Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie
Universität Hannover

Retrospektive Dosimetrie

Rolf Michel

GAST: 20 Jahre wissenschaftliche Erkenntnisse nach dem Reaktorunfall von Tschernobyl, Heidelberg 15. bis 17. März 2006

Inhalt

- Strahlenexpositionen in den hoch kontaminierten Gebieten
- I-129: Eigenschaften und Vorkommen
- Nachweis von I-129 in Umweltproben
- I-129 und I-127 in der Umwelt
- Retrospektive Dosimetrie mit I-129
- Ausblick

Iodine-129 in soils from Northern Ukraine and the retrospective dosimetry of the iodine-131 exposure after the Chernobyl accident

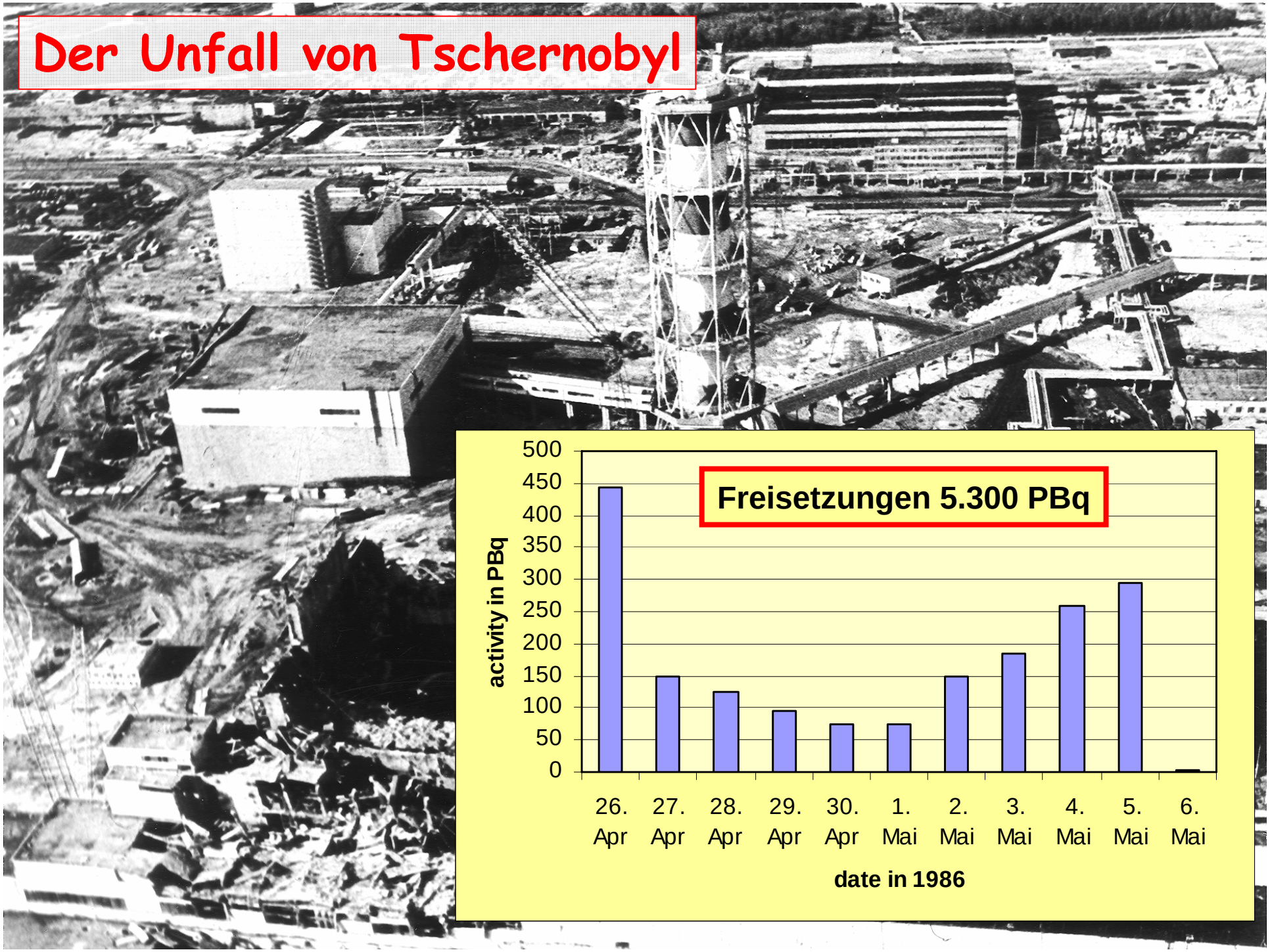
R. Michel[a,*], J. Handl[a], T. Ernst[a], W. Botsch[a,b], S. Szidat[a,c], A. Schmidt[a], D. Jakob[a], D. Beltz[a,b], L.D. Romantschuk[d], H.-A. Synal[e], C. Schnabel[a,f,g], J.M. López-Gutiérrez[h]

[a]*Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR), Universität Hannover, Herrenhaeuser Str. 2, D-30419 Hannover, Germany*
[b]*TÜV Hannover/Sachsen-Anhalt e.V., Am TÜV 1, 30519 Hannover, Germany*
[c]*Labor für Radio- und Umweltchemie, Universität Bern, Freiestr. 3, CH-3012 Bern, Switzerland*
[d]*State University of Agriculture and Ecology, Stari Bulvar 7, Zhitomir 262 001, Ukraine*
[e]*Paul Scherrer Institut (PSI), c/o Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, CH-8093 Zürich, Switzerland*
[f]*Institut für Teilchenphysik, ETH Hönggerberg, CH-8093 Zürich, Switzerland*
[g]*Scottish Universities Environmental Research Centre, Scottish Enterprise Technology Park, East Kilbride G75 0QF, UK*
[h]*Dpto. de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Sevilla, Apdo. 1065, E-41080 Sevilla, Spain*

Science of the Total Environment 340 (2005) 35 – 55

Siehe auch www.zsr.uni-hannover.de

Der Unfall von Tschernobyl



Radionuklid Freisetzungen durch den Unfall von Tschernobyl

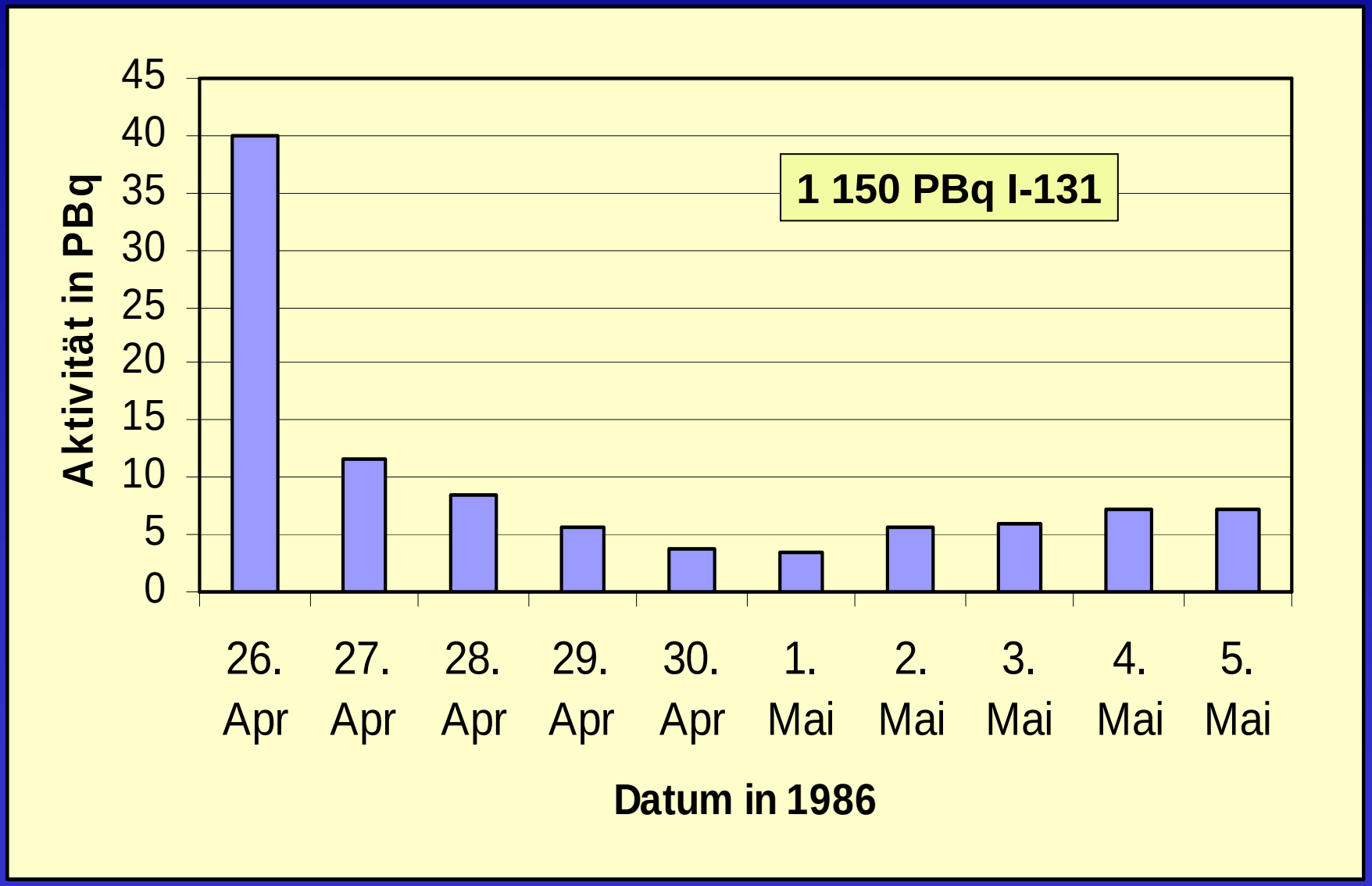
radio-nuclide	half-life	activity inventory April 26, 1986 in PBq	emissions activity in PBq	emissions in percent of inventory
volatile elements				
Te-132	3,26 d	4 200	~ 1 150	27
I-131	8,04 d	3 200	~ 1 760	55
I-132	2,3 h	4 200	1 040	25
I-133	20,8 h	4 800	910	19
I-135	6,61 h	2 900	250	9
Cs-134	2,06 a	150	~ 54	36
Cs-137	30,0 a	260	~ 85	33
intermediate elements				
Sr-89	50,5 d	3 960	~ 115	3
Sr-90	29,12 a	220	~ 10	5
Ru-103	39,3 d	3 770	> 168	4
Ru-106	368 d	860	> 73	8
Ba-140	12,7 d	6 070	240	4

radio-nuclide	half-life	activity inventory April 26, 1986 in PBq	emissions activity in PBq	emissions in percent of inventory
refractory elements (including fuel particles)				
Zr-95	64,0 d	5 850	196	3
Mo-99	2,75 d	5 660	> 168	3
Ce-141	32,5 d	6 070	196	3
Ce-144	284 d	5 550	~ 116	2
Np-239	2,36 d	58 100	945	2
Pu-238	87,74 a	0,93	0,035	4
Pu-239	24065 a	0,96	0,03	3
Pu-240	6537 a	1,5	0,042	3
Pu-241	14,4 a	190	~ 6	3
Cm-242	163 d	31	~ 0,9	3
noble gases				
Kr-85	10,72 a	33	33	100
Xe-133	5,25 d	6 500	6 500	100
total		-	5 300	-

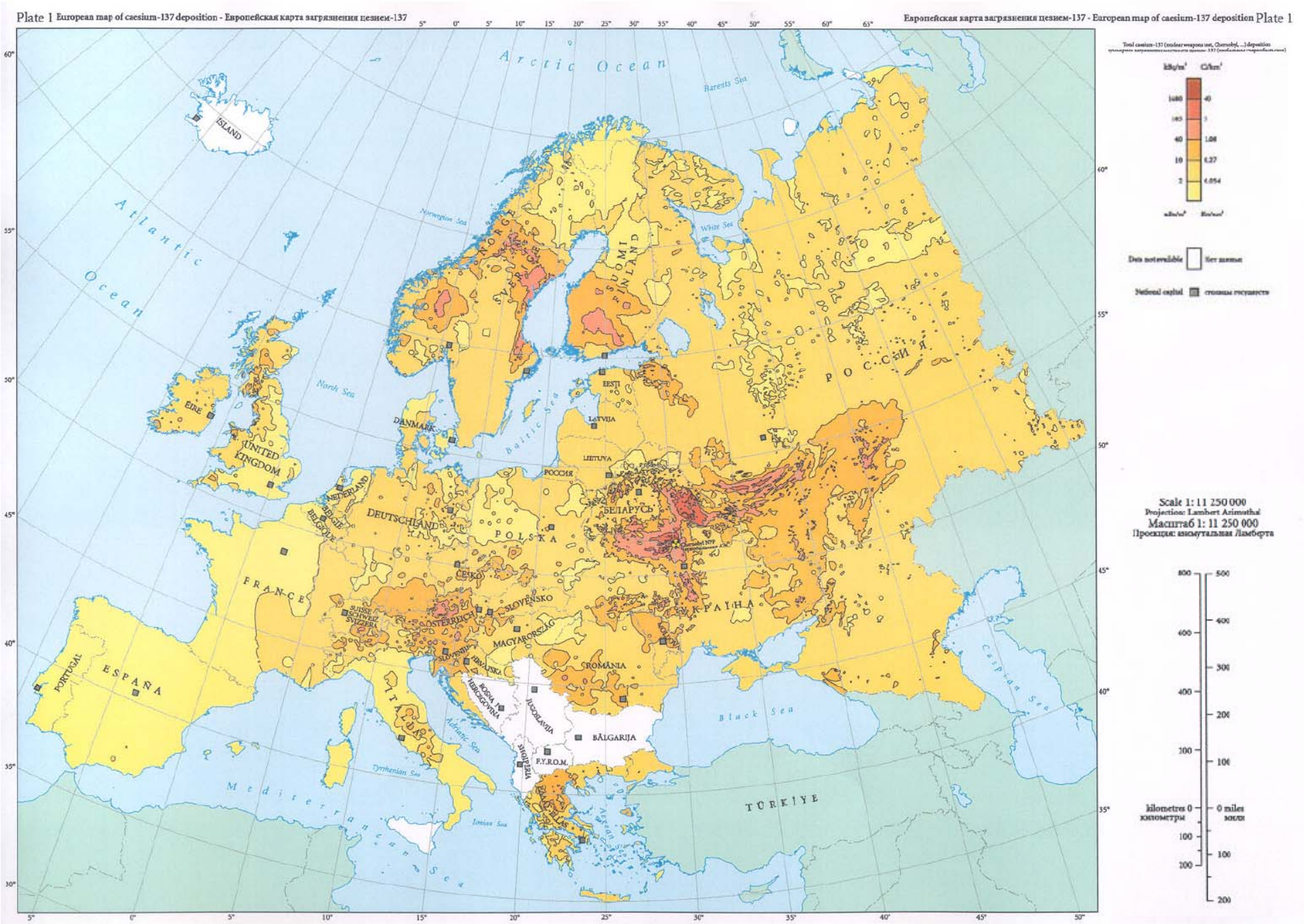
UNSCEAR (2000)

R. Michel, ZSR, Universität Hannover

I-131 Freisetzungen in Tschernobyl

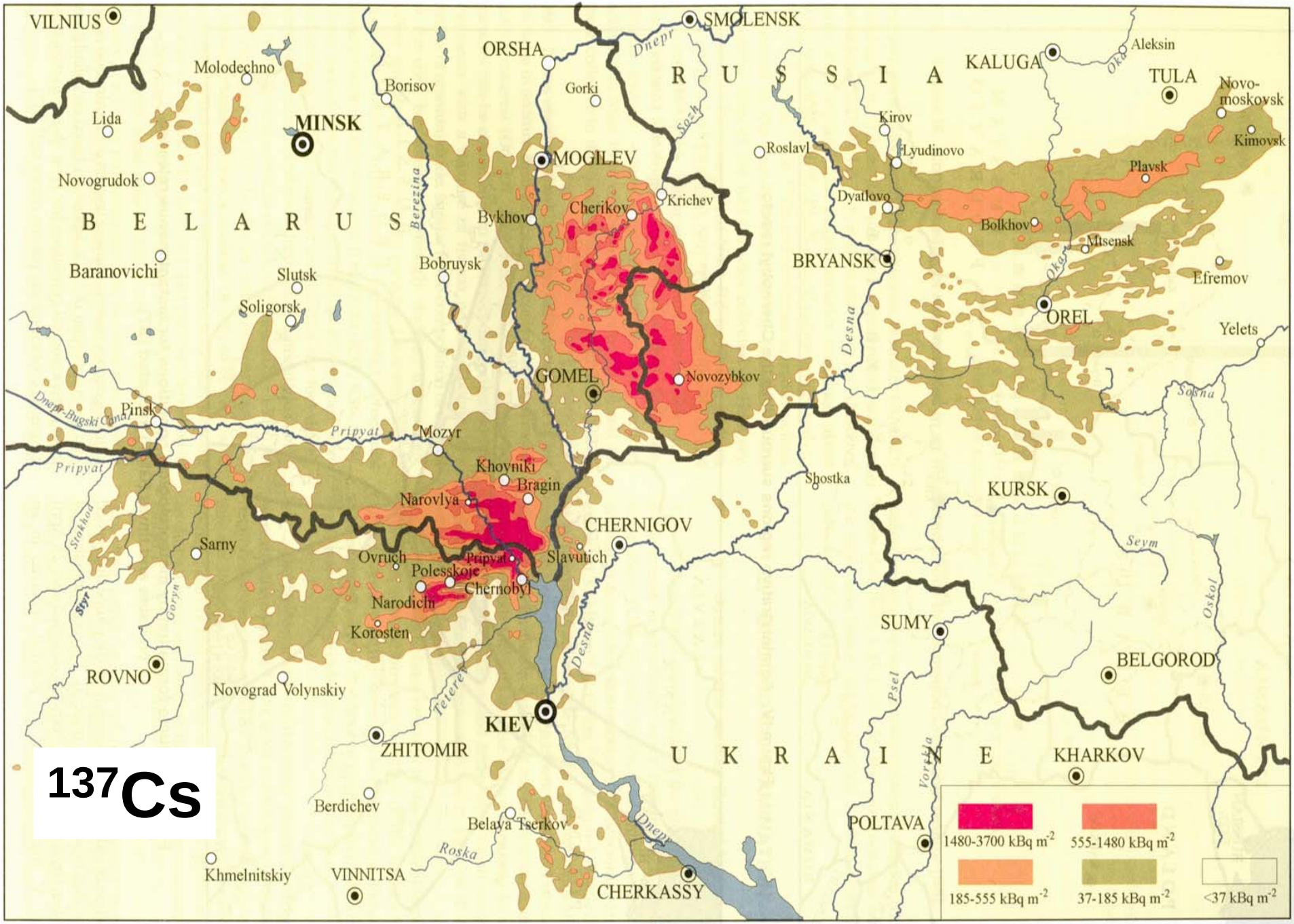


R. Michel, ZSR, Universität Hannover



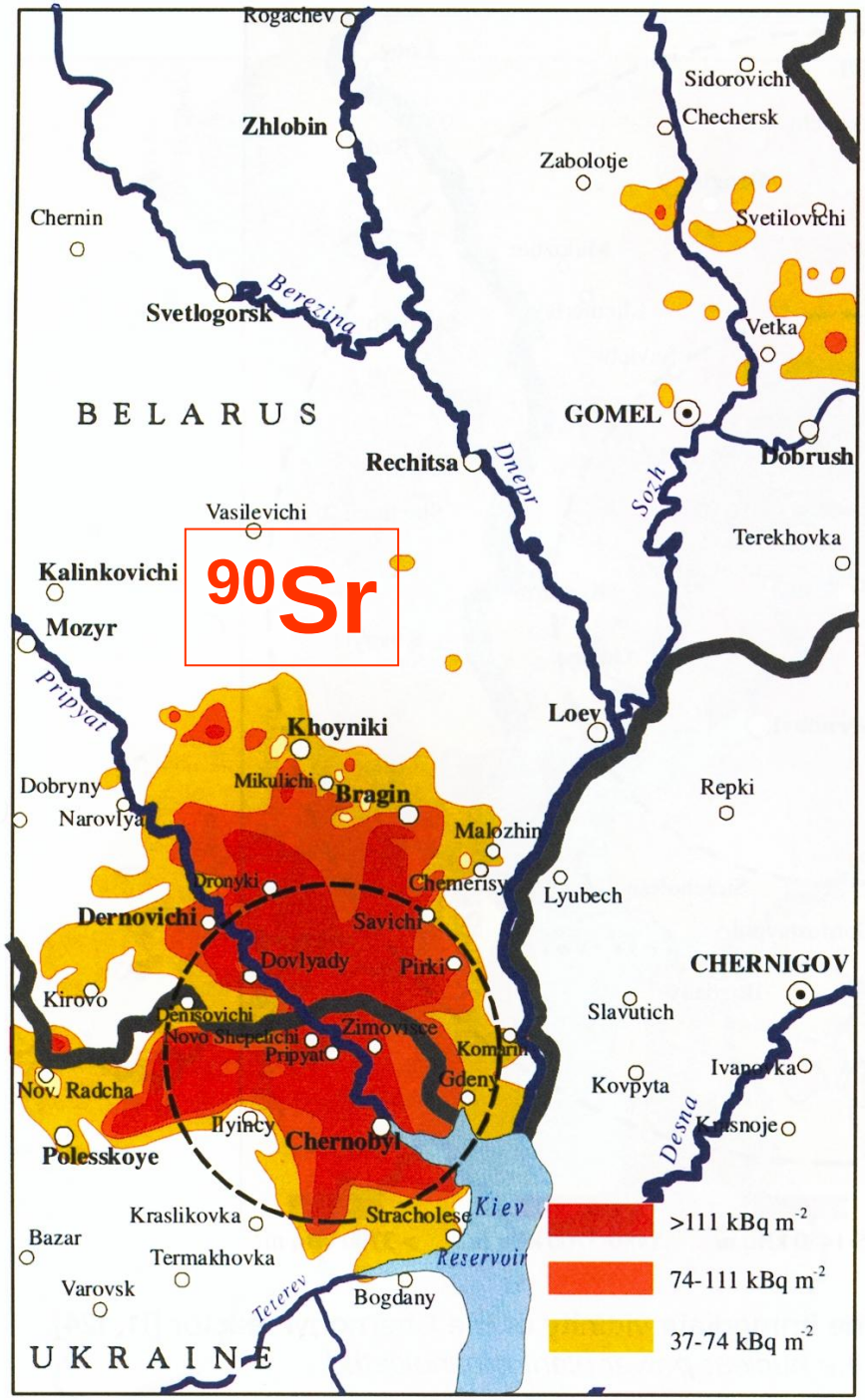
De Cort et al. (1998)

R. Michel, ZSR, Universität Hannover



^{137}Cs

Figure VI. Surface ground deposition of caesium-137 released in the Chernobyl accident [I1, I3]. **UNSCEAR (2000)**



Map of Sr-90 Deposition Densities (close view)

UNSCEAR (2000)

R. Michel, ZSR, Universität Hannover

Plutonium Contamination close view

D(Pu-240) > 3,7 kBq m^2

R. Michel, ZSR, Universität Hannover

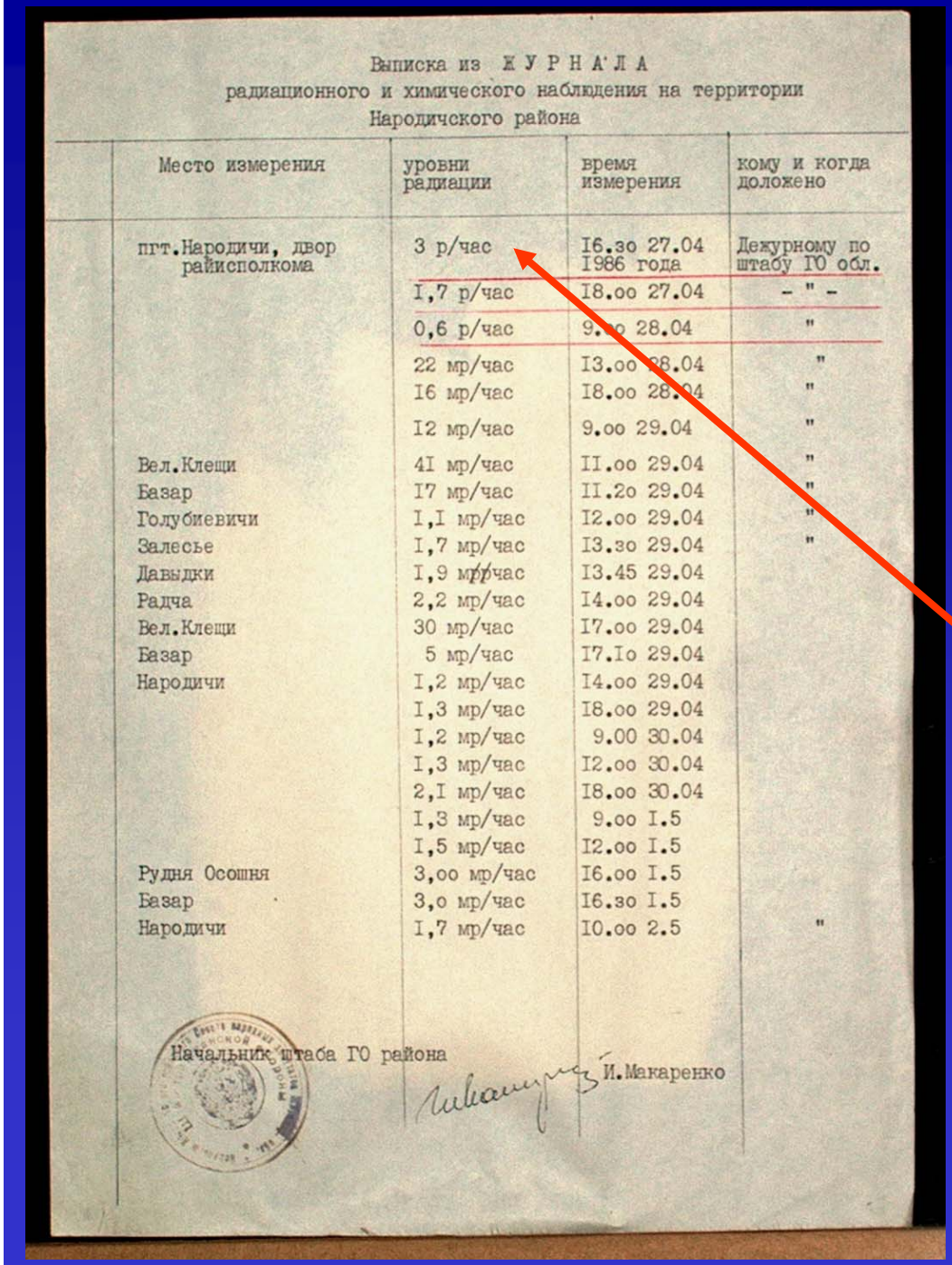
Cs-137-Kontaminationen > 37 kBq m^{-2}

	Bereiche der ^{137}Cs Depositionsdichten in km^2			
Land	**Zone IV**: 37 - 185 kBq m^{-2}	**Zone III**: 185 - 555 kBq m^{-2}	**Zone II**: 555 – 1.480 kBq m^{-2}	**Zone I**: 1.480 – 3.700 kBq m^{-2}
erwartete Folgedosis	**5 - 30 mSv**	**30 - 100 mSv**	**100 - 350 mSv**	**> 350 mSv**
Russische Föderation	49.800	5.700	2.100	300
Belarus	29.900	10.200	4.200	2.200
Ukraine	37.200	3.200	900	600
Schweden	12.000	Cs-137-Depositionsdichten > 185 kBq/m^2 gab es lediglich auf kleinen Flächen in Schweden bei Gävle und in Österreich bei Salzburg.		
Finnland	11.500			
Österreich	8.600			
Norwegen	5.200	Im Bayerischen Wald und südlich der Donau wurden durch heftige lokale Niederschläge kleinräumig bis zu 100 kBq/m^2 Cs-137 abgelagert.		
Bulgarien	4.800			
Schweiz	1.300			
Griechenland	1.200	Cs-137 enthält 2 - 4 kBq/m^2 aus dem globalen Fallout der ober-irdischen Kernwaffenexplosionen in den 1960ern.		
Slowenien	300			
Italien	300			
Republik Moldawien	60			

Strahlenexponierte

- Rettungsmannschaften
- Aufräumarbeiter (Liquidatoren)
- Evakuierte
- Bewohner von Gegenden mit ^{137}Cs-Depositionsdichten größer 37 kBq m^{-2} (1 Ci/km^2) mit der kritischen Gruppe der 1986 Geborenen, die in Selbstversorgerfamilien auf dem Land aufwuchsen und dort bis zum Alter von 70 Jahren leben werden.
- Rückkehrer in die evakuierten Zonen
- Entfernte europäische Bevölkerungen

Bewohner von Gegenden mit ^{137}Cs-Depositionsdichten größer 37 kBq/m^2 (1 Ci/km^2)
Strasse in Narodici



Выписка из ЖУРНАЛА
радиационного и химического наблюдения на территории
Народичского района

Место измерения	уровни радиации	время измерения	кому и когда доложено
пгт.Народичи, двор райисполкома	3 р/час	I6.зо 27.04 I986 года	Дежурному по штабу ГО обл.
	I,7 р/час	I8.оо 27.04	- " -
	0,6 р/час	9.оо 28.04	"
	22 мр/час	I3.оо 28.04	"
	I6 мр/час	I8.оо 28.04	"
	I2 мр/час	9.оо 29.04	"
Вел.Клещи	4I мр/час	II.оо 29.04	"
Базар	I7 мр/час	II.2о 29.04	"
Голубиевичи	I,I мр/час	I2.оо 29.04	"
Залесье	I,7 мр/час	I3.зо 29.04	"
Давыдки	I,9 мр/час	I3.45 29.04	
Радча	2,2 мр/час	I4.оо 29.04	
Вел.Клещи	30 мр/час	I7.оо 29.04	
Базар	5 мр/час	I7.Iо 29.04	
Народичи	I,2 мр/час	I4.оо 29.04	
	I,3 мр/час	I8.оо 29.04	
	I,2 мр/час	9.00 30.04	
	I,3 мр/час	I2.оо 30.04	
	2,I мр/час	I8.оо 30.04	
	I,3 мр/час	9.оо I.5	
	I,5 мр/час	I2.оо I.5	
Рудня Осошня	3,оо мр/час	I6.оо I.5	
Базар	3,о мр/час	I6.зо I.5	
Народичи	I,7 мр/час	I0.оо 2.5	"

Начальник штаба ГО района И.Макаренко

Ortsdosisleistungen gemessen in Narodici 27.4. - 2.5.1986

3 R/h = 30 mSv/h
1,7 R/h = 17 mSv/h
0,6 R/h = 6 mSv/h

Denkmal für die Evakuierten in der nördlichen Ukraine im Stadtpark von Narodici

Exposition der Bevölkerung in kontaminierten Regionen mit mehr als 37 kBq/m² ^{137}Cs im Zeitraum 1986 - 2005 ohne Schilddrüsendosis.

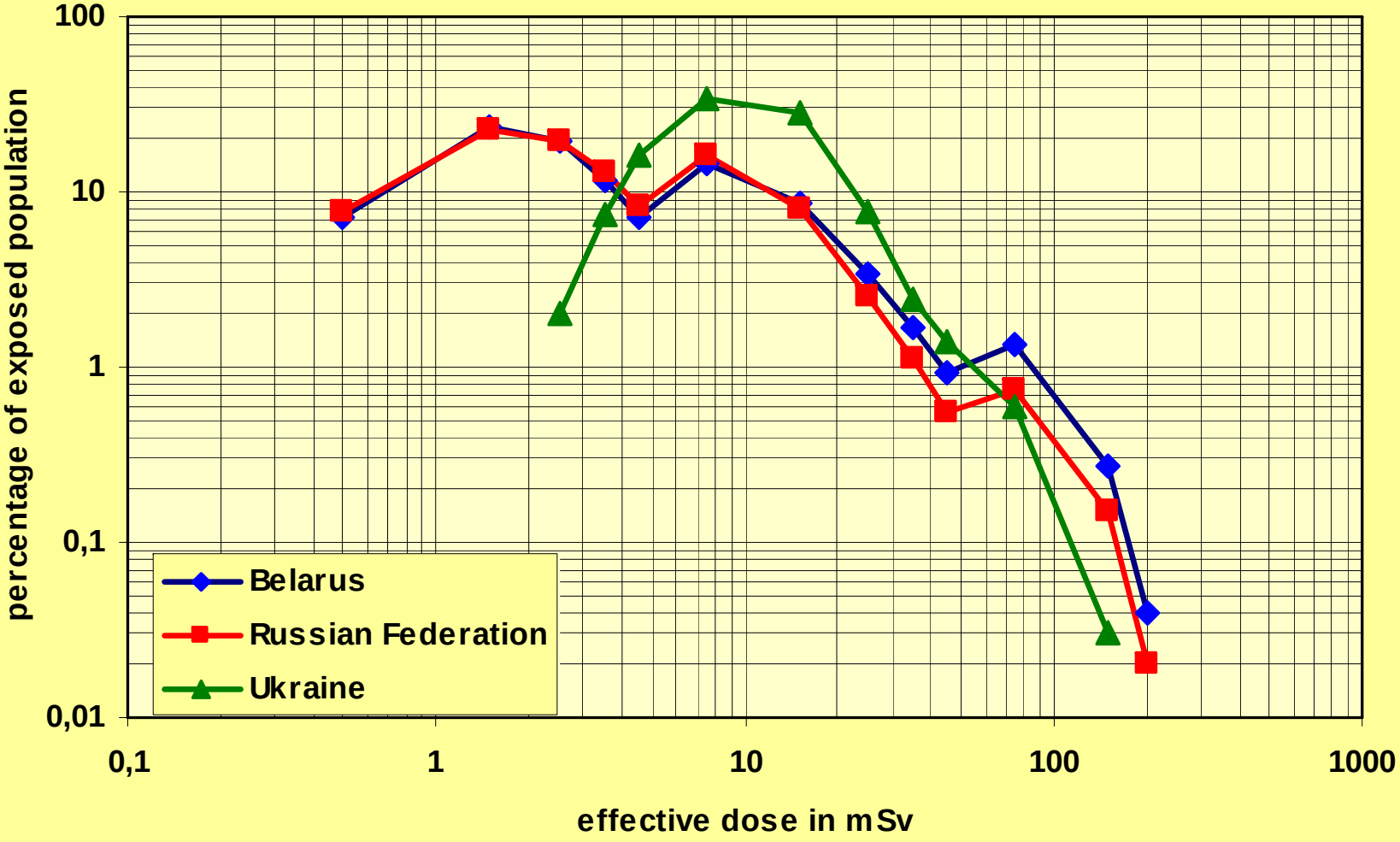
Region	Bevölke-rung	mittlere Individualdosis in mSv			
		1986 - 1995			1986 - 2005
		extern	intern	total	total
Belarus	1 880 612	5,1	2,9	8,0	9,8
Russische Föderation	1 983 275	4,3	2,5	6,8	8,3
Ukraine	1 295 800	4,7	6,1	10,8	12,9

Dosis 1996 - 2056:

34 ± 5 % der gesamten 70-Jahre-Folgedosis

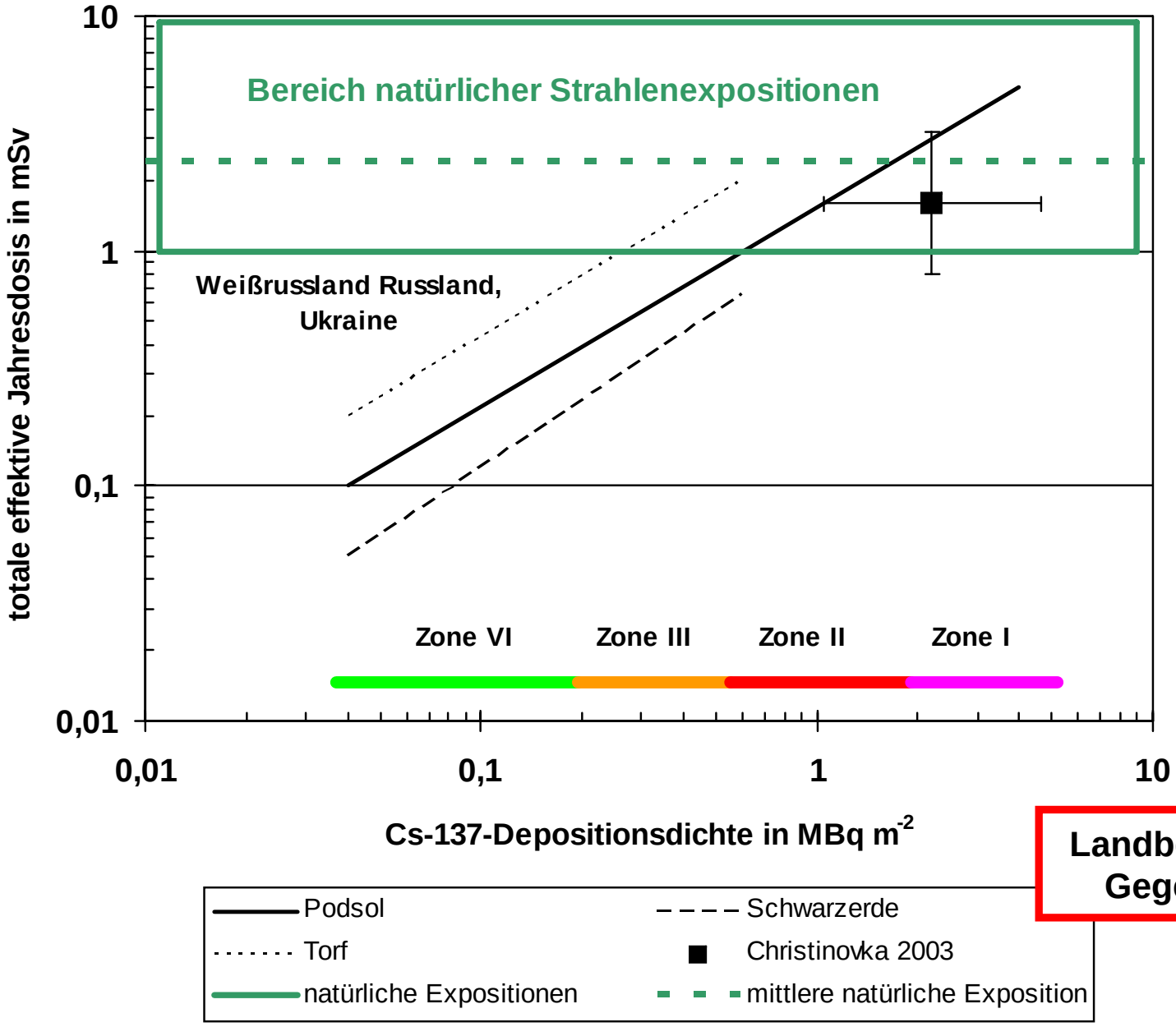
UNSCEAR (2000), Chernobyl Forum (2005).

Verteilung der mittleren totalen individuellen Expositionen 1986 - 1995 ohne Schilddrüsendosis



Nach UNSCEAR (2000)

R. Michel, ZSR, Universität Hannover



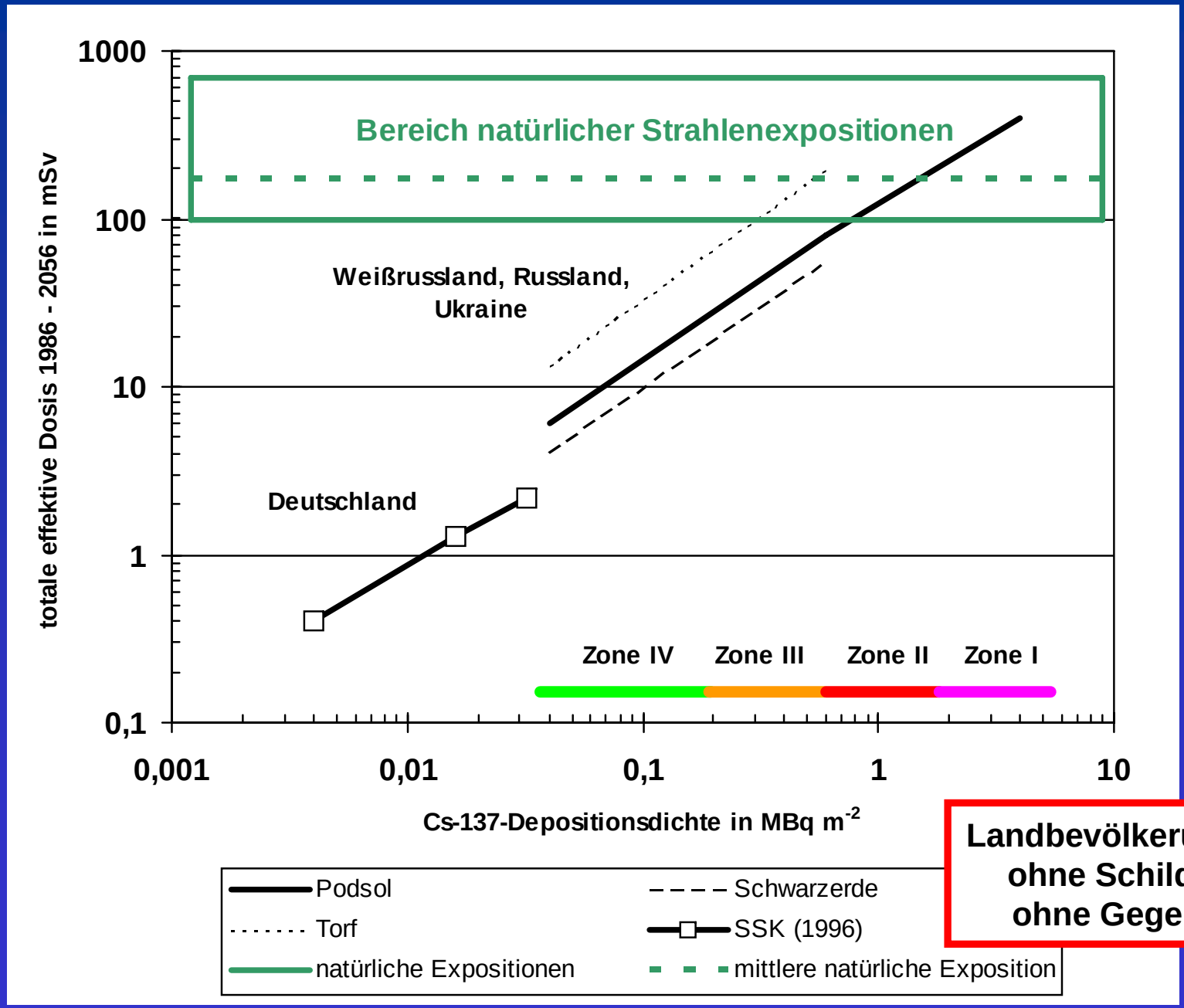
Effektive Jahresdosis 2001

Erwachsener in Gegenden mit ^{137}Cs Fallout von > 37 kBq m^{-2} ohne Gegen-maßnahmen bei Annahme lokaler Ernährung und totale effektive Jahresdosis für Einwohner von Christinovka 2003

Landbevölkerung, ohne Gegenmaßnahmen.

Daten: Chernobyl Forum (2005) und diese Arbeit

R. Michel, ZSR, Universität Hannover



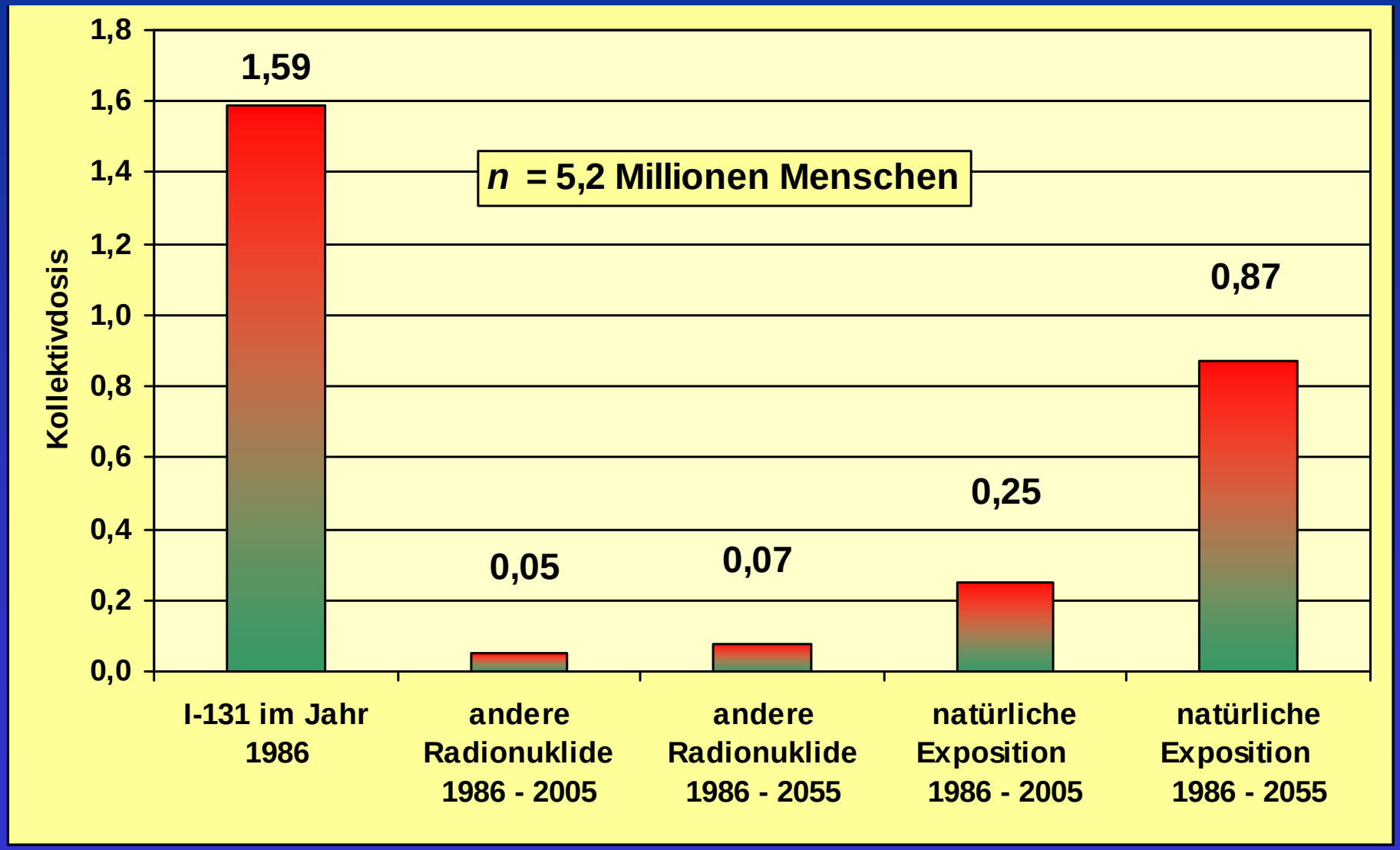
mittlere totale effektive 70-Jahre Folgedosis (ohne Schild-drüsendosis) durch den Unfall von Tschernobyl in Gegenden mit ^{137}Cs Fallout von mehr als 37 kBq m^{-2}

Landbevölkerung, 1986 – 2056, ohne Schilddrüsendosen, ohne Gegenmaßnahmen.

Daten: Chernobyl Forum (2005) und SSK (1996)

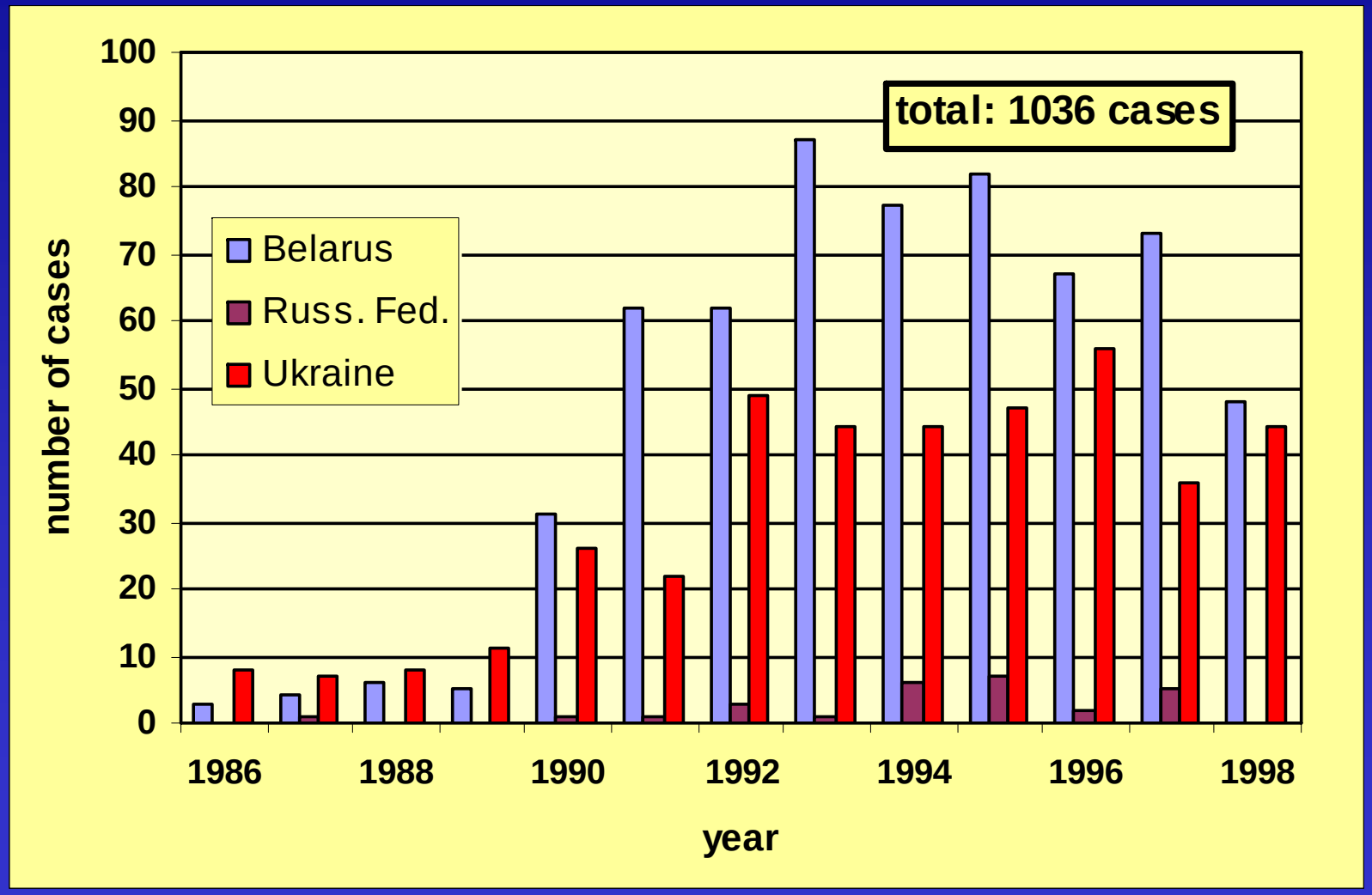
R. Michel, ZSR, Universität Hannover

Unfall-bedingte Kollektivdosen im Vergleich zur natürlichen Exposition in Millionen Personen-Gy bzw. -Sv



R. Michel, ZSR, Universität Hannover

Schilddrüsenkrebs bei Kindern und Jugendlichen unter 15 Jahren (UNSCEAR, 2000)



I-131/Cs-137

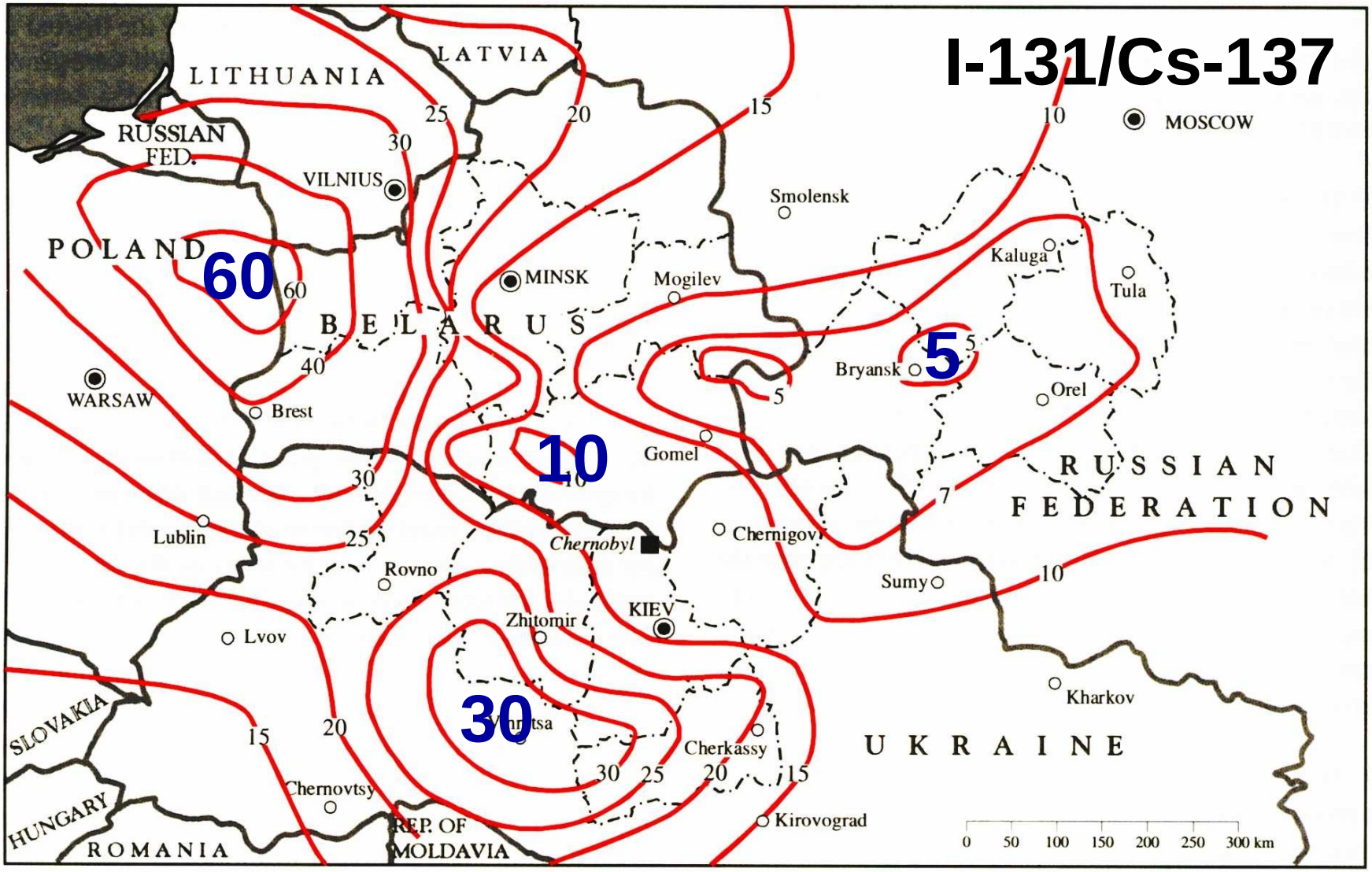
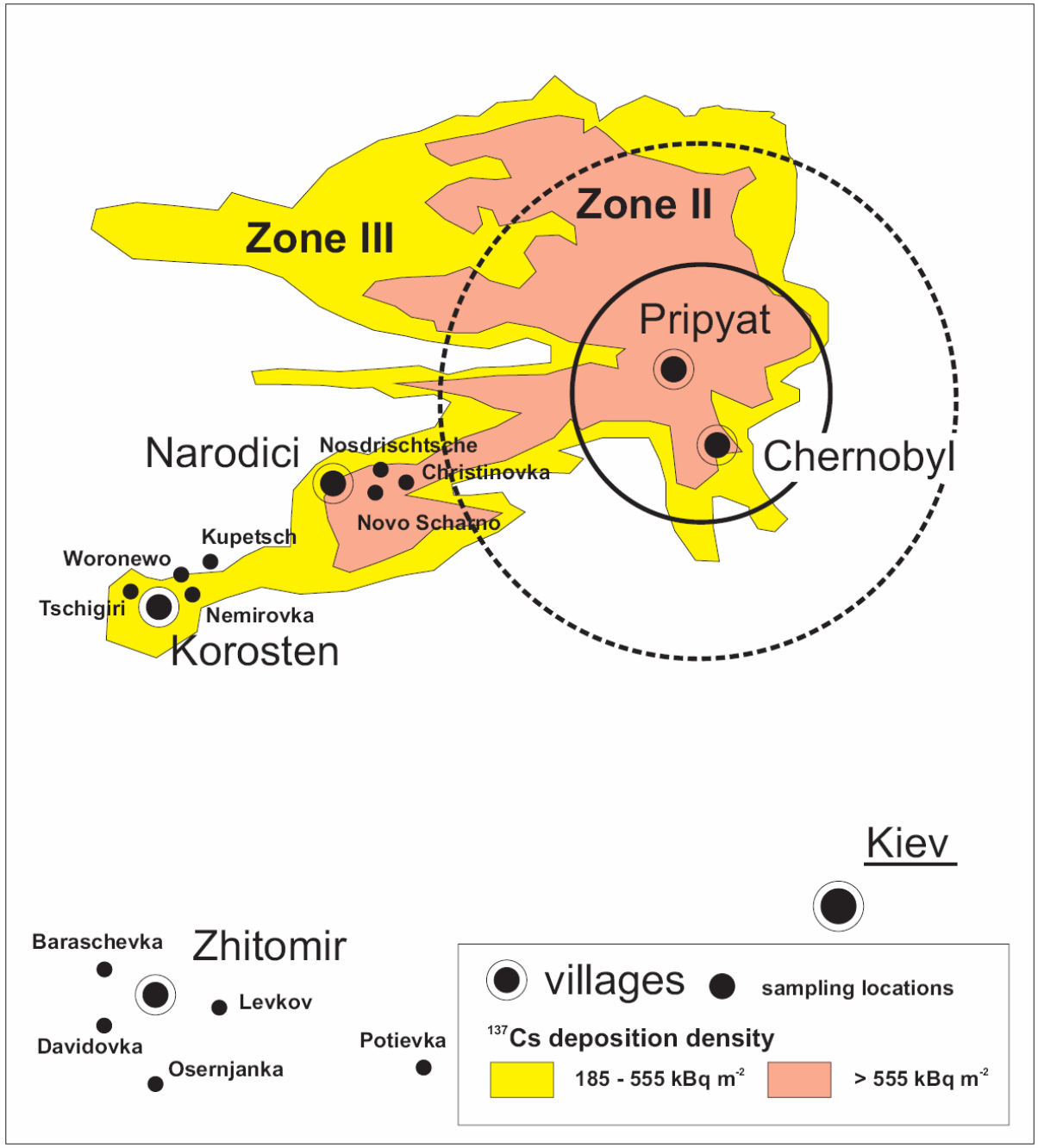


Figure XVIII. Estimated pattern of iodine-131/caesium-137 activity ratio over the European territory of the former USSR resulting from the Chernobyl accident [S30]. *(Values decay corrected to 1 May 1986).*

Retrospektive Dosimetrie von I-131 durch I-129 ($T_{1/2}$ = 15,7 Ma)



Probennahme-orte in der nördlichen Ukraine

R. Michel, ZSR, Universität Hannover

I-129 ($T_{1/2}$ = 15.7 Ma)

$$^{129}I \xrightarrow{\beta^-} {}^{129}Xe$$

$E_{\beta,max}$ = 0.2 MeV, E_γ = 39.58 keV, I_γ = 7.52 %

PRODUKTION IN DER NATUR

- Spallation am Xenon
- Spontanspaltung

NATÜRLICHES GLEICHGEWICHTS ISOTOPENVERHÄLTNIS

- $^{129}I/^{127}I = (0.3 - 3.0) \cdot 10^{-12}$ Modellrechnungen
- $^{129}I/^{127}I = \sim 1.5 \cdot 10^{-12}$ marine Hydrosphäre

I-129 in the Environment

I-129 from Chernobyl ca. 2 kg

emissions from atmospheric test explosions: 43 kg – 150 kg

total natural I-129 inventory of the Earth: 50 000 kg (327 TBq)

↓

total free natural I-129 inventory of atmosphere, hydrosphere, pedosphere, and biosphere

263 kg

anthropogenic I-129 emissions from European reprocessing plants until 2000

aerial

232 kg

liquid

3253 kg

$^{129}I/^{127}I$ isotopic ratios in environmental compartments ?

~ 10^{-12}

~ 10^{-12} up to ?

R. Michel, ZSR, Universität Hannover

ANALYTICAL METHODS

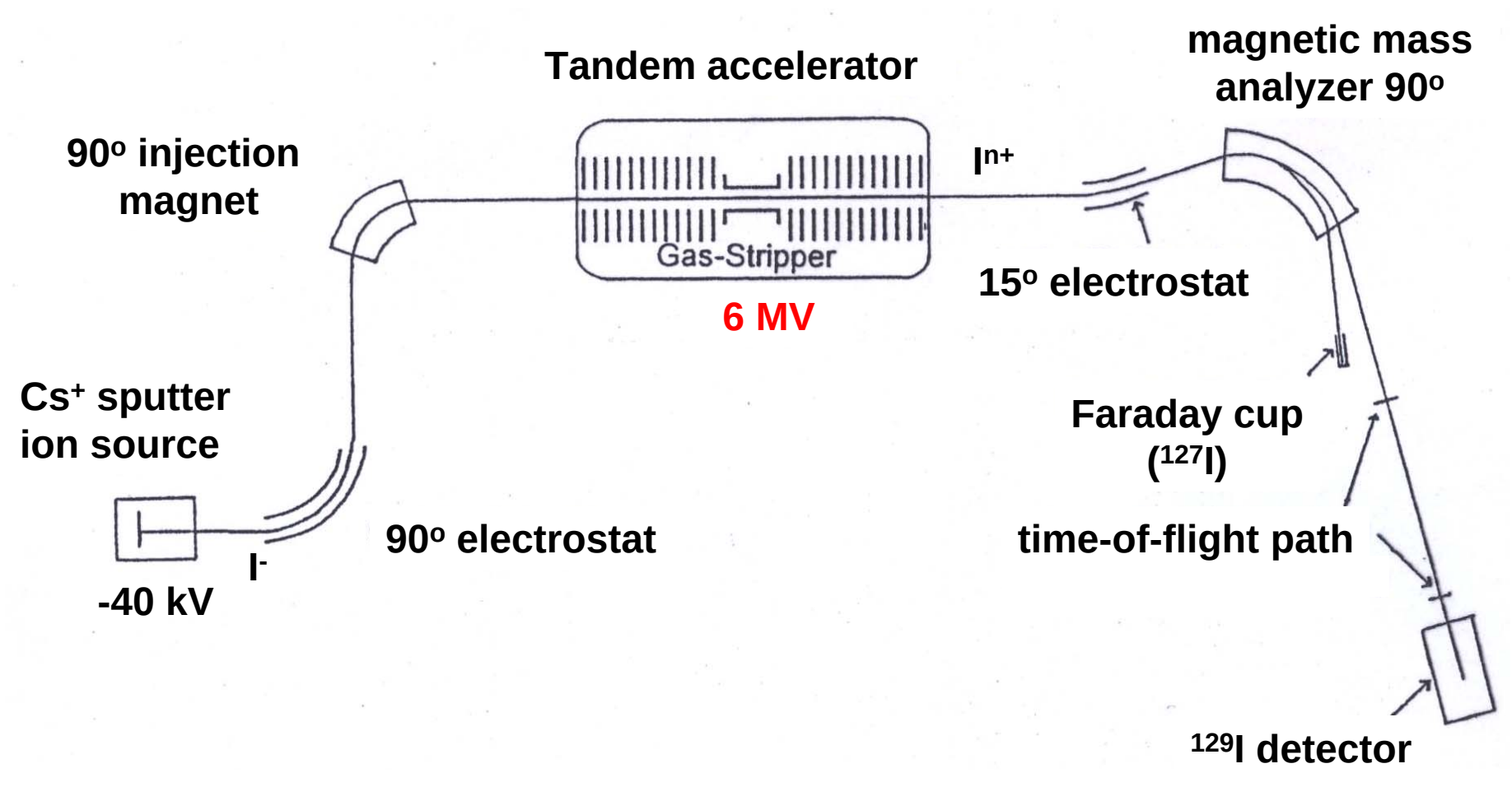
^{129}I:

- LSC
- γ-spectrometry
- RNAA
- ICP-MS
- AMS

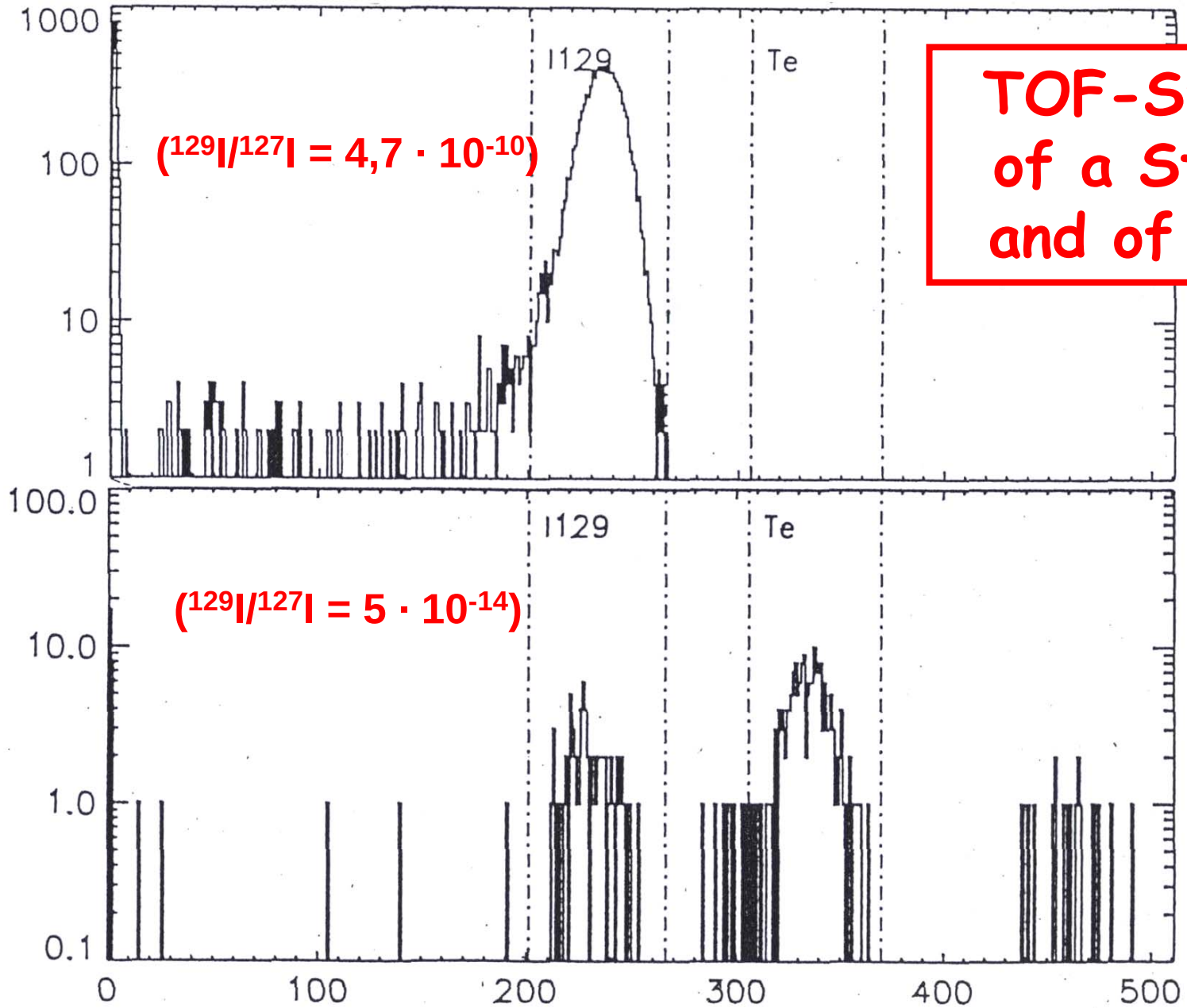
^{127}I:

- ion chromatography
- ICP-MS
- RNAA

PSI/ETH Tandem AMS Facility @ ETH-Hönggerberg/Zürich



TOF-Spectrum of a Standard and of a Blank



Wagner, 1995

Performance of the PSI/ETH AMS sytem

PSI ETH
Ion Beam Physics

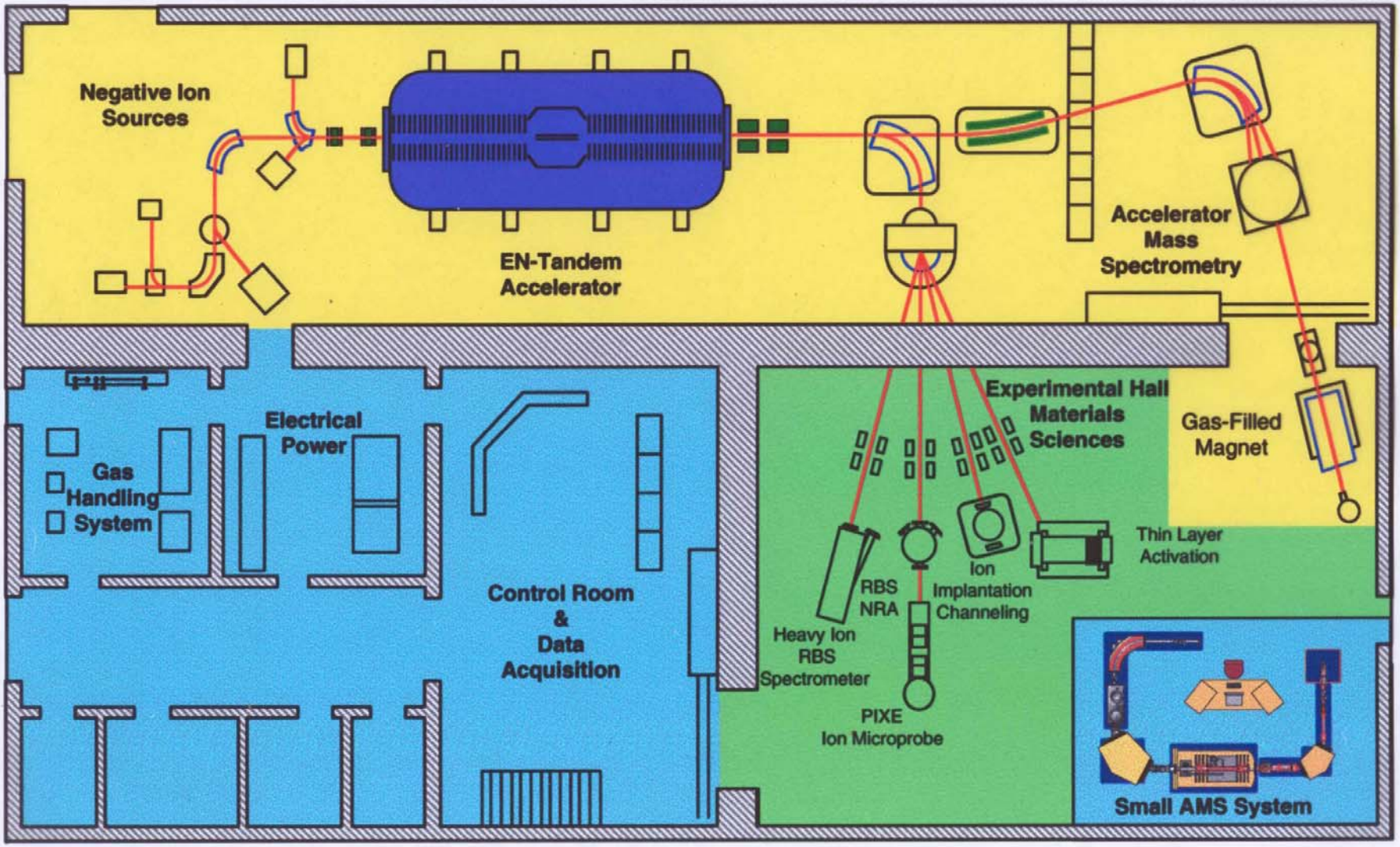
Nuclide	Ion	Ion Current [µA]	Terminal Voltage [MV]	Charge State	Stripper	Trans-mission [%]	Ion Energy [MeV]	Isobar Back-ground	Separation Technique
^{10}Be	BeO	0.5-2.0	5.8	3+	Ar-Gas	20	20	$<10^{-14}$	Absorber/GIC
^{14}C	C	15-25	5.2	4+	Ar-Gas	45	26	$<10^{-15}$	NIF/GIC
^{26}Al	Al	0.1-0.2	4.7	5+	Ar-Gas	20	28	$<10^{-14}$	NIF/GIC
^{32}Si	Si	5-10	6.0	7+	C-Foil	10	48	$<10^{-15}$	GFM/GIC
^{36}Cl	Cl	10-15	6.0	7+	C-Foil	10	48	$<10^{-15}$	GIC
^{41}Ca	CaH_3	0.3-0.8	6.0	5+	Ar-Gas	7	36	10^{-13}	NIF/GIC
^{59}Ni	Ni	0.15-0.3	6.0	11+	C-Foil	1	72	$<10^{-9}$	GIC
^{60}Fe	FeH	0.02-0.03	6.0	9+	C-Foil	5	60	10^{-11}	NIF/GIC
^{126}Sn	Sn	0.02-0.05	5.0	5+	Ar-Gas	3	30	10^{-7}	PXD
^{129}I	I	5-10	4.7	5+	Ar-Gas	5	28	5×10^{-14}	NIF/GIC

NIF: negative ion formation
GIC: gas ionisation detector
GFM: gas-filled magnet
PXD: projectile X-ray detection

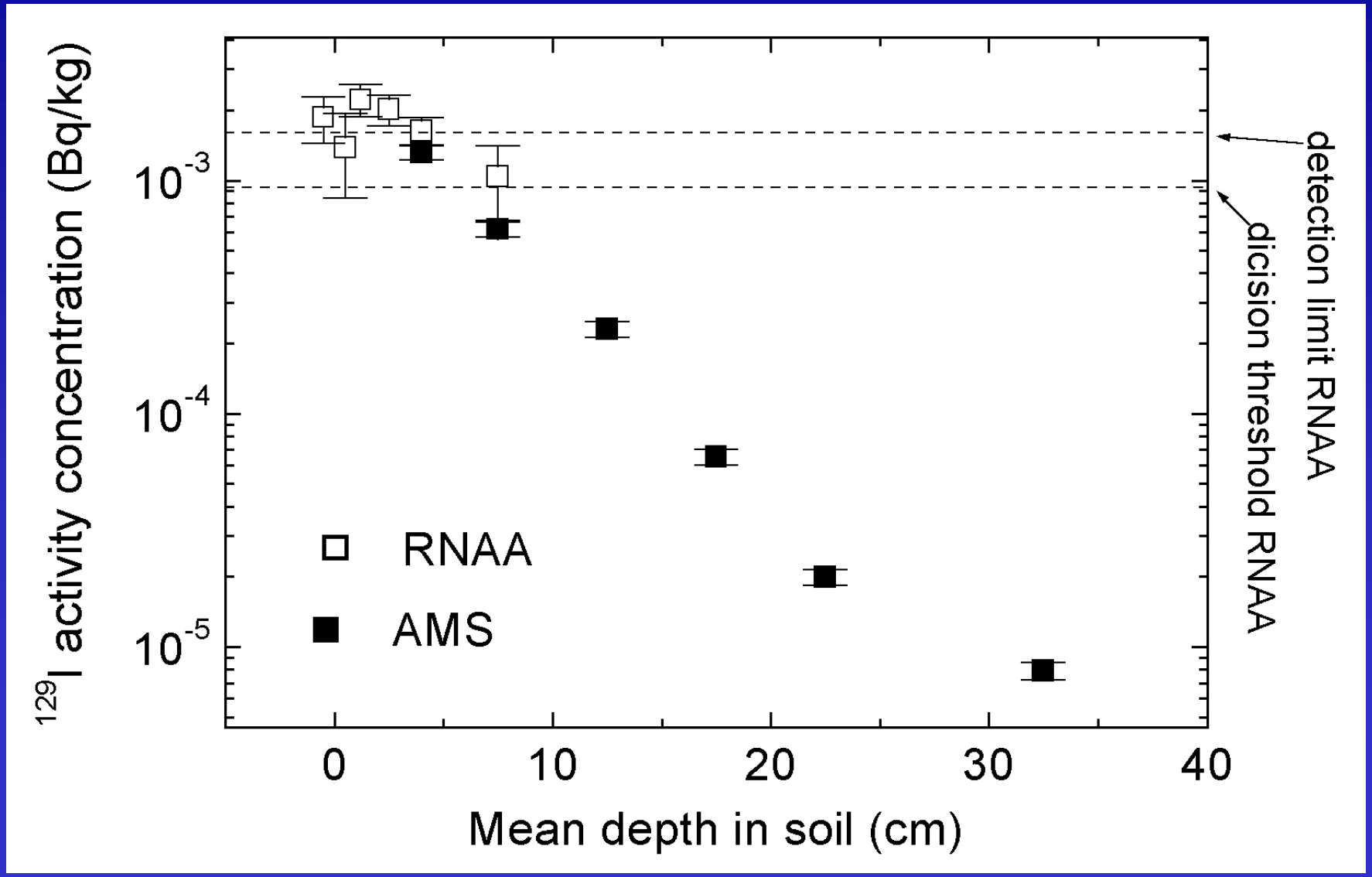
radionuclides measured in routine operation

The PSI/ETH AMS Facility

PSI ETH
Ion Beam Physics

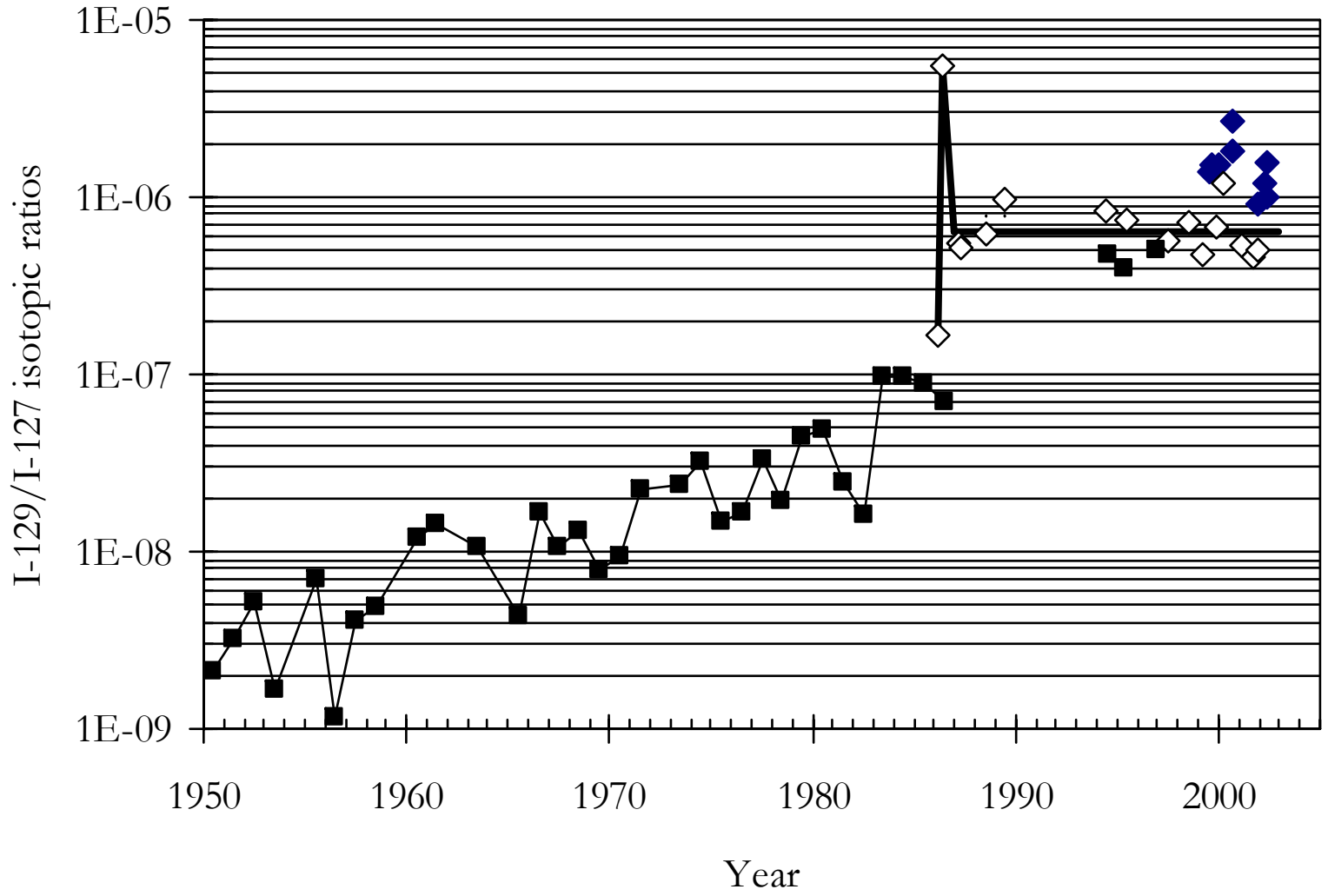


I-129 in einem Bodenprofil aus Nemirovka, Ukraine, Zone III (1885 - 555 kBq/m² ^{137}Cs)

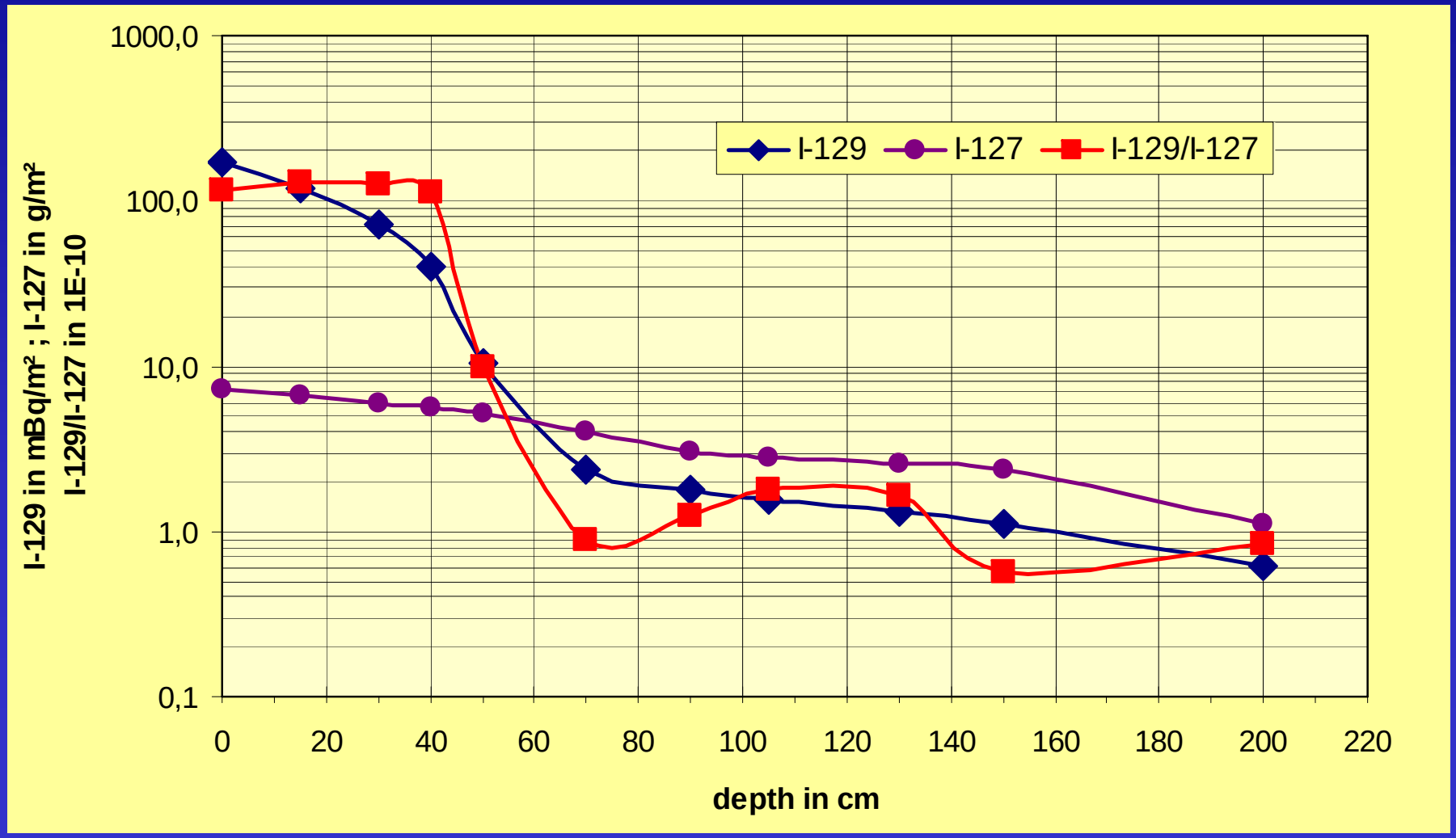


R. Michel, ZSR, Universität Hannover

$^{129}I/^{127}I$ in Niederschlag aus der Schweiz und Deutschland und in Nordseewasser



^{129}I, ^{127}I, und $^{129}I/^{127}I$ Verhältnisse in einem Bodenprofil aus Groß Lobke/Niedersachsen



Ernst et al., Kerntechnik 68, 155-167 (2003).

Bilanz von ^{129}I und ^{127}I in Niedersachsen / Raum Hannover

Oberflächenprojizierte Konzentrationen	^{127}I in mg m^{-2}	^{129}I in mBq m^{-2}
Geometrischer Mittelwert und Standardabweichung	$3500 \cdot 1{,}6^{\pm 1}$	$168 \cdot 1{,}5^{\pm 1}$
pränuklear		$\leq 0{,}08$

Jährliche Depositionsdichte aus Traufregen	^{127}I in mg m^{-2} a^{-1}	^{129}I in mBq m^{-2} a^{-1}
Geometrischer Mittelwert und Standardabweichung	$4.0 \cdot 1{,}2^{\pm 1}$	$11 \cdot 1{,}3^{\pm 1}$

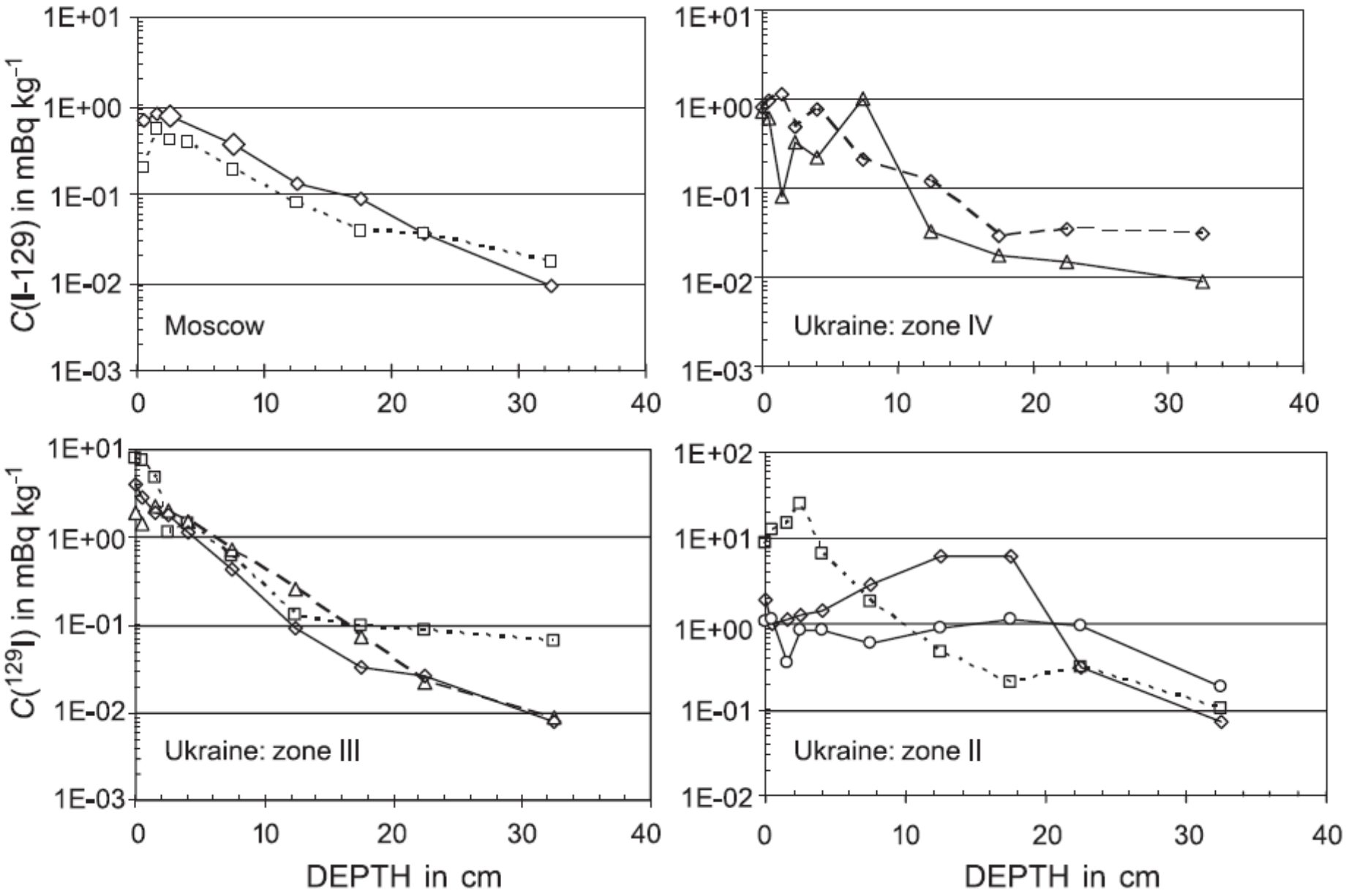
R. Michel, ZSR, Universität Hannover

Depositionsdichten von ^{129}I und ^{127}I in siben tiefen Bodenprofilen aus Niedersachsen im Vergleich zu Daten aus der Ukraine und Russland und mit pränuklearen Daten

Ort	^{127}I	^{129}I	$^{129}I/^{127}I$
	in g m^{-2}	in mBq m^{-2}	Isotopen-verhältnis[a]
Geometrische Mittel über alle deutschen Profile	$3{,}5 \cdot 1{,}6^{\pm 1}$	$168 \cdot 1{,}5^{\pm 1}$	$7{,}1 \cdot 10^{-9}$
Zhitomir (1997) + Moskau (1996)	$0{,}52 \cdot 2{,}1^{\pm 1}$	$40 \cdot 1{,}6^{\pm 1}$	-
Prä-nuklearer Boden: Russland 1939	-	$0{,}084 \pm 0{,}017$	$1{,}5 \cdot 10^{-11}$

[a] Verhältnisse in den obersten 30 cm.

R. Michel, ZSR, Universität Hannover


C(I-129) in mBq kg-1
1E+01
1E+00
1E-01
1E-02
1E-03
Moscow
Ukraine: zone IV
C(129I) in mBq kg-1
Ukraine: zone III
1E+02
Ukraine: zone II
0
10
20
30
40
DEPTH in cm
DEPTH in cm

I-129 Retrospektive Dosimetrie

$$H_{\text{thyr}} = \left(D(^{129}\text{I}) - D_{\text{pre-Ch.}}(^{129}\text{I})\right) \cdot \frac{A_{131}}{A_{129}} \cdot DC_{131} \cdot f(t)$$

H_{thyr}: Schilddrüsenäquivalentdosis durch ^{131}I

$D(^{129}\text{I})$: gemessene ^{129}I Depositionsdichte

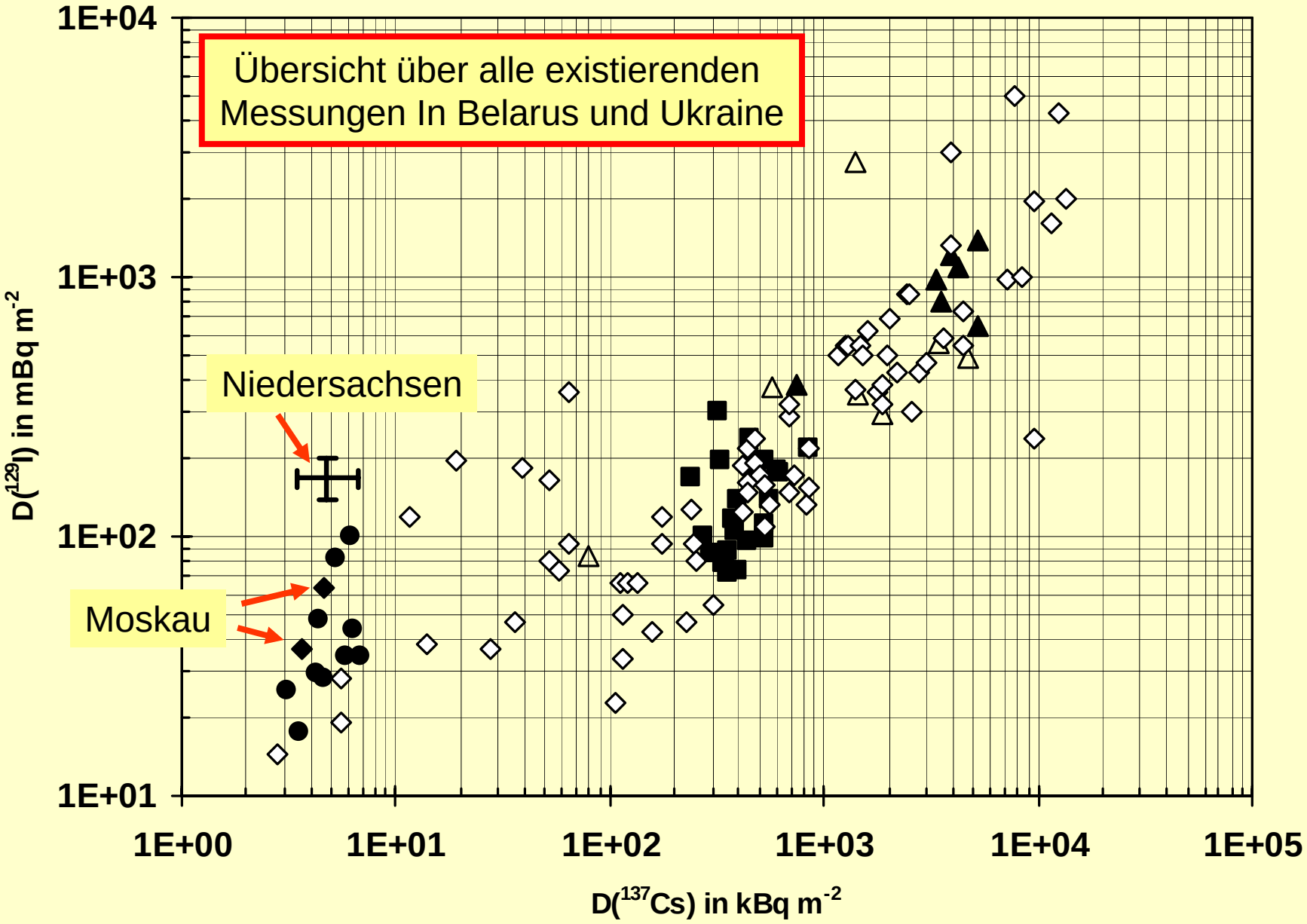
$D_{\text{pre-Ch.}}(^{129}\text{I})$ = 44 ± 24 mBq m^{-2} Prä-Chernobyl Deposition

DC_{131}: aggregierter Dosisfaktor für ^{131}I

$f(t)$: Korrektionsfaktor

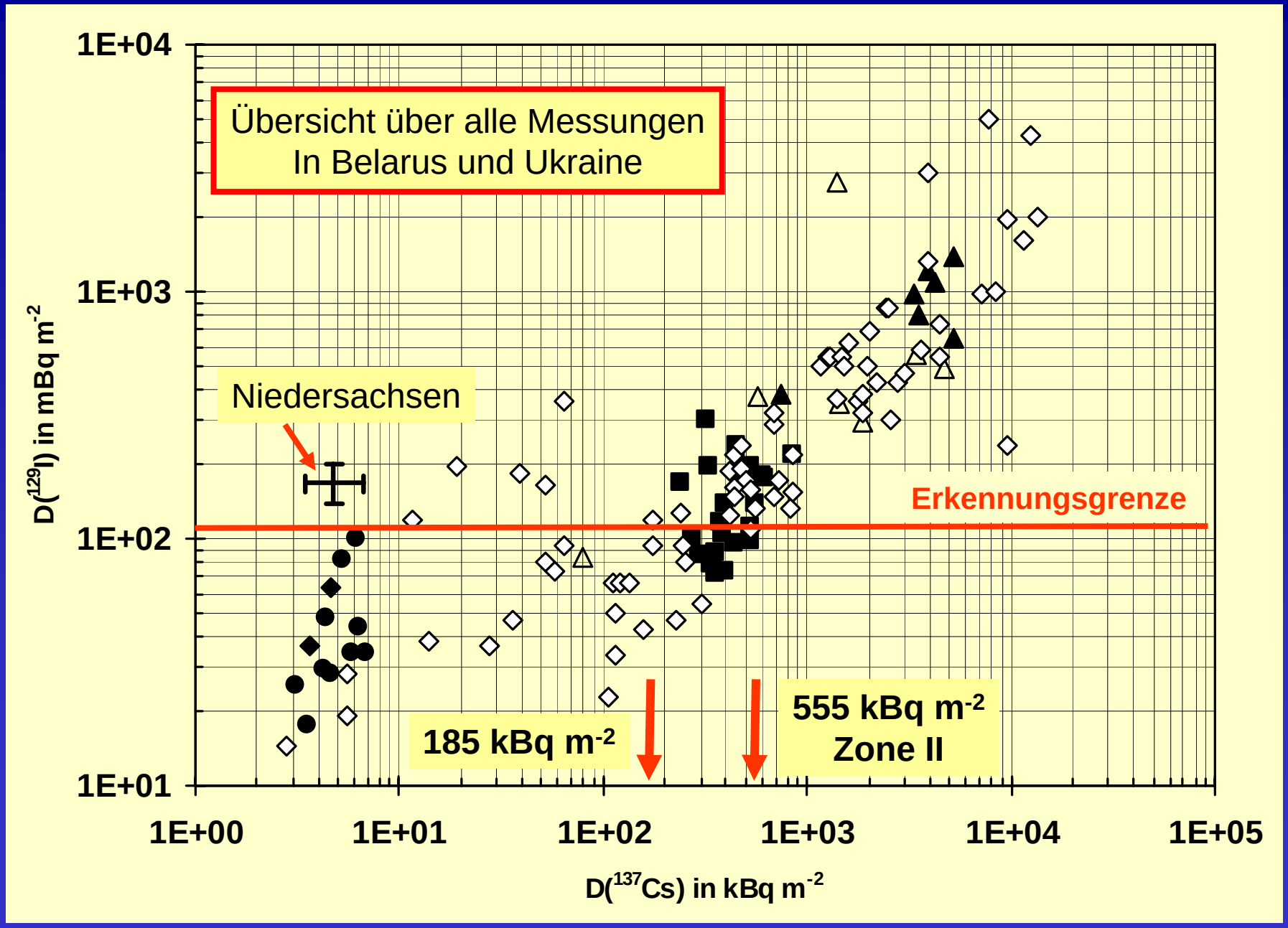
^{129}I/^{131}I Isotopenverhältnis im Chernobyl Fall-out 12 ± 3

$\Rightarrow A(^{131}\text{I})/A(^{129}\text{I}) = 5{,}9 \times 10^{7}$.



Straume et al. (1996), Mironov et al. (2002) und diese Arbeit

R. Michel, ZSR, Universität Hannover



Straume et al. (1996), Mironov et al. (2002) und diese Arbeit

R. Michel, ZSR, Universität Hannover

$^{129}I/^{131}I$ atomic ratios measured in environmental samples after the Chernobyl accident

material	origin	sampling date	$^{129}I/^{131}I$ atomic ratio 26.4.1986	reference
sewage sludge	Berlin/D	May 1986	34.3 ± 2.8	this work
bovine and deer thyroid glands	Ulm/D, Bad Hall/A	May - June 1986	27 ± 10	VanMiddlesworth and Handl (1997)
rain	Munich/D	end of April 1986	19 ± 5	Kutschera et al. (1988)
rain	Israel	5. May 1986	15 ± 3	Paul et al. (1987)
soil	Belarus	May - June 1986	15 ± 5	Mironov et al. (2002)
soil	Belarus	May 1986	12 ± 3	Straume et al. (1996)
theoretical estimate	-	-	11 - 15	Ermilov (1993)
theoretical estimate	-	-	22.8	Kirchner and Noack (1988)

I-129 Retrospektive Dosimetrie

Aggregierte Dosisfaktoren für die Schilddrüse von

$1{,}3 \times 10^{-6}$ Sv Bq^{-1} m^2 für 1-jährige Kinder und
$0{,}22 \times 10^{-6}$ Sv Bq^{-1} m^2 für Erwachsene

wurden auf der Grundlage der Allgemeinen Berechnungsgrundlage [GMB 79] und der Störfall-Berechnungsgrundlage [GMB 77] berechnet.

Pietrzak-Flis et al. (2003) mit den Modell CLRP:

$(2.5 \pm 0.1) \times 10^{-7}$ Sv Bq^{-1} m^2 für 5-jährige Kinder,
$(1.7 \pm 0.1) \times 10^{-7}$ Sv Bq^{-1} m^2 für 10-jährige Kinder und
$(5.9 \pm 0.3) \times 10^{-8}$ Sv Bq^{-1} m^2 für Erwachsene.

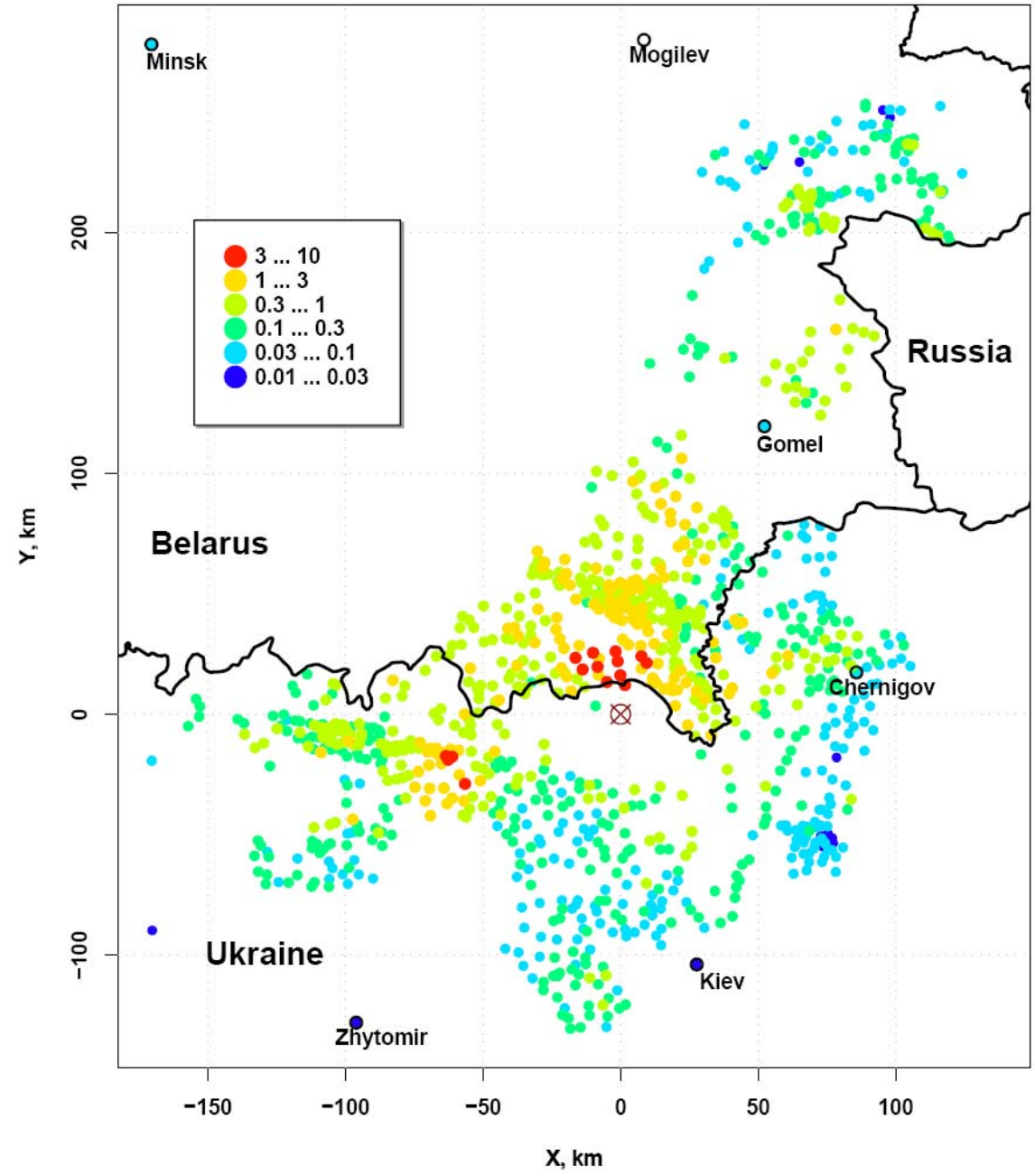
location and year of sampling	number of profiles	depth of profiles in cm	total ^{129}I inventory in mBq m^{-2}
pre-nuclear			
Lutovinovo, Russia, 1939	1	35	0.084 ± 0.017
not contaminated by fall-out from Chernobyl			
Moscow, Russia, 1996	2	40	$49 \times 1.5^{\pm 1}$
Zhitomir, Ukraine, 1997	12	40	$38 \times 1.7^{\pm 1}$
Lower Saxony, D, 1999	7	250	$168 \times 1.5^{\pm 1}$
contamination zones in Ukraine			
mean, zone III, 1995	24	40	$130 \times 1.5^{\pm 1}$
Nemirovka, 1995	3	40	$94 \times 2.1^{\pm 1}$
Woronewo, 1995	7	40	$109 \times 1.7^{\pm 1}$
Kupetsch-Tschernjanka, 1995	2	40	$93 \times 2.0^{\pm 1}$
Tschigiri, 1995	12	40	$67 \times 1.9^{\pm 1}$
mean, zone II, 1995	7	40	$848 \times 1.5^{\pm 1}$
Nosdrischtsche, 1995	2	40	$905 \times 1.8^{\pm 1}$
Novo Scharno, 1995	3	40	$941 \times 1.2^{\pm 1}$
Christinovka, 1995	2	40	$602 \times 2.2^{\pm 1}$

Geometric means and geometric standard deviations of total ^{129}I inventories as derived from the analysis of soil profiles from differently contaminated areas.

Erwartungswerte der Depositionsdichten und Schilddrüsenfolgedosen

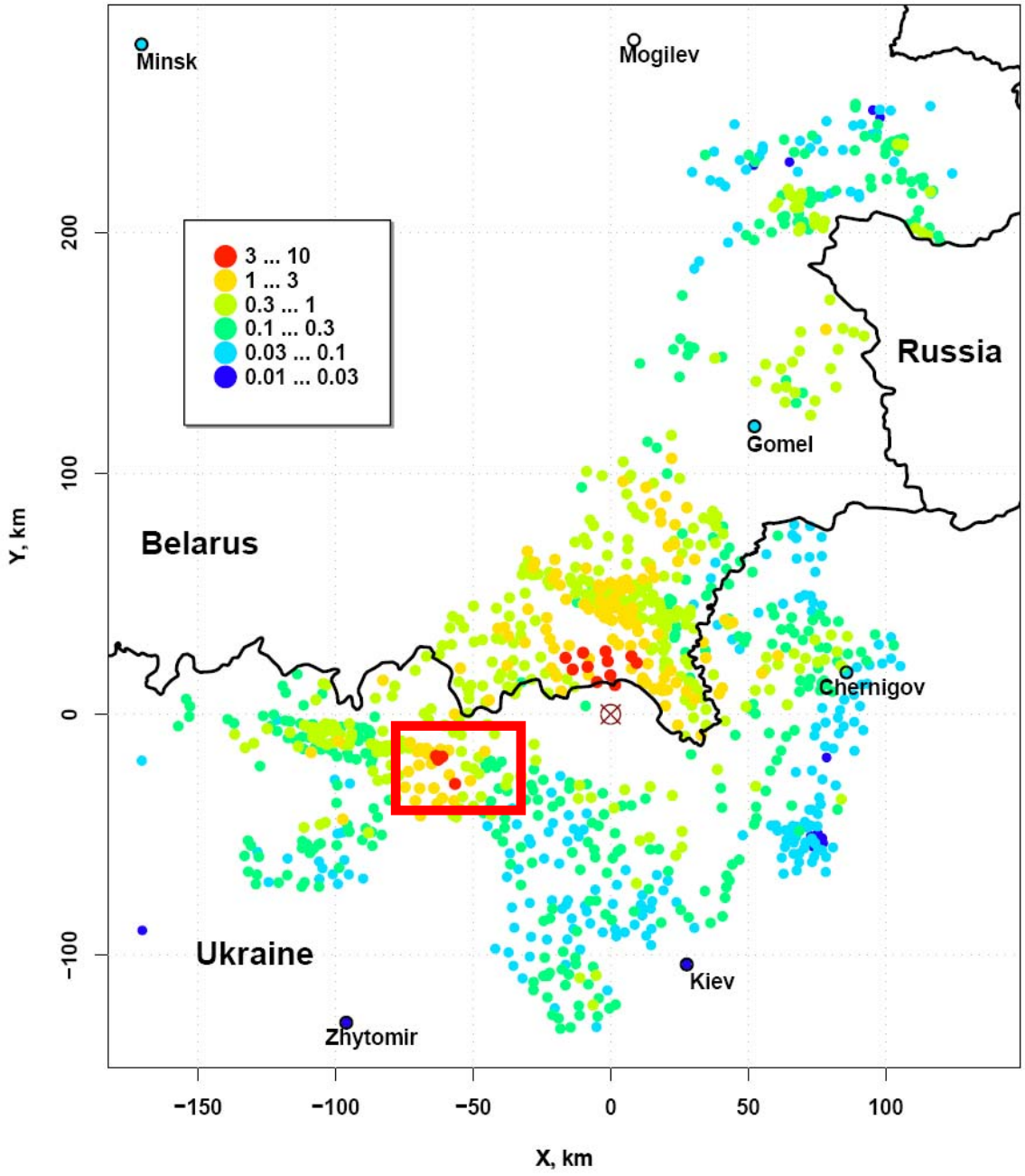
$$E\left(D(^{129}\mathrm{I})\right) = \exp(\mu + \sigma^2/2)$$

Ort	E(D_{corr}(I-129)) in Bq m^{-2}	E(D(I-131)) in 10^6 Bq m^{-2}	Schilddrüsenfolgedosis $H_{thyroid}$ in Gy		
			5-Jahre-alt	10-Jahre-alt	Erwachsene
Mittel kontaminierter Bereich (Zone III) nahe Korosten					
Nemirovka	0.122	6.41	1.6	1.1	0.38
Woronewo	0.124	6.50	1.6	1.1	0.38
Kupetsch	0.119	6.25	1.5	1.0	0.37
Tschigiri	0.078	4.10	1.0	0.7	0.24
Hoch kontaminierter Bereich (Zone II) nahe Narodici					
Nosdrischtsche	1.060	55.7	14	9.3	3.3
Novo Scharno	0.962	50.5	13	8.4	3.0
Christinovka	0.824	43.3	11	7.2	2.6



Mittlere Schilddrüsendosen (Gy) der Geburtsjahrgänge 1968 – 85 in 684 Ukrainischen und 458 Belarussischen Orten mit mehr als 10 Messungen von I-131 in menschlichen Schilddrüsen vor Mai/Juni 1986.

Jacob et al. (2004)



Zukünftige Arbeiten

Jacob et al. (2004)

The End