er war stets bereit meine vielen Fragen zu beantworten und sehr offen gegenüber meinen Ideen. Viel zu früh ist er von uns gegangen. Prof. Dr. Lothar Oberauer erklärte sich freundlicherweise bereit, ihn in der mündlichen Prüfung zu vertreten.

Ohne die AMS-Gruppe wäre ein erfolgreicher Strahlzeitbetrieb undenkbar gewesen. Sie wurde zeitlich gestaffelt von Dr. Florian Kubo, Dr. Thomas Huber, Dr. Vitali Lazarev, Dr. Catalin Stan-Sion und Stefan Mahnke gebildet. Besonders hervorzuheben sind die zuverlässigen Ratschläge und die tatkräftige Unterstützung von Dr. Vitali Lazarev, der bei allen ^{129}I -Strahlzeiten dabei war.

PD Dr. Werner Rühm danke ich für die Unterstützung bei den Strahlzeiten und seine fachliche Anregungen. Viele nützliche Tipps betreffend Ionenquelle und Detektoren stammten von Dr. Georg Rugel und Dr. Klaus Knie.

Photometer wurden von Prof. Dr. Dr. Dietrich Wabner und Dr. Brigitte Helmreich zur Verfügung gestellt. Dr. Thomas Görlach und Wolfgang Schröder halfen bei der Durchführung der ^{127}I -Messungen. Von Dr. Hans-Arno Synal erhielt ich Woodward-Iod und einen ^{129}I -Standard der PSI/ETH AMS-Anlage in Zürich.

Die Werkstätten von MLL und E15 lieferten immer rechtzeitig und paßgenau die benötigten Maßanfertigungen für den HANSI. Norbert Gärtner stand bei Aufbau und Wartung des AMS-Systems mit Rat und Tat zur Seite.

Rudi Lutter und die Rechnergruppe räumten alle Probleme mit der Datenaufnahme aus dem Weg. Ursel Heim danke ich für die Durchsicht des Manuskripts und die zahlreichen Recherchen. Der unablässige Einsatz von Walter Carli und vom Operateurenteam für Tandem und Strahlführung ermöglichte 17 erfolgreiche ^{129}I -Strahlzeiten am MLL.

Ein besonderer Dank geht an die Personen, die mich mit Unmengen an Probenmaterial versorgten. Die Eisproben vom Fiescherhorn- und vom Beluchagletscher stellten Prof. Dr. Heinz W. Gäggeler und Dr. Margit Schwikowski zur Verfügung. Stefan Tröstl sammelte beinahe zwei Jahre lang Regenwasser. Aktuelle Seewasserproben und Hilfe bei der Probenbeschaffung erhielt ich von Dr. Chiara Defrancesco, Dr. Rolf Kipfer, Dr. Erich Uttenthaler, Stephan Zuhr und den Wasserwirtschaftsämtern München und Weilheim.

Die Dissertation wurde durch die finanzielle Förderung der DFG ermöglicht.