Originalarbeiten Uran in Wässern

# Uran in Wässern

Untersuchungen in ostdeutschen Flüssen und Grundwässern

<sup>1</sup>Rainer Gellermann, <sup>2</sup>Werner Stolz

<sup>1</sup> HGN GmbH, Büro Braunschweig, Holzwiese 6, D-38179 Schwülper

Korrespondenzautor: Dr. Rainer Gellermann

# Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit werden Ergebnisse von 172 Messungen der Uranisotope  $^{238}$ U und  $^{234}$ U in Grundwässern und 21 Messungen in Flüssen in Ostdeutschland mitgeteilt, die von 1979 bis 1990 durchgeführt wurden. Die Urankonzentrationen im Grundwasser reichen von unter 0,1 mBq/l bis über 1000 mBq/l, mit einem Median von 12 mBq/l, die zugehörenden Aktivitätsverhältnisse <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U von 0,85 bis 12,6 mit einem Median von 1,66. Ein Vergleich der Werte mit Literaturangaben zeigt eine gute Übereinstimmung mit neueren Messungen von Wässern aus Thüringen und Sachsen, die als Medianwert 19 mBg/l ermittelten. Die bei einem beträchtlichen Teil der Proben deutlich über dem Gleichgewichtswert von 1,0 liegenden Aktivitätsverhältnisse 234U/238U sollten bei Dosisbetrachtungen berücksichtigt werden. Die Messungen der Flußwässer geben Werte für die Elbe aus Zeiten intensiver Urangewinnung in Sachsen und Thüringen wider. Meßergebnisse von Zuflüssen zur Ostsee zeigen deutlich höhere Werte als sie aus der Uranverteilung in der Ostsee erwartet werden. Einige mögliche Ursachen dieser Befunde werden diskutiert.

Schlagwörter: Elbe; Flußwasser; Grundwasser; Isotopenverhältnis; Deutschland; Ostsee; Radioaktivität; Radionuklide; Trinkwasser; Uranbelastung von Wässern; Uranisotope

# Abstract

Uranium in Water

An Investigation Performed on Eastern German Rivers and Ground

The study presents 172 measurements of the uranium <sup>238</sup>U and <sup>234</sup>U isotopes in ground water and 21 measurements of these substances in the rivers of Eastern Germany. The uranium concentration in the ground water ranged from under 0.1 mBq/l to over 1000 mBg/l with a mean of 12 mBq/l. The respective activity relationships of <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U ranged from 0.85 to 12.6 with a mean of 1.66. A comparison of these values with those in the literature demonstrates an agreement with more recent measurements obtained from water in Thuringia and Saxony which were seen to have a mean value of 19 mBq/l. The activity relationships of <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U which were seen to be substantially over the equilibrial value of 1.0 and which were found in a quite high proportion of the samples must be taken into consideration when evaluating these. The measurements of river water demonstrated values for the Elbe river which are related to the periods of extensive uranium mining in Saxony and Thuringia. Measurements performed in the catchment regions going into the Baltic Sea revealed substantially higher values than would be expected from the distribution of uranium in these areas. A number of reasons are discussed here in an attempt to explain these findings.

Keywords: Baltic Sea; contamination of water with uranium; drinking water; groundwater; isotope ratio; radionuclides; radioactivity; river Elbe; river water; uranium

# 1 Einleitung

Seit 1979 wurden an der Bergakademie Freiberg, Sachsen, Untersuchungen von Grund- und Oberflächenwässern zur Nutzung der Uranisotope <sup>234</sup>U und <sup>238</sup>U als hydrologischer und hydrogeologischer Indikator durchgeführt [5, 9-13]. Die Ergebnisse dieser Messungen konnten bis 1990 nur in Hinblick auf isotopenhydrologische Methoden ausgewertet und mit wenigen Ausnahmen [10] nur ohne konkrete Ortsangaben publiziert werden. Die Neubewertung der natürlichen Radioaktivität, die vor allem durch die Altlasten des Uranerzbergbaus in Sachsen und Thüringen stimuliert wurde, erfordert jedoch neben gezielten standortbezogenen Messungen auch Angaben über geogene Hintergrundkonzentrationen natürlicher Radionuklide. Daher wurden die vorliegenden Meßergebnisse neu aufbereitet, um Aussagen zur geogenen Hintergrundbelastung ableiten zu können. Darüber hinaus werden die Ergebnisse von Uran-Isotopenanalysen von Oberflächenwässern mitgeteilt. Da vergleichbare Messungen aus dem Zeitraum 1979 bis 1990 kaum vorliegen, sind diese Daten für die Einordnung aktueller Resultate nutzbar.

### Probenahme und Meßtechnik

Die isotopenhydrologischen Untersuchungen erforderten die zielgerichtete Beprobung von Wässern unter Bezug auf die geologischen Strukturen. Daher wurden die Proben aus Einzelbrunnen von Wasserwerken, gefaßten Quellen oder Grundwassermeßstellen gezogen. Die Beprobung von Wasserwerksbrunnen erfolgte im Betriebsregime. Grundwassermeßstellen wurden in der Regel nach mehrstündigem Abpumpen, häufig bei Leistungspumpversuchen beprobt. Sofern die Proben keine visuell erkennbaren Schwebstoffgehalte zeigten, wurde auf eine Filtration verzichtet. Das war bei Wasserwerksbrunnen und Quellen stets der Fall. Bei Pumpversuchen aus Grundwassermeßstellen, bei denen deutliche Schwebstoffgehalte im Wasser feststellbar waren, wurde sofort nach der Probenahme und vor dem Ansäuern des Wassers mit Papierfiltern filtriert.

Die großen Flüsse (Elbe, Oder, Oderhaff) konnten nur in Ufernähe beprobt werden. Bei kleineren Flüssen und Bächen wurden repräsentative Proben aus der Strommitte entnommen. Diese Proben wurden stets filtriert, überwiegend mit Papierfiltern, bei Warnow und Recknitz mit

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> TU Bergakademie Freiberg, Institut für angewandte Physik, Cottastraße 4, D-09596 Freiberg

Membranfiltern (0,45 μm). Im allgemeinen wurden die Proben zur Konservierung mit 5 ml konz. HNO<sub>3</sub> je Liter Wasser angesäuert. Als Ausbeutetracer wurde im Labor <sup>232</sup>U hinzugegeben. In einigen Fällen wurde direkt im Feld das Uran nach Zugabe des Ausbeutetracers durch Ionenaustausch aus 0,5 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> abgetrennt.

Uran in Wässern

Die Probenmengen richteten sich nach dem erwarteten Urangehalt. Aus zählstatistischen Gründen wurden Uranmengen von 10 bis 100 µg je Zählpräparat angestrebt. Deshalb wurden in der Regel 5 bis 10 kg, vereinzelt auch 2 bzw. 30 kg Wasser für eine Analyse aufgearbeitet. Durch diese Anpassung der Probenvolumina an die Urankonzentration und Verlängerung der Meßzeiten konnten bei Bedarf Nachweisgrenzen von unter 0,1 mBq/l realisiert werden. Damit wurden praktisch in allen Fällen konkrete Angaben zum

Urangehalt erhalten. Die Probenpräparation im Labor bestand aus den Schritten Mitfällung mit AlPO<sub>4</sub>, Anionenaustausch aus 9 M HCl, flüssig-flüssig Extraktion und Elektrodeposition des gereinigten Urans zur Herstellung von Zählpräparaten für die Alphaspektrometrie.

Die Qualität der Messungen wurde durch Doppelbestimmungen an geteilten Proben, Wiederholungsmessungen an gleichen Probenahmestellen und die Teilnahme an Ringvergleichen überprüft. Die Reproduzierbarkeit der Messungen betrug bei hinreichender Zählstatistik etwa 5 % bei den Urangehalten und 2 % bei den Aktivitätsverhältnissen <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U. Ergebnisse von Meßvergleichen sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Insbesondere bei der analysierten Wasserprobe wurde eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Referenzwert erreicht.

Tabelle 1: Ergebnisse von Meßvergleichen an Proben der IAEO Wien. (BAF = Bergakademie Freiberg, eigene Resultate)

Proben- bezeichnung	Тур	Isotop	Einheit	Meßwert BAF	Referenzwert (Konfidenzintervall)
SD-N-1/2	Sediment	U-238 U-234	mBq/g mBq/g	30,2 ± 1,4 30,2 ± 1,4	29,5 (28,1–30,6) 29,2 (25,2–30,9)
W4	Wasser	U-238	μg/l	2,527 ± 0,038	2,49 (2,19–2,70)
IAEA-306	Sediment	U-238	mBq/g	65,2 ± 1,6	77 (65–95)
IAEA-312	Sediment	U-238	mBq/g	197,2 ± 4,5	202 (192–213)

Auch Untersuchungen von Ostseewasser [9] wurden mit hoher Genauigkeit der Messungen durchgeführt. Die aus der Messung von 24 Einzelproben mit maximal 2,2 % Salzgehalt extrapolierten Urangehalte von Ozeanwasser (normierter Salzgehalt 3,5 %) betragen 3,16 µg/l und liegen damit nur geringfügig unter der mittleren Urankonzentration im Ozean von 3,35  $\pm$  0,2 µg/l [15]. Das extrapolierte Aktivitätsverhältnis des Ozeanwassers beträgt 1,14  $\pm$  0,01 und stimmt damit exakt mit dem Wert nach [15] überein. Aus allen Test- und Vergleichsmessungen läßt sich ableiten, daß die Genauigkeit der Analysen praktisch durch die Zählstatistik bestimmt wurde und der Kalibrierfehler des Ausbeutetracers maximal 5 % betrug.

# 3 Meßergebnisse

Die Grundwasseruntersuchungen wurden in den in Abb. 1 gezeigten Gebieten durchgeführt.

- Oberes Vogtland: Untersucht wurden die Mineralwasservorkommen von Bad Brambach [10] und Bad Elster [11]. Die beiden geologischen Hauptstrukturen der Untersuchungsgebiete sind der Fichtelgebirgsgranit und der Phyllit.
- Erzgebirgisches Becken: Schwerpunkt der Untersuchung waren die für die Trinkwassergewinnung genutzten Sedimente des Rotliegenden (Mülsener und Leukersdorfer Schichten) im Erzgebirgischen Becken. Untergeordnet wurden auch tertiäre und quartäre Sande und Kiese erfaßt. Die kontaminierten Wässer des Standortes Crossen (Uranerzaufbereitung) wurden ausgeklammert. Eine detailliertere Beschreibung der regionalen Verteilung des gelösten Urans enthält [12].
- Gebiet Finne: Schwerpunkt der Untersuchung war der Buntsandstein-Grundwasserleiter zwischen Eckhardtsberga im Süden über Bad Bibra

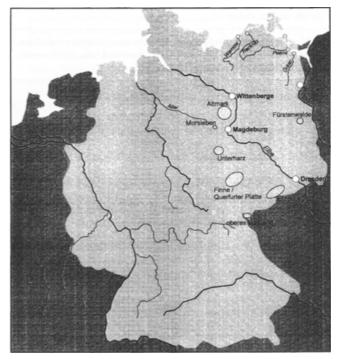


Abb. 1: Lage der Untersuchungsgebiete

bis Nebra/Karsdorf im Norden und angrenzender Gebiete der Querfurter Platte (Muschelkalk) [5, 9]. Einige Ergebnisse stammen auch aus dem Sandstein-Grundwasserleiter des nördlich anschließenden Bereichs (Schafstädt bis Bad Lauchstädt).

- Unterharz: Die Proben stammen aus dem Gebiet Sangerhausen-Eisleben und repräsentieren sehr unterschiedliche geologische Bedingungen.
- Gebiet Fürstenwalde [13]: Quartäre und tertiäre Sande und Kiese, zum Teil mit erhöhter Mineralisation bis über 20 000 mg/l ADR. Der größte Teil der Proben stammt aus den tieferliegenden tertiären Horizonten (3. bis 5. Grundwasserleiter).
- Altmark: Es wurden ausgewählte Einzelbrunnen in pleistozänen Sanden und Kiesen im Gebiet Klötze und Stendal beprobt.
- Umgebung von Morsleben (Endlager für radioaktive Abfälle): Das Untersuchungsgebiet des Allertalgrabens ist geologisch stark strukturiert. Eine orientierende Zuordung der Meßwerte zu den geologischen Einheiten enthält [7]. In die Auswertung einbezogen wurden nur die Proben aus Horizonten oberhalb des Salzspiegels.

In Tabelle 2 sind die Meßergebnisse der Urankonzentration von Grundwasserproben aus den genannten Gebieten in statistischen Kenngrößen zusammengefaßt. Angegeben werden die Anzahl der untersuchten Probenahmestellen (bei Mehrfachmessungen nur ein gemittelter Wert), der Minimal-, Maximal- und Medianwert der <sup>238</sup>U-Konzentration.

Tabelle 2: Kenngrößen von Meßergebnissen der Urankonzentrationen

Gebiet	Anzahi	<sup>238</sup> Umin in mBq/kg	<sup>238</sup> Umax in mBq/kg	Median in mBq/kg
Oberes Vogtland davon Bad Brambach	20 13	0,06 0,49	352 352	7 24
Erzgebirgisches Becken davon Rotliegendes	43 34	3,1 4,0	535 <sup>a</sup> 535	70 77
Finne davon Buntsandstein	42 38	1,5 1,5	1439 215,9	27 18
Unterharz	12	1,9	1191	170
Fürstenwalde	29	0,04	3,9	0,4
Morsleben	14	0,27	57,4	8
Altmark	12	0,05	20,5	1,4
Gesamt	172	0,04	1439	12
Vergleichsdaten [12] Berlin	31	0,43	566	18

in Wässern, die durch die Uranerzaufbereitung kontaminiert wurden bis über 10 000 mBq/l [12]

Die analoge Auswertung der Aktivitätsverhältnisse AU = <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U in den gemessenen Proben ist in **Tabelle 3** zusammengestellt. Zur Veranschaulichung des Datenbestandes sind in **Abb. 2** und **Abb. 3** Histogramme der Meßwerte dargestellt.

Die Messungen an Oberflächenwässern dienten zunächst zur allgemeinen Erhebung von Daten und der Prüfung von Variationen der Uran-Isotopengehalte in Abhängigkeit vom Probenahmeort und der Wasserführung. Dazu wurden einige Messungen am Flußsystem der Elbe durchgeführt. Im Zusammenhang mit einer Studie der Uranisotope in der Ostsee [9] wurden die wichtigsten ostdeutschen Zuflüsse zur Ostsee beprobt. Die Ergebnisse der Messungen an Oberflächengewässern enthält Tabelle 4. Zum Vergleich der Werte sind in Tabelle 5 Angaben von Flüssen aus der Literatur zusammengestellt.

In einigen Fällen wurden die abfiltrierten Schwebstoffe ebenfalls analysiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 mit

Tabelle 3: Kenngrößen von Meßergebnissen des Aktivitätsverhältnisses <sup>238</sup>U/<sup>234</sup>U

Gebiet	Anzahi	AU <sub>min</sub>	AU <sub>max</sub>	Median	
Oberes Vogtland davon Bad Brambach	19 <sup>a</sup> 13	0,88 0,88	3,31 3,31	1,54 2,0	
Erzgebirgisches Becken davon Rotliegendes	43 34	0,90 0,98	3,86 3,86	1,65 1,76	
Finne davon Buntsandstein	42 38	0,85 0,97	6,35 6,35	1,64 1,66	
Unterharz	12	1,11	2,79	1,32	
Fürstenwalde	29	1,0	4,95	2,08	
Morsleben	14	1,23	12,61	2,16	
Altmark	12	1,03	3,2	1,32	
Gesamt	171	0,85	12,61	1,66	
Vergleichsdaten [12] Berlin	31	0,85	1,50	1,16	

<sup>&</sup>lt;sup>a</sup> bei einer Probe war das Aktivitätsverhältnis nicht auswertbar

aufgeführt. Abhängig von den verfügbaren Bezugsgrößen werden die Gehalte bezogen auf die Trockenmasse der Schwebstoffe in mBq/g oder bezogen auf das filtrierte Wasservolumen in mBq/l angegeben.

#### 4 Diskussion

### 4.1 Grundwasser

In Abb. 2 ist das Histogramm aller Meßwerte in einer logarithmischen Klasseneinteilung der Konzentrationen dargestellt. Dieses Diagramm zeigt zum einen den großen Schwankungsbereich der Urankonzentrationen im Grundwasser, der auch ohne die hier ausgeklammerten Einflüsse des Uranerzbergbaus vier Größenordnungen umfaßt. Der geometrische Mittelwert aller Einzelwerte beträgt ca. 9 mBq/l und der Medianwert liegt bei etwa 12 mBq/l, das entspricht in etwa einer Massenkonzentration von 1 µg/l.

Die Unterschiede der Urankonzentrationen in den einzelnen Grundwasserleitern sind markant. Besonders niedrige Urankonzentrationen weisen die norddeutschen Lockergesteine auf. Hier liegen die Medianwerte von <sup>238</sup>U in der Größenordnung von 1 mBq/l. Die zum Vergleich aufgeführten Werte von Analysen aus dem Raum Berlin [14] sind in ihrer Aussagekraft wahrscheinlich eingeschränkt, da sie zumindest teilweise belastete Wässer von Deponiestandorten erfaßten. Sie zeigen aber, daß regional auch Medianwerte in der Größenordnung von 10 mBq/l möglich sind.

In den unvererzten Festgesteinen liegen die typischen Konzentrationen zwischen 10 und 100 mBq/l, wobei in einigen Regionen (hier z.B. Unterharz) auch deutlich höhere Werte, in anderen Gebieten, wie z.B. dem Phyllit des Fichtelgebirges, sehr niedrige Konzentrationen auftreten können. Von AURAND und GANS [1] wurden die mittleren Urankonzen-

Uran in Wässern Originalarbeiten

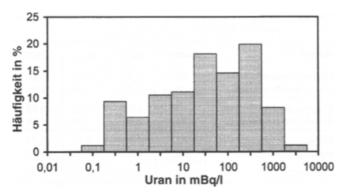


Abb. 2: Histogramm der gemessenen Urankonzentrationen im Grundwasser

trationen in Trinkwässern der alten Bundesländer zu 2 mBq/l <sup>238</sup>U angegeben. Nach der Arbeit von GANS [6] umfaßt der Schwankungsbereich von <sup>238</sup>U im Trinkwasser ein Intervall von 1 mBq/l bis etwa 500 mBq/l. Vom Institut für Wasser-, Boden und Lufthygiene Berlin wurden Trinkwässer in Sachsen und Thüringen analysiert [3]. Die 106 Einzelproben ergaben Urankonzentrationen von unter 0,1 mBq/l bis 480 mBq/l bei einem Medianwert von 19 mBq/l.

Die in dieser Arbeit beschriebenen Daten sind aufgrund der unterschiedlichen Herangehensweise an die Probenauswahl nicht direkt mit den o.g. Werten vergleichbar. Es zeigt sich jedoch eine gute Übereinstimmung sowohl bei den Wertebereichen als auch bei den Medianwerten der <sup>238</sup>U-Konzentrationen vor allem mit der Studie [3].

In Abb. 3 ist das Histogramm der gemessenen Aktivitätsverhältnisse von <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U mit Klassenbreiten von 0,25 dargestellt. Es zeigt ein deutliches Maximum bei Aktivitätsverhältnissen um 1,2, mit einem steilen Abfall zu kleineren Werten und einem relativ flachen Abfall zu höheren Werten hin. Im Unterschied zu den Arbeiten [1, 3, 5] wird durch die direkte Auswertung der Aktivitätsverhältnisse <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U deutlich, daß in den Grundwässern mit signifikant höheren <sup>234</sup>U-Aktivitäten als die von <sup>238</sup>U gerechnet werden muß.

Der Faktor des Nichtgleichgewichtes AU lag in den hier untersuchten Grundwasserleitern im Mittel bei etwa 1,6 bis 1,7 (Medianwert aller Proben), überstieg allerdings in mehr als 37 % der analysierten Proben den Wert 2,0 und immerhin noch bei 15 % den Wert 3,0. Der höchste gemessene AU-Wert in einem Trinkwasserbrunnen lag bei 6,2. Dieses Nichtgleichgewicht sollte bei der Berechnung von Dosisleistungen durch Ingestion nicht pauschal zu 1,0 angesetzt werden, da es einen spürbaren Beitrag zur radiologischen Gesamtbelastung des Wassers liefern kann (vgl. [8]). Einer massenbezogenen Urankonzentration von 10 µg/l entspricht bei AU = 3,0 eine Gesamtaktivität des gelösten Urans von 0,50 Bq/l gegenüber der konventionellen Abschätzung von 0,25 Bq/l.

Erfahrungen mit kontaminierten Wässern des Uranerzbergbaus [12] und die Auswertung von Literaturdaten [9] zeigen jedoch, daß bei sehr hohen Urankonzentrationen (über 1000 mBq/l) die AU-Werte meist nahe bei 1,0 liegen und in

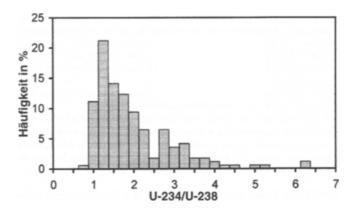


Abb. 3: Histogramm der gemessenen Aktivitätsverhältnisse <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U im Grundwasser (gleiche Proben wie in *Abb*. 2)

diesen Fällen die übliche Berechnung der Aktivitäten unter Annahme des Aktivitätsgleichgewichtes statthaft ist.

# 4.2 Oberflächenwasser

Der Wertebereich der Urankonzentrationen in den untersuchten Flüssen liegt zwischen 5 bis 50 mBq/l und ist damit wesentlich kleiner als der des Grundwassers. Als typische Urankonzentration kann man aus den relativ wenigen Messungen eine Größenordnung von 10 mBq/l ableiten. Vergleichswerte aus dem Einzugsgebiet des Rheins zeigen prinzipiell ähnliche Konzentrationen [16]. Wesentlich höhere Konzentrationen treten in Bächen auf, die durch den Uranerzbergbau kontaminiert wurden [4, 20].

Die Aktivitätsverhältnisse der Oberflächengewässer liegen i.a. nur wenig über dem Gleichgewichtswert von 1,0. Als typischen Wertebereich kann man aus diesen relativ wenigen Daten den Bereich  $1,25 \pm 0,20$  abschätzen. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit Angaben zum mittleren globalen AU-Wert in Flüssen [15,16].

Von den hier beschriebenen Untersuchungen wies die Aller den höchsten Urangehalt der Flüsse auf. Es sei darauf hingewiesen, daß diese Konzentration nicht durch Einflüsse des nahegelegenen Endlagers für radioaktive Abfälle in Morsleben verursacht wird, sondern schon stromoberhalb auftritt. Stromunterhalb des Endlagers kommt es sogar zu einer geringen Abnahme der Urankonzentration durch Zuflüsse von kleineren Bächen. Es muß sich deshalb um eine ausschließlich natürliche Herkunft des Urans handeln.

Am meisten Einzelmessungen liegen von der Elbe vor. Dabei wurden gezielt drei unterschiedliche Abflußsituationen beobachtet. In Tabelle 4 sind die Abflußmengen am Pegel Dresden mit aufgeführt. Sowohl die Urankonzentration als auch das Aktivitätsverhältnis reagieren auf die Abflußsituation.

Stichprobenhafte Einzelmessungen können daher nur ein orientierendes Bild der Gehalte oder Aktivitätsverhältnisse geben. Andererseits sind die Schwankungen nicht so erheblich, daß der Wert einzelner Messungen generell in Frage zu stellen ist.

Originalarbeiten

Tabelle 4: Meßergebnisse von Uran in Flüssen (Q: Abfluß)

	Ort	Datum	U in mBq/kg	<sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U	Bemerkungen
Flußsystem Elbe	_				
Elbe	Dresden	07.05.79	21	1,43 ± 0,04	$Q = 515 \text{ m}^3/\text{s}$
	Dresden	20.06.79	20,4 ± 1,5	$1.32 \pm 0.02$	$Q = 1037 \text{ m}^3/\text{s}$
	Dresden	13.09.79	$21.5 \pm 0.4$	$1.54 \pm 0.03$	$Q = 176 \text{ m}^3/\text{s}$
	Dresden	23.07.82	$32.9 \pm 1.4$	$1.42 \pm 0.03$	gelöst
		23.07.82	$(120 \pm 30) \cdot 10^3$	1,26 ± 0,05	Schwebstoff <sup>a</sup>
	Magdeburg	20.10.80	$^{1}44.2 \pm 1.20$	1.25 ± 0.02	
	Magdeburg	12.08.82	32,4 ± 1,7	1,21 ± 0,03	gelöst
		12.08.82	$3.9 \pm 0.4$	$1.15 \pm 0.04$	Schwebstoff b
	Wittenberge	16.08.82	$(116 \pm 12) \cdot 10^3$	1,13 + 0,06	Schwebstoff <sup>a</sup>
	Prelouce	04.09.81	$9,59 \pm 0,25$	1,42 ± 0,04	
Moldau	Prag	16.06.82	16,2 ± 0,7	1,20 ± 0,03	
Zuflüsse zur Ostsee					
Oder	Schwedt	21.08.82	8,1 ± 0,4	$1,40 \pm 0,03$	
Oderhaff	Grambin	20.08.82	$8,6 \pm 0,5$	$1,23 \pm 0,04$	
Ücker	Ückermünde	20.08.82	13,3 ± 0,7	1,07 ±0,06	
Peene	Anklam	19.08.82	$14,6 \pm 1,0$	$1,03 \pm 0,03$	
Peenestrom N	Wolgast	18.02.82	$11,3 \pm 0,7$	1,11 ± 0,03	
Peenestrom S	Brücke B 110	19.08.82	$11,3 \pm 0,4$	1,15 ± 0,03	
Recknitz	Mündung	Juni 83	12,4 ± 0,7	1,12 ± 0,05	gelöst
	_	Juni 83	$(27.0 \pm 3.7) \cdot 10^3$	1,08 ± 0,20	Schwebstoff <sup>a</sup>
Warnow	Rostock	Juni 83	$13,6 \pm 0,7$	1,03 ± 0,05	gelöst
	İ	Juni 83	$(23.4 \pm 2.5) \cdot 10^3$	1,13 ± 0,12	Schwebstoff a
Weichsel	Krakau	05.09.80	4,2 ± 0,1	1,75 ± 0,05	
Sonstige Flüsse					
Aller	Alleringersleben	08.03.90	80,0 ± 5,3	1,22 ± 0,10	
	Großbartensl.	08.03.90	$59.8 \pm 1.6$	$1,33 \pm 0,03$	
	Schwanefeld	08.03.90	58,5 ± 2,8	1,36 ± 0,06	

<sup>&</sup>lt;sup>a</sup> bezogen auf Trockenmasse; <sup>b</sup> bezogen auf Wasser

In Tabelle 5 sind Meßergebnisse aus der Elbe bei Hamburg vom Jahr 1991 aufgeführt, die in Verbindung mit den Werten der Tabelle 4 eine drastische Abnahme der Urankonzentration in der jüngeren Vergangenheit nahelegen. Danach sollte der Urangehalt von 50 mBq/l in den 70er Jahren auf unter 10 mBq/l in 1991 gefallen sein. Stichproben aus den Jahren 1980 und 1982 im Bereich Magdeburg ergaben Werte von etwa 40 mBq/l und entsprach damit in etwa dem Meßwert aus [19]. Andererseits betrugen im Jahr 1990 die Ableitungen aus den Uranbergbaubetrieben noch 24,84 t bzw. 6,21 · 10<sup>11</sup> Bq [20]. Bei einem mittleren Abfluß der Elbe von 566 m<sup>3</sup>/s am Pegel Magdeburg können diese Ableitungen eine zusätzliche Urankonzentration von 35 mBq/l verursachen. Inwieweit die Werte aus 1991 die Folgen der Einstellung des Uranabbaus in Sachsen und Thüringen widerspiegeln, wäre durch genauere Untersuchungen zu klären.

Die ostdeutschen Zuflüsse zur Ostsee sind offenbar durch Urankonzentrationen von ca. 10 mBq/l charakterisiert. Die eigenen Untersuchungen der Uranisotope in der Ostsee ergaben durch Extrapolation als mittleren Gehalt im Süßwasserzufluß einen Wert von  $1,7 \pm 0,5$  mBq/l bei AU =  $1,36 \pm 0,10$  [9]. Diese Werte werden durch andere Arbeiten [2, 18] prinzipiell bestätigt. Da aus Gründen des geologischen Untergrundes kaum davon auszugehen ist, daß die schwedischen und finnischen Flüsse sehr geringe Urangehalte aufweisen, muß der sehr geringe extrapolierte Urangehalt

Tabelle 5: Uran in anderen deutschen Flüssen (Angaben der zitierten Arbeiten in mBq/l umgerechnet und ggf. gerundet)

Fluß	Ort	Jahr	U in mBq/l	AU	Literatur- qu <del>e</del> lle
Rhein		ca. 1977	30,4 ± 1,5	1,29 ± 0,07	[16]
Lahn		ca. 1977	8,7 ± 0,5	1,91 ± 0,10	[16]
Mosel		ca. 1977	22,1 ± 2,5	$1,40 \pm 0,10$	[16]
Maas		ca. 1977	14,7 ± 2,5	1,60 ± 0,20	[16]
Nahe		ca. 1977	42,9 ± 2,5	$1,60 \pm 0,10$	[16]
Neckar	Stuttgart	1990/91	5,48	1,32	nach [17]
Elbe	Hamburg	vor 1977	50	k.A.	[19]
Elbe	Hamburg	1991	6,44	1,21	nach [17]
Mulde	Grimma	Nov. 1990	123 ± 5	1,05 ± 0,04	[4]
Havel	Berlin	1990/91	7,60	1,02	nach [17]

als Hinweis auf extrem geringe Konzentrationen der großen osteuropäischen Zuflüsse (insbesondere der Newa) oder auf Fällung bzw. Sorption von Uran in der Ostsee gewertet werden. Letzteres wird durch die erhöhten Urangehalte in einigen Sedimenten nahegelegt, ohne daß jedoch die Dynamik und Bilanz dieser Stoffflüsse bisher genauer beschrieben werden kann [18].

Da als Ort für die durch Fällungsreaktionen bedingte Verringerungen der Urankonzentration die Mündungsgebiete der Flüsse in Frage kommen (Mischungszone Salz- und Süßwasser), wurde versucht, anhand einiger Messungen im Oderhaff die Wirkung dieses Ästuars auf das Uran abzu-

schätzen. Die wenigen bisher verfügbaren Messungen am Oderhaff und seinen Zuflüssen Oder, Ücker und Peene liegen im Mischungsdiagramm ( $\rightarrow Abb.\ 4$ ) auf einer Geraden. Dieses Ergebnis zeigt, daß zumindest in diesem Ästuar keine wesentlichen Fällungen von Uran auftreten.

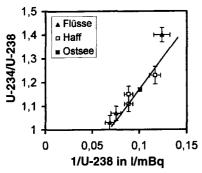


Abb. 4: Uran-Isotopensignaturen für Proben aus dem Oderhaff und seinen Zuflüssen in einem Mischungsdiagramm. Vergleichswert Ostsee berechnet für 0,8 % Salzgehalt [9]

#### Danksagung

Für die sorgfältige Durchführung der Laborarbeiten danken wir Frau Chr. BERGER, Freiberg.

### 5 Literatur

- K. AURAND; I. GANS: Radioaktive Stoffe und die Trinkwasserverordnung. In: K. AURAND et al. (Hrsg.): Die Trinkwasserverordnung. Berlin 1991
- [2] R. BOJANOWSKI; P. SZEFER (1979): Uranium in the Baltic water. Stud. Mater. Oceanol. 26, 253–274
- [3] TH. BUNGER; H. RUHLE (1993): Natürlich radioaktive Stoffe im Trinkwasser ausgewählter Gebiete in Sachsen und Thüringen. In: Umweltradioaktivität, Radioökologie, Strahlenwirkungen, Bd. I. Verlag TÜV Rheinland, Köln 1993, S. 85–92
- [4] J. FRIEDRICH: Uran und seine Isotope in Flußsedimenten aus vom Bergbau beeinflußten Gebieten. Unveröff. Diplomarbeit. Bergakademie Freiberg, Fachbereich Geowiss. (1991)
- [5] K. FRÖHLICH; R. GELLERMANN; D. HEBERT (1983): Uranium isotopes in a sandstone aquifer. Interpretation of data and implications for groundwater dating. In: Isotope Hydrology 1983. IAEA Vienna 1984, S. 447–466

- [6] I. Gans (1992): Natürlich radioaktive Stoffe im Trinkwasser: Bundesgesundheitsbl. 6, 300–301
- [7] R. GELLERMANN (1994): Auswertung von Isotopenuntersuchungen des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Unveröff. Bericht für das Bundesamt für Strahlenschutz, Trischler und Partner GmbH Braunschweig, 16.09.1994
- [8] R. GELLERMANN; H. DÖRR (1993): Bewertung der natürlichen Radioaktivität von Grundwasser. WLB Wasser, Luft und Boden 11/12
- [9] R. GELLERMANN; K. FRÖHLICH (1984): Nutzung der Uranisotope <sup>234</sup>U und <sup>238</sup>U in der Hydrologie und Hydrogeologie. Freiberger Forschungshefte C 397. Dt. Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig 1984
- [10] R. GELLERMANN; K. FRÖHLICH (1981): Uranium-Isotopenzusammensetzung des Grund- und Oberflächenwassers im Gebiet von Bad Brambach. Z. Physiother. 33, 223–226
- [11] R. GELLERMANN; U. KOCH; K. FRÖHLICH; D. HEBERT (1985): Isotopenphysikalische Untersuchungen der Mineralwässer von Bad Elster: Ergebnisse von Tritiummessungen sowie Bestimmungen der Uranium-Isotopenzusammensetzung. Z. Physiother. 37, 391–398
- [12] R. GELLERMANN; N. MOLITOR; P. RIPPER; K. NINDEL; B. MÜLLER; J. HEINECKE; W. STOLZ (1994): <sup>234</sup>U, <sup>238</sup>U im Grundwasser des Erzgebirgischen Beckens. Beiträge zur Hydrogeologie (Graz) 45, 55-68
- [13] R. GELLERMANN: R. TRETTIN; J. TESCH (1989): On the origin of saline groundwaters in an aquifer system determined with uranium isotopes. 5<sup>th</sup> Working Meeting Isotopes in Nature. Proceedings. Leipzig, September 1989, S. 487-498
- [14] H. KERNDORF; V. BRILL; R. SCHLEYER; P. FRIESEL; G. MILDE (1985): Erfassung grundwassergefährdender Altablagerungen. Bundesgesundheitsamt Berlin, WaBoLu Hefte 5
- [15] T.-L. Ku, K.G. KNAUSS, G.G. MATHIEU (1977): Uranium in open ocean: concentration and isotopic composition. Deep-Sea Res. 24, 1005–1017
- [16] A. MANGINI; C. SONNTAG; G. BERTSCH; E. MULLER (1979): Evidence for a higher natural uranium content in world rivers. Nature 278, 337–339
- [17] D. PLATH (1993): Übersicht über das Uranvorkommen im Oberflächen-, Grund- und Trinkwasser der Bundesrepublik Deutschland. In: Strahlenschutzvorsorge in Hessen. Jahresbericht 1992. Hess. Ministerium für Umwelt, Energie und Bundesangelegenheiten. Wiesbaden, Nov. 1993
- [18] A. PRANGE; K. KREMLING (1985): Distribution of dissolved molybdenum, uranium and vanadium in Baltic Sea waters. Mar. Chem. 16, 259-274
- [19] K. SCHWOCHAU; L. ASTHEIMER; H.J. SCHENK; J. SCHMITZ (1977): Verfahren zur Gewinnung von Uran aus dem Meerwasser. Bericht der Kernforschungsanlage Jülich GmbH, April 1977
- [20] Bundesamt für Strahlenschutz (1992): Umweltradioaktivität in den ostdeutschen Ländern – Jahresbericht 1990, St-Berichte 2/92. Berlin, September 1992

# Einschätzung der natürlichen Radioaktivität im Grundwasser

Rainer Gellermann, Helmut Dörr

Zusammenfassung (UWSF - Z. Umweltchem. Ökotox. 7/4, 205-211, 1995)

Für die Bewertung der natürlichen Radioaktivität im Wasser wurde von der Strahlenschutzkommission (SSK) eine Empfehlung erarbeitet. Um im Rahmen von orientierenden Umweltgutachten schon mit wenigen Leitparametern entscheiden zu können, welche Wässer als relativ unkritisch ausgesondert und welche zur Bewertung nach SSK-Empfehlung vertiefend untersucht werden sollten, wurde in dieser Arbeit ein Bewertungsvorschlag zur Diskussion gestellt. Der Vorschlag beruht auf der berechneten Strahlenexposition durch Nutzung eines Trinkwassers mit einer an typischen natürlichen Verhältnissen ausge-

richteten Nuklidzusammensetzung ("Referenzwerte"), dem Dosisgrenzwert von 0,5 mSv/a nach Empfehlungen der SSK sowie den Leitparametern U<sub>nat</sub>, 226Ra und/oder <sup>222</sup>Rn. Die Bewertung erfolgt mit den drei Bezugsniveaus A (Bezugswert für natürliche Konzentrationen), B (Testwert für genauere Untersuchungen), C (Referenzwert für die wahrscheinliche Überschreitung von 0,5 mSv/a). Im letzten Fall wird in Abhängigkeit von den Standort- und Nutzungsverhältnissen die Abstim mung des weiteren Vorgehens mit der zuständigen Behörde empfohlen.