

Universität de Neuchâtel (Suisse)
Faculté des Sciences

Institut de Géologie
Centre d'Hydrogéologie

Natürliche Radionuklide in Grundwässern des Kantons Graubünden

Dissertation

von

Otmar Deflorin

(dipl. Biologe (Universität Zürich), eidg. dipl. Lebensmittelchemiker)

zur Erlangung des akademischen Grades

Docteur ès Sciences

der

Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Universität Neuchâtel

16. Januar 2004

(Prüfungsdatum)

Jury:

Vorsitzender: Prof. D. Hunkeler, Centre d'hydrogéologie, Université de Neuchâtel

Gutachter: Prof. F. Zwahlen, Centre d'hydrogéologie, Université de Neuchâtel
PD Dr. W. P. Balderer, ETH Zürich
Prof. H. H. Loosli, Universität Bern
Prof. A. Kies, Université du Luxembourg
Dr. H. Surbeck, Centre d'hydrogéologie, Université de Neuchâtel

IMPRIMATUR POUR LA THESE

**Natürliche Radionuklide in Grundwässern
des Kantons Graubünden**

M. Otmar DEFLORIN

UNIVERSITE DE NEUCHATEL

FACULTE DES SCIENCES

La Faculté des sciences de l'Université de
Neuchâtel, sur le rapport des membres du jury

MM. D. Hunkeler (directeur de thèse), H. Surbeck (co-directeur de thèse),
F. Zwahlen, W.P. Balderer (Zürich), H.H. Loosli (Berne)
et A. Kies (Luxembourg)

autorise l'impression de la présente thèse.

Neuchâtel, le 5 mars 2004

La doyenne:



Martine Rahier



*Alles ist aus dem Wasser
entsprungen! Alles wird durch
das Wasser erhalten!*

Johann Wolfgang von Goethe (1749 bis 1832)

Inhaltsverzeichnis

INHALTSVERZEICHNIS	4
ABBILDUNGEN	7
TABELLEN	8
VORWORT	1
ZUSAMMENFASSUNG	3
SOMMAIRE	7
SUMMARY	11
RESUMAZIUN	15
1 EINLEITUNG	19
1.1 ZIEL DER ARBEIT	19
2 GEOLOGIE VON GRAUB ÜNDEN	21
2.1 DIE KRISTALLINEN MASSIVE	21
2.1.1 <i>Das Aarmassiv</i>	21
2.1.2 <i>Das Tavetscher Zwischenmassiv</i>	23
2.1.3 <i>Das Gotthardmassiv</i>	23
2.2 DAS PENNINIKUM.....	23
2.2.1 <i>Die Aduladecke</i>	24
2.2.2 <i>Penninische Bündnerschiefer und penninischer Flysch</i>	24
2.2.3 <i>Plattadecke und Zone von Arosa</i>	24
2.3 DAS HELVETIKUM.....	25
2.4 DAS OSTALPIN.....	25
2.4.1 <i>Unterostalpin</i>	25
2.4.2 <i>Oberostalpin</i>	26
2.5 BERGELLER-GRANIT	26
2.6 QUARTÄRE ABLAGERUNGEN.....	26
2.7 AQUIFERE.....	27
3 HYDROCHEMIE	28
3.1 WASSER ALS STOFF	28
3.2 WASSER ALS LÖSUNGSMITTEL.....	29
3.3 WASSER GEMÄSS LEBENSMITTELRECHT	32
3.4 WASSER DEFINIERT NACH HYDROGEOLOGISCHEN KRITERIEN.....	32
4 RADIOAKTIVITÄT	33
4.1 KERNSTRAHLUNG	33
4.1.1 <i>Alpha-Zerfall</i>	33
4.1.2 <i>Beta-Zerfall</i>	34
4.1.3 <i>Gamma-Zerfall</i>	34
4.1.4 <i>Zerfallsgesetz</i>	34
4.2 EINHEITEN.....	35
4.2.1 <i>Aktivität</i>	35
4.2.2 <i>Spezifische Aktivität</i>	36
4.2.3 <i>Äquivalentdosis</i>	36
4.3 RADIOAKTIVITÄT VON GRUNDWASSER	37
5 GEOCHEMIE	38
5.1 URAN.....	38
5.2 THORIUM	42

5.3	RADIUM.....	44
5.4	RADON.....	46
5.5	RADIOAKTIVE UNGLEICHGEWICHTE.....	48
6	GESAMTÜBERBLICK ÜBER NATÜRLICHE RADIONUKLIDE IM TRINKWASSER IN GRAUBÜNDEN	52
6.1	PROBENAHE.....	52
6.2	UNTERSUCHTE PARAMETER.....	52
6.3	BESTIMMUNG VON ²²⁶ Ra UND ²²⁸ Ra IN WASSER MITTELS ALPHA-SPEKTROMETRIE.....	52
6.3.1	<i>Prinzip.....</i>	52
6.3.2	<i>Reagenzien und Materialien.....</i>	52
6.3.3	<i>Beschichten der Polyamidplättchen.....</i>	53
6.3.4	<i>Probenvorbehandlung.....</i>	53
6.3.5	<i>Messung und Kalibrierung von ²²⁶Ra.....</i>	54
6.3.6	<i>Berechnung von ²²⁶Ra.....</i>	54
6.3.7	<i>²²⁸Ra.....</i>	55
6.3.8	<i>Messung und Kalibrierung von ²²⁸Ra.....</i>	57
6.3.9	<i>Berechnung von ²²⁸Ra.....</i>	58
6.4	BESTIMMUNG VON ²²² Rn IN WASSER MITTELS ALPHA-SPEKTROMETRIE.....	58
6.4.1	<i>Prinzip.....</i>	58
6.4.2	<i>Reagenzien und Materialien.....</i>	59
6.4.3	<i>Probenahme.....</i>	59
6.4.4	<i>Spülen.....</i>	59
6.4.5	<i>Messung.....</i>	59
6.4.6	<i>Resultate und Berechnung.....</i>	60
6.5	RESULTATE.....	60
6.5.1	<i>²³⁸U.....</i>	60
6.5.2	<i>²²⁶Ra.....</i>	62
6.5.3	<i>²²⁸Ra.....</i>	63
6.5.4	<i>²²²Rn.....</i>	64
6.6	DISKUSSION.....	65
6.6.1	<i>Vergleich der Resultate mit den lebensmittelrechtlich festgelegten Höchstkonzentrationen</i>	65
6.6.2	<i>Dosisabschätzung.....</i>	66
6.7	KORRELATIONEN ZWISCHEN DEN EINZELNEN RADIONUKLIDEN.....	68
6.8	SCHLUSSFOLGERUNGEN.....	70
7	GESAMTÜBERBLICK ÜBER NATÜRLICHE RADIONUKLIDE IN MINERALWASSER IN GRAUBÜNDEN	71
7.1	PROBENAHE.....	71
7.2	RESULTATE.....	71
7.2.1	<i>²³⁸U.....</i>	72
7.2.2	<i>²²⁶Ra.....</i>	72
7.2.3	<i>²²⁸Ra.....</i>	73
7.2.4	<i>²²²Rn.....</i>	74
7.3	DISKUSSION.....	74
7.3.1	<i>Vergleich des natürlichen Radionuklidgehaltes zwischen Mineralwasser und Trinkwasser.....</i>	75
7.3.2	<i>Zusammenhänge zwischen natürlichen Radionukliden in Mineralwässern und anderen chemischen Parametern.....</i>	76
8	ZUSAMMENHÄNGE ZWISCHEN RADON IN WOHNÄUMEN UND NATÜRLICHEN RADIONUKLIDEN IM TRINKWASSER.....	82
8.1	GESCHICHTLICH-MEDIZINISCHER EXKURS.....	82
8.2	GEBIETSEINTEILUNG.....	82
8.3	MESSUNGEN UND MASSNAHMEN.....	83
8.4	VERGLEICH DER RADIONUKLIDGEHALTE IN QUELL- UND GRUNDWÄSSERN MIT DEN RADONKONZENTRATIONEN IN DER LUFT VON WOHNÄUMEN.....	84
8.5	PRINZIP DER VIERFELDERTAFEL.....	87
8.6	STATISTISCHE AUSWERTUNG DER RADON-GEBIETSEINTEILUNG AUFGRUND DER KONZENTRATIONEN VON ²²² Rn, ²³⁸ U, ²²⁶ Ra UND ²²⁸ Ra IN GRUND- UND QUELLWÄSSERN.....	88
8.6.1	<i>²²²Rn.....</i>	88
8.6.2	<i>²³⁸U.....</i>	89

8.6.3	^{226}Ra	90
8.6.4	^{228}Ra	90
8.7	DISKUSSION.....	91
8.8	SCHLUSSFOLGERUNGEN.....	92
9	AUSGEWÄHLTE HOT-SPOTS	94
9.1	PLACIDUSQUELLE IN DISENTIS.....	95
9.1.1	<i>Historischer Exkurs</i>	95
9.1.2	<i>Allgemeine Übersicht</i>	96
9.1.3	<i>Geologische Übersicht</i>	97
9.1.4	<i>Hydrogeologische Verhältnisse</i>	98
9.1.5	<i>Chemische und physikalische Wasseranalysen</i>	99
9.1.5.1	Leitfähigkeit, Temperatur.....	100
9.1.5.2	Kontinuierliche Radonmessungen.....	102
9.1.6	<i>Wieviel ^{226}Ra braucht es um die ^{222}Rn-Aktivität im Wasser der Placidus-Quelle zu liefern?</i>	104
9.1.7	<i>Bildung von Eisenhydroxiden</i>	105
9.1.8	<i>Massenbilanzen</i>	106
9.1.9	<i>Hydrogeologisches Fliessmodell der Placidusquelle</i>	108
9.2	TRINKWASSERQUELLE LEIS IN VALS.....	109
9.2.1	<i>Allgemeine Übersicht</i>	109
9.2.2	<i>Geologische Übersicht</i>	109
9.2.2.1	Felsgesteine und Felsoberfläche.....	109
9.2.2.2	Lockergesteine.....	110
9.2.3	<i>Hydrogeologische Verhältnisse</i>	111
9.2.4	<i>Chemische und physikalische Wasseranalysen</i>	112
9.2.4.1	Leitfähigkeit, Temperatur, pH.....	113
9.2.4.2	Ionenkonzentrationen.....	113
9.2.4.3	Radionuklidkonzentrationen.....	113
9.3	MINERALWASSERQUELLE BERGÜN.....	114
9.3.1	<i>Geologische Übersicht</i>	114
9.3.2	<i>Hydrogeologische Verhältnisse</i>	115
9.3.3	<i>Chemische und physikalische Wasseranalysen</i>	116
9.3.3.1	Leitfähigkeit, Temperatur, pH.....	118
9.3.3.2	Ionenkonzentrationen.....	118
9.3.3.3	Radionuklidkonzentrationen.....	118
9.4	TRINKWASSERQUELLEN IM VAL POSCHIAVO.....	119
9.4.1	<i>Geologische Übersicht</i>	119
9.4.2	<i>Hydrogeologische Verhältnisse</i>	119
9.5	TRINKWASSERQUELLE PEDECOSTA.....	120
9.5.1	<i>Allgemeine Übersicht</i>	120
9.5.2	<i>Chemische und physikalische Wasseranalysen</i>	120
9.5.2.1	Leitfähigkeit, Temperatur, pH.....	121
9.5.2.2	Ionenkonzentrationen.....	121
9.5.2.3	Radionuklidkonzentrationen.....	122
9.6	TRINKWASSERQUELLEN PAGNONCINI.....	122
9.6.1	<i>Allgemeine Übersicht</i>	122
9.6.2	<i>Chemische und physikalische Wasseranalysen</i>	123
9.6.2.1	Leitfähigkeit, Temperatur, pH.....	125
9.6.2.2	Ionenkonzentrationen.....	125
9.6.2.3	Radionuklidkonzentrationen.....	125
9.7	VERGLEICHE ZWISCHEN DEN EINZELNEN HOT-SPOTS.....	126
9.7.1	<i>Geologische Vergleiche</i>	126
9.7.2	<i>Hydrogeologische Vergleiche</i>	126
9.7.3	<i>Schlussfolgerungen und Ausblick</i>	127
9.8	RADON-LUFTMESSUNGEN PLACIDUSQUELLE UND QUELLE LEIS.....	128
9.8.1	<i>Durchführung der Messungen</i>	128
9.8.2	<i>Resultate</i>	128
9.8.3	<i>Umrechnung Radonkonzentration im Reservoir auf Privathaushalt</i>	130
10	SCHLUSSFOLGERUNGEN UND AUSBLICK.....	132
10.1	SCHLUSSFOLGERUNGEN.....	132
10.2	AUSBLICK.....	135
11	STATISTISCHE GRÖSSEN	136

11.1	QUALITÄTSREGELKARTEN.....	140
11.2	VALIDIERUNG VON ANALYSENMETHODEN.....	142
11.3	ERMITTLUNG DER VALIDIERUNGSPARAMETER.....	145
11.4	SCHÄTZEN DER MESSUNSICHERHEIT	148
11.5	ABSCHÄTZUNG NACH HORWITZ.....	149
11.6	KORREKTUR MIT HORRAT-FAKTOR.....	149
11.7	VOLLSTÄNDIGE ABSCHÄTZUNG NACH EURACHEM	150
11.8	WICHTIGE KENNZAHLEN DER UNTERSUCHTEN PARAMETER.....	150
12	LITERATURLISTE.....	153
13	ANHANG.....	162

Abbildungen

Abb. 1:	Vereinfachte tektonische Karte Graubündens (bearbeitet durch F. Gainon nach Spicher 1980).....	22
Abb. 2:	Wassermolekül.....	28
Abb. 3:	Schema zur Mineralisation des Grundwassers	31
Abb. 4:	²³⁸ U-Reihe (nach Surbeck 1995).....	38
Abb. 5:	Actinium-Reihe (nach Surbeck 1995).....	39
Abb. 6:	Spezies der UO ₂ ²⁺ -Verbindungen.....	41
Abb. 7:	Thorium-Reihe (nach Surbeck 1995).....	43
Abb. 8:	Ostwaldkoeffizient k von Radon im System Wasser-Luft in Abhängigkeit von der Temperatur.....	47
Abb. 9:	Verlagerung von Radon-Atomen durch den Zerfall von Radium in oder auf Mineralkörnern.....	47
Abb. 10:	Übersicht über die Isotopen der Uran- und Thorium Reihen.....	49
Abb. 11:	Schematische Darstellung der Wechselwirkung Gesteinskorn-Kornoberfläche-Wasser	50
Abb. 12:	Die im Grundwasser hauptsächlich zu erwartenden Radionuklide.....	51
Abb. 13:	Exposition des mit Manganoxid beschichtet Plättchens in der Wasserprobe.....	53
Abb. 14:	Messkette zur Bestimmung des Radiumgehaltes in Wasser	54
Abb. 15:	Bestimmung des ²²⁸ Ra.....	55
Abb. 16:	Aufbau des ²²⁸ Th aus dem ²²⁸ Ra.....	56
Abb. 17:	Zerfallsreihe des ²²⁸ Th.....	56
Abb. 18:	Theoretisches Alpha-Spektrum einer > 10 Tage alten ²²⁸ Th-Probe.....	57
Abb. 19:	Alpha Spektrum einer Messung.....	57
Abb. 20:	Messkette (RAD7) zur Bestimmung des Radongehaltes in Wasser.....	59
Abb. 21:	Übersichtskarte Kanton Graubünden für ²³⁸ U.....	61
Abb. 22:	Summenhäufigkeit der ²³⁸ U-Aktivitätskonzentrationen.....	61
Abb. 23:	Übersichtskarte Kanton Graubünden für ²²⁶ Ra.....	62
Abb. 24:	Summenhäufigkeit der ²²⁶ Ra-Aktivitätskonzentrationen.....	62
Abb. 25:	Übersichtskarte Kanton Graubünden für ²²⁸ Ra.....	63
Abb. 26:	Summenhäufigkeit der ²²⁸ Ra-Aktivitätskonzentrationen.....	63
Abb. 27:	Übersichtskarte Kanton Graubünden für ²²² Rn.....	64
Abb. 28:	Summenhäufigkeit der ²²² Rn-Aktivitätskonzentrationen.....	65
Abb. 29:	Summenhäufigkeit der Jahresdosen für vier Altersklassen.....	67
Abb. 30:	Beitrag zur Dosis der gemessenen Uran-, ²²⁶ Ra- und ²²⁸ Ra-Konzentrationen.....	68
Abb. 31:	Korrelationen zwischen den Gehalten an ²²⁶ Ra, ²³⁸ U, ²²² Rn und ²²⁸ Ra.....	69
Abb. 32:	Modellvorstellung über den Zusammenhang zwischen Radium- und Radon-Konzentrationen.....	70
Abb. 33:	Vergleich der Summenhäufigkeit der ²³⁸ U-Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern.....	72
Abb. 34:	Vergleich der Summenhäufigkeit der ²²⁶ Ra-Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern.....	73
Abb. 35:	Vergleich der Summenhäufigkeit der ²²⁸ Ra-Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern.....	73
Abb. 36:	Vergleich der Summenhäufigkeit der ²²² Rn-Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern.....	74
Abb. 37:	Vergleich der Gehalte an ²³⁸ U und ²²² Rn mit der elektr. Leitfähigkeit.....	75
Abb. 38:	Vergleich der Gehalte an ²²⁶ Ra und ²²⁸ Ra mit der elektr. Leitfähigkeit.....	76
Abb. 39:	Erklärung zur Darstellung der folgenden Diagramme	77
Abb. 40:	Relativer Vergleich der Gehalte an Uran mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern.....	78
Abb. 41:	Relativer Vergleich der Gehalte an ²²⁶ Ra mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern.....	79
Abb. 42:	Relativer Vergleich der Gehalte an ²²⁸ Ra mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern.....	80
Abb. 43:	Relativer Vergleich der Gehalte an ²²² Rn mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern.....	81
Abb. 44:	Eindringen von radonreicher Bodenluft in Gebäude.....	82
Abb. 45:	Radon in Raumluft von Wohnräumen. Gemeindegkarte Kanton Graubünden.....	84
Abb. 46:	²²² Rn in Grund- und Quellwasser. Gemeindegkarte Kanton Graubünden.....	85

Inhaltsverzeichnis

Abb. 47:	²³⁸ U in Grund- und Quellwasser. Gemeindegarte Kanton Graubünden.....	85
Abb. 48:	²²⁶ Ra in Grund- und Quellwasser. Gemeindegarte Kanton Graubünden.....	86
Abb. 49:	²²⁸ Ra in Grund- und Quellwasser. Gemeindegarte Kanton Graubünden.....	86
Abb. 50:	Untergrund beim Einzugsgebiet des Wassers und dem Standort des Gebäudes.....	92
Abb. 51:	Reliefkarte Kanton Graubünden mit den eingetragenen Hot-Spots.....	95
Abb. 52:	Längenprofil der Neufassung 1951/1952 der Placidusquelle.....	96
Abb. 53:	Lokale, geologische Übersicht der Region bei Disentis.....	97
Abb. 54:	Geologischer Nord-Süd Schnitt entlang der NEAT Tunnelbaustelle Alptransit.....	98
Abb. 55:	Lokale, hydrogeologische Übersicht der Region bei Disentis.....	99
Abb. 56:	Schematische Darstellung der kontinuierlichen Leitfähigkeits- und Temperaturmessung.....	100
Abb. 57:	Vergleich der Niederschlagsereignisse mit der elektrischen Leitfähigkeit an der Placidusquelle.....	101
Abb. 58:	Grafische Darstellung der kontinuierliche Radonmessungen an der Placidusquelle.....	102
Abb. 59:	Schematische Darstellung der Messapparatur für die kontinuierliche Radonmessungen.....	103
Abb. 60:	Grafische Darstellung der kontinuierliche Radonmessungen an der Placidusquelle.....	103
Abb. 61:	Vereinfachtes Modell der ²²² Rn-Produktion bei der Placidusquelle.....	105
Abb. 62:	Hydrogeologisches Fliessmodell der Placidusquelle.....	108
Abb. 63:	Quelle Leis.....	109
Abb. 64:	Geologischer WNW-ES Schnitt der linken Talseite des Valsertals.....	110
Abb. 65:	Hydrogeologisches Fliessmodell für die Mineralquellen von Vals.....	111
Abb. 66:	Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Leis.....	113
Abb. 67:	Reservoir der Mineralwasserquelle Bergün.....	114
Abb. 68:	Generelles Querprofil durch die Berge östlich der Route Filisur-Preda.....	115
Abb. 69:	Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Mineralwasserquelle Bergün.....	117
Abb. 70:	Ost-West Profile zur tektonischen Karte des Berninamassivs.....	119
Abb. 71:	Reservoir der Quelle Pedecosta.....	120
Abb. 72:	Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Pedecosta.....	121
Abb. 73:	Quellen in Pagnoncini.....	122
Abb. 74:	Längenprofil der Quellfassungen Al Bait.....	122
Abb. 75:	Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Al Bait.....	123
Abb. 76:	Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Sass da Li Rondolli.....	125
Abb. 77:	Dreiecksdiagramme der Äquivalentkonzentrationen der Hauptkationen und -anionen.....	127
Abb. 78:	Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide.....	127
Abb. 79:	Reservoir der Placidusquelle und Reservoir der Quelle Leis.....	128
Abb. 80:	Kontinuierliche Radonmessung der Luft im Reservoir der Placidusquelle.....	129
Abb. 81:	Kontinuierliche Radonmessung der Luft im Reservoir der Quelle Leis.....	130
Abb. 82:	Qualitätsregelkarte mit eingetragenen Kontrollwerten.....	141
Abb. 83:	Die Kombination von Richtigkeit und Präzision führt zur Genauigkeit.....	145
Abb. 84:	Schematische Darstellung statistischer Kenndaten einer Analysenmethode.....	147

Tabellen

Tab. 1:	Wichtige Kennzahlen von Wasser.....	29
Tab. 2:	Strahlungs-Wichtungsfaktor für die Ganzkörperexposition von aussen.....	37
Tab. 3:	Typische Konzentrationsbereiche für natürliche Radionuklide im Grundwasser.....	37
Tab. 4:	²³⁸ U-Aktivitätskonzentrationen in Gesteinen.....	40
Tab. 5:	Uran-Konzentrationen im Wasser.....	42
Tab. 6:	²³² Th-Aktivitätskonzentrationen in Gesteinen.....	43
Tab. 7:	Konsumraten und Dosisfaktoren des Deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz.....	67
Tab. 8:	Bewertung des Konkordanzindex Kappa.....	88
Tab. 9:	Liste der Orte, die beprobt und untersucht wurden.....	94
Tab. 10:	Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Placidusquelle.....	100
Tab. 11:	Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Leis.....	113
Tab. 12:	Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Mineralwasserquelle Bergün.....	117
Tab. 13:	Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Pedecosta.....	121
Tab. 14:	Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Al Bait.....	124
Tab. 15:	Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Sass da Li Rondolli.....	125
Tab. 16:	Zusammenstellung der Qualitätsregelkarten und ihres Einsatzbereichs.....	142
Tab. 17:	Wichtige Kennzahlen der untersuchten Parameter.....	152

Vorwort

Es waren sicher mehrere Gründe, die mich dazu bewogen haben, eine Dissertation über die natürlichen Radionuklide in Grundwässern in Graubünden zu beginnen. Ich habe nach meiner Schul- und Studienzeit immer grossen Wert auf Aus- und Weiterbildung gelegt. Als Kantonschemiker besteht meine Tätigkeit zu einem grossen Teil aus administrativen und organisatorischen Aufgaben. Die praktischen, naturwissenschaftlichen Aufgaben treten immer mehr in den Hintergrund. Als Verantwortlicher für die Lebensmittelsicherheit im Kanton Graubünden gilt ein ganz besonderes Augenmerk dem Trinkwasser, dem wichtigsten Lebensmittel. Die Einteilung des Kantons Graubünden in Radongebiete sowie Radioaktivitätsmessungen in verschiedenen Lebensmitteln und Umweltproben stellen weitere Aufgaben des Kantonalen Labors dar. Wahrscheinlich war es eine Kombination all dieser Gründe, die dazu geführt hat, mich der Herausforderungen einer Dissertation zu stellen. Mir war von Anfang an klar, dass der erfolgreiche Abschluss dieses Forschungsprojektes sehr viel Geduld, Ausdauer, Beobachtungsgabe, Zielstrebigkeit, Präzision und Selbstdisziplin abverlangen würde. Unterstützt durch meine Arbeitgeberin, der kantonalen Verwaltung, gefördert durch verschiedene Personen, die sich mit Wasser, Radon und Radioaktivität befassen und nicht zuletzt durch meine Familie, habe ich dieses Projekt in Angriff genommen. Erfreulicherweise fand ich im Centre d' Hydrogéologie (CHYN) an der Universität Neuchâtel in der Person von Prof. F. Zwahlen und Dr. H. Surbeck zwei ausgezeichnete Fachexperten auf dem Gebiet der Hydrogeologie und der Radioaktivitätsmessung in Wässern, die sich für mein Projekt interessierten und sich als Directeur de thèse bzw. Gutachter zur Verfügung stellten. Zusätzlich konnte Prof. D. Hunkeler vom CHYN, PD Dr. W.P. Balderer von der ETH Zürich, Prof. H.H. Loosli von der Universität Bern und Prof. A. Kies vom Centre Universitaire de Luxembourg für die Jury gewonnen werden.

Durch diese Arbeit und durch die Diskussionen mit Fachpersonen aus den verschiedensten Fachgebieten konnte ich meinen Wissenshorizont um einiges erweitern. Neben der fachlichen Weiterbildung knüpfte ich aber auch viele neue Bekanntschaften und Freundschaften. Durch diese Arbeit bin ich um eine wichtige Lebenserfahrung reicher geworden, die für meine berufliche Tätigkeit wie auch für mich persönlich sehr wertvoll und nützlich ist. Diese Arbeit wäre aber ohne die gute Zusammenarbeit mit vielen anderen Personen und Institutionen nicht möglich gewesen. Bei all denen, die in irgend einer Form zum erfolgreichen Gelingen dieses Projektes beigetragen haben, möchte ich mich herzlich bedanken.

Den Mitgliedern des CHYN, insbesondere Heinz Surbeck - ohne dessen tatkräftige und ideenreiche Unterstützung ich wohl manchmal verloren gewesen wäre - und François Gainon, möchte ich für die vielen Fachdiskussionen und die gute Zusammenarbeit während der ganzen Arbeit herzlich danken.

Mein Dank gilt auch den Mitarbeitenden des Kantonalen Labors und Lebensmittelkontrolle Graubünden für die Unterstützung beim Erheben und Untersuchen der Proben, insbesondere Martin Lutz und Roland Fiechter für die Radonmessungen, Hans-Jörg Bowald für die Radium- und ICP-Messungen, Renato Feurer und Rosmarie Herzog für die chemischen Untersuchungen, Peter Lang, Christian Ambühl, Georg Huber, Erwin Badertscher, Meinrad Monsch, Kaspar Fausch, Hansruedi Ryffel und Thomas Halter für das Organisieren und Erheben von Proben, Urs Ackermann und Dietmar Baumann für die fruchtbaren Fachdiskussionen und die EDV-Unterstützung.

Dem Kantonalen Labor Zürich, besonders Daniel Imhof und Susanne Pfenninger und den Mitarbeitenden der Abteilung "Elemente" danke ich für die Durchführung der ICP-MS-Messungen. Toni Kaufmann danke ich für die Unterstützung bei den statistischen Auswertungen.

Marionna Bergamin und Donat Rischatsch vom GIS-Kompetenzzentrum Graubünden danke ich für das Erstellen der geografischen Karten.

Mein Dank gilt auch Rico Flury, Präsident der Wasserkorporation Spina da Vin für den Zugang zur Placidusquelle in Disentis. Den Brunnenmeistern Andreas Rapold von Vals, Peter Geeser von Bergün und Carlo Cramerli von Poschiavo danke für die monatlichen Probenerhebungen.

Tina Casura danke ich für die Hilfe bei der Übersetzung der Zusammenfassung ins Englische und Hans-Sepp Walker für die Übersetzung ins Französische.

Ein grosses Dankeschön gebührt auch meiner Familie. Meinen Eltern danke ich, dass sie mich immer unterstützt haben und mir mein Studium überhaupt ermöglicht haben. Einen besonderen Dank geht an meine Kinder Remo, Nadine, Selina und vor allem an meine Frau Claudia. Sie haben mich während der ganzen Zeit aufgemuntert und sehr viel Verständnis für meine Abwesenheiten aufgebracht. Ihnen möchte ich diese Arbeit widmen.

Zusammenfassung

Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen des ^{238}U , des ^{232}Th und des ^{235}U sind in der Erdkruste allgegenwärtig und daher auch im Grundwasser zu finden. In kristallinen Gesteinen sind sie häufig in Schwermineralien eingeschlossen und damit schlecht auslaugbar. Für das Wasser leichter zugänglich sind die Radionuklide in Sekundärmineralisationen auf Klüften und angelagert an Eisen- und Mangan-Hydroxiden in Sedimenten und Lockersedimenten. Geologische Karten, selbst in Kombination mit Daten über den Radionuklidgehalt der Gesteine, sind wenig hilfreich bei der Suche nach erhöhten Konzentrationen in Grund- und Quellwässern. Wesentlicher als der durchschnittliche Radionuklidgehalt der Gesteine sind lokale geochemische Parameter wie pH, Redox-Potential, Element-Zusammensetzung und Aufenthaltszeit der Wässer. Das gilt besonders für das Auftreten des ^{222}Rn , das mit einer Halbwertszeit von nur 3.8 Tagen durch die sehr lokalen geochemischen Verhältnisse bestimmt wird. Für eine gezielte Suche nach Wässern mit erhöhten Konzentrationen an natürlichen Radionukliden ist das Verständnis für das Auftreten solcher Hot-Spots sehr wichtig.

Um die eventuelle Gesundheitsgefährdung durch natürliche Radionuklide im Trinkwasser beurteilen zu können, kann man daher nicht auf die Messung dieser Wässer verzichten. Da Trinkwasser - als wichtigstes Lebensmittel - einen ganz besonderen Stellenwert genießt, war das Hauptziel dieser Arbeit einen Gesamtüberblick über die natürliche, radioaktive Belastung von Trinkwasser in Graubünden zu erhalten, um in der Folge deren humantoxikologischen sowie lebensmittelrechtlichen Konsequenzen beurteilen zu können.

Der Schwerpunkt dieser Betrachtungen lag in erster Linie auf der Qualität der Grund-, Quell- und Mineralwässer und damit auf deren Einfluss auf die Gesundheit der Bevölkerung beim Konsum dieser Wässer. Bis anhin wurden nur sporadische Messungen von natürlichen Radionukliden in Wässern durchgeführt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zum ersten Mal über einen ganzen Kanton derartige, flächendeckende Untersuchungen durchgeführt. Dies trifft insbesondere bei den Messungen von Radium und vor allem von ^{228}Ra zu, welches sonst sehr selten gemessen wird, bei Kleinkindern jedoch erheblich zur Strahlendosis beitragen kann

Im ersten Teil dieser Arbeit findet sich eine allgemeine Einführung in Themen, welche im Rahmen dieser Dissertation von Bedeutung sind. Im Kapitel "Geologie" wird zuerst ein geologisch-tektonischer Überblick über den Kanton Graubünden gegeben. Anschliessend werden die verschiedenen tektonischen Einheiten näher erläutert, wobei die wesentlichen Punkte aus bereits bestehenden Arbeiten in übersichtlicher und vereinfachter Form zusammengefasst werden.

Im Kapitel "Hydrochemie" erfolgt eine einfache, allgemeine Einführung über das Wasser als chemischer Stoff sowie als Lösungsmittel. Zudem werden die verschiedenen Definitionen von Wasser nach lebensmittelrechtlichen sowie hydrogeologischen Aspekten dargestellt.

Das Kapitel "Radioaktivität" umreißt die verschiedenen Arten von Kernstrahlungen, das Zerfallsgesetz und die am häufigsten verwendeten Masseinheiten. Zudem werden typische Aktivitätskonzentrationen für natürliche Radionuklide im Grundwasser und deren lebensmittelrechtliche Grenzwerte dargestellt.

Im Kapitel "Geochemie" werden die natürlichen Radionuklide Uran, Thorium, Radium und Radon allgemein charakterisiert. Dabei werden die einzelnen Isotopenzusammensetzungen und die entsprechenden Zerfallsreihen dargestellt. Die natürlichen Radionuklide werden bezüglich ihrer Entstehungsarten, Anreicherungen, Formen, Verbindungen und Vorkommen beschrieben.

Im zweiten Teil dieser Arbeit werden die Ergebnisse und Schlussfolgerungen der Untersuchungen dargestellt. Dabei wurden in einer ersten Phase sämtliche Trinkwasserversorgungen der 208 Gemeinden im Kanton Graubünden beprobt. Bei Quellwasser wurden die Proben in den Reservoirs entnommen, bei Grundwasser wurden die

Proben in den Pumpwerken erhoben. Insgesamt wurden 330 Proben Quellwasser und 30 Proben Grundwasser untersucht. Die mittleren Aktivitäten von ^{238}U und ^{226}Ra lagen mit etwa 15 mBq/l in den gleichen Bereichen. Die Aktivitäten von ^{222}Rn lagen etwa um einen Faktor 1000 höher als bei ^{238}U und ^{226}Ra . Die für sämtliche Trinkwassernetze des Kantons Graubünden bestimmten Gehalte an ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra und U zeigen, dass die lebensmittelrechtlich festgelegten Höchstkonzentrationen für diese natürlichen Inhaltsstoffe bei weitem nicht erreicht werden. Auch eine Abschätzung der durch das ^{226}Ra , das ^{228}Ra und das Uran verursachten Strahlendosen lassen keinerlei Gefährdung der Gesundheit erkennen. Die Erhöhung der Radonkonzentration in Gebäuden durch Leitungswasser ist abhängig von verschiedenen Parametern wie dem Gesamtwasserverbrauch im Gebäude, dem Raumvolumen des Gebäudes und der Belüftungsintensität. Fachkreise schätzen, dass 1000 Bq/l Radon im Leitungswasser im Durchschnitt die Radonkonzentration in der Raumluft um 100 Bq/m³ erhöhen (EU 2001). Nur bei 6 der rund 400 im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Quell-, Grund- und Mineralwässer lagen die Werte für das ^{222}Rn über 100 Bq/l. In den beiden Reservoirs, in den mit Abstand die höchsten Radonwerte gefunden wurden (Placidusquelle, Quelle Leis) wurden aus diesem Grund zusätzlich Radon-Luftmessungen durchgeführt.

Während das ^{226}Ra weder mit dem ^{238}U noch mit dem ^{222}Rn sowohl in Mineral-, wie auch in Grund- und Quellwässern korreliert, zeigt sich zwischen den Aktivitätskonzentrationen vom ^{238}U und dem ^{222}Rn ein deutlicher Zusammenhang. Insbesondere weisen Grundwässer bei erhöhten ^{238}U -Konzentrationen auch höhere ^{222}Rn -Konzentrationen auf. Uran ist zum einen unter oxidierenden Bedingungen (hoher Sauerstoffgehalt im Wasser) gut löslich. Unter oxidierenden Bedingungen reichern sich aber auch Ausscheidungen von Eisenhydroxid entlang des Wasserpfadens im Untergrund an. Das Radium adsorbiert an diesen Eisenhydroxidausscheidungen und zerfällt dabei in das Tochternuklid ^{222}Rn , was im Wasser gut löslich ist und sich dort anreichert. Hingegen ist unter reduzierenden Bedingungen (niedriger Sauerstoffgehalt im Wasser) sowohl die Löslichkeit des Urans im Wasser schlechter wie auch die Ausscheidung von Eisenhydroxid reduziert. Somit wird das Radium nicht an Eisenhydroxidausscheidungen adsorbiert und es entsteht auch kein ^{222}Rn . Sowohl das ^{226}Ra wie auch das ^{228}Ra ist in Mineralwässern gegenüber den Werten der Grund- und Quellwässer deutlich erhöht, obwohl das ^{226}Ra als Folgeprodukt des ^{238}U aus der Uran-Zerfallsreihe stammt, das ^{228}Ra hingegen als Tochterprodukt des ^{232}Th aus der Thorium-Zerfallsreihe.

Im Gegensatz zu Grund- und Quellwasser zeichnet sich Mineralwasser durch einen erhöhten und konstanten Gehalt an gelösten Mineralien aus. Aufgrund dieser Tatsache könnte angenommen werden, dass Mineralwasser auch höherer Konzentrationen an natürlichen Radionukliden im Vergleich zu Quell- oder Grundwasser aufweisen sollte. Um diese Hypothese beurteilen zu können, wurden die gleichen Untersuchungen wie bei den Quell- oder Grundwässern in einer zweiten Phase auf die Mineralwässer im Kanton Graubünden ausgedehnt. Insgesamt wurden 42 Proben Mineralwasser erhoben und untersucht. Bei den erhobenen Mineralwässern handelt es sich zum Teil um solche, die für den Handel abgefüllt werden und im In- und Ausland vermarktet werden, andererseits wurden aber auch diejenigen Mineralwässer beprobt, die nicht abgefüllt werden oder nur einem sehr begrenzten Publikum in Heilbädern oder Trinkhallen zum Konsum angeboten werden. Die mittleren Aktivitäten von ^{238}U lagen mit 18 mBq/l etwa in den gleichen Bereichen wie beim Trinkwasser. Das ^{226}Ra und ^{228}Ra lag mit durchschnittlich 34 mBq/l bzw. 45 mBq/l deutlich höher. Die Aktivitäten von ^{222}Rn lagen etwa um einen Faktor 200 höher als bei ^{238}U und ^{226}Ra . Bei keiner der Mineralwasserproben wurden die schweizerischen Limiten für den Gehalt natürlicher Radionuklide in flüssigen Lebensmitteln überschritten. Zwei der für den Handel abgefüllten Mineralwässer enthalten aber so viel ^{228}Ra , dass ein Export in EU-Länder problematisch wäre. Ausserdem ist zu erwarten, dass eines Tages auch die Schweizer Konsumenten die Einhaltung der strengeren deutschen Limiten verlangen werden.

In einer dritten Phase wurde untersucht, ob in gleichen Gebieten die Konzentrationen von natürlichen Radionukliden in Quell- und Grundwässern mit den Radonkonzentrationen in der Luft von Wohnräumen miteinander korrelieren. Aufgrund der in diesem Kapitel gewonnenen Erkenntnisse kann die Frage eindeutig bejaht werden. Damit wird die Bemerkung von Surbeck (1995) gestützt, dass Radonwerte >50 Bq/l in Wasser als Hinweis auf Radongebiete zu werten sind. Diese Aussagen treffen in analoger Art und Weise auch für das ^{238}U zu. Das gleichzeitige Vorkommen von erhöhten Konzentrationen von ^{226}Ra wie auch von ^{228}Ra in Wässern und ein erhöhter Radongehalt in Wohnluft im gleichen Gebiet scheint dagegen eher zufällig zu sein. Obwohl ein Abhängigkeit zwischen der Wassermethode und der Luftmethode besteht, ist die Übereinstimmung der beiden Prüfverfahren gestützt auf die statistischen Auswertungen als eher schwach zu beurteilen. Die Irrtumswahrscheinlichkeit beträgt etwa 25% unter der Annahme, dass die Gebietseinteilung auf Grund der Innenluftmessungen richtig ist. Die Unsicherheit dieser Einteilung dürfte aber insbesondere bei den Gemeinden mit Radon-Mittelwerten zwischen 100 und 200 Bq/m³ gross sein.

^{222}Rn - wie auch ^{238}U -Messungen in Quell- und Grundwässern sind als Screeningmethode zur Gebietseinteilung denkbar. Wenn in einem grösseren Gebiet, in dem hohe Radonbelastungen punktuell zu erwarten sind, ein Radonkataster erstellt werden soll und zuerst diese Regionen erfasst werden sollen, kann es durchaus sinnvoll sein in einer ersten Phase ^{222}Rn - oder ^{238}U -Messungen in Trinkwässern durchzuführen. Obwohl beide Parameter auf Radongebiete hinweisen, ist die Bestimmung des Urans der Radonbestimmung eindeutig vorzuziehen. Zum einen hat das ^{222}Rn eine viel kürzere Halbwertszeit als das ^{238}U , das bedeutet, dass die Proben viel rascher nach der Probenahme untersucht werden müssen. Zudem lässt die Bestimmung des Urans mittels ICP-MS einen viel höheren Probendurchsatz zu, was einer Einsparung des Arbeits- wie auch Zeitaufwandes gleichkommt. Es gilt aber einmal mehr zu betonen, dass nur eine individuelle Messung sichere Angaben über die Radongaskonzentration in Wohnräumen liefern kann, denn kein Haus ist gleich gebaut wie das andere, kein Haus ist so radondurchlässig wie das andere und kein Haus steht auf dem gleichen Untergrund wie das andere.

Aufgrund der gewonnenen Resultate und Erkenntnisse wurde beschlossen, sich in einer vierten Phase auf sog. Hot-Spots zu fokussieren, um das Auftreten von lokal erhöhten Konzentrationen genauer untersuchen und beurteilen zu können. Als Hot-Spots wurden die folgenden fünf Quellen ausgewählt: Placidusquelle in Disentis, Quelle Leis in Vals, Mineralwasserquelle Bergün und die Quellen Pedecosta und Pagnoncini im Puschlav.

Bezüglich der Radionuklidzusammensetzungen lassen sich die Hot-Spots in drei Gruppen einteilen. Zur Gruppe 1 gehört die Placidusquelle und die Quelle Leis, die sich durch ihre hohen ^{222}Rn -Gehalte auszeichnen, während die anderen natürlichen Radionuklide nur in tiefen Konzentrationen vorhanden sind. Die Mineralquelle Bergün weist gleichzeitig erhöhte ^{222}Rn - und ^{226}Ra -Konzentrationen auf. Die Quellen im Puschlav bilden die dritte Gruppe, die die höchsten Urankonzentrationen aufweisen.

Der Schwerpunkt der Untersuchungen wurde auf die Placidusquelle gelegt. Aufgrund der gemachten Beobachtungen, Messungen, Resultate und Bilanzen kann für die Placidusquelle neben einem vereinfachten Modell für die ^{222}Rn Produktion auch ein hydrogeologisches Fliessmodell postuliert werden. Darin werden die möglichen Fliesswege und die dabei ablaufenden hydrochemischen Reaktionen dargestellt. Nach diesem Modell infiltriert das Niederschlagswasser etwa 2 km nordöstlich der Placidusquelle auf etwa 1900 Meter über Meer. Durch Verwitterung des Pyrits, das in der Gegend reichlich vorhanden ist, reichert sich das Wasser mit Eisen, Sulfat und Protonen (H^+) an und wird aufgrund des Sauerstoffverbrauchs bei der Oxidation des Schwefels zu Sulfat immer stärker anoxisch. Dadurch entsteht ein Wasser mit sehr niedrigem pH, welches in der Lage ist, Silikate aufzulösen und dadurch weitere Ionen wie Mg^{2+} , Al^{3+} und H_4SiO_4 in das System einzubringen. In der Nähe der Quelle gelangt ein mit Sauerstoff angereichertes Wasser in das System, so dass wieder oxidative Bedingungen vorliegen und das Eisen als Eisenhydroxid ausfällt. Diese Eisenhydroxidausfällungen adsorbieren sehr effizient das gelöste ^{226}Ra , welches sich somit in der Nähe der Quelle anreichert. An dieser Stelle findet

die Bildung des ^{222}Rn durch Zerfall des ^{226}Ra statt. Das ^{222}Rn gelangt somit in hohen Konzentrationen zum Quellaustritt. Der Gehalt an Eisen ist beim Quellaustritt relativ niedrig, verglichen mit der Menge, welche unmittelbar vor der Quelle als Eisenhydroxid angereichert sein muss. Das Sulfat liegt beim Quellaustritt etwa in der gleichen Konzentration vor wie am Ort der Entstehung beim Abbau des Pyrits, da es sehr beständig ist und kaum mit anderen Elementen interagiert.

Ein geologischer Vergleich zeigt, dass die vier Quellen mit den höchsten Radonkonzentrationen aus nicht vergleichbaren tektonischen Formationen entspringen. Ausser der Randzone des Aarmassivs sind diese Formationen nicht für erhöhte Radionuklidgehalte bekannt. Die einzige geologische Gemeinsamkeit besteht darin, dass alle als Felsquellen aus Randzonen kristalliner Formationen entspringen. Die stark erhöhten Urangehalte der Quellen Leis, Pedecosta und Pagnoncini und der hohe ^{226}Ra -Gehalt in der Quelle Bergün lassen sich nicht mit erhöhten Radionuklidgehalten der entsprechenden tektonischen Einheiten erklären. Wie bereits beim Radon erwähnt, ist ausser der Randzone des Aarmassivs keine dieser Formationen für erhöhte Radionuklidgehalte bekannt.

Hydrogeologische Gemeinsamkeiten der Hot-Spots sind keine zu erkennen. Bezüglich der Äquivalentkonzentrationen der Hauptkationen und -anionen lassen sich die Hot-Spots folgendermassen vergleichen: Bei den Kationen überwiegt in allen Wässern das Calcium gegenüber dem Magnesium um etwa einen Faktor 2. Natrium und Kalium kommen dagegen nur in sehr geringen Mengen vor. Die Wässer der Hot-Spots sind bezüglich der Äquivalentkonzentrationen der Kationen sehr ähnlich.

Bezüglich der Anionen lassen sich die Hot-Spots in drei Gruppen einteilen. Die Quelle Leis gehört zur Gruppe der karbonathaltigen Wässer. Die Quellen im Puschlav weisen in etwa gleiche Äquivalentkonzentrationen Sulfat und Hydrogenkarbonat auf. Die Mineralwasserquelle Bergün und die Placidusquelle gehören zur dritten Gruppe, bei der das Sulfat eindeutig dominiert. Chlorid und Nitrat kommen bei diesen Quellen praktisch nicht vor. Neben den Äquivalentkonzentrationen der Anionen unterscheiden sich diese Wässer auch bezüglich der Leitfähigkeit und dem Arsengehalt. Während die Quelle Leis und die Placidusquelle sehr schwach mineralisiert sind, handelt es sich bei der Mineralquelle Bergün um ein sehr stark mineralisiertes Wasser. Die Quellen im Puschlav sind mittelharte Wässer, die sich bezüglich ihrem hohen Arsengehalt auszeichnen und sich diesbezüglich von den anderen Hot-Spots eindeutig unterscheiden.

Die Placidusquelle, die Quelle Leis und die Mineralwasserquelle Bergün zeichnen sich durch eine kleine Schwankungsbreite der chemischen und physikalischen Parameter aus. Das ist ein Hinweis dafür, dass diese Quellen nur wenig durch Oberflächenwasser beeinflusst werden. Dagegen zeigen die Quellen im Puschlav starke Schwankungen aller Parameter.

Sowohl der geologische wie auch der hydrogeologische Vergleich der Hot-Spots liefert keine schlüssigen Hinweise auf die Herkunft der erhöhten Radon-, Radium- und Urankonzentrationen. Insbesondere das Auftreten des kurzlebigen ^{222}Rn ist offenbar stark durch lokale, geochemische Verhältnisse bestimmt. Zum besseren Verständnis der Zusammenhänge müssten umfangreiche Untersuchungen wie bei der Placidusquelle auch bei den anderen Hot-Spots durchgeführt werden.

Sommaire

Les radionucléides des séries naturelles de désintégration de ^{238}U , de ^{232}Th et de ^{235}U sont omniprésents dans l'écorce terrestre et par conséquent se retrouvent dans l'eau souterraine. Dans les roches cristallines, ils sont inclus dans les minéraux lourds et y demeurent. L'eau par contre parvient plus facilement à dissoudre les radionucléides fixés dans les cavités, formées par les couches de minéralisation secondaire, et adsorbés sur les oxydes de fer et de manganèse des sédiments. Les cartes géologiques, même en combinaison avec les données sur les teneurs en radionucléides des roches, ne sont pas très utiles pour rechercher des concentrations élevées dans les eaux souterraines. Les paramètres locaux et géochimiques tel que le pH, le potentiel redox, la composition des éléments ainsi que la durée de rétention de l'eau donne de meilleures indications que la teneur en radionucléides des minéraux. C'est particulièrement le cas pour le ^{222}Rn dont la demi-vie est de 3,8 jours seulement et dont la concentration est déterminée par des situations locales et géochimiques. Pour la recherche ciblée des eaux comprenant des concentrations élevées en radionucléides naturels, la compréhension des hot-spots est très importante.

Dans l'appréciation du risque pour la santé des radionucléides provenant de l'eau, on ne peut pas renoncer aux mesures de l'eau. L'eau étant considérée comme la denrée alimentaire la plus importante, l'objectif principal de ce travail est de donner une vue d'ensemble des concentrations de radionucléides naturels des eaux du canton des Grisons afin d'en évaluer les conséquences toxicologiques pour l'homme et de les apprécier en regard du droit alimentaire.

L'accent a été mis en premier lieu sur la qualité des eaux de nappes, de sources et des eaux minérales pour évaluer l'influence de la consommation de ces eaux sur la santé de la population. Jusqu'à présent, seules des mesures sporadiques des radionucléides naturels dans l'eau ont été exécutées. Dans le cadre de ce travail et pour la première fois, des analyses couvrant tout un canton ont été effectuées. Les mesures se sont concentrées essentiellement sur le Radium et en particulier sur le ^{228}Ra pour lequel il y a peut de résultats et qui constitue une source non négligeable d'irradiation chez les nourrissons.

La première partie de ce travail relate en introduction les thèmes relevant de cette dissertation. Dans le chapitre "Géologie", une vue d'ensemble de la situation géologique, tectonique, du canton des Grisons est décrite. Par la suite, différentes unités tectoniques sont expliquées et résumées. Les travaux existants sont pris en considération.

Dans le chapitre "Hydrochimie", l'eau est décrite en tant que substance chimique ainsi que comme solvant. De plus les différentes définitions de l'eau selon le droit alimentaire et selon les aspects hydrogéologiques sont présentées. Le chapitre "Radioactivité" décrit les différentes sortes d'émissions des noyaux, la loi de la désintégration, ainsi que les unités utilisées le plus couramment. Les concentrations d'activité typiques pour les radionucléides naturels dans l'eau souterraine et les valeurs limites du droit alimentaire sont énumérées. Dans le chapitre "Géochimie", les radionucléides naturels de l'Uranium, du Thorium, du Radium et du Radon sont également caractérisés. Les différents isotopes et leur série de désintégration sont présentés. Les radionucléides naturels sont décrits en ce qui concerne leur origine, leur enrichissement, leur forme, leur liaison et leur fréquence.

Dans la seconde partie de ce travail, une première phase a constitué en des prélèvements de toutes les sources d'eau potable des 208 communes du canton des Grisons. L'eau des sources a été prélevée dans les réservoirs, et l'eau de nappe phréatique dans les stations de pompage. En tout, 330 échantillons d'eau de source et 30 échantillons d'eau de nappe ont été analysés.

Les activités moyennes de ^{238}U et de ^{226}Ra se situaient à quelques 15mBq/l. Les activités de ^{222}Rn étaient environ 1000 fois supérieures. Les valeurs obtenues de ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra et U de toutes les eaux des réseaux du canton sont largement inférieures aux concentrations maximales fixées par la législation sur les denrées alimentaires. L'irradiation provoquée par

le ^{226}Ra , le ^{228}Ra et l'U n'engendre aucun danger pour la santé. L'augmentation de la concentration en radon dans les bâtiments provoquée par l'eau de réseau dépend de plusieurs facteurs, tels que la consommation totale en eau, le volume du bâtiment ainsi que par l'intensité de la ventilation. Selon les experts, une concentration de 1000 Bq/l de l'eau du réseau augmente, en moyenne, la concentration de radon dans l'air de 100 Bq/m³ (EU2001). Seulement 6 sur environ 400 échantillons comportaient des valeurs en ^{222}Rn supérieures à 100 Bq/l. Dans les deux réservoirs où les concentrations étaient les plus élevées (Placidusquelle et la source de Leis) des mesures de radon ont été effectuées également dans l'air.

Dans l'eau de source et l'eau minérale ainsi que dans l'eau de nappe, le ^{226}Ra ne corrèle ni avec le ^{238}U ni avec le ^{222}Rn . Cependant, il existe une corrélation claire entre le ^{238}U et le ^{222}Rn . En particulier dans les eaux de nappe, les concentrations élevées de ^{238}U sont accompagnées de taux élevés de ^{222}Rn . L'Uranium est bien soluble dans une eau riche en oxygène. Dans ces conditions oxydantes, de l'hydroxyde de fer est formé tout au long du circuit de l'eau. Le radium est adsorbé à ces précipitations d'hydroxyde de fer et se désintègre en ^{222}Rn . Ce dernier est bien soluble dans l'eau et s'y enrichit. Par contre en situations réductrices (teneur réduite en oxygène), la solubilité de l'Uranium ainsi que la formation d'hydroxyde de fer sont amoindris, et par conséquent, le radium ne peut pas s'adsorber à l'hydroxyde de fer, ce qui ne permet pas la formation de ^{222}Rn . Les concentrations en ^{226}Ra et ^{228}Ra dans les eaux minérales sont plus élevées que dans celles des eaux de source ou de nappes, indépendamment du fait que le ^{226}Ra provienne de la désintégration de l' ^{238}U et que le ^{228}Ra soit issu de la désintégration du ^{232}Th .

Si l'eau minérale est caractérisée par des teneurs élevées et constantes en sels minéraux dissous, ce n'est pas le cas pour l'eau de nappe et de source. Sur la base de ce constat, on pourrait penser que les eaux minérales contiennent des concentrations plus élevées en radionucléides naturels que l'eau de source et de nappe. Pour vérifier cette hypothèse, les mêmes recherches effectuées sur l'eau de nappe et de source ont été élargies aux eaux minérales du canton. Au total 42 échantillons d'eaux minérales ont été prélevées et analysées. Une partie de ces eaux minérales sont mises en bouteilles et vendues en Suisse et à l'étranger, l'autre partie est mise à disposition très localement pour les bains thermaux. Les activités moyennes de ^{238}U était de 18 mBq/l, donc dans le même ordre de grandeur que dans l'eau potable. L'activité de ^{226}Ra était de 34mBq/l et de ^{228}Ra de 45 mBq/l, donc plus élevée. Les activités de ^{222}Rn étaient environ 200 fois plus grande que celle de l' ^{238}U et du ^{226}Ra . Dans aucun échantillon d'eau minérale, les limites admises, par la législation suisse, en radionucléides naturels dans les denrées liquides ont été dépassées. Toutefois la teneur en ^{228}Ra de deux eaux minérales s'est avérée si élevée qu'une exportation dans un pays de l'union européenne serait problématique. Il faut s'attendre à ce que les consommateurs suisses réclament le respect des limites plus sévères exigées en Allemagne.

L'objectif de la troisième phase était de savoir s'il y a corrélation entre les concentrations en radionucléides déterminés dans l'eau de source et l'eau de nappe et les concentrations en radon dans l'air des locaux d'habitation. Les résultats ont démontré une corrélation évidente. Les résultats confirment aussi les constats faits par Surbeck en 1995 montrant que les valeurs en radon dans l'eau, supérieures à 50 Bq/l, sont une indication pour une région à radon. Ce constat est valable par analogie pour le ^{238}U . Il semble par contre que la corrélation entre des concentrations élevées en ^{226}Ra et en ^{228}Ra dans l'eau et les concentrations élevées en radon dans l'air domestique est plutôt aléatoire. Si il existe une interdépendance entre la méthode de mesure de l'eau et de l'air, une corrélation positive entre les deux méthodes, se basant sur des interprétations statistiques, est peu probable. La probabilité d'erreur est d'environ 25 % partant de l'hypothèse que l'attribution de la région est correcte par rapport aux mesures opérées de l'air à l'intérieur des bâtiments. L'incertitude de cette classification est importante, en particulier dans les communes avec des valeurs moyennes en radon entre 100 et 200 Bq/m³.

Les mesures de ^{222}Rn et de ^{238}U dans l'eau de nappe et dans l'eau de source pourraient être prises en considération en tant que méthode de screening pour la classification des régions. Dans le cas d'une région relativement grande où il faut s'attendre à des concentrations en radon ponctuellement élevées, il serait tout à fait utile, dans une première phase, de mesurer le ^{222}Rn et ^{238}U dans l'eau potable si l'on voulait établir un cadastre de radon. Toutefois et bien que ces deux paramètres indiquent une région à radon, il est préférable de procéder à la mesure de ^{238}U . En effet, le ^{222}Rn a une demi-vie beaucoup plus courte que ^{238}U , ce qui signifie que les échantillons doivent être analysés beaucoup plus rapidement après prélèvement. D'autre part, la détermination de l'Uranium à l'aide de la méthode ICP-MS permet d'analyser une quantité d'échantillons beaucoup plus élevée dans un temps déterminé, ce qui équivaut à une économie de temps et de travail. Il y a lieu de souligner une fois de plus que seule une analyse individuelle du radon dans l'air d'une maison d'habitation fournit une information sûre, du fait qu'aucune maison n'est construite de la même manière, que leur perméabilité au radon est différente et que leur structure géologique souterraine n'est pas identique.

Sur la base des résultats et des renseignements obtenus, il a été décidé de se concentrer dans la quatrième phase sur les hot-spots afin d'analyser et d'apprécier de plus près les concentrations localement élevées. Les cinq sources suivantes ont été choisies comme exemple: la Placidusquelle à Disentis, la source Leis à Vals, la source minérale de Bergün, et les sources Pedecosta et Pagnocini dans le Puschlav.

Du point de vue des radionucléides, les hot-spots peuvent être classés en trois groupes. La Placidusquelle et la source Leis font partie du premier groupe qui se distingue par des concentrations élevées en ^{222}Rn et par des concentrations faibles des autres radionucléides. La source minérale de Bergün se distingue par des concentrations élevées en ^{222}Rn et en ^{226}Ra . Les sources du Puschlav avec des concentrations élevées en Uranium font partie du troisième groupe.

L'accent a été mis sur l'analyse de la Placidusquelle. Sur la base des analyses, des mesures, des résultats et des bilans, il est possible de postuler un modèle simplifié de la formation du ^{222}Rn ainsi qu'un modèle hydrogéologique du circuit de l'eau. Ce modèle permet de décrire le circuit de l'eau et ses réactions hydrochimiques. D'après ce modèle, l'eau de précipitations s'infiltré à quelque 2 km de la Placidusquelle en direction nord-est et à une altitude d'environ 1900 m. Par l'altération de la pyrite présente en abondance dans cette région, l'eau s'enrichit en fer, en sulfate et en protons (H^+) et devient de plus en plus anaérobie. L'oxygène est consommé par l'oxydation du sulfate. Il en résulte une eau avec un pH très bas, qui est en mesure de dégrader les silicates et d'introduire dans le système des ions Mg^{2+} et Al^{3+} et du H_4SiO_4 . A proximité de la source, une eau enrichie en oxygène est introduite dans le système. Des conditions oxydatives s'installent et le fer précipite comme hydroxyde de fer. L'hydroxyde de fer ainsi formé adsorbe efficacement le ^{226}Ra dissout, ce qui provoque une accumulation de ^{226}Ra à proximité de la source. Par désintégration de ce dernier, le ^{222}Rn est alors formé. Il en résulte une grande concentration à la sortie de la source. A cet endroit, la teneur en fer est relativement faible par rapport à la quantité qui s'est formée sous forme d'hydroxyde de fer immédiatement avant la source. La concentration en sulfate est identique à la sortie de la source et à l'endroit où elle est formée par dégradation de la pyrite. Le sulfate étant très stable, il n'interagit guère avec d'autres éléments.

Une comparaison géologique démontre que les quatre sources renfermant les plus hautes concentrations en radon ne proviennent pas de formations tectoniques comparables. A l'exception de la région périphérique du Massif de l'Aar, ces formations tectoniques ne sont pas connues comme ayant des teneurs élevées en radionucléides. La seule propriété géologique commune consiste dans le fait que toutes prennent leur origine dans les zones périphériques des formations cristallines. Les teneurs très élevées en Uranium des sources Leis, Pedecosta et Pagnocini ainsi que la teneur élevée en ^{226}Ra dans la source de Bergün ne s'expliquent pas par les teneurs élevées en radionucléides des unités tectoniques

correspondantes. Comme déjà mentionné pour le radon, aucune de ces formations est connue pour des teneurs élevées en radionucléides si l'on fait abstraction de la région périphérique du Massif de l'Aar.

Les propriétés hydrogéologiques communes des hot-spots ne sont pas reconnaissables. En ce qui concerne les concentrations équivalentes des principaux cations et anions, les hot-spots se comparent comme suit: dans toutes les eaux, la concentration du calcium et du magnésium est de 2 : 1, les quantités de sodium et de potassium sont très faibles. Les concentrations équivalentes des cations des eaux des hot-spots se ressemblent beaucoup. En ce qui concerne les anions, les hot-spots peuvent se classer en trois catégories. La source de Leis fait partie des eaux carbonatées. Les sources du Puschlav contiennent des concentrations équivalentes en sulfates et en hydrogénocarbonates. Les sources de Bergün et la Placidusquelle font partie du troisième groupe qui se distinguent par une teneur prédominante en sulfates. Ces sources ne contiennent pratiquement pas de chlorures ni de nitrates.

Mis à part les équivalences en anions, ces eaux se distinguent par leur conductivité et leur teneur en arsenic. Si les sources de Leis et de Placidusquelle sont faiblement minéralisées, la source minérale de Bergün fournit une eau fortement minéralisée. Les sources du Puschlav sont des eaux de dureté moyenne qui se distinguent des autres hot-spots par leur teneur élevée en arsenic.

La Placidusquelle, la source de Leis et la source minérale de Bergün se caractérisent par de faibles variations de leurs paramètres chimiques et physiques. Ceci étant un indice que ces sources sont peu influencées par l'eau superficielle. Par contre, les sources du Puschlav sont l'objet d'importantes variations de tous les paramètres.

Ni la comparaison géologique ou hydrogéologique des hot-spots ne fournit d'explications concluantes concernant la provenance de concentrations élevées en Radon, Radium et Uranium. L'apparition du ^{222}Rn est fortement influencée par les conditions locales et géochimiques. Afin de mieux comprendre ces processus, des recherches plus importantes, identiques à celles menées pour la Placidusquelle, seraient nécessaires pour les autres hot-spots.

Summary

Radionuclides of the natural ^{238}U , ^{232}Th and ^{235}U series are omnipresent in the earth's crust and therefore also to be found in groundwater. In crystalline rock they are often contained in heavy minerals and therefore not easy to be leached out. However, the radionuclides in secondary mineralization in fissures or crevices and adsorbed to Fe manganese hydroxides in sedimentary rock and loose sedimentary rock are easier to be leached by the water. Geological maps, even when combined with data about the concentration of radionuclides in the rocks do not help a great deal with finding out about increased concentrations in ground and spring waters. Much more essential than the average content of radio nuclides of the rocks are the local geochemical parameters such as pH, redox potential, elemental composition and residence time. This is especially valuable for the appearance of the ^{222}Rn , which is determined, with a half-life of only 3.8 days, by the local geochemical conditions. When your search is aimed at waters with an increased concentration of natural radionuclides, then this requires fundamental understanding for the appearance of such hot spots.

To find out about possible dangers for people's health by the natural radionuclides in drinking water, it is necessary to take samples and make measurements of these waters. One of the main goals of this paper was to display an overview of the natural and radioactive impact of drinking water in the Canton of Graubünden, as drinking water - the most important of the edibles - has a very special value. Following, we are able to judge the human-toxic consequences and the ones concerning legal limits.

The emphasis of this approach was essentially put on the quality of the ground waters, the spring waters and the mineral waters and on their impact on the people's health when consuming them. Up to now the content of natural radionuclides in waters have been measured but sporadically. Within the scope of this thesis, it's the first time that we have performed this kind of research all over the Canton of Graubünden. Measuring the concentration of radium and mainly ^{228}Ra has very rarely been done so far. However, mostly young children are affected by a high dose of radiation.

In the first part of this paper there is a general introduction to the most important subjects in this thesis. The chapter "Geology" displays an overview of the geology and the tectonic nature of the Canton of Graubünden. Then, the different tectonic units will be explained in detail. Herein, the most important facts out of already existing papers will be summarized and simplified.

In the chapter "Hydro Chemistry" you can read a basic introduction about water as a chemical matter as well as a solvent. Furthermore the different definitions of water will be displayed according the hydro geological aspects and the one concerning legal aspects.

The chapter on "Radioactivity" sketches the various kinds of nuclear radiation, the desintegration law as well as the most frequently used units of measuring. Moreover, some typical concentrations of activities for natural radionuclides in ground water and their legal limits will be shown.

In the chapter "Geo-chemistry" the natural radionuclides uranium, thorium, radium and radon will be characterized in a general way. This comprises the compounds of single isotopes and the corresponding order of decomposition. The natural radionuclides will be described with regard to their formations, accumulations, forms, bonds and deposits.

In the second part of my thesis, results and conclusions drawn of examined samples are displayed. Phase one describes sampling of all the drinking water supplies of the 208 communities of the Canton of Graubünden. The sample for spring water were taken from reservoirs, the ones for ground water from pumping stations. Altogether, we examined 330 samples of spring water and 30 samples of ground water. The average activities of ^{238}U and ^{226}Ra were in the same ranges with a value of approximately 15 mBq/l. The measurements of ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra and of U for the whole drinking water network of the Canton of

Graubünden show that the Swiss legal limits for these naturally present substances are not reached by far. An assessment of the radiation doses caused by the ^{226}Ra , the ^{228}Ra and the uranium does not show any risk for health. The increase of the concentration of radon in buildings caused by tap water depends on different parameters such as the total water consumption inside the building, the cubic of the building and the intensity of ventilation. Experts estimate that 1000 Bq/l radon in tap water raise the concentration of radon inside the building by about 100 Bq/l (EU 2001). Values of ^{222}Rn lying above 100Bq/l could be found only with 6 of the approximate 400 examined samples of spring water, ground water and mineral water. The water in the reservoirs (Placidus spring, spring Leis) showed the highest concentration of radon of all the examined waters. Therefore we carried out measurements of the air in these places, additionally.

While the ^{226}Ra correlates neither with the ^{238}U nor with the ^{222}Rn in mineral water as well as in ground water or spring water, there can be found a clear relation between the concentrations of activity of the ^{238}U and the ^{222}Rn . Ground water shows a higher concentration of ^{222}Rn with an increased concentration of ^{238}U . Uranium dissolves easily under oxidising conditions (high concentration of oxygen in water). Additionally, along the water path, there can be found an accumulation of iron hydroxide under oxidising conditions. Radium adsorbs at these precipitations of iron hydroxide and decays into the daughter nuclide ^{222}Rn , which easily dissolves in water and accumulates there. However, reduced conditions (low concentration of oxygen on water), result in a bad solubility of the uranium in water as well as in a reduced precipitation of iron hydroxide. Therefore there is no adsorption of Radium at the precipitations of iron hydroxide and no ^{222}Rn can arise. Both the ^{226}Ra as well as the ^{228}Ra are clearly increased in mineral water in comparison to the values of the ground and spring water. ^{228}Ra , however, does not correlate with ^{226}Ra at all. This is not a surprising fact as the ^{226}Ra is a member of the ^{238}U series, whereas ^{228}Ra belongs to the ^{232}Th series.

In contrast to ground and spring water, mineral water distinguishes itself by an increased and constant concentration of dissolved minerals. Based on this fact it might be assumed that mineral water should show a higher concentration of natural radionuclides when compared to ground and spring water. To judge this hypothesis, we extended, in a second phase, the research we did with ground and spring water to the mineral water in the canton of Graubünden. Totally, 42 samples of mineral water were taken and examined. Some of these mineral waters are bottled and sold in Switzerland and abroad. However we also examined those kinds of mineral water which are used but for a very limited number of people (mineral water for cures and for spa baths). The average activity of ^{238}U lay with 18 mBq/l in about the same range as with drinking water. ^{226}Ra and ^{228}Ra was with an average of 34 mBq/l respectively 45 mBq/l higher. The activities of ^{222}Rn were about one factor of 200 higher than with ^{238}U and ^{226}Ra . None of the taken samples of mineral water exceeded the Swiss limits for the concentration of natural radionuclides in drinking water. Two of the mineral waters used for trade contain too much ^{228}Ra , so that they cannot be exported to the EU-countries. Moreover it is to be expected that one day, even the Swiss customers ask for stricter limits.

In a third phase, we examined whether the concentration of natural radio nuclides in ground and spring water correlates with the concentrations of radon in the air inside buildings in the same areas. The results of our research was a clear yes. This supports Surbeck's claim (1995): the values of radon which are higher than 50 Bq/l in water prove the existence of high radon areas. These statements are also true for the ^{238}U . Raised concentration of ^{226}Ra as well as of ^{228}Ra in water and a raised concentration of radon in the air inside buildings in the same areas seem to be accidental. Although there is a correlation between high radon area assignments made from indoor radon measurements and assignments made from water measurements, this correlation is rather weak. There is a 25% probability for a mistaken assignment based on the water measurements, assuming that the assignment based on indoor radon measurements is correct. This may be frequently not the case for communities with an average value of indoor radon between 100 and 200 Bq/m³.

It might be nevertheless useful to measure ^{222}Rn or ^{238}U in drinking water to screen for radon prone areas or whenever a radon land register is needed in areas where high indoor radon concentrations are to be expected. This should be done as the first step. Although both parameters give evidence of areas with high radon concentrations, determining the concentration of uranium should come before determining concentration of radon. Firstly, the ^{222}Rn has a much shorter half-life than the ^{238}U , i.e. the samples have to be examined very soon after they had been taken. Secondly, determining uranium with the help of ICP-MS allows a higher rate of sampling which saves time and work. However, it is essential to point out that only individual measurements guarantee reliable indications about indoor radon concentrations because each house is built differently, that means the houses show different permeability of radon and the ground they are built on is not the same, either.

Based on the results obtained, we decided to focus on hot spots in a fourth phase. The aim was to get more information on the processes leading to increased concentrations. The following hot spots were chosen: the Placidus spring in Disentis, the spring Leis in Vals, the mineral spring in Bergün and the springs in Pedecosta and Pagnoncini in the valley of Poschiavo.

As to the composition of radionuclides, the hot spots can be divided into three groups. Group 1: the Placidus spring and the spring Leis showing a high concentration of ^{222}Rn , whereas concentration of other natural radionuclides is rather low. Group 2: the mineral spring in Bergün showing increased concentration of ^{222}Rn and ^{226}Ra . Group 3: The springs in the valley of Poschiavo showing the highest concentration of uranium.

The emphasis of the research was put on the Placidus spring. Based on various measurements taken a simplified model for the ^{222}Rn production and the water flow is proposed. According to this model precipitations infiltrate about 2 km north-east of the Placidus spring (appr. 1900 meters above sea level). By deterioration of the pyrite which can be found in ample amounts in this area, the water becomes enriched in iron, sulphate and protons(H^+) and turns by oxidation of the sulfur to sulphate more and more anoxic. This results in water with a very low pH-value, which is able to decompose silicates liberating further ions such as Mg^{2+} , Al^{3+} and H_2SiO_4 into the system. Near the spring, oxygen rich water enters the system so there are again oxidizing conditions with iron precipitating as iron hydroxide. These precipitations, probably very close to the spring, adsorb the dissolved ^{226}Ra efficiently. Adsorbed ^{226}Ra decays to ^{222}Rn leading to high radon concentrations at the spring. On this spot happens the formation of ^{222}Rn by decomposition of ^{226}Ra . Therefore, ^{222}Rn reaches the outflow of the spring at very high concentrations. The iron concentration at the spring is relatively low compared to the amount of iron hydroxide which must be accumulated just before water exits at the spring. The sulphate concentration is about the same as at its place of origin when the pyrite was decomposing. Sulphate is very stable and rarely interacts with other elements.

A geological comparison shows that the four springs with the highest radon concentration, have their origin in tectonically different rock formations. Except for the margin of the Aare massive, these formations are not known for increased radionuclide concentrations. Their single common geological feature is, that they all emerge from rocks at the margin of crystalline formations. Increased concentrations of uranium of the springs Leis, Pedecosta and Pagnoncini and the high concentration of ^{226}Ra in the spring of Bergün cannot be explained with increased radionuclide concentrations of the corresponding tectonic units. As mentioned for radon, except for the margin of the Aare massive, these tectonic units are not known for increased radionuclide concentrations.

Common features of the hot spots from the hydrological point of view are not to be seen. Referring to the equivalent concentrations of main cations and anions the hot spots can be compared as follows: With cations there is a predominance of calcium over magnesium of a factor of 2 approximately. Sodium and potassium however appear in very low amounts. The water of the different hot spots is very similar concerning its equivalent concentration.

As regards the anions, we can divide the hot spots into three groups. Group 1 is the spring Leis containing a high concentration of carbonate in its water. Group 2, the springs in the valley of Poschiavo, show rather equal equivalent concentrations of sulphate and hydrocarbonate. Group 3 comprises the springs in Bergün and the Placidus spring where sulphate dominates clearly. There is hardly any chloride and nitrate to be found in the water of these springs. Besides the equivalent concentrations of their anions, these waters differ in their conductivity and their concentration of arsenic. The spring Leis and the Placidus spring show weak mineralization, whereas the water of the springs in the valley of Poschiavo is highly mineralised. The degree of hardness of the water in the valley of Poschiavo can be described as medium, its concentration of arsenic is very high, that is what makes the difference from the other hot spots.

The Placidus spring, the spring Leis and the mineral water spring in Bergün distinguish themselves from the others by small fluctuations of the chemical and physical parameters. This is an indication that these springs are influenced only slightly by surface water. In contrast to this, the springs in the valley of Poschiavo show high fluctuations of all the parameters.

The geological as well as the hydro geological comparison of the hot spots provide no clear clues to the origin of increased concentrations of radon, radium or uranium. Especially concentrations the short-lived ^{222}Rn seem to be determined by the local geochemical conditions. To better understand the origin of increased radionuclide concentrations it would be necessary to carry out investigations at all hot spots with the same intensity as done for the Placidus spring.

Resumaziun

Radionucleids da la lingia da decumposiziun natirala dal ^{238}U , dal ^{232}Th e dal ^{235}U èn avant maun dapertut en la crusta da la terra ed èn per quai er da chattar en l'aua sutterrana. En crappa cristallina èn els savens enserrads en minerals grevs ed uschia mal dissolvibels. Meglier accessibels per l'aua èn ils radionucleids en mineralisaziuns secundaras en sfessas e colliads cun idroxids da fier e da mangan en sediments e sediments lucs. Chartas geologicas, perfin en cumbinaziun cun datas davart il cuntegn da radionucleids da la crappa, èn pauc utilas per tschertgar concentraziuns pli grondas en auas sutterranas e da funtauna. Pli impurtants ch'il cuntegn en media da radionucleids da la crappa èn parameters geochemics locals sco pH, il potenzial da redox, la cumposiziun d'elements ed il temp da dimora da las auas. Quai vala cunzunt per la cumparsa da ^{222}Rn che vegn terminà da las relaziuns geochemicas fitg localas cun ina perioda radioactiva da la mesadad dals atoms da mo 3.8 dis. Per ina tschertga sistematica d'auas cun ina concentraziun pli gronda da radionucleids natirals è l'enclegientscha per la cumparsa da tals uschenumnads hot-spots fitg impurtanta.

Per pudair giuditgar l'eventuala periclitaziun da la sanadad tras radionucleids natirals en l'aua da baiver na pon ins perquai betg desister da mesirar quellas auas. Perquai che l'aua da baiver – sco alimentaziun la pli impurtanta – giada ina valur tut speziala, è la finamira principala da questa lavur stada da survegnir ina survista generala da la contaminaziun natirala radioactiva da l'aua da baiver en il Grischun per alura pudair giuditgar las consequenzas toxicologicas per l'uman sco er las consequenzas areguard il dretg da victualias.

Il punct central da questas observaziuns è stà en emprima lingia la qualitat da las auas sutterranas, da funtauna e mineralas ed uschia lur influenza sin la sanadad da la populaziun tar il consum da talas auas. Fin ussa èn vegnidas fatgas mo mesiraziuns sporadicadas da radionucleids natirals en auas. En il rom da questa lavur èn vegnidas fatgas per l'emprima giada talas examinaziuns per tut la surfatscha d'in entir chantun. Quai vala cunzunt per las mesiraziuns da radium ed oravant tut da ^{228}Ra che vegn uschiglio mesirà fitg darar, che po però contribuir essenzialmain a la dosa da radioactivitad tar uffants pitschens.

En l'emprima part da questa lavur sa chatta ina introducziun generala en tematicas ch'èn relevantas en il rom da questa dissertaziun. En il chapitel "geologia" vegn l'emprim dada ina survista geologic-tectonica dal chantun Grischun. Alura vegnan declaradas pli precis las differentas unitads tectonicas. Latiers vegnan recapitulads en ina moda survesaivla e simplifitgada ils puncts essenzials da lavurs ch'existan gia.

En il chapitel "idrochemia" vegn dada ina introducziun simpla e generala davart l'aua sco materia chemica sco er sco dissolvent. Ultra da quai vegnan preschentadas las differentas definiziuns da l'aua tenor ils aspects dal dretg da victualias sco er idrogeologics.

Il chapitel "radioactivitad" descriva ils differents geners da radiazziuns nuclearas, la lescha da decumposiziun e las unitads da mesira che vegnan duvradas il pli savens. Ultra da quai vegnan descrittas concentraziuns d'activitad tipicas per radionucleids natirals en l'aua sutterrana e lur limitas tenor il dretg da victualias.

En il chapitel "geochemia" vegnan caracterisads en moda generala ils radionucleids natirals uran, torium, radium e radon. Latiers vegnan preschentadas las cumposiziuns singulas d'isotops e las lingias da decumposiziun correspondentas. Ils radionucleids vegnan descrirts areguard lur modas da sa furmar, concentraziuns, furmas, cumbinaziuns e giaschament.

En la segunda part da questa lavur èn vegnids examinads en in'emprima fasa tut ils provediments d'aua da las 208 vischnancas dal chantun Grischun. Tar l'aua da funtauna èn las emprovas vegnidas fatgas en ils reservuars, tar l'aua sutterrana en ils implants da pumpadi. Totalmain èn vegnidas examinadas 330 emprovas d'aua da funtauna e 30 emprovas d'aua sutterrana. Las activitads en media da ^{238}U e ^{226}Ra eran cun var 15 mBq/l en las medemas dimensiuns. Las activitads da ^{222}Rn eran circa per il factor 1000 pli autas che

tar ^{238}U e ^{226}Ra . Las concentraziuns da ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra ed U eruidas per tut las raits d'aua da baiver dal chantun Grischun mussan che las concentraziuns maximalas ch'èn fixadas da la legislaziun da victualias na vegnan lunschor betg cuntanschidas da quests cumponents natirals. Er ina valitaziun da la dosa da radiaziun che vegn chaschunada dal ^{226}Ra , dal ^{228}Ra e da l'uran na lascha enconuscher nagina periclitaziun da la sanadad. L'augment da la concentraziun da radon en edificis pervi da l'aua da spina è dependent da divers parameters sco il diever total d'aua en l'edifizi, il volumen dals locals da l'edifizi e l'intensitad da la ventilaziun. Circuls d'experts stiman che 1000 Bq/l radon en l'aua da spina augmentian en media la concentraziun da radon en l'aria dals locals per 100 Bq/m³ (UE 2001). Mo tar 6 da las var 400 auas da funtauna, sutterranas e mineralas examinadas en il rom da questa lavur èn las valurs per il ^{222}Rn stadas sur 100 Bq/l. En ils dus reservuars, en ils quals èn vegnidas chattadas lunschor las concentraziuns da radon las pli autas (funtauna da son Placi, funtauna Leis) èn vegnidas fatgas per quests motivs mesiraziuns supplementaras da l'aria davart il radon.

Entant ch'il ^{226}Ra na correlescha tant en auas mineralas sco er en auas da funtauna e sutterranas ni cun il ^{238}U ni cun il ^{222}Rn , sa mussa in cler connex tranter las concentraziuns d'activitad dal ^{238}U e dal ^{222}Rn . Cunzunt auas sutterranas mussan tar ina concentraziun pli gronda da ^{238}U er concentraziuns pli grondas da ^{222}Rn . Uran è d'ina vart bain dissolvibel sut cundiziuns oxidantas (gronda concentraziun d'oxigen en l'aua). Sut cundiziuns oxidantas s'augmenta però er la concentraziun da separaziuns d'idroxid da fier per lung da la flussiuin da l'aua en il sutterren. Il radium adsorbescha vi da questas separaziuns d'idroxid da fier e sa decumpona latiers en il nucleid secundar ^{222}Rn , ch'è bain dissolvibel en l'aua e sa concentrescha là. Sut cundiziuns reducentas (pitschna concentraziun d'oxigen en l'aua) sa dissolva da l'autra vart l'uran main bain en l'aua ed er la separaziun d'idroxid da fier è reducida. Uschia na vegn il radium betg adsorbà a las separaziuns d'idroxid da fier ed i na sa furma er nagin ^{222}Rn . Il ^{226}Ra na correlescha però en nagina moda e maniera cun il ^{228}Ra . Quai n'è però betg plinavant sorprendent, perquai ch'il ^{226}Ra deriva sco product consecutiv dal ^{238}U da la lingia da decumposiziun da l'uran, il ^{228}Ra però sco product secundar dal ^{232}Th da la lingia da decumposiziun dal torium.

Cuntrari a l'aua sutterrana e da funtauna sa caracterisescha l'aua minerala tras ina concentraziun pli gronda e constanta da minerals dissolvids. Sin basa da quest fatg pudess ins supponer che aua minerala stuess er avair ina concentraziun pli gronda da radionucleids natirals cumpareglià cun aua sutterrana e da funtauna. Per pudair verifitgar questa ipotesa èn las examinaziuns – sco tar las auas da funtauna e sutterranas – vegnidas schlargiadas en ina segunda fasa sin las auas mineralas dal chantun Grischun. En tut èn vegnidas prendidas ed intercuridas 42 emprovas d'aua minerala. Tar las auas mineralas intercuridas sa tracti per part da talas che vegnan embuttigliadas per il commerzi e che vegnan comercialisadas en Svizra ed a l'exteriur, da l'autra vart èn però er vegnidas examinadas quellas auas mineralas che na vegnan betg embuttigliadas u che vegnan offeridas per la consumaziun mo ad in public fitg pitschen en bogns da cura u bavettas. L'activitad en media da ^{238}U era cun var 18 mBq/l en las medemas dimensiuns sco tar l'aua da baiver. Il ^{226}Ra e ^{228}Ra era cun 34 mBq/l resp. 45 mBq/l pli aut. Las activitads da ^{222}Rn eran circa per il factor 200 pli autas che tar ^{238}U e ^{226}Ra . Tar nagina da las emprovas d'aua minerala è la limita svizra per la concentraziun da radionucleids natirals en victualias liquidas vegnida surpassada. Duas da las auas mineralas che vegnan embuttigliadas per il commerzi cuntengnan però uschè bler ^{228}Ra ch'in export en pajais da la UE fiss problematic. Ultra da quai èsi da spetgar ch'in bel di vegnan a pretender er ils consuments svizzers che las limitas tudestgas pli severas vegnian observadas.

En ina terza fasa èsi vegnì examinà, sche la concentraziun da radionucleids natirals en auas da funtauna e sutterranas correleschia cun la concentraziun da radon en l'aria da locals d'abitar en ils medems territoris. Sin basa da las enconuschientschas gudagnadas en quest chapitel po la dumonda vegnir affirmada cleramain. Uschia vegn sustegnida la remartga da Surbeck (1995) che concentraziuns da radon >50 Bq/l en l'aua stoppian vegnir interpretadas

sco indizi per territoris da radon. Questas constataziuns constattan en moda e maniera analoga er per il ^{238}U . Il fatg che concentraziuns pli grondas da ^{226}Ra sco er da ^{228}Ra en auas ed ina concentrasiun pli gronda da radon en l'aria da locals d'abitar èn avant maun il medem mument en il medem territori para perencunter d'esser plitgunsch casual. Schebain ch'i dat ina dependenza tranter la metoda d'aua e la metoda d'aria sto la concordanza da las duas proceduras d'examinar – sa basond sin las evaluaziuns statisticas – vegnir taxada plitgunsch sco pitschna. La probabilitad d'errur importa var 25% sch'ins sa basa sin l'ipotesa che la repartiziun dal territori sin basa da las mesiraziuns da l'aria a l'interiur saja gista. L'intschertezza da questa repartiziun dastgass però esser fitg gronda cunzunt tar las vischnancas cun concentraziuns da media da radon tranter 100 e 200 Bq/m³.

Mesiraziuns da ^{222}Rn sco er da ^{238}U en auas da funtauna e sutterranas èn pensablas sco metodas da screening per repartir territoris. Sch'in cataster da radon duai vegnir stgaffi per in territori pli grond, en il qual ins po spetgar punctualmain ina chargia da radon pli auta, e sche questas regiuns duain vegnir registradas sco emprimas, poi senz'auter esser raschunaivel da far en ina emprima fasa mesiraziuns da ^{222}Rn u ^{238}U en las auas da baiver. Schebain che tuts dus parameters rinvian a territoris da radon, èsi da preferir la determinaziun da l'uran a la determinaziun dal radon. Per l'ina ha il ^{222}Rn ina perioda radioactiva da la mesadad dals atoms bler pli curta ch'il ^{238}U . Quai signifitga che las emprovas ston vegnir examinadas bler pli spert suenter ch'ellas èn vegnidadas prendidas. Ultra da quai permetta la determinaziun da l'uran cun ICP-MS d'examinar ina quantidad d'emprovas pli gronda; quai correspunda ad in respargn da temp e da lavur. Ins sto però punctuar anc ina giada che sulettamain ina mesiraziun individuala po dar indicaziuns precisas davart la concentrasiun da radon en locals d'abitar, perquai che nagina chasa n'è construida sco l'autra, nagina chasa n'è uschè permeabla per radon sco l'autra e nagina chasa n'è construida sin il medem terren sco l'autra.

Sin basa dals resultats e da las enconuschentschas è vegnì decidì da sa focussar en ina quarta fasa sin ils uschenumnads hot-spots per pudair examinar e giuditgar pli precis l'existenza da concentraziuns localmain pli grondas. Sco hot-spots èn vegnidadas elegidas las suandantas tschintg funtaunas: la funtauna da son Placi a Mustér, la funtauna Leis a Val S. Pieder, la funtauna d'aua minerala a Bravuogn e las funtaunas Pedecosta e Pagnoncini en il Puschlav.

Concernent la cumposiziun da radionucleids laschan ils hot-spots sa classifitgar en trais gruppas. Tar la gruppa 1 tutgan la funtauna da son Placi e la funtauna Leis che sa distinguan tras lur gronda concentrasiun da ^{222}Rn , entant ch'ils auters radionucleids natirals èn avant maun mo en pitschnas concentraziuns. La funtauna d'aua minerala a Bravuogn mussa il medem mument concentraziuns pli grondas da ^{222}Rn e da ^{226}Ra . Las funtaunas dal Puschlav furman la terza gruppa che ha la concentrasiun d'uran la pli gronda.

La prioritad da las examinaziuns è vegnida messa sin la funtauna da son Placi. Sin basa da las observaziuns, da las mesiraziuns, dals resultats e da las bilantschas fatgas po vegnir postulà per la funtauna da son Placi sper in model simplifitgà per la produenziun da ^{222}Rn er in model da flussiun idrogeologic. Cun quel vegnan explitgadas las eventualas vias da flussiun e las reacziuns idrochemicas che succedan sin quella via. Tenor quest model infiltrscha l'aua da precipitaziuns sin var 1900 meters sur mar circa 2 km en il nordost da la funtauna da son Placi. Cun l'oxidaziun dal pirit ch'è avant maun en abundanza en quel territori vegn augmentada la concentrasiun da l'aua cun fier, sulfat e protons (H^+), ed ella daventa, pervi dal consum d'oxigen tar l'oxidaziun dal pirit, adina pli anoxica. Tras quai sa sviluppa in'aua cun in pH fitg bass ch'è en cas da dissolver silicats e d'appurtar uschia ulteriurs ions sco Mg^{2+} , Al^{3+} e H_4SiO_4 en il sistem. En vischinanza da la funtauna arriva in'aua enritgida cun oxigen en il sistem, uschia ch'i dat puspè cundiziuns oxidativas ed il fier vegn precipità sco idroxid da fier. Questa precipitaziun d'idroxid da fier adsorbescha en moda fitg effizienta il ^{226}Ra dissolvì, uschia che sia concentrasiun vegn augmentada tras quai en vischinanza da la funtauna. Qua succeda la furmaziun da ^{222}Rn pervi da la decumposiziun da ^{226}Ra . Il ^{222}Rn arriva uschia en grondas concentraziuns tar la sbuccada da la funtauna. La concentrasiun da fier è relativamain pitschna cumparegljà cun la quantidad che sto esser accumulada gist

avant la funtauna sco idroxid da fier. Tar la sbuccada da la funtauna è il sulfat avant maun en las medemas concentraziuns sco al lieu nua ch'el sa sviluppa tar la decumposiziun dal pirit, damai ch'el è fitg resistant e n'interagescha strusch cun auters elements.

Ina cumparegliaziun geologica mussa che las quatter funtaunas cun las concentraziuns da radon las pli grondas naschan da furmaziuns tectonicas che na pon betg vegnir cumparegliadas. Cun excepziun da la zona periferica dal massiv da l'Ara n'èn questas furmaziuns betg enconuschantas per concentraziuns pli grondas da radionucleids. L'unic tratg geologic cuminaivel è il fatg che tuttas naschan sco funtaunas da spelm da las zonas perifericas da furmaziuns cristallinas. La concentraziun d'uran fermamain elevada da las funtaunas Leis, Pedecosta e Pagnoncini e la gronda concentraziun da ^{226}Ra en la funtauna da Bravuogn na laschan betg sa declerar cun ina concentraziun pli gronda da radionucleids da las unitads tectonicas correspudentas. Sco gia menziunà tar il radon n'è – cun excepziun da la zona periferica dal massiv da l'Ara – nagina da questas furmaziuns enconuschantas per concentraziuns pli grondas da radionucleids.

Tratgs idrogeologics cuminaivels dals hot-spots na pon betg vegnir distinguids. Concernent las concentraziuns d'equivalents dals cations ed anions principals laschan ils hot-spots sa distinguer suandantamain: tar ils cations predominescha en tut las auas il calcium en confrunt cun il magnesium per ca. il factor 2. Natrium e calium perencunter vegnan avant mo en quantitads fitg pitschnas. Las auas dals hot-spots sa sumeglian fitg areguard las concentraziuns d'equivalents dals cations.

Concernent ils anions laschan ils hot-spots sa classifitgar en trais gruppas. La funtauna da Leis tutga tar la gruppa da las auas cun ina gronda concentraziun da carbonat. Las funtaunas dal Puschlav mussan circa las medemas concentraziuns d'equivalents da sulfat e d'idrogenercarbonat. Las funtaunas da Bravuogn e da son Placi tutgan tar la terza gruppa, tar la quala il sulfat dominescha cleramain. Clorid e nitrat n'èn praticamain betg avant maun tar questas funtaunas.

Ultra da las concentraziuns d'equivalents dals anions sa differenzieschan questas auas er concernent la conductividad e la concentraziun d'arsen. Entant che la funtauna Leis e la funtauna da son Placi èn strusch mineralisadas, sa tracti tar la funtauna minerala da Bravuogn d'ina aua fitg mineralisada. Las funtaunas dal Puschlav èn auas d'ina direzza mesauna che sa distinguan areguard lur gronda concentraziun d'arsen e che sa differenzieschan en quest regard cleramain dals auters hot-spots.

La funtauna da son Placi, la funtauna Leis e la funtauna d'aua minerala da Bravuogn sa distinguan tras in grad d'instabilitad pitschen areguard ils parameters chemics e fisics. Quai è in indizi per il fatg che questas funtaunas vegnan influenzadas mo pauc d'aua da surfatscha. Perencunter mussan las funtaunas dal Puschlav ina gronda instabilitad da tut ils parameters.

La cumparegliaziun tant geologica sco er idrogeologica dals hot-spots na dat naginas infurmaziuns stringentas davart la provegnientscha da las concentraziuns pli grondas da radon, radium ed uran. Spezialmain il fatg ch'il ^{222}Rn da curta existenza è avant maun è – sco ch'i para – fermamain influenzà da relaziuns geochemicas bcalas. Per pudair chapir meglier las relaziuns stuessan vegnir fatgas examinaziuns cumplessivas – sco tar la funtauna da son Placi – er tar ils auters hot-spots.

1 Einleitung

Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen des ^{238}U , des ^{232}Th und des ^{235}U sind in der Erdkruste allgegenwärtig und daher auch im Grundwasser zu finden. In kristallinen Gesteinen sind sie häufig in Schwermineralien eingeschlossen und damit schlecht auslaugbar. Für das Wasser leichter zugänglich sind die Radionuklide in Sekundärmineralisationen auf Klüften und angelagert an Eisen- und Mangan-Hydroxiden in Sedimenten und Lockersedimenten. Geologische Karten, selbst in Kombination mit Daten über den Radionuklidgehalt der Gesteine, sind wenig hilfreich bei der Suche nach erhöhten Konzentrationen in Grund- und Quellwässern. Wesentlicher als der durchschnittliche Radionuklidgehalt der Gesteine sind lokale geochemische Parameter wie pH, Redox-Potential, Element-Zusammensetzung und Aufenthaltszeit der Wässer. Das gilt besonders für das Auftreten des ^{222}Rn , das mit einer Halbwertszeit von nur 3.8 Tagen stark durch lokale geochemische Verhältnisse bestimmt wird. Für eine gezielte Suche nach Wässern mit erhöhten Konzentrationen an natürlichen Radionukliden ist das Verständnis für das Auftreten solcher Hot-Spots sehr wichtig.

Um die eventuelle Gesundheitsgefährdung durch natürliche Radionuklide im Trinkwasser beurteilen zu können, kann man daher nicht auf die Messung dieser Wässer verzichten. Da Trinkwasser - als wichtigstes Lebensmittel - einen ganz besonderen Stellenwert genießt, war es das Hauptziel dieser Arbeit, einen Gesamtüberblick über die natürliche, radioaktive Belastung von Trinkwasser in Graubünden zu erhalten, um in der Folge die humantoxikologischen sowie lebensmittelrechtlichen Konsequenzen beurteilen zu können.

In den Zerfallsreihen des ^{238}U und des ^{232}Th sind neben dem Uran nur das Radium und das Radon gut im Wasser löslich. Th, Pb, Po und Ac sind in Wässern mit Trinkwasserqualität aufgrund ihrer schlechten Löslichkeit nicht zu erwarten (Osmond und Cowart 1982). Die ^{235}U -Aktivität macht nur ca. 5% der ^{238}U -Aktivität aus und ist daher vernachlässigbar. Das dürfte auch für die ganze ^{235}U -Zerfallsreihe gelten, auch wenn ein Anreicherung des langlebigen ^{231}Pa denkbar wäre, aber noch nie festgestellt wurde. Für die Strahlungsbelastung beim Konsum von Trinkwasser sind aus den ^{238}U - und ^{232}Th -Reihen nur das ^{238}U , das ^{234}U , das ^{226}Ra und das ^{228}Ra relevant. Da mit einer sehr grossen Anzahl Proben zu rechnen war, musste die Zahl der zu bestimmenden Nuklide beschränkt werden. Beim Uran genügt es das Gesamturan, das zu 99.27% aus ^{238}U besteht, zu bestimmen in der Annahme, dass das ^{234}U mit dem ^{238}U im Gleichgewicht ist. Bei den Radium-Isotopen schien die Beschränkung auf das ^{226}Ra sinnvoll, da bisher in Schweizer Trinkwässern noch nie hohe Werte für das ^{228}Ra gefunden wurden (BAG 1995). Es wurde aber sicherheitshalber eine Analysenmethode gewählt, die es erlaubt, das ^{228}Ra durch eine zweite Messung nach einer Wartezeit von einem Jahr doch noch zu bestimmen (Eikenberg et al. 2001). Da indirekt das ^{222}Rn , durch Ausgasen in die Raumluft beim Kochen, Waschen und Duschen auch im Trinkwasser von Bedeutung sein kann, wurde beschlossen, auch dieses Radionuklid zu messen.

1.1 Ziel der Arbeit

Im Rahmen dieser Arbeit wurde versucht, auf folgende Fragen mögliche Antworten zu finden:

1. Sind erhöhte Konzentration von natürlichen Radionukliden der Uran- und Thorium-Zerfallsreihe in Grundwässern auf erhöhte Konzentration dieser Nuklide in geologischen Formationen zurückzuführen?
2. Weisen stärker mineralisierte Quell- und Grundwässern auch höherer Konzentrationen an natürlichen Radionukliden auf?
3. Bestehen Zusammenhänge zwischen erhöhten Konzentrationen an natürlichen Radionukliden in Quell-, Grund- und Mineralwässern und anderen chemischen Parametern?

4. Bestehen Zusammenhänge zwischen den geologisch-tektonischen Einheiten und dem Vorkommen von natürlichen Radionukliden in Quell- und Grundwässern?
5. Kann aufgrund erhöhter Konzentrationen von natürlichen Radionukliden in Quell- und Grundwässern auf deren geologische Herkunft geschlossen werden?
6. Liegen die Konzentrationen der natürlichen Radionuklide im Trinkwasser in Graubünden unterhalb der lebensmittelrechtlich festgelegten Grenzwerte und sind diese Konzentrationen als gesundheitlich unbedenklich einzustufen?
7. Korrelieren im gleichen Gebiet Radonkonzentrationen in Quell- und Grundwässern mit den Radonkonzentrationen in der Luft von Wohnräumen?
8. Können Radonmessungen in Quell- und Grundwässern Luftmessungen in Wohnräumen zur Gebietseinteilung von Radongebieten ersetzen?
9. Können Radonmessungen in Quell- und Grundwässern als Screeningmethode zur Gebietseinteilung von Radongebieten in der Luft von Wohnräumen angewendet werden?

Der Schwerpunkt dieser Betrachtungen lag in erster Linie auf der Qualität der Grund-, Quell- und Mineralwässer und damit auf deren Einfluss auf die Gesundheit der Bevölkerung beim Konsum dieser Wässer. Bis anhin wurden nur sporadische Messungen von natürlichen Radionukliden in Wässern durchgeführt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zum ersten Mal eine derart grossflächige, extensive Untersuchungskampagne durchgeführt. Dies trifft insbesondere bei den Messungen von Radium und vor allem von ^{228}Ra zu, welches sonst sehr selten gemessen wird, bei Kleinkindern jedoch erheblich zur Strahlendosis beitragen kann.

2 Geologie von Graubünden

In diesem Kapitel wird zuerst ein geologisch-tektonischer Überblick über den Kanton Graubünden gegeben. Anschliessend werden die verschiedenen tektonischen Einheiten näher erläutert, wobei die wesentlichen Punkte aus bereits bestehenden Arbeiten in übersichtlicher und vereinfachter Form zusammengefasst werden. Für Details zu den einzelnen Abschnitten wird auf die entsprechende Literatur verwiesen.

Der Kanton Graubünden liegt inmitten der Schweizer Alpen. Die Alpen weisen ein ausgesprochenes Hochgebirgsrelief auf, mit tief eingeschnittenen Tälern und markanten Bergketten und Gipfeln. Die Vergletscherung ist beträchtlich. Wegen der grossen Höhendifferenzen ist die Abtragung sehr intensiv. Sie wird aber nahezu ausgeglichen durch eine andauernde Hebung des Gebirgskörpers. Die Alpen gehören zu den jungen Faltengebirgen der Erde, die am Ende der Kreidezeit und im Tertiär entstanden sind, und deren Faltung wahrscheinlich heute noch andauert. Ihr Hochgebirgscharakter unterscheidet sie deutlich von den zu hügeligen Mittelgebirgen abgetragenen Ketten der älteren europäischen Gebirge. Die Alpen sind ein kompliziertes Gebirge. Die Vielfalt der Gesteine und Mineralien und die oft verwirrenden Lagerungsverhältnisse ist faszinierend und für Forscher wie auch für den Laien sehr interessant. Trotz intensiver, bald zweihundertjähriger Forschungstätigkeit, trotz eines in vielen Belangen einleuchtenden Modells der Entstehung der Alpen sind viele wichtige Zusammenhänge noch nicht erklärt oder erkannt (Labhart 1992).

Im Nord-Süd-Profil Graubündens sind alle tektonischen Grosseinheiten der Alpen aufgeschlossen (Helvetikum, Nordpenninikum, Mittelpenninikum, Südpenninikum, Ostalpin). Im Norden liegen in tektonisch tiefster Lage die externen Grundgebirgseinheiten des Aarmassivs und des Gotthardmassivs. Über der kristallinen Unterlage folgen para-autochthone (Infrahelvetikum) und allochthone Sedimente (Ilanzer Verrucano, gotthardmassivisches Mesozoikum). Abgetrennt durch die penninische Basisüberschiebung liegen über dem gotthardmassivischen Mesozoikum die nordpenninischen Bündnerschiefer, die in drei grosse Untereinheiten unterteilt werden können (subpenninische Bündnerschiefer, Bündnerschiefer der Misoxer Zone, Prättigau Schiefer). Während die subpenninischen Bündnerschiefer lithofaziell teilweise noch ans gotthardmassivische Mesozoikum erinnern, sind die Bündnerschiefer der Misoxer Zone und die Prättigau Schiefer zum grössten Teil in typischer Bündnerschiefer-Fazies ausgebildet. Inmitten dieser nordpenninischen Sedimente befindet sich die Adula-Decke. Sie ist stark metamorph überprägt und besteht aus einem komplexen Stapel von kristallinen und sedimentären Gesteinen. Die nordpenninischen Einheiten werden überlagert durch die mittelpenninischen Einheiten. Es handelt sich dabei entweder um reine Sedimentdecken (Schamser Decken, Falknis-Sulzfluh-Decke) oder um Kristalldecken mit Teilen ihrer sedimentären Bedeckung (Tambo-Decke, Suretta-Decke). Über dem Mittelpenninikum folgen schliesslich Ophiolith-führende südpenninische Einheiten (Platta-Decke, Arosa-Zone) und die Ostalpinen Decken. Zwischen der Adula-Decke im Liegenden und der Tambo-Decke im Hangenden befindet sich die Misoxer Zone. Sie bildet - wie auch die penninische Basisüberschiebung - einen tiefgreifenden Einschnitt innerhalb des penninischen Deckenstapels (Hartmann 1998).

2.1 Die kristallinen Massive

2.1.1 Das Aarmassiv

Die kristallinen Gesteine des Aarmassivs umfassen im Reusstal den Abschnitt von Erstfeld bis zum Oberalppass und reichen, südlich an die autochthonen Sedimente anschliessend und das Maderanertal und das Val Russein mit ihren Nebentälern aufbauend, im Vorderrheintal bis nordöstlich Truns. Ferner erscheinen solche Gesteine in den Fenstern von Biferten, von Limmeren und von Vättis, als grüne Vulkanite auch im Fenster von Tamins. Die hydrogeologisch wirksamen Strukturen, nämlich Klüfte und Scherzonen, liegen meist steil bis

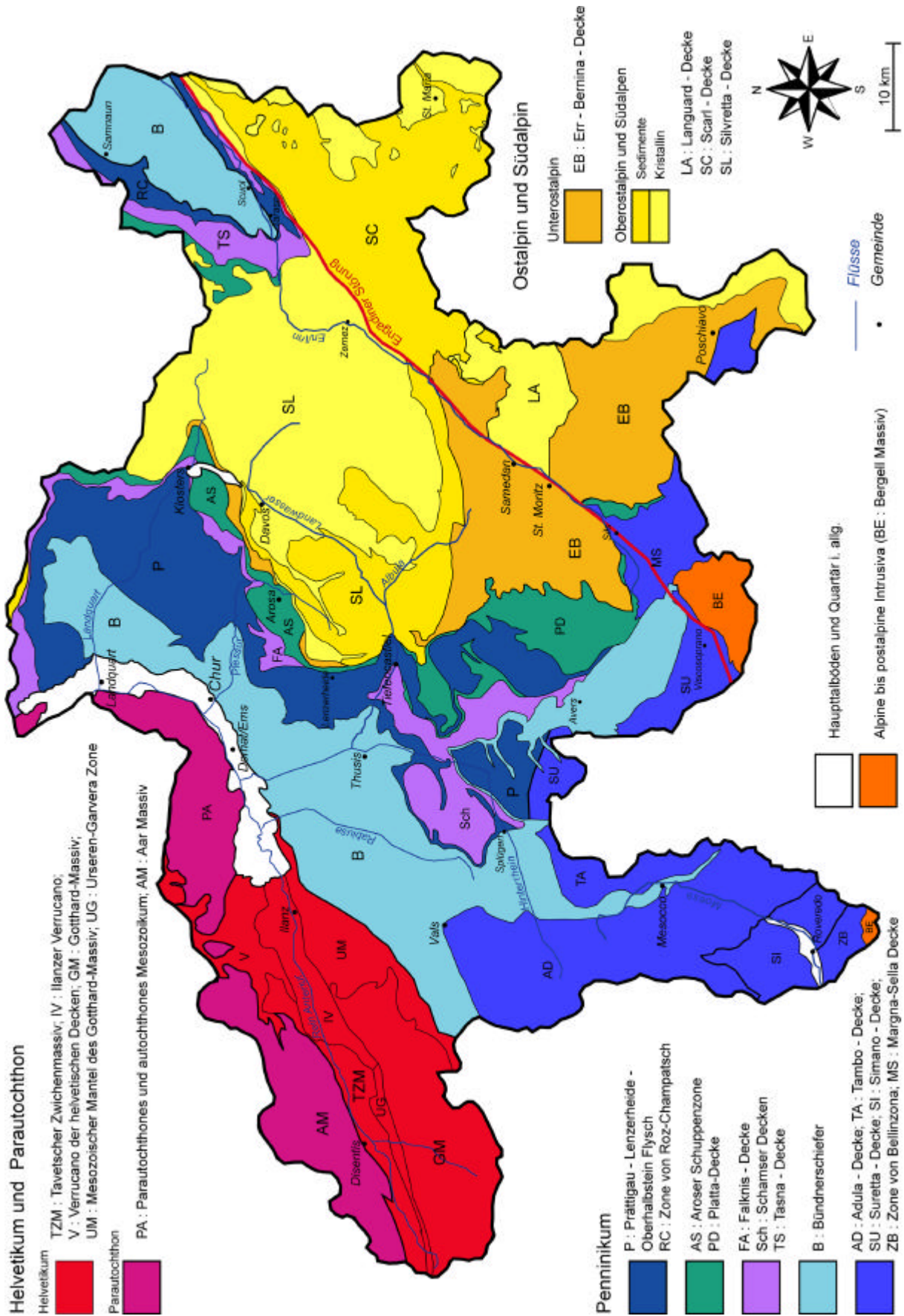


Abb. 1: Vereinfachte tektonische Karte Graubündens (bearbeitet durch F. Gainon nach Spicher 1980)

senkrecht. Kluftzirkulation herrscht vor. Längs des Südrandes des Aarmassivs bewirken steilstehende Scherzonen und Hakenwurf örtlich eine starke Erhöhung der Durchlässigkeit (Jäckli 1995).

2.1.2 Das Tavetscher Zwischenmassiv

Zwischen Oberalppass und Andiast sind die Gneise des Tavetscher Zwischenmassivs mit ganz gelegentlichen Einlagerungen von Amphibolit oder Serpentin als zusammenhängende Zone von rund 2-5 km Breite aufgeschlossen. Es sind vorwiegend Paragneise, also glimmerreiche, meist stark verschieferte, schwerdurchlässige Gesteine in steiler Lagerung, eingeklemmt zwischen die beiden schmalen Sedimentkeile der "Disentiser Mulde" im Norden und der "Urseren-Garvera-Mulde" im Süden (Jäckli 1995). Das Tavetscher Zwischenmassiv bildet zusammen mit dem Gotthardmassiv, den Wurzelbereich der helvetischen Decken der Ostschweiz.

2.1.3 Das Gotthardmassiv

Das Gotthardmassiv wurde bei der alpinen Gebirgsbildung wesentlich stärker in Mitleidenschaft gezogen als sein nördlicher Nachbar, das Aarmassiv. Dies äussert sich an den fast senkrechtstehenden Kontakten zu den helvetischen Sedimenten an den Massivrändern, an der starken internen Verschieferung und am höheren Metamorphosegrad (Labhart 1992). Das Gotthard-Massiv schliesst südlich an das Tavetscher Zwischenmassiv an, das die Gebirge in der Südwestecke Graubündens mit der Gebirgsgruppe des Pizzo Centrale im Westen und der Piz Medel-Gruppe weiter im Osten aufbaut und dessen kristalline Gesteine bis in die Val Gronda oberhalb Obersaxen und Lumbrein reichen. Die Struktur ist steilstehend, in der Regel mit steilem Südfallen der Schieferungsflächen und der Gesteinsgrenzen. Es sind teils glimmerreiche Paragneise mit geringer Wasserdurchlässigkeit, teils glimmerarme Orthogneise und Granite mit etwas erhöhter Kluftzirkulation. Wo hakenwurfähnliche Auflockerungen und Anzeichen rezenter Verstellungen auftreten, die dank der steilen Struktur sehr tiefgründig sein können, vergrössert sich die Durchlässigkeit und damit die Wasserführung ganz bedeutend (Jäckli 1995). Die sog. Nördliche Paragneiszone besteht mehrheitlich aus Glimmerschiefern. Interessant sind die sehr vielfältigen Einlagerungen wie Kalksilikatkfels, Serpentin, Peridotit, Amphibolit, Gabbro, Eklogit usw. In einer zentralen Orthogneiszone dominiert der sog. Streifengneis. Das ist nichts anderes als der oben erwähnte, infolge jüngerer (variszischer) Metamorphose vergneiste kaledonische Granit. In der südlichen Paragneiszone finden sich u.a. Hornblende-Granat-Schiefer (Garbenschiefer) der Tremola-Serie. Die Granite des Gotthardmassivs sind am Ende der variszischen Gebirgsbildung im kurzen Zeitintervall zwischen 303 und 292 Mio Jahren eingedrungen. Sie bilden zwei Zentren: eines im Gebiet des Gotthardpasses (mit Gamsbodengranit und Fibbiagranit, beide stark vergneist und dem jüngeren, wenig veränderten Rotondogranit), ein zweites im Lukmaniergebiet mit Medelsergranit und dem etwas jüngeren Cristallina-Granodiorit (Labhart 1992). Die kristallinen Gesteine des Gotthardmassivs und wo diese ostwärts absinken auch der Illanzer Verrucano werden stratigraphisch überlagert von Gesteinen der Trias. Es sind meist geringmächtige Quarzite, darüber spröde, zerklüftete Dolomite von grosser Durchlässigkeit, oft vergesellschaftet mit Rauhwacke und Gips, Gesteine, welche Sulfatwässer bedingen, und als oberste Gruppe schliesslich helle oder bunte Serizitphyllite (Quartenschiefer) geringer Durchlässigkeit (Nabholz in Jäckel 1985).

2.2 Das Penninikum

Die penninische Region umfasst hauptsächlich ein grosses geschlossenes Gebiet mit den Walliser Alpen südlich der Rhone, dem Nordtessin und dem Westteil Graubündens bis und mit Prättigau, Oberhalbstein und Malojapass. Penninische Gesteine finden sich ferner im Unterengadin in einem tektonischen Fenster unter den ostalpinen Decken. Die Faltung hat hier, anders als im Helvetikum, den kristallinen Sockel miterfasst. Zwar sind auch hier die meisten Sedimente vom Untergrund abgeschert und als reine Sedimentdecken weit nach Norden verfrachtet worden, aber auch das mit Resten der Sedimente im Süden

zurückgebliebene Kristallin der europäischen Kruste ist in den Deckenbau einbezogen worden. Infolge des starken östlichen Axialgefälles liegen vom Tessin an ostwärts immer höhere penninische Decken dachziegelartig übereinander. Über den lepontinischen Untergrund legen sich die Simanodecke (Überschiebungsbetrag 10-15 km), die Aduladecke (Überschiebung 50 km), die Tambodecke (Überschiebung 35-40 km) und die Surettadecke (Überschiebung 45-50 km). Diese vier jeweils 4-5 km dicken Gneisplatten sind mit ihrer Gesamtmächtigkeit von rund 18 Kilometern das eindrucklichste Beispiel eines kristallinen Deckenstapels in den Alpen. Alle vier Einheiten sind in ihrem Südteil von starker alpiner Metamorphose erfasst und werden zudem teilweise vom Bergeller Granit durchschlagen (Labhart 1992).

2.2.1 Die Aduladecke

Die rund 2,5 - 5 km mächtige Adula-Decke stellt die grösste penninische Gebirgsdecke östlich der Tessiner Kulmination dar. Im Westen schliesst, getrennt durch eine dünne Sedimenthülle aus Bündnerschiefern die Simanodecke an. Im Osten folgen die Bündnerschiefer der Misoxer Zone und die Tambodecke. Im Norden wird die Aduladecke durch die subpenninischen Bündnerschiefer begrenzt. Nach Süden keilen die deckentrennenden Bündnerschiefer-Serien aus, so dass dort die Abgrenzung zu den angrenzenden Kristallindecken unscharf wird. Die dominierenden Lithologien der Aduladecke sind einerseits quarzreiche, glimmerreiche Paragesteine mit ausgeprägter Schieferung, welche als Glimmerschiefer zusammengefasst werden können und spätherzynisch intrudierte Orthogesteine, überwiegend Phengitgneise und Amphibolite vor. Untergeordnet treten im frontalen Deckenbereich meist geringmächtige, verschuppte Trias-Sedimente wie Rauwacken, Quarzite, Dolomit- und Kalkmarmore auf (Hartmann 1998).

2.2.2 Penninische Bündnerschiefer und penninischer Flysch

Den Bündnerschiefern der Val Malenco östlich des Bergeller Granits ist mit dem Malenco-Serpentin die grösste zusammenhängende Ophiolithmasse der Alpen eingelagert. Der grössere Teil der mesozoischen Sedimente wurde jedoch abgeschert und liegt nördlich vor der Stirn der Kristallindecken in Mittelbünden. Die Ablagerungen des Walliser Troges liegen als Bündnerschiefer im Raum Valsertal, unteres Hinterrheintal, Domleschg, unteres Schanfigg, Westprättigau und als Prättigau-Flysch vor, diejenigen der Brianconnais-Schwelle in der Schamserdecke und der weit nach Norden vorgeschobenen Falknis-Sulzfluh-Decke. Die Zugehörigkeit zu einer bestimmten Kristallindecke ist nicht rekonstruierbar (Labhart 1992).

2.2.3 Plattadecke und Zone von Arosa

Die Plattadecke und die Zone von Arosa stammen beide aus dem Piemonttrog. Sie markieren als höchste penninische Einheiten die Suturzone zwischen dem alten europäischen Kontinent und dem afrikanischen, dessen Gesteine als ostalpine Decken heute über ihnen liegen. Die Plattadecke, mit geographischem Schwerpunkt im Oberhalbstein, ist der wohl besterhaltene ozeanische Gesteinsverband der Schweizer Alpen. Neben einem sehr hohen Anteil Ophiolith finden sich Radiolarite und andere Tiefseesedimente. Die Zone von Arosa im Raum Arosa-Weissfluh-Klosters besteht aus einer komplizierten Durchmischung von Sedimenten unterschiedlichen Alters und unterschiedlicher Herkunft, darunter Tiefseebildungen (Radiolarite), mit Bruchstücken von Ophiolithen, aber auch von Graniten. Diese auffallende Vermengung ozeanischer und kontinentaler Gesteine hängt mit der besonderen Situation bei der Öffnung des Piemontezeans zusammen. Plattadecke, Tasnadecke (wahrscheinlich das Äquivalent der Falknis-Sulzfluh-Decke) und die unterlagernden Bündnerschiefer sind im Unterengadiner Fenster noch einmal aufgeschlossen. Dies zeigt, dass sich die penninischen Einheiten unter den ostalpinen Massen gegen Osten fortsetzen (Labhart 1992).

2.3 Das Helvetikum

Die helvetischen Decken bauen ein grosses, geschlossenes Gebiet nordwestlich der Zentralmassive zwischen Rhonetal und Rheintal auf. Dabei überdeckt nur ein kleiner, südöstlicher Teil des Helvetikums einen schmalen Streifen des nördlichen Graubündens. Der über dem Kristallin des Aarmassivs liegende autochthone Sedimentmantel reicht zusammenhängend von Schattdorf im Reusstal über Windgällen - Tödi - Bifertenstock gegen den Panixerpass und den Vorab. Nach Osten löst er sich in parautochthone Deckfalten und Schuppen auf, die vom Flimserstein gegen Osten die Südflanken des Ringelspitz und den ganzen Calanda aufbauen und das Fenster von Vättis umrahmen (Jäckli 1985). Die helvetischen Decken bestehen ausschliesslich aus Sedimenten mesozoischen, tertiären sowie - im Osten - permischen Alters. Das mesozoische Schichtpaket, unverfaltet zwischen 0,6 und 2 km mächtig, entspricht in vielem demjenigen des Juragebirges und des Mittellandes. Die helvetischen Sedimente sind in einer relativ späten Phase der alpinen Gebirgsbildung von ihrem kristallinen Untergrund abgeschürft und als Abscherungsdecken 30 bis 50 km nach Nordwesten verfrachtet worden. Der Vorgang konnte in mehrere Phasen gegliedert werden, von der frühen Bildung liegender Falten über eine Phase der bedeutenden Verfrachtung und Überschiebung, verbunden mit einem Zergleiten des Schichtstapels unter Bildung der Decken bis zum abschliessenden Überfahren der Molasse im Mittelland. Der ganze Vorgang dauerte rund 25 Millionen Jahre, vom mittleren Oligozän bis Ende Miozän/Anfang Pliozän. Über dem Kristallin der Zentralmassive, vor allem am Nordrand des Aarmassivs und des Aiguilles Rouges-Massivs, finden sich noch an Ort und Stelle verbliebene (autochthone) helvetische Schichten. Andere sind unter dem Deckenstapel nur unweit verschleppt worden und werden daher als parautochthon bezeichnet. Wie die Falten des Juras sind auch die helvetischen vom unterschiedlichen Verhalten der Schichten geprägt. Die starren, kompetenten Kalksteine, darunter als wichtigste der Schrätkalk der Kreide und der Malmkalk, bilden das Gerüst der Faltung, die plastischen Mergel und Tonschiefer das Füll- und Schmiermaterial. Das führte unter anderem dazu, dass das Schichtpaket ein und derselben Decke während des Transports auf inkompetenten Schichten zergleiten konnte (Labhart 1992).

2.4 Das Ostalpin

Die tektonisch höchsten Bauelemente der Alpen haben ihren Namen von den Ostalpen erhalten. Von Osten her reicht diese gewaltige Deckenmasse bis nach Ostbünden hinein, wo sie an der Linie Vaduz-Arosa-Oberhalbstein-Sils-Bernina-Poschiavo die penninischen Decken überlagert. Im Unterengadin wird die ostalpine Decke tektonisch durch ein penninisches Fenster durchbrochen. Die ostalpinen Decken sind Teile des afrikanischen Kontinents, welche bis zu über 100 km weit auf den europäischen überschoben worden sind. Unter den ostalpinen Sedimenten sticht vor allem die Trias hervor. Im Gegensatz zur geringmächtigen, dreigeteilten Trias des Helvetikums des Mittellandes und des Juras gibt es hier mehrere Kilometer mächtige Schichten von Dolomit und Kalksteines. Wegen ihrer Lage hoch oben im Deckenstapel sind die ostalpinen Gesteine, mit Ausnahme einer wurzelnahen Zone im Süden, alpin nur schwach metamorph. Aus demselben Grund sind die ostalpinen Kristallindecken beim Transport relativ geringfügig deformiert worden. In besonderem Masse gilt dies für die Silvrettedecke. Die unterostalpinen Kristallindecken sind zerschlitzt und in Späne zerlegt worden, zeigen aber im Innern guterhaltene alte Grundgebirgsstrukturen. Sehr intensiv verformt sind hingegen die dazwischengelagerten Sedimente.

2.4.1 Unterostalpin

Der Err-Bernina-Deckenkomplex baut die Berge beidseits des Oberengadins auf (Berninagruppe und Julier-Albula-Region). Der mächtige Kristallinkern biegt im Süden (Veltin) in eine steile Wurzel um. Die Sedimentbedeckung ist wenig abgeschürft, scheint im Nordteil angereichert und wurde bei der Zerschlitzung der Deckenmasse zwischen die Teildecken eingeklemmt. Die Gesteinsvielfalt der Berninadecke ist gross. Neben Gneisen und Glimmerschiefern gibt es eine reichhaltige Palette von Tiefengesteinen, dazu Vulkanite und Ganggesteine. Eine ältere magmatische Abfolge umfasst Gabbros, Diorite und vor allem

Granodiorite, jüngere Granite und Syenite gefolgt von ryolithischen Vulkaniten. Unter den Sedimenten fallen die mächtigen Dolomite der Trias und die bunten Jurabreccien auf.

2.4.2 Oberostalpin

Das bedeutendste Element des Ostalpins ist die Silvrettadecke, die tektonisch höchste und zugleich grösste Decke der Schweizer Alpen. Die verbreiteten Amphibolite sind wie die selteneren Eklogite mehrfach metamorphe marine Basalte. Begleitende Paragneise sind ursprünglich tonigsandige Sedimente desselben Ozeans. Heute sind es glimmerreiche Gneise, die infolge jüngerer, variszischer Metamorphose Granat, Disthen und Andalusit führen. Häufig sind ferner Orthogneise, meist helle Augengneise. Südöstlich des Unterengadins splittert das Oberostalpin in mehrere Kristallin- und Sedimentspäne auf. Dies und ein komplizierter Faltungsablauf mit ungewöhnlichen west- und sogar südgerichteten Überschiebungen machen die Region nicht leicht verständlich. Scarl-, Campo- und Languardecke besitzen Kristallkerne. Im Sesvenngebiet liegen darüber recht mächtige Sedimente des Perms, der sogenannte Münstertaler-Verrucano. Der mesozoische Anteil dieser Decken, fast ausschliesslich Trias, bildet im Nationalpark, im Murtiröl- und Ofenpassgebiet und im Scarltal die Unterengadiner Dolomiten. Sie bestehen vor allem aus 1-2 km mächtigen Triassedimenten (Labhart 1992).

2.5 Bergeller-Granit

Zwischen dem Bergell, dem Veltlin und der Valle della Mera, zum grösseren Teil auf italienischem Gebiet, findet sich eine Eruptivmasse tertiären Alters, die man als Bergeller-Granit oder als Bergeller-Intrusion bezeichnet. In ihrem Nordteil besteht sie wirklich aus massivem Granit mit rötlichen, oft mehrere Zentimeter grossen Feldspäten. Aus ihm bestehen die landschaftlich grossartigen, berühmten Kletterberge des Forno-, Albigna- und Bondascagebiets. Dieser Granit durchbricht die Strukturen der Tambo-, Suretta- und Margnadecke - ist also jünger als die Deckenbildung - und erzeugt im Osten an den Gesteinen des Malenco- und Forno-gebiets eine klassische Kontaktmetamorphose. In diesem hohen Stockwerk verhält sich der Granit intrusiv, er ist als heisses Magma in kühlere Nebengesteine eingedrungen. Gegen Süden und in der Tiefe geht der Granit in den dunkleren Tonalit über und wird zugleich lagig, gneisig. Steilstehende schmale Tonalitzüge lassen sich entlang der insubrischen Linie über 50 km weit bis gegen Giubiasco im Tessin verfolgen. Das Eindringen bzw. das Hochschleppen des Magmas, aber auch sein Erstarren unter gerichtetem Druck hängt offensichtlich mit den Bewegungen an der insubrischen Linie zusammen. Der Zeitpunkt des Eindringens ist auf 30 Millionen Jahre datiert worden. Der helle, feinkörnige Novategranit, der südlich von Chiavenna ansteht, ist einige wenige Millionen Jahre jünger. Die Freilegung des Bergeller-Granits durch Hebung und Abtragung muss innert kurzer Zeit erfolgt sein, finden sich Granitgerölle doch schon in der oberoligozänen Molasse von Como (Labhart 1992).

2.6 Quartäre Ablagerungen

Die Moränen bedecken in überaus wechselnder Mächtigkeit und Zusammensetzung grosse Teile des Geländes und sind als Quellenbildner von grosser hydrogeologischer Bedeutung. Es wird unterschieden zwischen Lokalmoränen im Kristallin und in Kalk- und Dolomitgebieten, von grosser Durchlässigkeit sowie Lokal- und Talmoränen mit hohem Feinsand- und Tonanteil, von uneinheitlicher, meist mittelgrosser Durchlässigkeit, aber sehr guter Filterwirkung. Im Gegensatz zu den Moränen spielen Schotter eine nur relativ geringe Rolle. Im Vorderrheintal von Somvix bis in den Talkessel von Ilanz, im Domleschg und im Churer Rheintal enthalten die Flusschotter der Talsohle jedoch die produktivsten Grundwasserströme, die bereits heute in einigen Pumpwerken genutzt werden. Die grosse Zahl kleiner Bergsturzablagerungen sind hydrogeologisch von lokaler Bedeutung, da sie in der Regel von grosser bis mittelgrosser Durchlässigkeit sind und deshalb als Quellenbildner wirken. Wichtiger sind die ausgedehnten Ablagerungen des Flimser- und Taminser Bergssturzes, die bei mittelgrosser Durchlässigkeit einen kontrollierbaren Grundwasserspiegel aufweisen, der in mehreren Bergsturzseen entblösst erscheint, z. B.

Lag la Cauma, Lag Tuleritg, Lag la Cresta. In den tonreichen Gesteinen des Parakristallins, der Bündnerschiefer und des Flysches erscheinen sehr grossflächige Schieferrutschungen. Dazu gehören etwa die linken Talflanken des Lugnez bei Vrin und von Lumbrein bis Cumbels, des Safientales von der Bärenlücke bis Neukirch und nochmals bei Tenna, im Schams zwischen Wergenstein und Lohn, im Domleschg vom Nollatobel bis zum Crest dil Cot. Hydrogeologisch ist Rutschschutt durchlässiger als das anstehende Gestein und deshalb als Bildner von oft tiefgründigen, gut filtrierten Schuttquellen von Bedeutung. Die ungezählten kleineren und grösseren Schutthalden am Fusse von Steilwänden sind in tonreichen Gesteinen schlecht bis mässig gut durchlässig, bei Kalk und Kristallin meist sehr gut durchlässig (Jäckli 1985).

2.7 Aquifere

Ein Aquifer zeichnet sich dadurch aus, dass er im Vergleich zum umliegenden Gestein eine erhöhte Wasser-Durchlässigkeit aufweist. Das Grundwasser wird - angetrieben durch die Schwerkraft, bzw. durch den hydraulischen Gradienten - auf seinem Fliessweg bevorzugt entlang besser durchlässigeren Schichten oder Zonen fliessen. Schlechter durchlässigere Bereiche bilden den Grundwasserstauer (Aquitard), wobei aber auch dort dennoch eine gewisse Grundwasserzirkulation mit langsameren Fliessgeschwindigkeiten stattfindet. Im Lockergestein findet die Grundwasserzirkulation ausschliesslich im gesättigten Porenraum statt. Gut durchlässige Aquifere sind einerseits an den Talflanken sandigkiesige oder grobblockige Hangschutt-, Fels- oder Bergsturzablagerungen, an dessen Fuss oft Quellaustritte zu finden sind, und andererseits Bachschutt- oder Schotterablagerungen in der Talebene.

Die quartäre Moränenbedeckung weist im allgemeinen eine mittlere bis schlechte Durchlässigkeit auf. Wegen der oft rasch wechselnden Kornzusammensetzung in den Moränen ist die Grundwasserzirkulation meist auf grobkörnigere, sandigkiesige Bereiche beschränkt. Dort, wo solche Bereiche an die Oberfläche treten, sind in der Regel auch Quellaustritte zu beobachten. Demgegenüber ist bei Rutschungen und Sackungen der obere Bereich im allgemeinen trocken, da das Niederschlagswasser durch offene Risse und Spalten in die Tiefe infiltriert und das Grundwasser entlang von Gleitflächen abfliesst und meist erst am unteren Ende der Rutschung/Sackung wieder zu Tage tritt.

Mit Ausnahme der karstfähigen Sedimentgesteine ist der Fels in der Regel gering bis sehr schlecht durchlässig. Als schlecht durchlässig sind vor allem die Kristallin- und die Grüngesteine sowie die Bündnerschiefer zu bezeichnen. Eine demgegenüber erhöhte Grundwasserzirkulation findet aber in stark geklüfteten, kristallinen Gesteinen oder Grüngesteinen, in Bündnerschiefern entlang von steilstehenden Schichtfugen oder entlang tektonischer Störzonen statt.

Eine vergleichsweise etwas bessere Durchlässigkeit kann für die Marmorvorkommen in Betracht gezogen werden. Obwohl im Feld keine eindeutigen Indizien für Verkarstungen gefunden wurden, ist davon auszugehen, dass durch Kalklösung und vor allem entlang von Schichtfugen oder Klüften eine bessere Durchlässigkeit erreicht wird.

Eine generell gute Durchlässigkeit haben die Trias-Sedimente (Högl 1980). Dies wird einerseits durch Verkarstung und Lösung von Dolomit und Rauwacke (Gips) und andererseits durch die Zertrümmerung des Gefüges entlang tektonischer Gleitflächen (tektonische Brekzie) hervorgerufen. Bei grösseren Triasvorkommen (Triaszüge) können ergiebige Aquifere ausgebildet werden, wobei die Grundwasserzirkulation aufgrund der oft linsenförmig auftretenden Triasvorkommen vermutlich abwechselnd zwischen Karsthohlräumen, tektonischen Gleitflächen, Schichtfugen und Klüften stattfindet.

3 Hydrochemie

3.1 Wasser als Stoff

Wasseruntersuchungen durch Chemiker, Physiker, Bakteriologen und Biologen erstrecken sich stets nur auf das, was im Wasser in gelöster, kolloid gelöster oder ungelöster, in belebter oder unbelebter Form vorhanden ist. Wasser (H_2O) gehört aber zu den sonderbarsten und gleichzeitig wertvollsten Stoffen unserer Erde. Die Tatsache, dass sich Wasser beim Gefrieren nicht zusammenzieht, sondern ausdehnt (um etwa 11%), hängt damit zusammen, dass die grösste Dichte des Wassers nicht bei $0\text{ }^\circ\text{C}$, sondern bei $+4\text{ }^\circ\text{C}$ liegt. Darauf beruht die für das Leben in Gewässern fundamental wichtige Tatsache, dass das Eis auf dem Wasser schwimmt und dass unsere Seen nicht bis zum Grund oder vom Grund aus zufrieren. Diese Anomalie widerspiegelt nur eines der vielen Besonderheiten und Ausnahmen des Stoffes Wasser.

Wasser weist ferner eine sehr grosse spezifische Wärme auf. Deshalb werden die im Sommerhalbjahr von den grossen Gewässern aufgenommenen Wärmemengen in den Wintermonaten wieder langsam abgegeben, wodurch grosse Wasserbecken, wie auch die Meere, temperatúrausgleichend wirken.

Der Stoff Wasser hat eine sehr hohe Dielektrizitätskonstante und ein äusserst geringes Leitvermögen. Das dadurch bedingte hohe Isolierungsvermögen des Wassers ermöglicht es, dass bei allen Salzlösungen entgegengesetzt geladene Ionen, Kationen und Anionen, nebeneinander vorhanden sind.

Wasser ist ferner ein sehr gutes Lösungsmittel für Stoffe aller Art. In der Natur kommt deshalb Wasser niemals in wirklich reiner Form vor, d. h. ohne jede Spur von gelösten Mineralien, Gasen oder organischen Stoffen. Das gute Lösungsvermögen des Wassers beruht auf dem ausgesprochenen Dipolcharakter des Wassermoleküls. Das Wassermolekül hat nämlich ein positiv und ein negativ geladenes Ende. Die Abstände der beiden Polenden sind beim Wassermolekül besonders gross. Bei der Annäherung der einzelnen Wassermoleküle zieht der positive Pol des einen Moleküls den negativen Pol eines anderen Moleküls an. Infolgedessen hat man es bei dem Stoff Wasser mit Molekül-Aggregaten zu tun, je nach Temperatur des Wassers, also mit Dihydrol und Trihydrol bis $(\text{H}_2\text{O})_8$. Je höher die Temperatur ist, desto weniger dieser Molekül-Assoziate sind im Wasser vorhanden. Die polaren Eigenschaften des Wassers spielen auch bei der Korrosion im wässrigen Milieu eine Hauptrolle. Eine Besonderheit ist der Molekülbau des Wassers, nämlich die relative Lage der Wasserstoffatome zum Sauerstoffatom in einem Winkel von 105° . Früher nahm man an, dass das Wassermolekül stabförmig angeordnet ist (H-O-H). Mit Sicherheit weiss man heute, dass der Schwerpunkt im Wassermolekül nicht zentral liegt. Dadurch kommt das Dipolmoment zustande, das dem Wasser viele aussergewöhnliche Eigenschaften verleiht. Ganz aussergewöhnlich ist der Aggregatzustand des Wassers in der Reihe anderer analoger Wasserstoffverbindungen, ebenso seine Viskosität und Oberflächenspannung. Die Viskosität kann durch Elektrolyte verschiedenartig verändert werden, die Oberflächenspannung durch oberflächenaktive Stoffe wie Seifen und Tenside (Höll 1986).

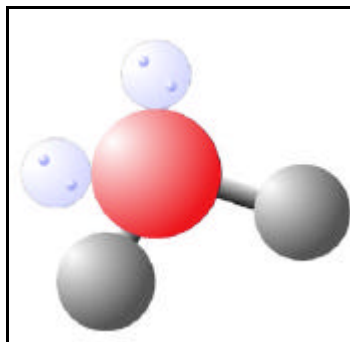


Abb. 2: Zur Bildung eines Wassermoleküls kommt es, wenn sich ein O-Atom mit zwei H-Atomen vereinigt. Es entstehen zwei OH-Bindungen.

Eine weitere Besonderheit des Wassers ist die Bildung von kolloiden Systemen. Die Kolloide, z.B. Humuskolloide, besitzen gewisse elektrische Ladungen. Durch verschiedene Zusätze kann eine Entladung dieser Kolloide verursacht werden, wovon man zum Beispiel bei der Flockung mit Aluminiumsulfat praktischen Gebrauch macht.

Die in der Natur vorkommenden Wässer bestehen nicht nur aus dem normalen „H₂O“, sondern haben auch einen geringen Anteil an schweren Wasserstoff- und Sauerstoff-Atomen. Ausser Wasserstoff mit dem Atomgewicht 1 sind zwei weitere Isotope, das schwere Wasserstoff-Atom Deuterium (D-H-O), mit dem Atomgewicht 2 und das Superschwere Wasserstoff-Atom Tritium (T-H-O), mit dem Atomgewicht 3 bekannt. Auch vom Sauerstoff mit dem Atomgewicht 16 sind zwei schwere Isotope mit den Atomgewichten 17 und 18 bekannt. Alle diese Wasserstoff- und Sauerstoff-Isotope sind in fast allen natürlichen Wässern (Grundwässern, Oberflächenwasser und Regenwasser) mehr oder weniger vorhanden, so dass sich 18 Moleküllarten ergeben. „Festlandwasser“ besteht nach E. H. Riesenfeld aus 0,27% „schwerem Wasser“. In natürlichen Wässern ist der Deuteriumgehalt wegen der unterschiedlichen Verdampfungs- und Verdichtungstemperaturen von normalem und schwerem Wasser verschieden. Im Ozeanwasser und in Küstennähe ist er am höchsten. Im Gletscher-Eis ist das Deuterium stark abgereichert.

Parameter	Wert
Chemische Formel	H ₂ O
Molekulargewicht	18.02
Schmelzpunkt	0 °C
Siedepunkt	100 °C
Tripelpunkt	bei 0.01°C und 610.6 Pa
Dichte	1 g/cm ³ (bei 4 °C)
Spezif. Wärmekapazität	4.1855 J/g·K (bei 25 °C)
Bildungsenthalpie	285.89 kJ/mol (bei 25 °C)
Schmelzenthalpie	6.01 kJ/mol (bei 0 °C)
Verdampfungsenthalpie	40.651 kJ/mol (bei 100 °C)
Oberflächenspannung	71.96·10 ⁻³ N/m (bei 25 °C)
Viskosität	0.8937 mPa·s (bei 25 °C)
Elektr. Leitfähigkeit	0.0635 µS/cm
Dielektrizitätskonstante (ε)	80.18

Tab. 1: Wichtige Kennzahlen von Wasser (Falbe und Regitz 1992)

3.2 Wasser als Lösungsmittel

Bereits in der Antike erkannte man, dass der Charakter eines Wassers durch die von ihm auf dem unterirdischen Weg berührten Gesteine bestimmt wird. Diese Mitteilung wird einerseits Plinius dem Älteren (23 bis 79 n. Chr.), andererseits dem Arzt Galenos (2. Jh. n. Chr.) zugeschrieben. Wasser vermag durch seine unabgesättigten Ladungen andere Moleküle in Ionen zu zerreißen, also zu dissoziieren oder zu lösen. Wenn Wasser am Gestein vorbeizieht, werden Moleküle aus dem Gesteinsverband herausgerissen. Diagenetische Abläufe können durch Diffusion, Redox-Vorgänge, Ionenumtausch oder Ausfilterung von Ionen infolge unterschiedlicher Beweglichkeit im Gestein ausgelöst werden.

Bei Fließvorgängen im Grundwasser setzt sich der gesamte Poreninhalt eines Gesteins infolge äusseren Druckgefälles in Bewegung. Im Gegensatz dazu können bei der Diffusion einzelne Bestandteile der den Porenraum ausfüllenden Flüssigkeit wandern. Sobald ein Konzentrationsgefälle besteht, setzt die Diffusion einzelner Moleküle und Ionen ein. Konzentrationsgefälle werden erzeugt durch stoffliche Verschiedenheit nacheinander abgelagerter Sedimente, durch Druck- und Temperaturunterschiede in der Erdkruste, durch von unten aufsteigende Dämpfe oder Lösungen, durch tektonische Ereignisse, welche

Gesteine verschiedener Zusammensetzung und Porenfüllung in unmittelbarem Kontakt bringen. Die Gesamtmineralisation eines Grundwassers wird in Milligramm pro Liter (mg/l) entweder als Summe der analysierten Stoffe (Ionen) oder als Gewicht des bei der Verdampfung bei einer bestimmten Temperatur zurückbleibenden Rückstandes angegeben. Die Gesamtmineralisation als Summe der gelösten Stoffe ergibt eine erste Charakterisierung eines Wassers. In den meisten Grundwässern sind folgende Haupt- und NebenkompONENTEN zu unterscheiden:

Hauptkomponenten:

Kationen: Natrium (Na⁺), Magnesium (Mg²⁺), Calcium (Ca²⁺)
Anionen: Chlorid (Cl⁻), Hydrogencarbonat (HCO₃⁻), Nitrat (NO₃⁻), Sulfat (SO₄²⁻)
Gelöste Gase: Sauerstoff (O₂), Kohlendioxid (CO₂), Stickstoff (N₂)

NebenkompONENTEN:

Kationen: Kalium (K⁺), Lithium (Li⁺), Ammonium (NH₄⁺), Strontium (Sr²⁺), Mangan (Mn²⁺), Eisen (Fe²⁺)
Anionen: Fluorid (F⁻), Bromid (Br⁻), Jodid (J⁻), Nitrit (NO₂⁻), Dihydrogenborat (H₂BO₃⁻), Hydrogenphosphat (HPO₄²⁻)
Gelöste Gase: Schwefelwasserstoff (H₂S), Methan (CH₄)

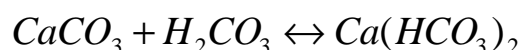
Gegebenenfalls müssen weitere, ein bestimmtes Wasser besonders charakterisierende Stoffe bestimmt werden, wie Arsen (As), Jod (J), Schwefel (S), Uran (U), Radium (Ra), oder Radon (Rn).

Aus der Analyse ergibt sich die Nomenklatur eines Wassers, die seinen chemischen Charakter erkennen lässt. Zur Charakterisierung werden alle Ionen herangezogen, die mit 10 mval-% und mehr an der Gesamt-Ionenkonzentration beteiligt sind. Zuerst werden die Kationen, dann die Anionen, die mit mehr als 10 mval-% beteiligt sind, in der Reihenfolge ihrer Häufigkeit aufgeführt. Ionen mit mehr als 50 mval-% werden dabei unterstrichen, solche mit weniger als 20 mval-% in Klammern gesetzt. Nach Schasssmann et al. (1984) werden derart bezeichnete Wassertypen zu sieben Wassertypengruppen zusammengefasst, um so ein erstes, übergeordnetes Unterscheidungsmerkmal verschiedener Wässer zu erhalten.

Elektrolyt-Lösungen erleiden bei der Berührung mit tonigen Gesteinen häufig einen Austausch ihrer Kationen. Diese verschwinden aus der Lösung und werden an der Grenzfläche der Tonminerale angereichert, dagegen ändert sich die Anionen-Konzentration im Allgemeinen nicht wesentlich. Da die Neutralität der Lösung erhalten bleibt, wird eine äquivalente Menge anderer Kationen, die zuvor an der Grenzfläche gebunden war, desorbiert und tritt stellvertretend in die Lösung ein.

Da Silikatminerale im Kristallin die Erdalkalien Calcium und Magnesium enthalten, kann Grundwasser diese Stoffe unter günstigen Umständen auch hierher beziehen. Im Allgemeinen entstammen sie kalkigen und dolomitischen Gesteinen, aus denen gleichzeitig in äquivalenten Mengen das Anion Hydrogencarbonat gewonnen wird. Ohne Lösungsgenossen geben Kalkstein, Dolomitstein oder Sandsteine mit kalkigem Bindemittel nur so wenig Stoffe in Lösung, dass die Mineralwassergrenze nicht erreicht wird. Anders ist dies vor allem dann, wenn freies gasförmiges Kohlendioxid anwesend ist. Calcium-Hydrogencarbonat-Säuerlinge sind häufige Erscheinungen mit bis 2500 mg/l gelösten festen Stoffen. Diese komplexen Vorgänge werden in der Gleichung des Kalk-Kohlensäure-Gewichts vereinfacht wiedergegeben (Tillmann 1912).

Kalk + Kohlensäure ergibt Karbonathärte



In der untenstehenden Abbildung wird die Mineralisation der am häufigsten vorkommenden Elemente des Grundwassers schematisch dargestellt.

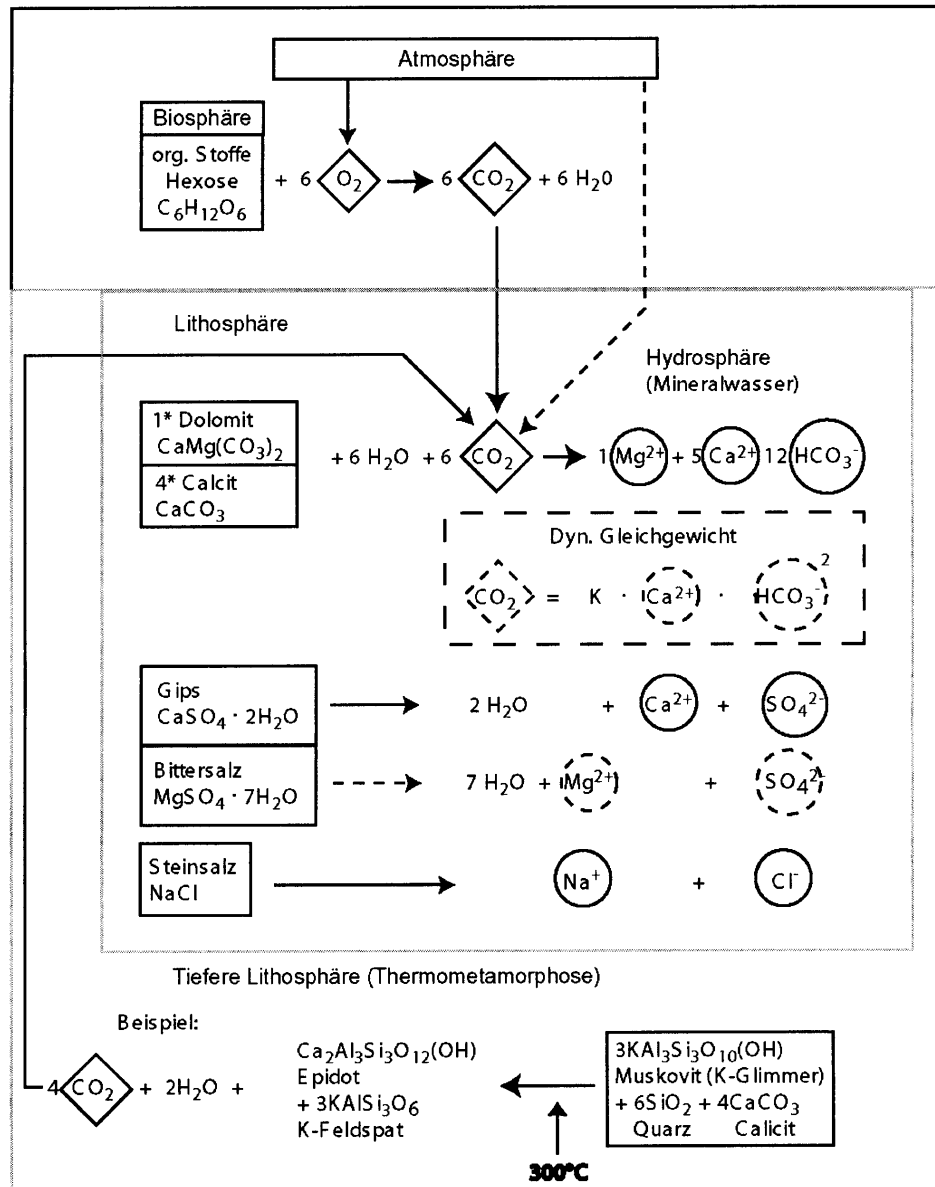


Abb. 3: Schema zur Mineralisation des Grundwassers (Balderer und Löw 2003 nach Schassmann 1980)

Calcium-Ionen werden in entsprechenden Ablagerungen auch aus Gips- oder Anhydrit-Schichten erworben. Es enthält dann als äquivalentes Anion vorwiegend Sulfat. Unter Anwesenheit von Lösungsgenossen, wie etwa Chlorid-Ionen, kann Calcium und Sulfat die normale Löslichkeitsgrenze von etwa 2200 mg/l weit überschreiten. Solche Wässer können sich aber auch aus sulfidischen Erzen bilden, sofern die Sulfide höher oxidiert und dadurch wasserlöslich werden. Pyritführende Schiefer führen nicht selten Sulfat-Wässer. Nur bei tätigen Vulkanismus können Sulfat-Ionen aus abgeschiedenen Schwefeldämpfen entstehen (Carlé 1975).

Eisen und Mangan sind in der Erdkruste weit, wenn auch meist nur in geringen Mengen verbreitet. Ihre Lösung geht jedoch nur unter besonderen Umständen vorstatten, nämlich im Wechselspiel von Oxidation und Reduktion. Eisen und andere Schwermetalle gehen in grösseren Mengen nur dann in Lösung, wenn sulfidische Erzgänge, also Schwermetall-Konzentrationen einer massiven Oxidation unterzogen werden und wenn organisches Material vorhanden ist.

3.3 Wasser gemäss Lebensmittelrecht

In der eidg. Lebensmittelverordnung (LMV 2002) wird Trinkwasser definiert als Wasser, das natürlich belassen oder nach Aufbereitung bestimmt ist zum Trinken, zum Kochen, zur Zubereitung von Speisen sowie zur Reinigung von Gegenständen, die mit Lebensmitteln in Berührung kommen.

Unter Quellwasser wird Trinkwasser verstanden, das an der Quelle abgefüllt und nicht oder nur mit den für natürliches Mineralwasser zulässigen Verfahren aufbereitet wird. Quellwasser darf keiner Behandlung unterworfen und mit keinem Zusatz versehen werden.

Natürliches Mineralwasser muss mikrobiologisch einwandfreies Wasser sein, das aus einer oder mehreren natürlichen Quellen oder aus künstlich erschlossenen unterirdischen Wasservorkommen besonders sorgfältig gewonnen wird. Natürliches Mineralwasser muss sich auszeichnen durch besondere geologische Herkunft, Art und Menge der mineralischen Bestandteile, ursprüngliche Reinheit sowie durch die im Rahmen natürlicher Schwankungen gleichbleibende Zusammensetzung und Temperatur. Dies muss nach wissenschaftlich anerkannten Verfahren geologisch, hydrogeologisch, physikalisch, chemisch und mikrobiologisch überprüft werden und der zuständigen kantonalen Vollzugsbehörde zur offiziellen Anerkennung zugestellt werden. Es darf keiner Behandlung unterworfen und mit keinem Zusatz versehen werden. Natürliches Mineralwasser muss so gefasst und zum Abfüllort geleitet werden, dass die chemischen und mikrobiologischen Eigenschaften, die das Wasser am Quellaustritt besitzt, weitgehend erhalten bleiben. Insbesondere muss die Quelle am Quellaustritt gegen Verunreinigung geschützt sein. Fassungen, Rohrleitungen und Reservoirs müssen aus einem für das natürliche Mineralwasser geeigneten Material bestehen und so beschaffen sein, dass jede chemische, physikalisch-chemische und mikrobiologische Veränderung des Wassers verhindert wird. Natürliches Mineralwasser darf von der Quelle zum Abfüllort nur in Rohrleitungen geführt werden. Der Weitertransport in Tankwagen ist nicht gestattet.

3.4 Wasser definiert nach hydrogeologischen Kriterien

Nachfolgend werden die unterschiedlichen Wassertypen auf Grund ihrer hydrogeologischen Charakteristika eingeteilt und umschrieben.

Grundwasser wird nach DIN 4049 definiert als unterirdisches Wasser, das die Hohlräume (Poren) des Untergrundes zusammehängend ausfüllt und dessen Bewegung nahezu ausschliesslich von der Schwerkraft bestimmt wird.

Unter oberflächennahem Grundwasser versteht man Grundwasser, welches keiner ausgeprägten Tiefenzirkulation angeschlossen ist, d.h. nur die obersten, aufgelockerten Bodenschichten durchflossen hat.

Quellwasser ist junges, Wochen bis Monate altes, in der Regel schwach mineralisiertes Grundwasser, welches im oberflächennahen Grundwasserbereich zirkuliert und in einer Quelle zu Tage tritt.

Bei Gips-Wasser handelt es sich um oberflächennahes Quellwasser mit leicht erhöhter Mineralisation, welches beim Durchfliessen von gipshaltigen Schichten mineralisiert wird.

Mineralwasser ist ein stärker mineralisiertes, Jahre bis Jahrzehnte altes Grundwasser, welches sich durch eine besondere geologische Herkunft auszeichnet.

Unter Säuerlingen oder Kohlensäurewässern werden Mineralwässer verstanden, welche durch unterirdischen Zustrom magmatisches oder thermometamorphes Kohlendioxid aufnehmen und dadurch verstärkt Karbonate auflöst (Schassmann, 1980).

Thermalwasser ist Wasser, welches bei seinem natürlichen Austritt eine weit über dem Jahresmittel der Erdoberfläche liegende Temperatur, d.h. meist über 20°C aufweist (Schassmann 1980).

4 Radioaktivität

Die Entdeckung der „Strahlentätigkeit“ von Uran-Verbindungen geht auf Becquerel im Jahre 1896 zurück. Er gab diesem Phänomen den Namen „Radioaktivität“. Sechs Jahre später entdeckten Rutherford und Soddy, dass die Radioaktivität auf einen Zerfall von Atomkernen zurückzuführen ist. Dabei wandeln sich instabile Atomkerne ohne äussere Einwirkung spontan in andere Atomkerne um. Als instabil gelten hauptsächlich schwere Kerne mit hoher Kernladungszahl. Alle Radionuklide der drei natürlich noch vorkommenden Zerfallsreihen haben Kernladungszahlen $Z \geq 82$. Doch kommen in der Natur auch leichtere Radionuklide vor (z.B. ${}_{19}^{40}\text{K}$, ${}_{6}^{14}\text{C}$). Die häufigsten Strahlungsarten, die von natürlichen Radionukliden ausgehen, sind die α -, β - und γ -Strahlung. Diese drei Strahlungsarten werden aufgrund ihrer Herkunft aus dem Atomkern auch Kernstrahlung genannt. Aufgrund der Eigenschaft Atome ionisieren zu können, gehört die Kernstrahlung in die Gruppe der ionisierenden Strahlung.

4.1 Kernstrahlung

4.1.1 Alpha-Zerfall

Beim α -Zerfall werden Heliumkerne (= α -Teilchen, ${}_{2}^{4}\text{He}^{2+}$) emittiert. Die Heliumkerne reissen beim Verlassen des Atoms Elektronen aus der Hülle des neu entstandenen Tochternuklids heraus, so dass dieses kurzzeitig positiv geladen ist. Dieser Effekt wird teilweise messtechnisch genutzt (\rightarrow elektrostatische Abscheidung). Beim α -Zerfall ändert sich die Massenzahl und die Ordnungszahl vom Mutternuklid (M) zum Tochternuklid (T):



Die Zerfallsenergie ΔE entspricht der Differenz aus der Masse des Mutternuklids und der Summe der Masse des Tochternuklids (m_T) und des α -Teilchen (m_a). Das α -Teilchen erhält daraus aufgrund von Impuls- und Energieerhaltungsgründen folgenden Anteil als kinetische Energie (E_a):

$$\text{Gl. 1: } E_a = \frac{\Delta E \cdot m_T}{m_T + m_a}$$

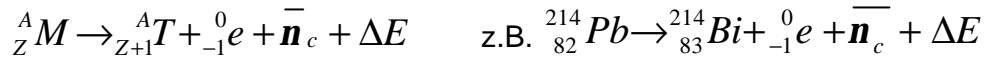
E_a liegt beim Zerfall schwerer Kerne zwischen 4 und 10 MeV (Buttlar & Roth 1990). Alle α -Teilchen eines Isotops besitzen die gleiche diskrete Energie (monoenergetisch) oder es gibt wenige Gruppen von α -Teilchen mit jeweils einer diskreten Energie (Philipsborn 1997). Trotz der extrem hohen Energie beträgt die Reichweite selbst in Luft nur wenige Zentimeter. Auch das neu entstandene Nuklid erhält durch den Zerfall kinetische Energie (E_T):

$$\text{Gl. 2: } E_T = \frac{\Delta E \cdot m_a}{m_T + m_a}$$

Aus Gl. 1 und Gl. 2 ergibt sich, dass sich die kinetischen Energien von Tochternuklid und α -Teilchen umgekehrt proportional zu ihren Massen verhalten. An das Tochternuklid wird zwar nur eine geringe Energiemenge abgegeben, aber diese reicht aus, um das Tochternuklid im Gestein wenige Nanometer [nm] von seinem Bildungsort zu entfernen. Dieser Prozess wird α -Rückstoss (α -recoil) genannt.

4.1.2 Beta-Zerfall

Durch den β^- -Zerfall, im folgenden nur β^- -Zerfall genannt, wird ein Elektron freigesetzt. Das Elektron stammt nicht aus der Hülle sondern aus dem Kern. Es entsteht durch die Umwandlung eines Neutrons in ein Proton und ein Elektron:



Die β^- -Strahlung ist nicht monoenergetisch. Die zur Verfügung stehende Energie aus dem Massendefekt verteilt sich in einem beliebigen Verhältnis auf das emittierte Elektron und ein Antineutrino ($\bar{\nu}_c$). Das Antineutrino hat keine Ladung und eine sehr geringe oder keine Ruhemasse. Die Energie der β^- -Strahlung liegt bei 0,02-1 MeV (max. bis 3 MeV). Die Reichweite der β^- -Strahlung in einem Medium ist meist größer als die der α -Strahlung, z.B. ist im Wasser die β^- -Reichweite 10 μm bis 7 mm und die α -Reichweite ca. 40 μm (Gerthsen et al. 1986). Auch beim β^- -Zerfall erhält der Kern einen Rückstossimpuls. Zudem gehören in die Gruppe der β^- -Zerfälle auch der β^+ -Zerfall und der K-Einfang, die jedoch hier nicht weiter behandelt werden.

4.1.3 Gamma-Zerfall

Die γ -Strahlung ist eine energiereiche, elektromagnetische Strahlung, die mit den Röntgenstrahlen verwandt ist. Sie entsteht, wenn durch ein Zerfallsereignis ein Atomkern in einen angeregten Zustand versetzt wird und dieser in einen energieärmeren Zustand zurückfällt (z.B. in den Grundzustand). Sie tritt häufig beim α - und β^- -Zerfall als Begleitstrahlung auf. Durch die Emission von γ -Strahlung ändert sich weder die Ordnungszahl noch die Massenzahl des Kerns. Die Energie der γ -Strahlung liegt im Bereich von 0,02 bis 4 MeV. Ihre Reichweite ist erheblich grösser als die der α - oder β^- -Teilchen. Die γ -Strahlung wird in einem Medium exponentiell absorbiert (99-%ige Absorption in Wasser nach 6,4 bis 65 cm). Die Übergabe von kinetischer Energie an den Kern ist bei der γ -Emission vernachlässigbar gering bzw. praktisch null, wenn der Kern im Kristallgitter sitzt und dieses die Rückstossenergie als Ganzes aufnimmt (Gerthsen et al. 1986).

4.1.4 Zerfallsgesetz

Rutherford und Soddy entdeckten, dass der Zerfall radioaktiver Atome ohne jeglichen Einfluss von aussen stattfindet. Der radioaktive Zerfall ist ein rein statistisches Ereignis. Die Wahrscheinlichkeit für den Zerfall eines Kerns innerhalb einer Gruppe gleicher Kerne ist für jeden Kern gleich. Deshalb ist die Anzahl der Zerfälle pro Zeiteinheit (A) proportional zur Anzahl der vorhandenen Kerne (N). Für die tatsächlich innerhalb einer Zeiteinheit zerfallenden Kerne kann eine Zerfallswahrscheinlichkeit (\rightarrow Zerfallskonstante, λ) angegeben werden.

$$\text{Gl. 3:} \quad A = \lambda \cdot N(t)$$

wobei gilt: A = Aktivität [Bq], Zerfälle pro Zeit (Sekunde)
 $N(t)$ = Anzahl der Radionuklide zum Zeitpunkt t

Die Anzahl der Zerfälle pro Zeiteinheit beschreibt gleichzeitig die Abnahme der vorhandenen Kerne pro Zeiteinheit:

$$\text{Gl.4:} \quad A = -\frac{dN}{dt}$$

Werden Gl. 3 und Gl. 4 zusammengefasst und die Differentialgleichung integriert so ergibt sich das Zerfallsgesetz der Radioaktivität:

$$\text{Gl. 5: } N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t}$$

wobei gilt: N_0 = Anzahl der Radionuklide zum Zeitpunkt $t = 0$
 λ = Zerfallskonstante [s^{-1}]
 t = Zeit [s]

Das Zerfallsgesetz beschreibt aber nur das mittlere Verhalten vieler Kerne. Bei abnehmenden Aktivitäten treten immer grössere statistische Schwankungen auf. Die Zerfallskonstante λ ist für jedes Radionuklid ein statistisches Charakteristikum. Jedoch wird diese Konstante im allgemeinen nicht für die Beschreibung der Stabilität von Radionukliden verwendet. Vielmehr wird dazu die Halbwertszeit oder auch die mittlere Lebensdauer angegeben. Die Halbwertszeit ist diejenige Zeit, während der die Hälfte eines radioaktiven Stoffes zerfallen ist. Die Halbwertszeiten ($t_{1/2}$) bekannter Nuklide liegen zwischen 10^{-9} Sekunden und 10^{14} Jahren. Die mittlere Lebensdauer (τ) gibt die durchschnittliche Zeit an, die zwischen der Entstehung und dem Zerfall eines Radionuklids liegt.

$$\text{Gl. 6: } t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad t_{1/2} = \text{Halbwertszeit [s]}$$

$$\text{Gl. 7: } \tau = \frac{1}{\lambda} \quad \tau = \text{mittlere Lebensdauer eines Nuklids}$$

Im o. g. Zerfallsgesetz wird nur ein einzelnes separates Radionuklid betrachtet. Jedoch kommt es in den natürlichen Zerfallsreihen neben dem Zerfall von Radionukliden auch zu deren Neubildung aus ihren Vorgängern (mit Ausnahme der Mutternuklide der Zerfallsreihen). Werden von einem Radionuklid ebenso viele neu gebildet wie zerfallen, befindet sich das Tochternuklid mit seinem Mutternuklid im radioaktiven Gleichgewicht, beide Radionuklide weisen die gleiche Aktivität auf. Befindet sich eine gesamte Zerfallsreihe oder Teile daraus im radioaktiven Gleichgewicht so sind die Zerfalls- und Neubildungsraten aller beteiligten Nuklide gleich. Dieser Zustand ist in einem geschlossenen System praktisch nach fünf Halbwertszeiten der langlebigsten Tochter erreicht. Dann verhalten sich die Teilchenkonzentrationen proportional zu den Halbwertszeiten. Ist zum Beispiel in einer Probe die Aktivität aller Nuklide der ^{238}U -Reihe 1 Bq, so bedeutet dies, dass in der Probe etwa $0,20 \cdot 10^{18}$ Teilchen ^{238}U , $73 \cdot 10^9$ Teilchen ^{226}Ra , $0,5 \cdot 10^6$ Teilchen ^{222}Rn und nur $2,3 \cdot 10^3$ Teilchen ^{214}Pb vorhanden sind. Ein radioaktives Gleichgewicht ist also mit einem enormen Ungleichgewicht in der Anzahl der Teilchen verbunden.

4.2 Einheiten

4.2.1 Aktivität

Die Aktivität ist definiert als die Anzahl der Zerfallsereignisse pro Zeit. Sie wird in der SI-Einheit Becquerel [Bq] angegeben. Die Aktivität ist nach Gl. 3 abhängig von der Anzahl der Radionuklide und der Halbwertszeit. 1 Becquerel ist die Aktivität einer radioaktiven Substanz, in der im Mittel genau ein Zerfall je Sekunde stattfindet. Früher war das Curie [Ci] die gebräuchliche Einheit, wobei ein Curie der Aktivität von 1 g ^{226}Ra entspricht.

$$1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$$

$$1 \text{ Ci} = 37 \cdot 10^9 \text{ Bq}$$

In der Radioökologie interessieren im allgemeinen die Aktivitäten, die von den einzelnen Radionukliden in einer Probe ausgehen und nicht die Gesamtaktivität einer Probe. Die Aktivität eines Radionuklids X pro Gewichts- oder Volumeneinheit wird in der vorliegenden Arbeit einheitlich als Aktivitätskonzentration [Bq/l; mBq/l] von X angegeben.

4.2.2 Spezifische Aktivität

Die unterschiedliche Verwendung des Begriffs der spezifischen Aktivität kann zu einer gewissen Verwirrung führen. Manche Autoren bezeichnen jegliche Aktivitätsangabe (Gesamtaktivität, Teilaktivität oder Aktivität einzelner Radionuklide), die sich auf eine Gewichtseinheit bezieht, als spezifische Aktivität: z. B. 50 Bq/kg. Häufig wird die Angabe einschränkend auf die Aktivität eines einzelnen Radionuklids pro Gewichtseinheit bezogen: z. B. 50 Bq/kg^{234Th}. Die spezifische Aktivität eines Radionuklids ist in der Physik definiert als:

$$\text{Gl. 8: } A_x = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \cdot \frac{N_A}{M_r}$$

wobei gilt: A_x = spezifische Aktivität des Radionuklids X [Bq/g]
 $t_{1/2}$ = Halbwertszeit von X [s]
 N_A = Avogadro-Konstante [1/mol]
 M_r = relative Atommasse von X [g/mol]

Liegt das Radionuklid in einem Isotopengemisch (z. B. ⁴⁰K in natürlichem Kaliummetall oder reines U_{nat}) oder in einer Verbindung (z. B. ²³⁴Th in ThO₂) vor, kann die Gleichung entsprechend den Gewichtsanteilen erweitert werden.

4.2.3 Äquivalentdosis

Steht der Strahlenschutz im Mittelpunkt der Betrachtung von Aktivitäten wird häufig das halbempirische Mass der Äquivalentdosis (H) [Sv] verwendet. Bei gleicher Energiedosis (= durch Adsorption übertragene Strahlungsenergie pro Masse einer Materie) verursachen die verschiedenen Strahlungsarten eine unterschiedlich starke biologische Wirkung im menschlichen Körper. Um die unterschiedliche biologische Wirksamkeit vergleichen zu können, wird die Energiedosis mit einem Strahlungs-Wichtungsfaktor multipliziert. Die Einheit der Äquivalentdosis ist Joule pro Kilogramm [J/kg]. Um aber den Unterschied zur Energiedosis [1 J/kg = 1 Gy] zu unterstreichen, wird für die Äquivalentdosis das Sievert [1 J/kg = 1 Sv] als Einheit verwendet.

$$\text{Gl. 9: } H = D \cdot Q$$

wobei gilt: H = Äquivalentdosis [Sv]
D = Energiedosis (übertragene Energie pro Masse) [Gy] [J/kg]
Q = Strahlungs-Wichtungsfaktor = N · q
N = Faktor für die Expositionsbedingungen (äußere Exposition N = 1)
q = Bewertungsfaktor für die Strahlungsart

Die Strahlungs-Wichtungsfaktoren zur Berechnung der Äquivalentdosis wurden aus radiometrischen, epidemiologischen und strahlenbiologischen Daten ermittelt. Sie stellen somit eine Bewertung der Strahlenwirkung auf den Organismus dar.

Strahlungsart	α	β	γ	Röntgen	Schnelle Neutronen	Thermische Neutronen
Q	20	1	1	1	10	3

Tab. 2: Strahlungs-Wichtungsfaktor für die Ganzkörperexposition von aussen (Buttlar & Roth 1990).

Die Ionisationsdichte im Gewebe und somit der Strahlungs-Wichtungsfaktor von β -, γ - und Röntgenstrahlung ist gering. Der hohe Q-Wert für die α -Teilchen ergibt sich, weil sie trotz ihrer geringen Eindringtiefe die grössere Anzahl von Ionen erzeugen (Philipsborn 1997).

4.3 Radioaktivität von Grundwasser

Die folgende Tabelle gibt einen Überblick über die typischen Aktivitätskonzentrationen einiger Radionuklide aus den natürlichen Zerfallsreihen. Die Aktivitätskonzentrationen sind vor allem das Resultat aus der Häufigkeit der jeweiligen Mutternuklide und der geochemischen Eigenschaften der Nuklide. In der Schweiz gibt es seit 1995 neben Grenzwerten für künstliche Radionuklide auch Grenzwerte für natürliche Radionuklide in Nahrungsmitteln. In der Fremd- und Inhaltstoffverordnung (FIV 2002) werden die in der folgenden Tabelle aufgeführten Höchstkonzentrationen für Radionuklide der Uran- und Thoriumreihe für flüssige Lebensmittel statuiert. Die Höchstkonzentrationen gelten für die jeweilige Radionuklidgruppe. Innerhalb der Nuklidgruppe gelten sie für die Summe der gemessenen Aktivitäten. Als Höchstkonzentration gilt die Konzentration eines Stoffes und seiner toxikologischen bedeutsamen Folgeprodukte, die in einem bestimmten Lebensmittel im Zeitpunkt der Abgabe an die Konsumenten vorhanden sein darf. Die Höchstkonzentration wird als Toleranzwert oder als Grenzwert angegeben. Der Toleranzwert ist die Höchstkonzentration, bei dessen Überschreitung das Lebensmittel als verunreinigt oder sonst im Wert vermindert gilt. Der Grenzwert ist die Höchstkonzentration, bei dessen Überschreitung das Lebensmittel für die menschliche Ernährung als ungeeignet gilt. Diese Grenzwerte gelten grundsätzlich auch für Radionuklide natürlichen Ursprungs. Sie gelten jedoch nicht für homöostatisch regulierte natürliche Nuklide wie $^{40}\text{Kalium}$, wo die Dosis nicht von der inkorporierten Aktivität abhängt.

Radionuklide der Uran- und Thoriumreihe	Zerfallsart	Konzentrationsbereich [mBq/l]	Grenzwert nach FIV [mBq/l]	
Gruppe I	^{224}Ra	α	Für Gruppe I 10'000	
	^{228}Th	α		
	^{234}U	α		1 - 100
	^{235}U	α		< 1 - 5
	^{238}U	α		1 - 100
Gruppe II	^{210}Pb	β	Für Gruppe II 1'000	
	^{210}Po	α		
	^{226}Ra	α		1 - 100
	^{228}Ra	β		0,1 - 100
	^{230}Th	β		
	^{232}Th	α		< 1
	^{231}Pa	α		
^{222}Rn	α	$10^3 - 10^4$	-	
^{234}Th	β	< 1	-	

Tab. 3: Typische Konzentrationsbereiche für natürliche Radionuklide im Grundwasser nach Gellermann & Dörr (1993) und Grenzwerte für flüssige Lebensmittel nach FIV (2002).

5 Geochemie

5.1 Uran

Es gibt drei natürlich auftretende Isotope vom Uran, die alle über einen α -Zerfall zu Thorium umgewandelt werden:

^{238}U Mutternuklid der Uran-Reihe	α , $t_{1/2} = 4,5 \cdot 10^9 \text{ a}$
^{235}U Mutternuklid der Actinium-Reihe	α , $t_{1/2} = 7 \cdot 10^8 \text{ a}$
^{234}U vom Zerfall des ^{234}Pa	α , $t_{1/2} = 2,5 \cdot 10^5 \text{ a}$

Die natürliche Isotopenmischung (^{234}U mit ^{238}U im radioaktiven Gleichgewicht) in Gesteinen setzt sich aus 99,27 Gew.-% ^{238}U , 0,72 Gew.-% ^{235}U und 0,006 Gew.-% ^{234}U zusammen. Eine Ausnahme bilden natürliche ausgebrannte Kernreaktoren, die relativ an ^{235}U verarmt sind (vgl. Oklo-Phänomen, siehe Gauthier-Lafaye & Weber 1989). Aufgrund der geringen Massensendifferenz zwischen ^{238}U und ^{235}U treten zwischen diesen Isotopen keine bedeutenden Fraktionierungseffekte auf (Rogers & Adams 1969). Für $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ in natürlichen Materialien ergibt sich somit aus den prozentualen Häufigkeiten und den Halbwertszeiten rechnerisch ein Häufigkeitsverhältnis von $\approx 1/138$ und ein Aktivitätsverhältnis von $\approx 1/21,5$.

Die Darstellungsart nach Surbeck (1995) zeigt die Zerfallsreihe des ^{238}U (Uran-Reihe). Er gibt eine Einteilung in Teilreihen (Umrahmung) für hydrogeologische Betrachtungen vor, die jeweils ein langlebiges Hauptnuklid (Fettdruck) und die zugehörigen kurzlebigen Zerfallsprodukte enthalten. Das Hauptnuklid ist definiert durch eine genügend lange Halbwertszeit um nicht zwischen Probenahme und Messung bzw. Nutzung zu zerfallen. Die Tochternuklide entstehen oder zerfallen während Lagerung und Transport (Surbeck 1995).

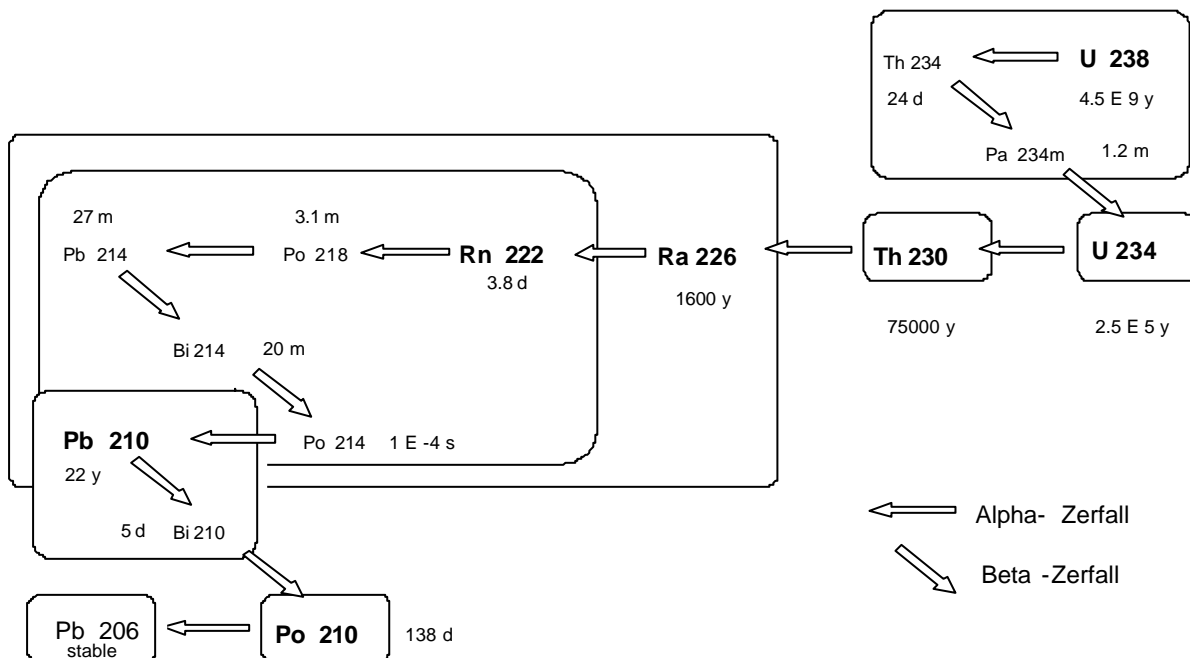


Abb. 4: ^{238}U -Reihe (nach Surbeck 1995).

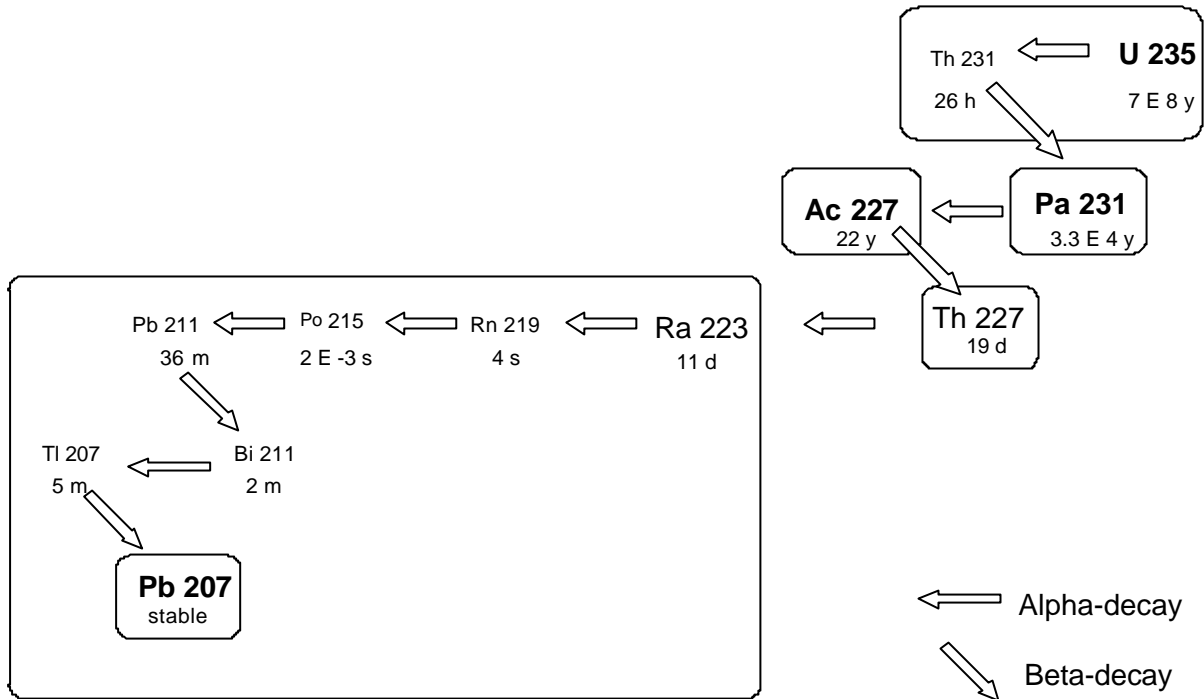


Abb. 5: Actinium-Reihe (nach Surbeck 1995).

Die Angaben über den mittleren Gehalt von U_{nat} in der Erdkruste reichen von 1,8 ppm (Allegre & Michard 1973) bis 3 - 4 ppm (Füchtbauer et al. 1988). Damit tritt Uran deutlich häufiger als z. B. Gold oder Silber auf. Relativ häufig finden sich in der Literatur für den mittleren Gehalt von U_{nat} in der Erdkruste Werte um 2,5 ppm. Aufgrund der Dominanz von ^{238}U in der natürlichen Isotopenmischung ergibt sich daraus für dieses Isotop ein mittlerer Gehalt in der Erdkruste von 2,5 ppm, wobei für die natürliche Isotopenmischung im radioaktiven Gleichgewicht gilt:

Gl. 10: $1 \text{ ppm } U_{\text{nat}} \approx 25,4 \text{ Bq/kg}$ (ohne die Zerfälle der Tochternuklide), davon entfallen auf

$$^{238}\text{U} \approx 12,4 \text{ Bq}$$

$$^{234}\text{U} \approx 12,4 \text{ Bq}$$

$$^{235}\text{U} \approx 0,58 \text{ Bq}$$

$$1 \text{ ppm } ^{238}\text{U} \approx 12,4 \text{ Bq/kg}$$

Der Gehalt an Uran und damit die Aktivitätskonzentration kann in einzelnen Gesteinen beträchtlich variieren.

Gesteinstyp	²³⁸ U-Aktivitätskonzentration [Bq/kg]		
	Mittel	Minimum	Maximum
basische Magmatite	11	4	13
saure Magmatite	44	38	252
Sandsteine	20	6	38
Tonsteine	34	25	101
Karbonate	23	4	29
Bauxite	144	25	340
Phosphate	1488	630	11340 (3700)

Tab. 4: ²³⁸U-Aktivitätskonzentrationen in Gesteinen (Kemski et al. 1996, ergänzt nach Daten aus Füchtbauer et al. 1988).

Uran kann mit Oxidationszahlen von +3 bis +6 auftreten, jedoch sind für die Geochemie in der Regel nur die Oxidationsstufen +4 und +6 von Bedeutung. Vielleicht die wichtigste primäre Quelle für Uran stellen SiO₂-reiche Magmatite wie Granite, Rhyolite und Pegmatite dar. Hier kann Uran primär in akzessorischen Mineralen wie Apatit, Zirkon oder Monazit mit Gehalten bis über 1% auftreten oder sekundär entlang von Rissen und Korngrenzen konzentriert sein (Wiegand 1993). Aufgrund seines Ionenradius von 97 pm - die angegebenen Werte für den Ionenradius variieren zwischen 93 pm (Dean 1985) und 105 pm (Attendorn & Bowen 1997) - kann U⁴⁺ zum Beispiel das Ca²⁺ (r = 99 pm) im Apatitgitter ersetzen (Welte 1962). Daneben kann an den Kristalloberflächen des Apatits auch U⁶⁺ adsorptiv gebunden sein (Füchtbauer et al. 1988). Die Lokalisierung im Kornverband und das Lösungsverhalten sind die entscheidenden Faktoren für das Verhalten von Uran bei der Verwitterung. Der Einbau in resistente Minerale wie Zirkon sorgt weitgehend für einen Verbleib im Gestein. Dagegen kann Uran aus äusseren Mineralkornlagen, Umkrustungen und dem Intergranularraum leicht herausgelöst werden (Kemski 1993). Die dominierende Wertigkeit von Uran in primär gebildeten Mineralen ist +4. Diese Form ist in wässrigen Lösungen nur äusserst gering löslich und deshalb chemisch nahezu immobil. Bei einer Oxidation entsteht zuerst die 5-wertige Zwischenstufe UO_2^+ , die nur ein sehr kleines Stabilitätsfeld besitzt (in Wässern mit $-0,12 < Eh < 0,18$ und $pH < 7$) (Langmuir 1978). Die häufigste Ursache für die Oxidation von Uran ist die Anwesenheit von gelöstem Sauerstoff im Wasser, aber es gibt auch Fälle von radiogener Selbst-Oxidation (→ Elektronen-Stripping) (Dyck 1979). Bei der weiteren Oxidation entsteht das U⁶⁺. Dieses ist für gewöhnlich der Oxidationszustand in oberflächennahen oxidierenden Wässern und in sekundären Mineralen (Osmond & Cowart 1976). Im oberflächennahen Grundwasser liegt U⁶⁺ vor allem in gut mobilisierbaren Uranyl (UO_2^{2+})-Komplexen vor. Uranyl bildet Verbindungen u. a. mit Anionen wie Karbonat, Phosphat oder Sulfat (Langmuir 1978). Ein Anstieg in der HCO_3^- -Konzentration des Wassers erhöht merklich die Bildungsrate für stabile, lösliche Karbonat-Komplexe (Matthess 1973). In hoch-karbonatischen oder -bikarbonatischen oxidierenden Wässern kann die Löslichkeit von Uran 1 g/l überschreiten (Puigdomenech & Bruno 1988). Dadurch kann beim Ausfallen von Karbonaten auch Uran ausgefällt werden. Die Stabilität der verschiedenen Verbindungen ist abhängig vom Eh- und pH-Wert, von den Druck- und Temperatur-Bedingungen und von der Konzentration der Anionen. Osmond & Coward (1976) geben an, dass die Uran-Konzentration im Wasser

neben dem Gehalt des Urans und seiner Lokalisierung im durchflossenen Substrat nicht nur durch das Redox-Potential, sondern auch durch den pH-Wert und den Partialdruck von CO_2 bestimmt wird. Szalay & Samoni (1969) und Baertschi & Keil (1992) kamen zu der Schlussfolgerung, dass Sorptionsgleichgewichte für den Uran-Gehalt natürlicher Wässer wahrscheinlich viel wichtiger sind als chemische Lösungsgleichgewichte. Die Uran-Konzentration kann, kontrolliert durch diese Parameter, über mehrere Zehnerpotenzen variieren (0,001 bis > 100 ppb; Osmond et al. 1983, max. 15 000 ppm; Asikainen & Kahlos 1979). In welcher Form das Uran bzw. das Uranyl-Ion in natürlichen oxidierenden Grundwässern vorliegt ist hauptsächlich vom den vorhandenen Anionen und vom pH-Wert abhängig.

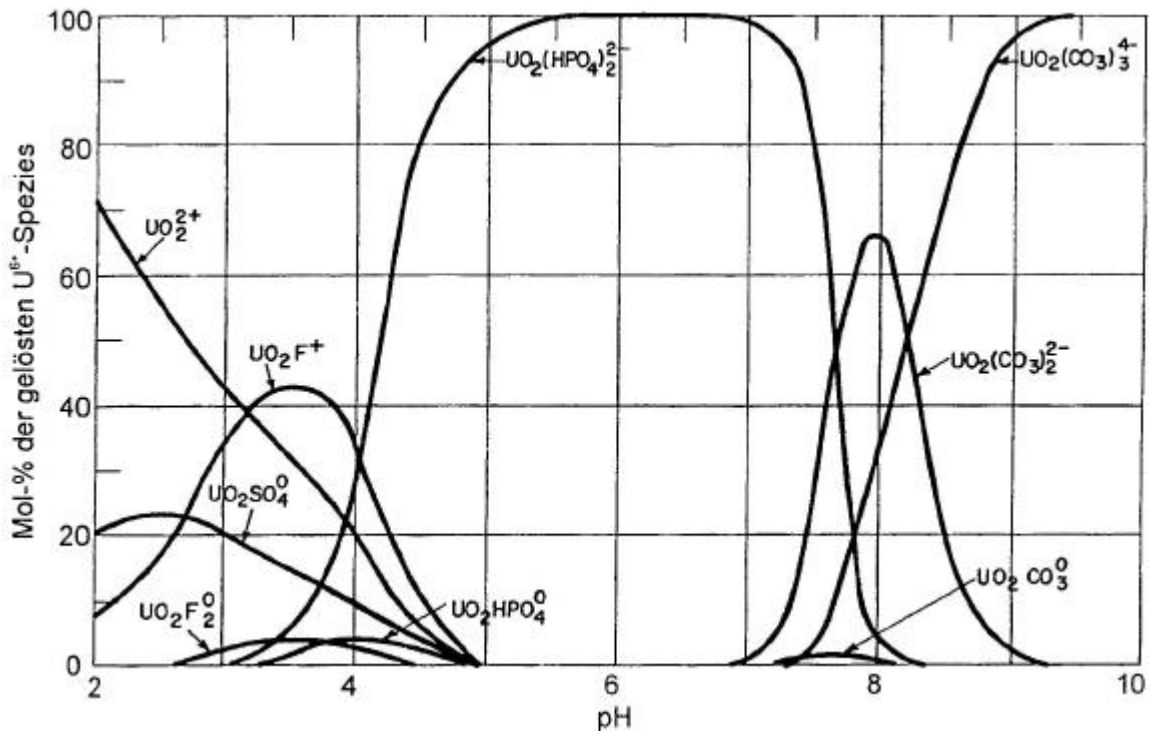


Abb. 6: Spezies der UO_2^{2+} -Verbindungen als Funktion des pH bei 25°C für ein Wasser mit folgender Zusammensetzung: $S\text{U}^{6+} = 2,4$ ppb, $p(\text{CO}_2) = 3,2$ hPa, $S\text{F} = 0,3$ ppm, $S\text{Cl} = 10$ ppm, $S\text{SO}_4^{2-} = 100$ ppm, $S\text{PO}_4^{3-} = 0,1$ ppm, $S\text{SiO}_2 = 30$ ppm (aus Baertschi & Keil 1992; nach Langmuir 1978 und Tripathi 1979)

Der Uran-Gehalt oxidierender Grundwässer liegt normalerweise zwischen 0,1 und 1000 ppb, mit einer Häufung um 1 ppb (Osmond & Cowart 1976). Grundwässer aus tiefen Aquiferen mit stark reduzierenden Bedingungen haben meist Gehalte von < 0,1 ppb. Uran liegt hier als schwer lösliche U^{4+} -Verbindung (z. B. $\text{U}(\text{OH})_4$; mittleres Löslichkeitsprodukt = 10^{-52}) vor. Auch ein hoher Uran-Gehalt des durchflossenen Gesteins führt in solchen reduzierenden Zonen kaum zu einer Erhöhung des Uran-Gehaltes im Grundwasser (Cramer et al. 1987).

Baertschi & Keil (1992) führten Leaching-Experimente mit pulverisiertem Uraninit (UO_2) durch, der ausser U^{4+} stets auch leicht mobilisierbares U^{6+} enthält. Die Ergebnisse zeigen, dass gelöster Sauerstoff allein die Löslichkeit nicht weiter erhöhen kann; es bedarf offensichtlich noch eines geeigneten Redoxvermittlers wie zum Beispiel $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$. Hingegen kann CO_2 einen grossen Teil des vorhandenen 6-wertigen Urans in Lösung bringen, wodurch auch unter anoxischen Bedingungen beträchtliche Mengen Uran an das Grundwasser abgegeben werden können. Auch Puigdomenech & Bruno (1988) stellten relativ hohe Löslichkeiten für U^{4+} -Verbindungen unter mittelsauren bis alkalischen, reduzierenden Bedingungen fest.

	Dest. Wasser, gesättigt mit			Leitungswasser
	N ₂	O ₂	CO ₂	
U [ppm]	11	6	140'000	2'000
pH	7,0	7,0	~6,0	7,6

Tab. 5: Uran-Konzentrationen im Wasser nach zweiwöchigem Schütteln einer Mischung aus 1 g pulverisiertem Uraninit (< 0,1 mm) und 500 cm³ destilliertem Wasser bei 25°C (Baertschil & Keil 1992).

Aus dem Gesteinsverband herausgelöstes Uran wird zwar meist in Form von Uranyl-Komplexen abtransportiert, es können jedoch nach Dearlove et al. (1991) in aquatischen Systemen bis zu 80% der Uran-Fracht an organischen Kolloiden (also Teilchen im Grössenbereich von 1 bis 1000 nm) gebunden sein. Durch Zufuhr von entsprechenden Redoxvermittlern, einem Wechsel vom oxidierenden zum reduzierenden Milieu (vor allem Reduktion durch Sulfide und/oder organische Substanzen; Füchtbauer et al. 1988) oder einer Änderung des CO₂-Partialdruckes, des pH-Wertes oder der Temperatur kommt es in der Regel zur Ausfällung aus der wässrigen Lösung. Zudem können Hydrolyse und die Bildung von unlöslichen Salzen zur Fällung von Uran führen. Uran kann ohne Reduktion unter Bildung von sekundären U⁶⁺-haltigen Mineralen aus der Lösung entfernt werden, z. B. durch Carnotite (Molinari & Snodgrass 1990), Arsenate, Phosphate, Vanadate oder Silikate (Jaworowski 1990). Aufgrund der Grösse und der hohen Ladung können U⁴⁺- und U⁶⁺-Ionen auch adsorptiv an organische Stoffe und andere Substanzen (z. B. Eisenhydroxide, Tonminerale, Karbonate; Osmond et al. 1983) oder durch Bildung von metallorganischen Komplexen gebunden werden (Kemski et al. 1996). Der bedeutendste Prozess zur Uran-Fixierung läuft jedoch über die Reduktion von U⁶⁺ zu U⁴⁺ und der daraus resultierenden Bildung von immobilere Uran-Verbindungen ab. Die grösste Senke für Uran ist die ozeanische Kruste mit ihren Tiefseesedimenten. Weitere bedeutende Senken sind Phosphorite und Sedimente des Kontinentalrandes, die reich an organischem Material sind, sowie metallhaltige und karbonatische Sedimente und Sedimente in anoxischen Becken (Veeh 1967 und Rosholt 1982). Die bekannten Uran-Vorräte liegen zu rund 72% in Sedimenten (Füchtbauer et al. 1988). Diese Sedimente können wiederum als sekundäre Uran-Quellen im geochemischen Kreislauf fungieren. Die wirtschaftlich bedeutenden Quellen für Uran sind Uran-Oxide, Uraninit, Pechblende und Silikate (Coffinite). Es wird davon ausgegangen, dass sie durch Fällung in hydrothermalen Lösungen oder Grundwässern gebildet worden sind. Die sekundären Uranyl-Erze wie Vanadate, Phosphate und Silikate entstehen im allgemeinen durch chemische Verwitterung von Erzen (Osmond et al. 1983).

5.2 Thorium

In den natürlich vorkommenden Zerfallsreihen treten jeweils zwei Thorium-Isotope auf:

²³² Th Mutternuklid der Thorium-Reihe		α , $t_{1/2} = 14 \cdot 10^9$ a
²²⁸ Th vom Zerfall des ²²⁸ Ac	Thorium-Reihe	α , $t_{1/2} = 1,9$ a
²³⁴ Th vom Zerfall des ²³⁸ U	Uran-Reihe	β , $t_{1/2} = 24,1$ d
²³⁰ Th vom Zerfall des ²³⁴ U	Uran-Reihe	α , $t_{1/2} = 75 \cdot 10^3$ a
²³¹ Th vom Zerfall des ²³⁵ U	Actinium-Reihe	β , $t_{1/2} = 75 \cdot 10^3$ a
²²⁷ Th vom Zerfall des ²²⁷ Ac	Actinium-Reihe	α , $t_{1/2} = 19$ d

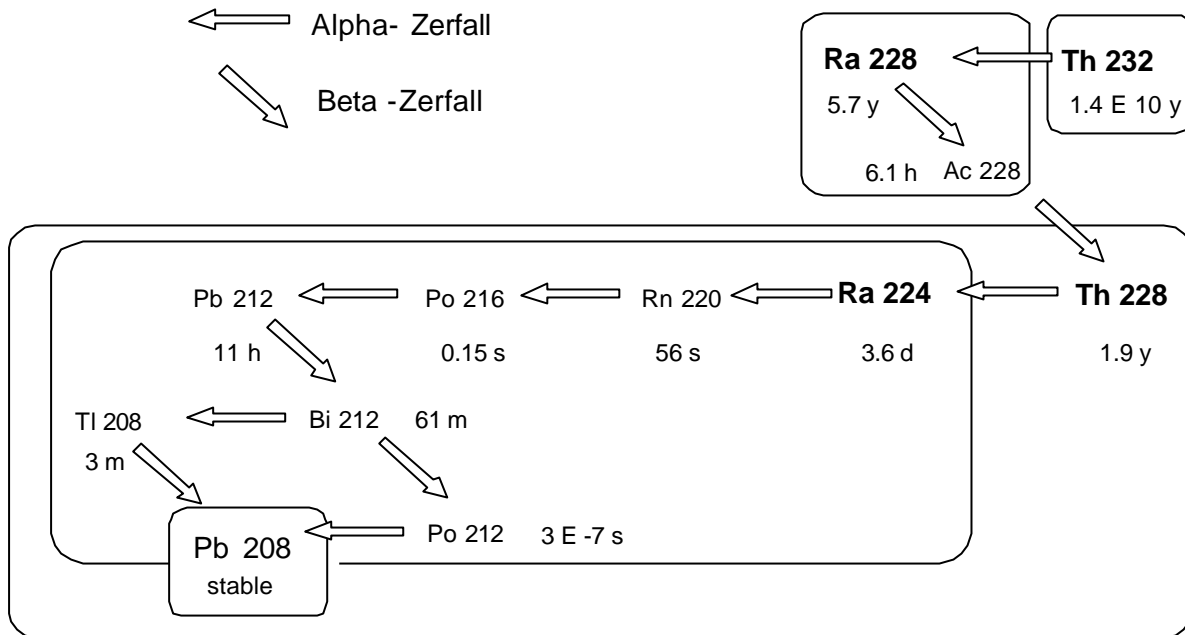


Abb. 7: Thorium-Reihe (nach Surbeck 1995).

Für den mittleren Gehalt der Erdkruste an Thorium werden Werte von 7,2 (Allegre & Michard 1973) bis ca. 13 ppm (Fielder & Rösler 1988) angegeben, wobei davon auf ^{232}Th fast 100 Gew.-% entfallen. So kommen auf ein ^{230}Th -Teilchen durchschnittlich etwa 200'000 Teilchen von ^{232}Th (Dyck 1979). Für die Umrechnung des ^{232}Th -Gehaltes von ppm auf das Aktivitätsmaß Bq/kg gilt:

Gl. 11: $1 \text{ ppm } ^{232}\text{Th} \approx 4,05 \text{ Bq/kg}$

Einen Überblick über die ^{232}Th -Aktivitätskonzentrationen in verschiedenen Gesteinen gibt die nachfolgende Tabelle.

Gesteinstyp	^{232}Th -Aktivitätskonzentration [Bq/kg]		
	Mittel	Minimum	Maximum
basische Magmatite	8	2	8
saure Magmatite	52	41	369
Sandsteine	7	4	37
Tonsteine	50	41	70
Karbonate	5	0,5	12
Bauxite	201	-	-
Phosphate	-	4	21

Tab. 6: ^{232}Th -Aktivitätskonzentrationen in Gesteinen (Kemski et al. 1996).

Für die Magmatite gilt, dass sich Thorium wie auch Uran im Laufe der Differentiation der Magmen anreichern kann. Der ähnliche Ionenradius von Th^{4+} ($r = 110 \text{ pm}$) und U^{4+} und die gleiche Ladung begünstigen einen wechselseitigen Ersatz im Kristallgitter von Wirtsmineralen (Kemski et al. 1996). Thorium kann zwar Wertigkeiten von +2 bis +4 annehmen, jedoch ist die 4-wertige Form die stabile (Attendorn & Bowen 1997). Thorium ist

als geochemisch immobil und relativ unempfindlich gegenüber dem Leaching durch wässrige Lösungen einzustufen. Wegen der schlechten Mobilisierbarkeit von Thorium treten selten chemisch bedingte Verlagerungs- und Anreicherungsprozesse auf und Sedimente zeigen ähnliche Thorium-Gehalte wie das Ausgangsgestein (Gascoyne 1992). ^{234}Th und ^{230}Th können auch mittels α -Rückstoss (α -recoil) beim Zerfall von ^{238}U bzw. ^{234}U in den Porenraum verlagert werden. Bei der Verwitterung kann Thorium in Böden und Residuen aufkonzentriert werden, wodurch radioaktive Ungleichgewichte in den Zerfallsreihen entstehen können (Wiegand 1997). Der deutliche Unterschied zwischen den Aktivitäten von ^{238}U und ^{232}Th bei den Phosphaten ist ein Indiz dafür, dass Thorium nicht wie Uran in grossem Masse mobilisiert und sekundär eingelagert wird, obwohl ein isomorpher Einbau durchaus möglich wäre. In einigen Sanden finden sich, herbeigeführt durch einen dichte-abhängigen Sortierungsprozess, hohe Thorium-Gehalte. Thorium tritt hier vor allem in Verbindung mit Monazit auf (Bell 1954). Monazit-Sande stellen die wichtigste Rohstoffquelle für Thorium dar. Sie können in Ausnahmefällen bis zu 20% ThO_2 enthalten, im Mittel sind es etwa 6% (Greenwood & Earnshaw 1990). In Indien sind Monazite mit bis zu 31,5% ThO_2 gefunden worden (Bowie & Horne 1952).

Nach Molinari & Snodgrass 1990 wird im Wasser meist das schlecht lösliche $\text{Th}(\text{OH})_4$ (mittleres Löslichkeitsprodukt $L = 10^{-35}$) gebildet. Diese Verbindung ist die dominante Spezies in Wässern mit $\text{pH} > 7$. Thorium kann aber wie auch Uran eine Vielzahl von anderen Verbindungen mit Anionen eingehen. Im Bereich $4 < \text{pH} < 7$ sind Verbindungen mit HPO_4^{2-} in „typischen“ Grundwässern vorherrschend (Langmuir & Hermann 1980). Der Gehalt von Thorium in kontinentalen Wässern liegt bei 0,03 bis 0,4 ppb und im Meerwasser sogar nur bei 0,00004 bis 0,01 ppb (Wedepohl 1974). Das wenige im Wasser gelöste Th^{4+} neigt zur Adsorption an Oberflächen von Kolloiden, Tonmineralen, Oxiden und Hydroxiden. Die Anwesenheit von organischen Kolloiden kann den Gehalt an Thorium im Wasser ver Hundertfachen (Dearlove et al. 1991). Allerdings ist der bedeutendste Verlagerungsprozess der Transport in Suspension durch feinkörnigen Gesteinsdetritus. Dieses Verhalten spiegelt sich in der erhöhten mittleren ^{232}Th -Aktivität der Tonsteine relativ gegenüber den Sandsteinen wider.

5.3 Radium

Die Radium-Isotope mit natürlichem Ursprung sind:

^{228}Ra vom Zerfall des ^{232}Th	Thorium-Reihe	β , $t_{1/2} = 5,7 \text{ a}$
^{224}Ra vom Zerfall des ^{228}Th	Thorium-Reihe	α , $t_{1/2} = 3,6 \text{ d}$
^{226}Ra vom Zerfall des ^{230}Th	Uran-Reihe	α , $t_{1/2} = 1,6 \cdot 10^3 \text{ a}$
^{223}Ra vom Zerfall des ^{227}Th	Actinium-Reihe	α , $t_{1/2} = 11,4 \text{ d}$

Alle der insgesamt 25 bekannten Radium-Nuklide sind α -Strahler, mit Ausnahme des β -Strahlers ^{228}Ra . Radium ist ein extrem seltenes Metall, seine mittlere Häufigkeit in den Gesteinen der Erdkruste wird mit 1 ppt angegeben (Greenwood & Earnshaw 1990). Vor allem ^{228}Ra und ^{226}Ra besitzen genügend lange Halbwertszeiten, um bei der Betrachtung geochemischer Prozesse von Interesse zu sein. Für manche Fragestellungen in der Hydrogeologie werden aber auch die zwei kurzlebigen natürlichen Radium-Isotope ^{224}Ra und ^{223}Ra herangezogen.

Für die Berechnung der Aktivität einer Stoffmenge gilt:

Gl. 12: $1 \text{ ppt } ^{226}\text{Ra} \approx 36,6 \text{ Bq/kg}$
 $1 \text{ ppt } ^{228}\text{Ra} \approx 10,2 \text{ Bq/kg}$

Für Gesteine, die schon seit geologisch langer Zeit ein geschlossenes System darstellen, ist es nicht so sehr die Chemie des Radiums sondern viel mehr die Chemie von Uran und Thorium, die bestimmt, in welchen Mineralen und in welcher Konzentration Radium vorliegt. In einem natürlichen Substrat, in dem ^{226}Ra ungestützt durch ^{238}U oder ^{234}U auftritt, ist nach etwa 16'000 Jahren ($= 10 \cdot t_{1/2}$ von ^{226}Ra) praktisch alles ^{226}Ra zerfallen. Eine selektive Anreicherung von ^{228}Ra ist über das Aktivitätsverhältnis schon nach etwa 50 Jahren nicht mehr nachweisbar. Folglich sind in vielen Gesteinen die Aktivitäten von ^{226}Ra und ^{238}U bzw. von ^{228}Ra , ^{224}Ra und ^{232}Th im radioaktiven Gleichgewicht. Im radioaktiven Gleichgewicht ist das Teilchen-Verhältnis von $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ ungefähr $1/2,8 \cdot 10^6$. Jedoch kann Radium auch seinem eigenen geochemischen Pfad folgen.

In Wässern sind die Konzentrationen von ^{226}Ra bzw. ^{228}Ra im allgemeinen ohne Beziehung zu den Konzentrationen von ^{238}U und ^{234}U bzw. ^{232}Th . Die gelöst auftretenden Mutternuklide sind folglich nicht als Quelle für die gelöst auftretenden Tochternuklide zu betrachten (Dickson 1990). Die Aktivität von ^{226}Ra ist in Wässern meist geringer als diejenige von ^{238}U (Osmond & Cowart 1992 und Klingel et al. 1995) und ^{228}Ra ist immer im Überschuss gegenüber dem Mutternuklid ^{232}Th vorhanden (Dickson 1990). Radium ist in oberflächennahen Bereichen meist mobiler als Thorium aber immobilere als Uran. Typische Konzentrationen in oxidierenden Wässern liegen um 100 ppt (Dyck 1979). Unter reduzierenden Bedingungen neigt Radium, wie die meisten Kationen, stärker zur Lösung (Osmond & Ivanovich 1992). Für den Übertritt von Radium aus dem Gestein in das Wasser ist eine Kombination zwischen α -Rückstoss und Desorption als Kationenaustauschprozess massgebend (Feige & Wiegand 1998). Als Austauschpartner dienen häufig Barium und Strontium, aber auch andere zwei- und einwertige Kationen (z. B. Natrium und Kalium). Nach Untersuchungen, die ein gleichbleibendes Verhältnis zwischen Radium und dem nicht radiogenen, aber chemisch sehr ähnlichen Barium für Wässer und ihre Wirtsgesteine ergeben, ist anzunehmen, dass die Desorption hierbei den dominierenden Prozess in verwitternden Gesteinen darstellt (Dickson 1990, vgl. Bloch & Craig 1981, Cecile et al. 1984, Moore & Edmond 1984). Die Mobilisierung des Radiums durch Kationen wird aber auch durch die anwesenden Anionen beeinflusst. Sie wird zum Beispiel durch die grossen Nitrat-Ionen mehr als durch die kleineren Chlorid-Ionen begünstigt. Nach der Freisetzung des Radiums in den wassergefüllten Poren- bzw. Kluftraum wird dieses rasch wieder an Oberflächen adsorptiv gebunden. Es stellt sich somit ein Gleichgewicht zwischen gelösten und adsorbierten Atomen ein (Feige & Wiegand 1998). Der Gleichgewichtszustand zwischen Adsorption und Desorption ist bereits nach 0,5 bis 2 Stunden erreicht (Levins et al. 1978).

Nach Dickson (1990) und Feige & Wiegand (1998) ist die Radium-Konzentration in Grundwässern wesentlich enger mit der Chemie des Grundwassers verbunden als mit der Radium-Konzentration des durchflossenen Substrates. So können saline Wässer aus Gebieten mit geringem Uran-Gehalt hohe Radium-Konzentrationen und geringe saline Wässer aus Gebieten mit viel Uran niedrige Radium-Konzentrationen aufweisen. Es werden von Chung (1981) und Kaufmann & Bliss (1977) positive Korrelationen zwischen der Radium-Konzentration und der Leitfähigkeit bzw. der gesamten Lösungsfracht (TDS = total dissolved solids) vermutet und von Wiegand & Kuschowitz (1998) im Experiment nachgewiesen. In schwach salinarem Grundwasser bei pH-Werten zwischen 4 und 8 tritt das mobilisierte Radium in erster Linie als freies Kation (Ra^{2+}) auf (Dickson 1990). Als ein Erdalkali-Metall verhält sich Radium ähnlich wie Barium oder Calcium: Als Chlorid ist es gut und als Karbonat oder Sulfat sehr schwer löslich. Das Löslichkeitsprodukt von Radium-Verbindungen wird wegen der im allgemeinen geringen Teilchen-Konzentration von Radium in Wässern (10^{-15} bis 10^{-10} g/l ^{226}Ra) praktisch nie überschritten (Langmuir & Riese 1985; Feige & Wiegand 1998). In schwach salinaren Wässern ist der Einfluss der verschiedenen Radium-Komplexe auf die Mobilität und Löslichkeit des Radiums nur gering. Bei einem Sulfat-Gehalt von über 20 mg/l ist etwa 10% des gelösten Radium als RaSO_4 vorhanden. Nur ab einem hohen Sulfat-Gehalt liegt deutlich mehr Radium in Form von RaSO_4 vor, wobei es bei der Bildung von BaSO_4 mitgefällt wird. RaCO_3 -Verbindungen erlangen erst bei $\text{pH} > 10,25$ und einem hohen Karbonat-Gehalt (> 60 mg/l) Bedeutung. Der Einfluss von Humin- und Fulvosäuren, die zur Komplexbildung mit Radium befähigt sind, ist noch nicht geklärt (Dickson 1990). Im Salzwasser tiefer Aquifere ist der Radium-Gehalt bis zu tausendfach

erhöht. Diese Erhöhung ist insbesondere auf die Bildung von Radium-Chlorid-Komplexen zurückzuführen. Auch die reduzierenden Bedingungen tragen einen Teil dazu bei, indem dadurch Eisen- und Manganoxide und -hydroxide gelöst und mobilisiert werden, an den Radium adsorptiv gebunden ist (Korner & Rose 1977, in Dyck 1979). Dagegen konnten Wiegand & Kuschowitz (1998) zeigen, dass saline Wässer auch ohne Chlorid-Ionen Radium im hohen Masse mobilisieren können. Das Ausmass der Radium-Abgabe ins Wasser ist aber neben der Wasserchemie auch von der Art der radiumhaltigen Minerale, der Verteilung des Radiums innerhalb der Mineralkörner und der Kontaktfläche zwischen Wasser und Mineralkorn abhängig. Hohe Radium-Konzentrationen können auch ein Indikator für kluffreiche oder stark poröse Gesteine mit einem hohen Oberflächen/Volumen-Verhältnis sein (Dickson 1990). Für die Fixierung von gelöstem Radium kommen mehrere Mechanismen in Frage. In oxidierendem Milieu können unter entsprechenden chemischen Randbedingungen Sulfate und Oxide gebildet werden, in denen ein isomorpher Ersatz der Kationen durch Radium stattfinden kann, z. B. Ersatz von Barium im Baryt. Weiterhin kann Radium mitgefällt werden bei der Bildung von Calcium- und Magnesiumkarbonaten, durch die Freisetzung von CO₂ aus kohlensäurehaltigem Grundwasser oder bei der Bildung von Eisen- und Manganoxiden und -hydroxiden, aufgrund eines Wechsels der Eh- oder pH-Bedingungen. Einen guten Beleg für die Mitfällung von Radium mit Eisen-Hydroxiden geben die hohen Radium-Konzentrationen in den Eisenschlämmen bei der oxidativen Enteisenung von Mineralwässern (vgl. Dickson et al. 1981, BAG 1997). Ferner wird Radium durch Adsorption an organischem Material, Eisen- und Manganoxiden und -hydroxiden sowie an Tonmineralen der wässrigen Lösung entzogen (Feige & Wiegand 1998).

5.4 Radon

Derzeit sind etwa 30 Radon-Isotope bekannt, natürlichen Ursprungs sind aber nur drei Isotope:

²²² Rn vom Zerfall des ²²⁶ Ra	Uran-Reihe	α, t _{1/2} = 3,83 d
²²⁰ Rn vom Zerfall des ²²⁴ Ra	Thorium-Reihe	α, t _{1/2} = 55,6 s
²¹⁹ Rn vom Zerfall des ²²³ Ra	Actinium-Reihe	α, t _{1/2} = 4 s

Radon ist eines der seltensten Elemente der Erde. Sein Anteil an der Erdkruste wird auf nur 6,2·10⁻¹⁶ % geschätzt (Falbe & Regitz 1992). Mit einer Ordnungszahl (= Protonenzahl) von 86 ist es das schwerste Edelgas. Im gasförmigen Zustand weist es weder Farbe, Geschmack noch Geruch auf. Radon ist chemisch nahezu inert. Bekannt sind bisher nur Edelgas-Verbindungen der Zusammensetzung RnF₂, RnF⁺[SbF₆]⁻ und weitere Fluoro-Komplexe. Zudem bildet Radon Clathrate (= Einschluss- oder Käfigverbindungen) z.B. mit Wasser und Phenol (Falbe & Regitz 1992). Als die einzigen gasförmigen Elemente der Zerfallsreihen können sich die Radon-Isotope konvektiv und diffusiv von ihrem Bildungsort entfernen und migrieren. Radon ist in Wasser gut löslich, nur sehr selten ist gelöstes Radium der Ursprung von gelöstem Radon. Für den Radon-Gehalt im Wasser sind neben der Radium-Konzentration des umgebenden Substrates insbesondere zwei Koeffizienten von Bedeutung: Der Ostwaldkoeffizient (k) und der Emanationskoeffizient (E_{K_{Rn}}). Der Ostwaldkoeffizient gibt allgemein das Verhältnis einer Gas-Konzentration zwischen einer Flüssigkeit und dem umgebenden Gas an. Im System Luft-Wasser nimmt der k-Wert für Radon mit zunehmender Temperatur und steigendem Salzgehalt des Wassers ab (Philipsborn 1997).

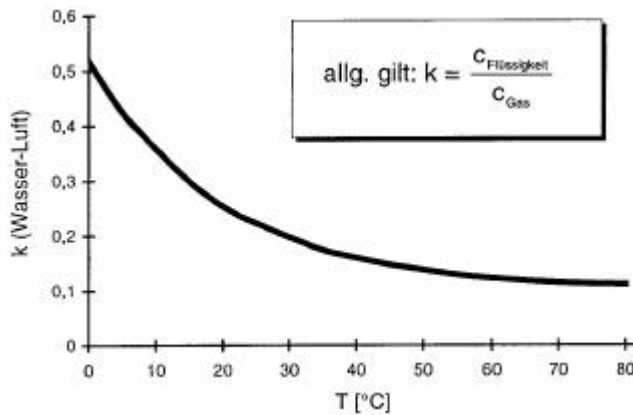


Abb. 8: Ostwaldkoeffizient k von Radon im System Wasser-Luft in Abhängigkeit von der Temperatur; hier: c = Konzentration von Rn [Bq/l] (nach Clever 1985).

Der Ostwaldkoeffizient ist aber nur dann von Bedeutung, wenn sich das Gleichgewicht zwischen gasförmiger und flüssiger Phase aufbauen kann; zu einem Gleichgewicht kommt es nicht immer. Beim Austritt von Grundwasser an die Erdoberfläche steht dem Wasservolumen das praktisch „unendliche“ Volumen der Atmosphäre gegenüber und das Quellwasser entgast stetig. Oberflächenwässer enthalten daher mit <400 mBq/l meistens nur wenig Radon. Umgekehrt ist im Aquifer oftmals der gesamte Poren- oder Kluftraum mit Wasser erfüllt. Die Aktivitätskonzentrationen von Quell- und Grundwässern liegen deshalb bei Werten zwischen <0,4 bis 300 Bq/l (BMU 1993), mit einer Häufung im Bereich von wenigen Bq/l bis einige Zehner Bq/l, aber auch Werte im Bereich von 10^5 Bq/l sind gemessen worden. Der zweite bedeutende Faktor für die Radon-Konzentration im Wasser ist der Emanationskoeffizient. Er gibt an, wieviel des durch den Zerfall von Radium entstandenen Radons aus der Feststoffphase in das umgebende Medium (Luft, Wasser) freigesetzt wird.

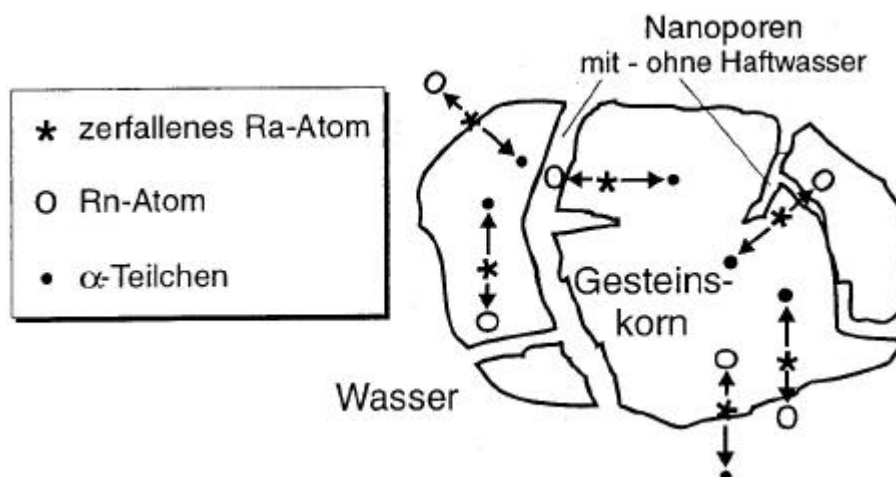


Abb. 9: Verlagerung von Radon-Atomen durch den Zerfall von Radium in oder auf Mineralkörnern. Die Länge der Pfeile ist kein Mass für die Transportweite.

Massgeblich für die Emanation ist die Lokalisierung des Mutternuklids Radium im Gestein. Der grösste Teil des freigesetzten Radons stammt von Radium, das an der Kornoberfläche oder in geringerer Tiefe als die Rückstossreichweite oder Diffusionsweite der Radon-Atome

vorliegt. Eine Freisetzung aus dem Innern von Mineralkörnern kann nur über kristallinterne Wege erfolgen. Befindet sich das Radium an der Kornoberfläche kann das entstandene Radon direkt in den luftgefüllten Porenraum diffundieren oder im Porenwasser gelöst werden. Befindet sich das Radium im Inneren des Mineralkorns, kann es durch einen α -Rückstoss zur Freisetzung kommen. Die Energie des vom ^{226}Ra emittierten α -Teilchens beträgt 4,78 MeV, davon werden $4,78 \text{ MeV} \cdot 4/222 = 86 \text{ keV}$ an das ^{222}Rn -Atom abgegeben. Durch den α -Rückstoss, der eine Transportweite des Radons von 20 bis 70 nm im Kristallgitter zulässt, kann nur der Teil des Radons aus dem Kristallgitter gelangen, der nahe der Mineraloberfläche gebildet wurde (Tanner 1980). Das Radon kann direkt in den freien Porenraum oder in Nanoporen (= Poren im nm-Bereich) gestossen werden. Kapilar- oder Haftwässer um das Mineralkorn erhöhen die Emanation. Die Rückstossenergie des Radon-Atoms wird vom Wasser aufgebraucht und somit ein Eindringen in benachbarte Festsubstanzen verhindert. Zudem hemmt das Wasser die Adsorption an der Mineraloberfläche, weil es Adsorptionsplätze besetzt (Tanner 1980). Der α -Rückstoss in die Nanoporen erhält beim Radon eine besondere Bedeutung: Im Vergleich zu anderen Radionukliden, die durch einen α -Zerfall entstehen, wird ein diffusionsfähiges Radionuklid freigesetzt. Das Radon-Atom kann leicht aus den Nanoporen in den Porenraum diffundieren, während andere Radionuklide an den Wänden der selben adsorbiert werden (Dickson 1990). Auch die Korngrößenverteilung nimmt Einfluss auf die Höhe der Emanation. Die Aufbereitung des Ausgangsmaterials durch Verwitterung vergrössert die innere Oberfläche des Gesteinsverbandes, die für Diffusions- und Rückstossprozesse zur Verfügung steht (Tanner 1980). Korner & Rose (1977) ermittelten nach Auswertung verschiedener Veröffentlichungen Emanationskoeffizienten von 10% für Magmatite und 9% für metamorphe Gesteine und Sedimente. Dagegen können Böden und Bachablagerungen etwa 23% des gebildeten Radons abgeben (Dyck 1979). Surbeck (1993) ermittelte in einem Boden des schweizerischen Juragebirges einen Emanationskoeffizienten von etwa 70%. Für derartig hohe Werte muss eine sehr raue Oberfläche im Grössenbereich der Rückstossreichweite vorliegen. Eine Korrelation zwischen dem Uran- bzw. Radium-Gehalt und dem Emanationskoeffizient muss nicht unbedingt vorliegen. So sind zum Beispiel durch Feige & Wiegand (1998) Emanationskoeffizienten an radiumarmen Ablagerungen (max. 300 Bq/kg ^{226}Ra) der Sümpfungswässer des Braunkohlebergbaus von 73% und bei radiumreicheren Ablagerungen (32'310 Bq/kg ^{226}Ra) des Steinkohlebergbaus von unter 1% gemessen worden. Die Ursache in diesen Unterschieden liegt in der unterschiedlichen Lokation des Radiums. Bei den Ablagerungen des Braunkohlebergbaus liegt Radium adsorptiv an der Oberfläche von frisch gefällten Eisenhydroxiden vor, bei denen des Steinkohlebergbaus ersetzt Radium diadoch Barium im dichten Kristallgitter des Radiobarytes (Feige & Wiegand 1998). Die äusserst kurzlebigen Isotope ^{220}Rn und ^{219}Rn zerfallen meist schon in direkter Nähe zu ihrem Bildungsort zu Polonium. Rein diffusiv kann das kurzlebige ^{222}Rn nur wenige Meter zurücklegen, bis es weiter zerfällt, aber im Grundwasser gelöst kann es sich mehrere hundert Meter von seinem Bildungsort entfernen.

5.5 Radioaktive Ungleichgewichte

Die Radionuklid-Konzentrationen natürlicher Zerfallsreihen geschlossener Systeme, die älter als 10^6 Jahre sind, (z. B. unverwitterte Magmatite) befinden sich meist im radioaktiven Gleichgewicht. In offenen Systemen wie Verwitterungsbereiche und natürliche Wässer können signifikante Abweichungen vom radioaktiven Gleichgewicht auftreten. Radioaktive Ungleichgewichte stellen sich in erster Linie in der Zerfallsreihe des ^{238}U ein. Diese Zerfallsreihe beinhaltet mit ^{238}U ($t_{1/2} = 4,5 \cdot 10^9 \text{ a}$), ^{234}U ($t_{1/2} = 245 \cdot 10^3 \text{ a}$), ^{230}Th ($t_{1/2} = 75 \cdot 10^3 \text{ a}$) und ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1,6 \cdot 10^3 \text{ a}$) einige Radionuklide, deren Halbwertszeiten in der Grössenordnung geologischer Prozesse mit Anreicherung und Verarmung liegen. Innerhalb der Actinium-Reihe tritt nur mit Protactinium-231 (^{231}Pa) ein langlebiges Tochternuklid auf ($t_{1/2} = 33 \cdot 10^3 \text{ a}$). In der Thorium-Reihe liegt die maximale Halbwertszeit eines Tochternuklids bei 5,7 a (^{228}Ra). In aquatischen Fliess-Systemen, die eine sehr grosse Dynamik besitzen, genügen schon kurze Halbwertszeiten zur Bildung von radioaktiven Ungleichgewichten.

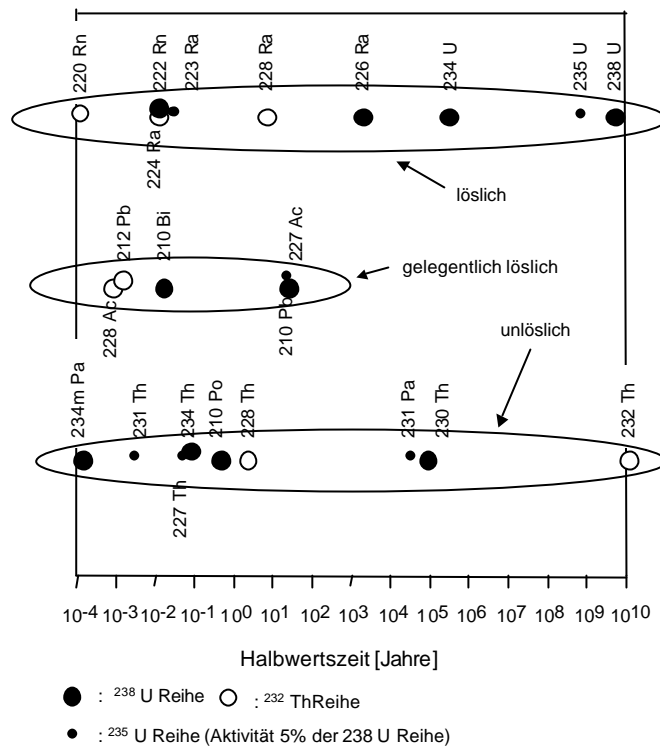


Abb. 10: Uebersicht über die Isotopen der Uran- und Thorium Reihen, geordnet nach Halbwertszeiten und Löslichkeiten (BAG 2003)

Ein einmal entstandenes Ungleichgewicht wird auf alle nachfolgenden Tochternuklide weitervererbt. Die Ungleichgewichte entstehen durch Fraktionierung aufgrund unterschiedlicher chemischer und physikalischer Eigenschaften der einzelnen Radionuklide. Dazu wichtige Faktoren sind in der folgende Abbildung dargestellt.

Der α -Rückstoss ist ein physikalischer Prozess, der Radionuklide unabhängig von ihren chemischen Eigenschaften in Lösung bringen kann. Die freiwerdende Energie beim α -Zerfall ist genügend hoch, um das Zerfallsprodukt von der Kornoberfläche oder aus oberflächennahen Bereichen direkt in den Porenraum zu stossen. Ist der Porenraum wassererfüllt, kann das Tochternuklid durch perkolierendes oder fließendes Wasser verlagert werden. Zum Beispiel wird beim Zerfall von ²³⁸U eine Energie von 4,2 MeV frei, davon werden $4,2 \text{ MeV} \cdot 4/234 = 72 \text{ keV}$ auf das schwer lösliche ²³⁴Th übertragen. Diese Energie reicht aus, um das ²³⁴Th-Teilchen aus Bereichen bis ca. 20 - 50 nm unterhalb der Kornoberfläche aus dem Korn zu stossen (Huang & Walker 1967, Kigoshi 1971). Wie lange ein freigesetztes Radionuklid in Lösung verbleibt, ist von den chemischen Eigenschaften und der Halbwertszeit abhängig. Der α -Zerfall beeinflusst jedoch noch auf eine andere Art die Entstehung von Ungleichgewichten. Durch Zerfallsereignisse kann das Lösungsverhalten verändert werden. Jeder Zerfall, insbesondere der energiereiche α -Zerfall, beschädigt die Gitterstruktur eines Minerals. Auch kann durch den α -Rückstoss das entstandene Radionuklid an einen instabileren Gitterplatz verlagert werden. Die Wahrscheinlichkeit an einen exponierten Gitterplatz zu gelangen nimmt mit der Zahl der vorangegangenen Zerfallsereignisse zu (Osmond & Ivanovich 1992). Beide Ereignisse erhöhen die Angreifbarkeit der Töchter durch Verwitterungs- und Lösungsprozesse und können somit zu unterschiedlichen Löslichkeiten innerhalb einer Isotopen-Gruppe führen.

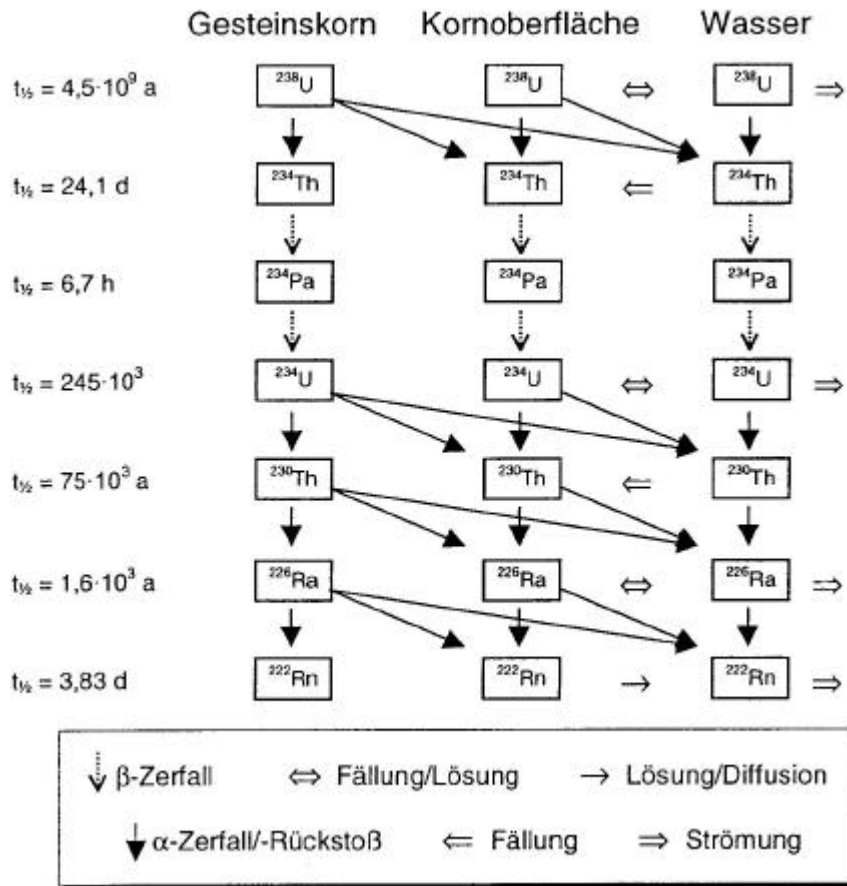


Abb. 11: Schematische Darstellung der Wechselwirkung Gesteinskorn-Kornoberfläche-Wasser mit den dominierenden Faktoren für den Transfer am Beispiel der ersten sieben Mitglieder der Uran-Reihe (nach Dickson & Davidson 1985 und Eichinger et al. 1990 erstellt).

So ist ^{234}U durch Lösungsprozesse angreifbarer als ^{238}U und ^{230}Th angreifbarer als ^{234}Th . ^{234}U liegt deshalb in aquatischen Systemen gegenüber ^{238}U meist im radioaktiven Überschuss vor (Werte bis zu 30 : 1), die letzte grosse Senke für die gelösten Radionuklide, die Ozeane weisen eine ca. 14% höhere ^{234}U - als ^{238}U -Aktivitätskonzentration auf (Azevedo et al. 1984). Wesentlich höhere Abweichungen vom radioaktiven Gleichgewicht treten jedoch für gewöhnlich durch unterschiedliches Sorptions- und Lösungsverhalten auf.

Aufgrund ihrer schlechten Löslichkeit reichern sich Thorium-Verbindungen im Laufe der Verwitterung in Residual- oder an Tonmineralen an, während Uran im Wasser abtransportiert wird. Die Mobilisierbarkeit von Radium liegt unter oxidierenden Bedingungen im Bereich zwischen Uran und Thorium. Unter oxidierenden Bedingungen wird Radium stärker an Eisen- und Manganoxiden und -hydroxiden adsorbiert als Uran. Kommt es zu einem Wechsel von oxidierenden zu reduzierenden Bedingungen, wird das Uran immobil. Aber die Löslichkeit der Radium-Verbindungen steigt unter diesen Bedingungen (Dickson 1990) und Radium kann weiter abtransportiert werden. Noch erwähnt werden soll in diesem Zusammenhang, dass die Halbwertszeit auch einen Einfluss auf die Löslichkeit ausübt. Wird nur das Aktivitätsverhältnis betrachtet, wird leicht übersehen, dass ein radioaktives Gleichgewicht ein enormes Teilchen-Ungleichgewicht darstellt. So bedeutet zum Beispiel ein radioaktives Gleichgewicht zwischen ^{238}U und ^{226}Ra ein Teilchen-Ungleichgewicht von $2,8 \cdot 10^6/1$.

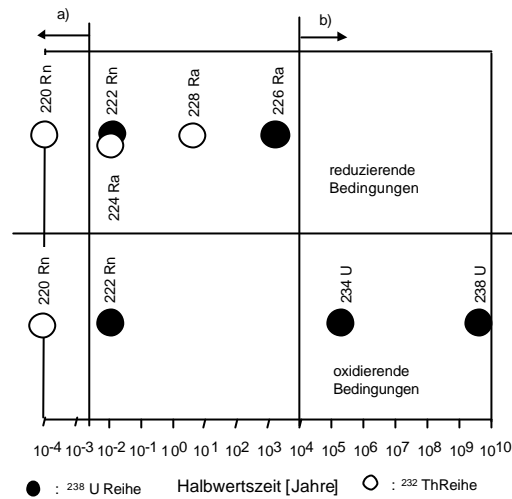


Abb. 12: Die im Grundwasser bei unterschiedlichen Redox-Bedingungen hauptsächlich zu erwartenden Radionuklide der Uran- und Thorium-Reihen. a) Nuklide mit Halbwertszeiten unter dieser Limite zerfallen oder werden aufgebaut während des Transports oder der Lagerung der Proben. b) Nuklide mit Halbwertszeiten über dieser Limite können auch mit Massenspektrometrie bestimmt werden (BAG 2003)

Die Migration des gasförmigen Radons, insbesondere des „langlebigsten“ Isotops ^{222}Rn , ist ein weiterer Prozess, der zu einem radioaktiven Ungleichgewicht führt. Einerseits verarmt der Radon-Bildungsort an Radon und seinen Folgeprodukten; andererseits kann es zu einer Akkumulation der Folgeprodukte an anderer Stelle kommen, an welche die Folgeprodukte aufgrund ihrer chemischen und physikalischen Eigenschaften nicht direkt gelangen können. Häufig kann aus der ^{210}Pb -Konzentration, mit einer Halbwertszeit von 22 Jahren das langlebigste unter den ^{222}Rn -Zerfallsprodukten, abgeleitet werden, welcher ^{222}Rn -Konzentration eine Probe in den letzten 20 bis 50 Jahren ausgesetzt war (Surbeck 1991).

6 Gesamtüberblick über natürliche Radionuklide im Trinkwasser in Graubünden

6.1 Probenahme

Sämtliche Trinkwasserversorgungen der 208 Gemeinden im Kanton Graubünden wurden beprobt. Bei Quellwasser wurden die Proben in den Reservoirs entnommen, bei Grundwasser wurden die Proben in den Pumpwerken erhoben. Da einige Gemeinden mehrere Quellgebiete oder gleichzeitig Quell- und Grundwasser benutzen, wurden insgesamt 360 Proben erhoben und untersucht. Für die Bestimmung des ^{222}Rn wurden 250 ml Glasflaschen randvoll mit Wasser gefüllt und durch einen Deckel mit Septum radondicht verschlossen. Das randvolle Auffüllen ist wichtig, damit das Radon im Wasser gelöst bleibt und nicht in den Luftraum entweichen kann. Für die übrigen Analysen wurde jeweils ein Liter Wasser in eine PET-Flasche abgefüllt und gleichentags ins Labor gebracht. Das genaue Probenahmedatum und die Probenahmezeit wurden festgehalten, um die Radonaktivität zum Zeitpunkt der Probenahme berechnen zu können. Zusätzlich wurde der Probenahmeort mit den Koordinaten dokumentiert sowie die Art des Wassers (Grund- oder Quellwasser) erfasst.

6.2 Untersuchte Parameter

Die Proben wurden beim Eintreffen im Labor mit konzentrierter Salpetersäure stabilisiert, bevor die Urankonzentration mittels induktiv gekoppeltem Hochfrequenz-Plasma mit Massenspektrometer (ICP-MS) im kantonalen Labor Zürich gemessen wurde. Die Werte in Mikrogramm pro Liter ($\mu\text{g/l}$) wurden in Milli-Bequerel ^{238}U pro Liter umgerechnet (12.4 mBq/l pro $\mu\text{g/l}$). Die Nachweisgrenze vom ICP-MS betrug 1 $\mu\text{g/l}$ bei einer Messunsicherheit von 5%. Durch die unterschiedlichen Verzögerungen von der Probenahme bis zur Analyse und wegen der Umrechnung der Konzentration des Gesamturans auf die Aktivität des ^{238}U wurde eine erweiterte Messunsicherheit von 15% angenommen.

Die Bestimmung der ^{226}Ra -Aktivitätskonzentrationen erfolgte mit der Methode der Adsorption des Radiums an mit Manganoxid beschichtete Polyamidplättchen. Die Aktivität des auf dem Plättchen adsorbierten ^{226}Ra wurde mittels Alpha-Spektrometer bestimmt (Surbeck 1995). Die für die ^{226}Ra Bestimmung benützten MnO_2 -beschichteten Plättchen wurden nach einer Lagerzeit von einigen Monaten noch einmal gemessen, um das ^{228}Ra zu bestimmen.

Das ^{222}Rn wurde mit dem Niton RAD7 gemessen. Mit der RAD7-H₂O Zusatzausrüstung wurde Luft durch die randvoll mit Wasser gefüllten Glasflaschen gepumpt, so dass das im Wasser gelöste ^{222}Rn in die Gasphase überging und über einen Trocknungsfilter in die Messkammer gelangte. Der Halbleiterdetektor des Niton RAD7 misst die Alpha-Strahlung von Zerfallsprodukten des Radons.

Zusätzlich wurde von jeder Wasserprobe die Temperatur, der pH-Wert und die elektrische Leitfähigkeit mit handelsüblichen Geräten bestimmt.

6.3 Bestimmung von ^{226}Ra und ^{228}Ra in Wasser mittels Alpha-Spektrometrie

6.3.1 Prinzip

Mittels durch Kaliumpermanganat beschichtete Poliamidplättchen wird ^{226}Ra und ^{228}Ra an deren Oberfläche adsorbiert und kann anschliessend mittels Alpha-Spektrometrie bestimmt werden

6.3.2 Reagenzien und Materialien

- Kaliumpermanganat zur Analyse (Merck Art.Nr.5084)
- Polyamidplättchen (2 cm x 2 cm)
- Kunststoffbecher 100 ml ETFE (Semadeni Art.Nr. 3398)
- Plastiksäckchen PE-LD (Semadeni Art.Nr. 3430)

- Alpha-Spektrometer
- Rührwerk
- Wasserbad

6.3.3 Beschichten der Polyamidplättchen

Die Polyamidplättchen müssen zuerst in einer Kaliumpermanganat-Lösung mit Manganoxid beschichtet werden, damit ^{226}Ra und ^{228}Ra an der Oberfläche adsorbiert wird.

2,5 g Kaliumpermanganat mit 200 ml Reinstwasser in einem 200 ml Becherglas während 10 Minuten im Wasserbad bei 80 °C lösen. Wasserbad auf 70 °C einstellen und während 15 Minuten warten, bis Temperatur der Lösung 70 °C erreicht hat.

200 ml Lösung reichen für die Beschichtung von maximal 36 Plättchen. Die Lösung ist bei einer Temperatur von 70 °C während eines Tages haltbar (vor Licht schützen). In einer Ecke des Polyamidplättchens zum Aufhängen ein kleines Loch bohren. Die Plättchen mit Isopropanol entfetten. Jeweils 4 Plättchen in einem 200ml Becherglas im Wasserbad bei (70 ± 5)°C an einem Haken aus rostfreiem Stahl aufhängen und in die Lösung tauchen. Die Plättchen dürfen dabei weder einander noch die Becherwand berühren.

Nach einer Expositionszeit von 1 Stunde (Lösung vor Licht schützen) die Plättchen herausnehmen, mit Reinstwasser spülen und mit einem Kleenextüchlein trocken reiben.

An den Kanten die Beschichtung mit einem Schleifpapier oder einem scharfen Messer entfernen. Die Ecke mit dem Aufhängeloch mit einem Seitenschneider abtrennen. Die beschichteten Plättchen können während mindestens einem Jahr trocken aufbewahrt werden.

6.3.4 Probenvorbehandlung

Von den in 1-Liter PET Flaschen erhobenen Wasserproben werden 80 g der Probe in einen 100 ml Kunststoffbecher eingewogen. Der Becher wird auf ein Rührwerk bei einer Drehzahl von 200 gestellt und das beschichtete Plättchen mittels einer kleinen Klammer exzentrisch auf mittlerer Höhe der Probe darin exponiert. Dabei ist zu beachten, dass die glatte Seite des Polyamidplättchens der Strömung zugewendet ist. Nach einer Expositionszeit von 6 bis 8 Stunden bei Raumtemperatur wird das Plättchen herausgenommen, mit Reinstwasser gespült und mit dem Föhn getrocknet. Es sollte möglichst vor mechanischen Einflüssen geschützt werden und wird deshalb in ein mit der entsprechenden Protokollnummer versehenes Kunststoffsäcklein aufbewahrt. In dieser Form kann es beliebig lange aufbewahrt werden, bevor es im Alpha-Spektrometer gemessen wird.

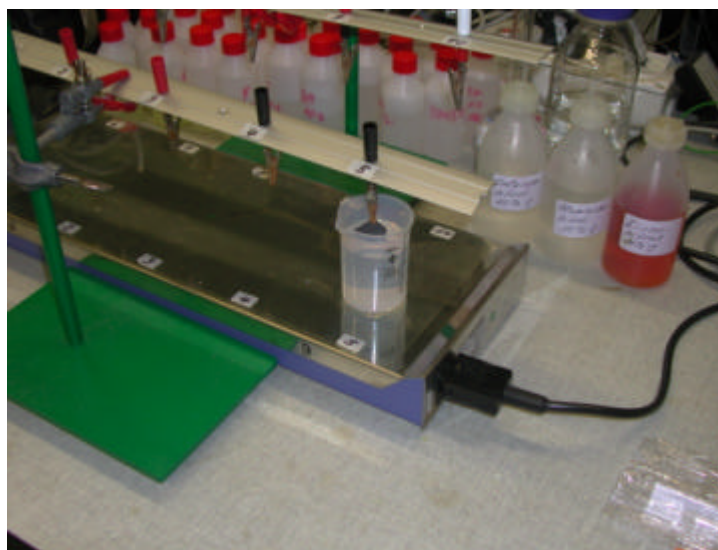


Abb. 13: Exposition 6-8 h des mit Manganoxid beschichteten Plättchens in der Wasserprobe, zur Adsorption des Radiums

6.3.5 Messung und Kalibrierung von ^{226}Ra

Der Gehalt an auf den Plättchen adsorbiertem ^{226}Ra wird mittels Alpha-Spektrometer mit dem Programm "Radiosaf" bestimmt. Der entsprechende Detektor wird auf dem Computerbildschirm mittels Mausklick angewählt und die Messung gestartet. Nach einer Messzeit von mindestens 8 Stunden wird die Messung gestoppt, ausgewertet und die Anzahl Counts im Bereich von 3'000 bis 5'000 keV bestimmt. Das Spektrum wird anschliessend gespeichert. Die Funktionstüchtigkeit der Detektoren wird durch die Kontrollprobe Calib_X wöchentlich verifiziert.

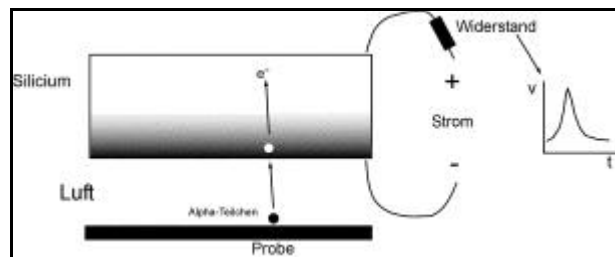
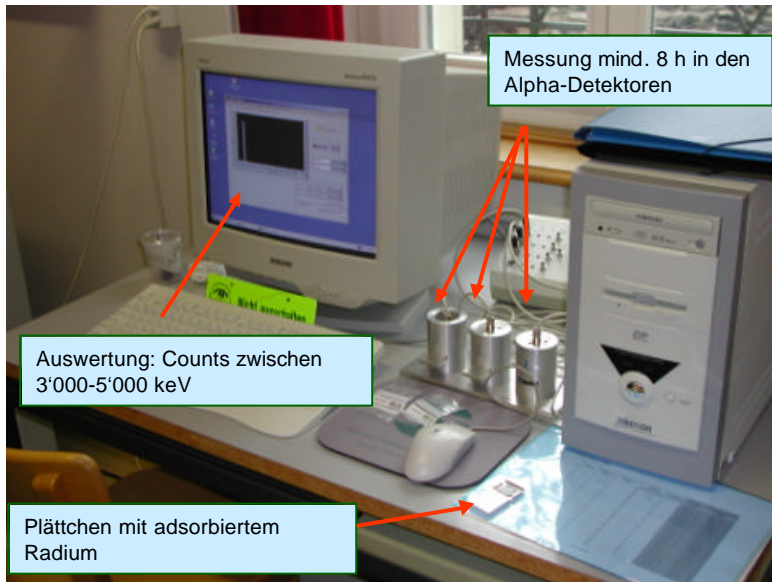


Abb. 14: Messkette zur Bestimmung des Radiumgehaltes in Wasser mittels Alpha-Spektrometrie (oben), schematische Darstellung des Messprinzips (unten)

6.3.6 Berechnung von ^{226}Ra

Für die Angabe der Resultate in [mBq/l] sind folgende Berechnungen notwendig:

$$\text{Gl.13: } A_{\text{Ra-226}} = \left(\frac{C_{3'000-5'000\text{keV}}}{t \cdot 1000} - C_0 \right) \cdot kf$$

wobei gilt:	$A_{\text{Ra-226}}$	= Aktivität von ^{226}Ra [mBq/l]
	$C_{3'000-5'000\text{keV}}$	= Anzahl Counts von 3'000 bis 5'000 keV
	C_0	= Nulleffekt (Zählrate bei leerem Detektor) [counts/kS]
	t	= Messzeit in Sekunden [s]
	kf	= Kalibrierfaktor bei Standardbedingungen [166 mBq/l · kS/counts]

Nachweisgrenze: 15 [mBq/l]

6.3.7 ^{228}Ra

Es ist sicher sinnvoll in Zukunft routinemässig neben dem leichter zu messenden ^{226}Ra auch das ^{228}Ra zu bestimmen. Als einziges gut lösliches langlebige Nuklid in der ^{232}Th -Reihe liefert das ^{228}Ra auch wertvolle Information für die Hydrogeologie.

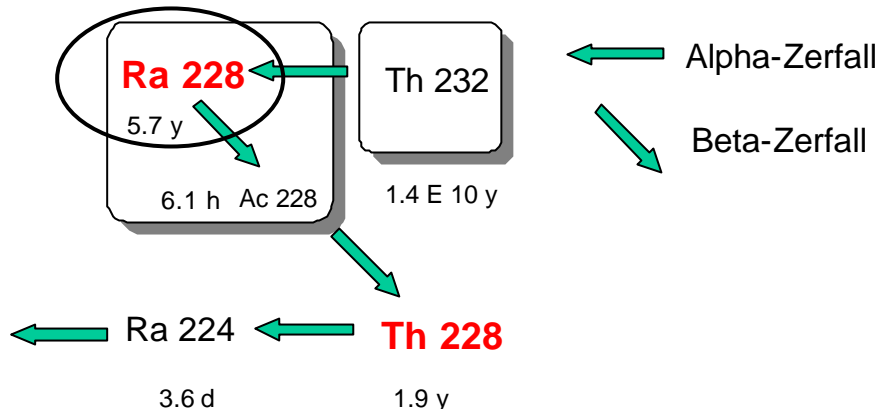


Abb. 15: ^{228}Ra kann entweder mit Gammaskpektrometrie über das kurzlebige Tochterprodukt ^{228}Ac oder mit Alphaspektrometrie nach Aufbau des ^{228}Th bestimmt werden.

Die Probenvorbereitung für die Gammaskpektrometrie erfolgt entweder durch Eindampfen oder durch Adsorption an einem Kationentauscher. Die anschliessende Messung mit einem low-level Bohrlochdetektor liefert bei 1 Liter Ausgangsmaterial eine Nachweisgrenze von 50 bis 80 mBq/l, bei einer Messzeit von 2 Tagen. Diese Nachweisgrenze liegt bei ca. 10% der schweizerischen Limite, genügt aber nicht um die Einhaltung der strengeren deutschen Limite (20 mBq/l) für Säuglingsanfängsnahrung zu überprüfen. Eine tiefere Nachweisgrenze lässt sich mit wesentlich grösseren Probenvolumina oder durch Alphaspektroskopie, allerdings erst nach einer Wartezeit von einigen Monaten, erreichen. Bei stark mineralisierten Wässern ist aber die Probenmenge dadurch beschränkt, dass nur wenige Gramm Eindampfrückstand im Bohrloch des Detektors Platz finden. Bei der Adsorption an Ionentauschern kann aus dem gleichen Grund nur wenig Harz (max. 2 ml) verwendet werden. Bei 0.5 "bed-volumes"/min ergibt das bei mehreren Litern Probe sehr lange Präparationszeiten.

Im KLL GR wird nur die Alphaspektrometrie-Methode benutzt. Die für die ^{226}Ra Bestimmung benutzten MnO_2 -beschichteten Plättchen werden nach einer Lagerzeit von einigen Monaten noch einmal gemessen. Das ^{228}Th baut sich aus dem ^{228}Ra anfänglich mit einer Rate von etwa 3% pro Monat auf.

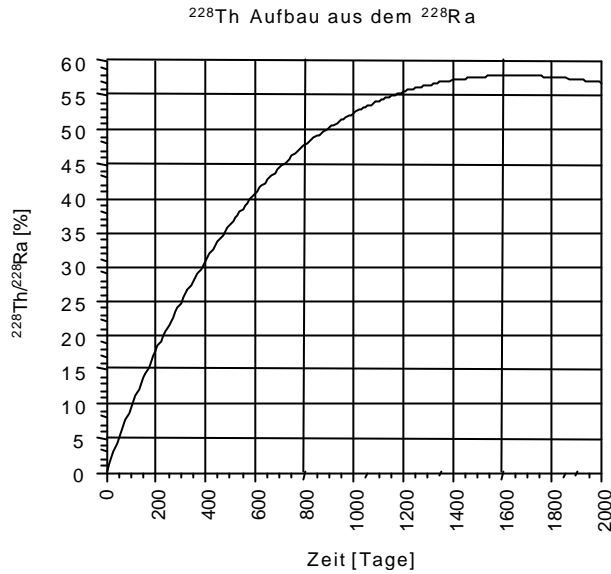


Abb. 16: Aufbau des ^{228}Th aus dem ^{228}Ra

Da neben dem ^{228}Th auch seine kurzlebigen Tochterprodukte aufgebaut sind (total 4.64 Alpha-Teilchen), ergibt sich bereits nach zwei Monaten eine tiefere Nachweisgrenze als bei der Gamm-spektrometrie.

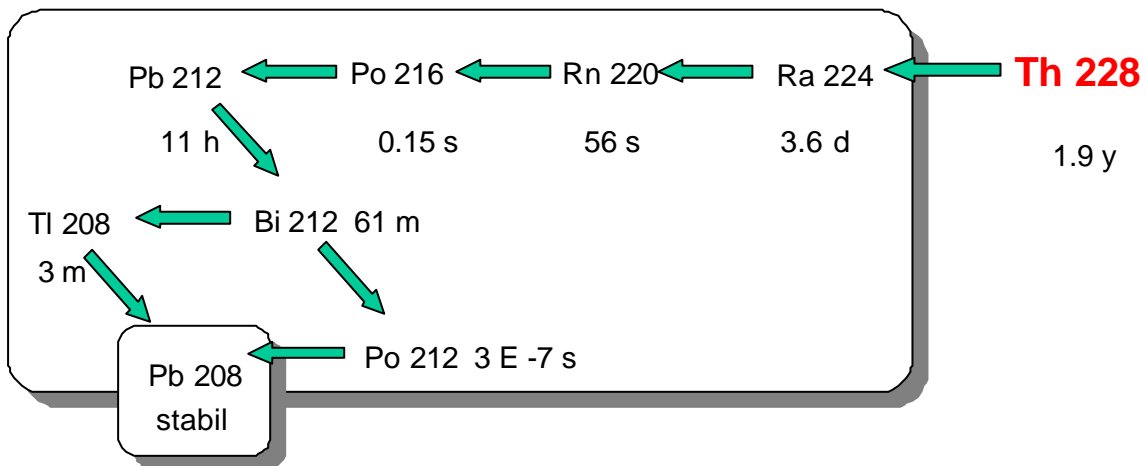


Abb. 17: Zerfallsreihe des ^{228}Th

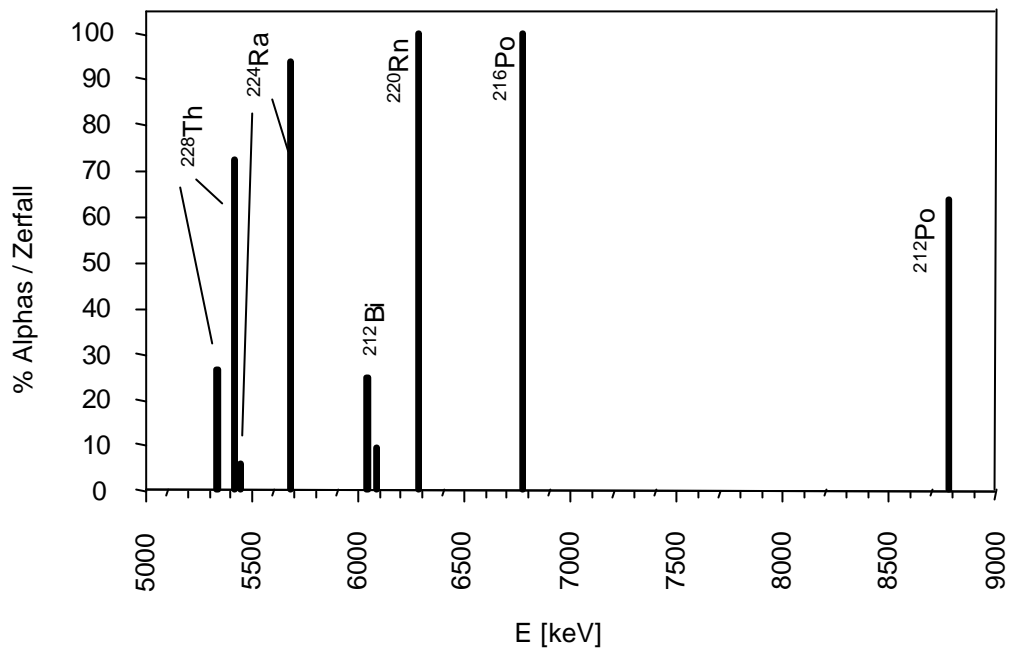


Abb. 18: Theoretisches Alpha-Spektrum einer > 10 Tage alten ^{228}Th -Probe

6.3.8 Messung und Kalibrierung von ^{228}Ra

Die für die ^{226}Ra Bestimmung benutzten MnO_2 -beschichteten Plättchen werden nach einer Lagerzeit von einigen Monaten noch einmal mittels Alpha-Spektrometer mit dem Programm "Radiosaf" gemessen. Das ^{228}Th baut sich aus dem ^{228}Ra anfänglich mit einer Rate von etwa 3% pro Monat auf. Der entsprechende Detektor wird auf dem Computerbildschirm mittels Mausclick angewählt und die Messung gestartet. Nach einer Messzeit von mindestens 8 Stunden wird die Messung gestoppt, ausgewertet und die Anzahl Counts im Bereich von 5'200 bis 9'200 keV bestimmt. Das Spektrum wird anschliessend gespeichert. Die Funktionstüchtigkeit der Detektoren wird durch die Kontrollprobe Calib_X wöchentlich verifiziert.

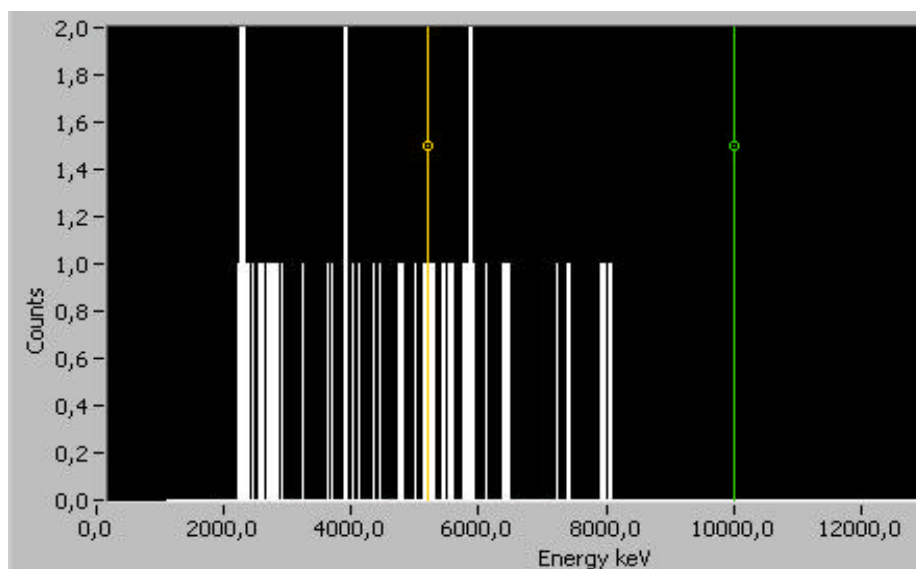


Abb. 19: Alpha Spektrum einer Messung

6.3.9 Berechnung von ^{228}Ra

Für die Angabe der Resultate in [mBq/l] sind folgende Berechnungen notwendig:

$$\text{Gl.14: } A_{\text{Th-228}}(t) = A_{\text{Ra-228}}(0) \frac{I_{\text{Th-228}}}{I_{\text{Th-228}} - I_{\text{Ra-228}}} (e^{-I_{\text{Ra-228}}t} - e^{-I_{\text{Th-228}}t})$$

wobei gilt:

$$A = \text{Aktivität}$$

$$\lambda_{\text{Ra-228}} = 3.33 \cdot 10^{-4} \text{ d}^{-1}$$

$$\lambda_{\text{Th-228}} = 9.99 \cdot 10^{-4} \text{ d}^{-1}$$

$$\text{Gl.15: } k = \frac{A_{\text{Ra-228}}(0)}{A_{\text{Th-228}}(t)} = \frac{2}{3(e^{-(t/3000)} - e^{-(t/1000)})}$$

wobei gilt: k = Korrekturfaktor
t = Zeit in Tagen [d]

$$\text{Gl.16: } A_{\text{Ra-228}} = \frac{\left(\frac{C_{5'200-9'200\text{keV}}}{t \cdot 1000} - C_0 \right) \cdot kf \cdot k}{4.64}$$

wobei gilt:

$$A_{\text{Ra-228}} = \text{Aktivität von } ^{228}\text{Ra} \text{ [mBq/l]}$$

$$C_{5'200-9'200\text{keV}} = \text{Anzahl Counts von 5'200 bis 9'200 keV}$$

$$C_0 = \text{Nulleffekt (Zählrate bei leerem Detektor) [counts/kS]}$$

$$t = \text{Messzeit in Sekunden [s]}$$

$$kf = \text{Kalibrierfaktor bei Standardbedingungen [166 mBq/l \cdot kS/counts]}$$

$$k = \text{Korrekturfaktor}$$

6.4 Bestimmung von ^{222}Rn in Wasser mittels Alpha-Spektrometrie

6.4.1 Prinzip

Mit der RAD-H₂O Zusatzausrüstung wird Luft durch das Wasser gepumpt, so dass das im Wasser gelöste Radon in die Gasphase übergeht und über einen Trocknungsfiter in die Messkammer gelangt. Der Halbleiterdetektor des Niton RAD7 misst die Alpha-Strahlung von Zerfallsprodukten des Radons. Diese sind nicht neutral, sondern positiv geladen. Durch ein elektrisches Feld in der Messkammer werden sie auf die Detektoroberfläche gebracht und erzeugen ein elektrisches Signal. Die Resultate werden auf einem angeschlossenen HP-Drucker ausgedruckt.

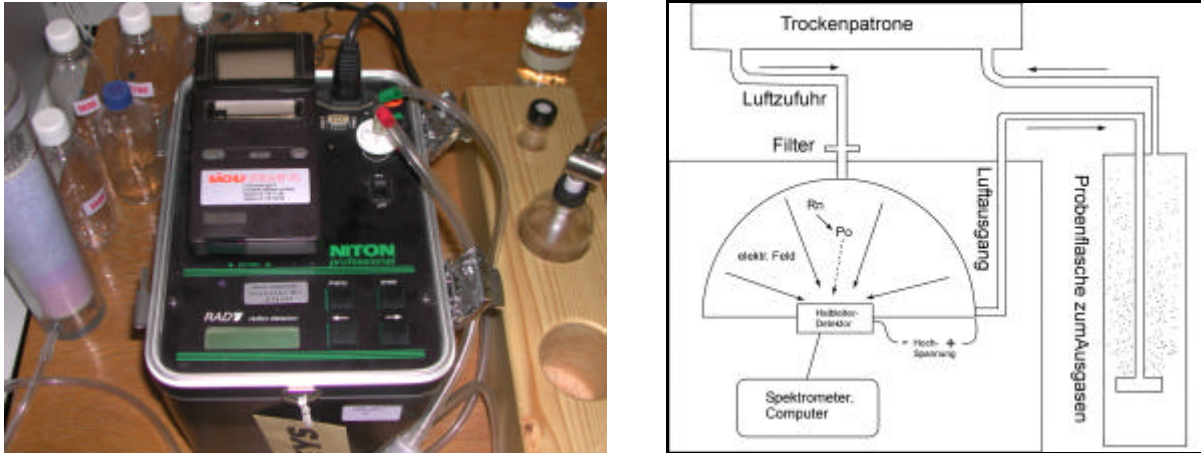


Abb. 20: Messkette (RAD7) zur Bestimmung des Radongehaltes in Wasser mittels Alpha-Spektrometrie (links), schematische Darstellung des Messprinzips (rechts)

6.4.2 Reagenzien und Materialien

- Blaues Kalziumsulfat (Drierite) im Trockenschrank bei 220°C während 1 bis 2 Stunden getrocknet
- 250 ml Glasflaschen mit Septum (Infochroma Art. Nr. S129-0250)
- 40 ml Glasflaschen mit Septum (Infochroma Art. Nr. S129-0040)
- Radon Detektor Niton RAD7 (SP 14141) mit RAD-H₂O Zusatzausrüstung

6.4.3 Probenahme

Die 40 ml (für hohe Radonkonzentrationen) bzw. 250 ml (für tiefe Radonkonzentrationen) Glasflaschen mit Septum werden zuerst dreimal mit dem zu beprobenden Wasser ausgespült. Danach müssen sie randvoll mit Wasser, ohne Lufteinschlüsse, aufgefüllt und fest verschlossen werden. Das vollständige Auffüllen ist wichtig, damit das Radon im Wasser gelöst bleibt und nicht in den Luftraum entweichen kann. Das genaue Probenahmedatum und die Probenahmezeit sind festzuhalten, um die Radonaktivität zum Zeitpunkt der Probenahme berechnen zu können.

6.4.4 Spülen

Bevor mit der eigentlichen Messung der Proben begonnen werden kann, muss das Niton RAD7 mit der RAD-H₂O Zusatzausrüstung angeschlossen und mit Luft gespült werden (Purging). Das Spülen dauert solange, bis die relative Luftfeuchtigkeit (RH) in der Messkammer unter 10 % liegt (ca. 30 Minuten). Dazu wird die Luft durch die grosse, mit blauem Drierite gefüllte Glasflasche angesogen.

6.4.5 Messung

Bevor die eigentliche Messung erfolgt, muss sichergestellt sein, dass das Niton RAD7 mit der RAD-H₂O Zusatzausrüstung ordnungsgemäss angeschlossen ist und die richtigen Geräteparameter eingestellt sind. Um die Glasfritte zu schützen, ist diese bei Nichtgebrauch in einer leeren 250 ml Flasche aufzubewahren. Aus der randvoll gefüllten Glasflaschen wird mit einer Plastikspritze 12 ml der Probe entnommen, um ein Überlaufen beim Anschliessen des Aerators zu verhindern.

Während 5 Minuten wird über eine Glasfritte Luft in das Wasser gepumpt, so dass das im Wasser gelöste Radon in die Gasphase übergeht und über einen Trocknungsfiler in die Messkammer gelangt. Nach dem Pumpen ist der Kreislauf der Schläuche über die zwei T-Stücke kurzzuschliessen, um zu verhindern, dass Feuchtigkeit von der Probe in die

Schläuche gelangt. Während 4 mal 5 Minuten werden anschliessend die Alpha-Zerfälle gemessen und auf den Printer übertragen.

Nach jeder Messung muss die Messkammer während 15 Minuten gespült werden, bis die relative Luftfeuchtigkeit unter 10 % liegt.

6.4.6 Resultate und Berechnung

Die Resultate jeder Messung werden dem angeschlossenen HP-Drucker via Infrarot übermittelt und mit den Angaben der entsprechenden Geräteeinstellungen in Bq/m³ ausgedruckt. Um die Radonaktivität auf den Zeitpunkt der Probenahme zu berechnen, ist die Zeitdifferenz zwischen der Probenahme und der Messung in Stunden zu ermitteln und der entsprechende Zerfallskorrekturfaktor (DCF) zu bestimmen. Der Mittelwert (Mean) und die Standardabweichung (S.D.) der vier Einzelmessungen, welche in Bq/m³ angegeben werden, sind durch 1000 zu dividieren und mit dem Korrekturfaktor zu multiplizieren, um die ²²²Rn Aktivität im Wasser in Bq/l zum Zeitpunkt der Probenahme zu erhalten.

$$\text{Gl.17: } A_{Rn-222} = \frac{\text{Mean} \cdot \text{DCF}}{1000}$$

wobei gilt: A_{Rn-222} = Aktivität von ²²²Rn bei der Probenahme [Bq/l]
 Mean = Aktivität von ²²²Rn bei der Messung [Bq/m³]

$$\text{DCF} = \text{Zerfallskorrekturfaktor} \left(\frac{1}{e^{\frac{-0.693}{3.82} \cdot t}} \right)$$

t = Zeitdifferenz zwischen Probenahme und Messung in Tagen [d]

Nachweisgrenze bei 40 ml Probeflaschen: 2 Bq/l

Nachweisgrenze bei 250 ml Probeflaschen: 0.5 Bq/l

6.5 Resultate

Es wurden 330 Proben Quellwasser und 30 Proben Grundwasser untersucht. Die mittleren Aktivitäten von ²³⁸U (Median: 17 mBq/l) und ²²⁶Ra (Median: 13 mBq/l) lagen etwa in den gleichen Bereichen. Beim ²²⁸Ra lag der Median deutlich unterhalb der Beurteilungsgrenze von 15 mBq/l. Die Aktivitäten von ²²²Rn (Median: 6 Bq/l) lagen etwa um einen Faktor 1000 höher als bei ²³⁸U, ²²⁶Ra und ²²⁸Ra. Die Daten für die Placidusquelle bei Disentis sind im Text erwähnt, wurden aber nicht in die Häufigkeitsverteilungen aufgenommen, da die Quelle nicht als Trinkwasser genutzt wird.

Die Summenhäufigkeit gibt für einen bestimmten Messwert an, welcher Prozentsatz der Werte kleiner als dieser Messwert ist. Die gewählte Darstellung, mit der Summenhäufigkeit auf einer "probability"-Skala und einer logarithmischen Skala für die Messwerte, hat den Vorteil, dass log-normal verteilte Werte auf einer Geraden liegen. Um die Figuren trotz der grossen Anzahl Messungen übersichtlich zu halten, wurden bei tiefen Werten nicht alle Punkte eingezeichnet. Bis zu einer Summenhäufigkeit von 80% ist jeder zehnte Wert dargestellt, von 80% bis 90% jeder fünfte Wert, von 90% bis 95% jeder zweite Wert. Ab einer Summenhäufigkeit von 95% sind alle Werte eingetragen.

6.5.1 ²³⁸U

Die beiden Proben mit den höchsten Werten für ²³⁸U wurden in Bergün (352 mBq/l) und Poschiavo (357 mBq/l) gefunden. Bei 303 Proben (84%) lag die Aktivität unter 50 mBq/l. 29 Proben (8%) zeigten eine Aktivität zwischen 50 und 100 mBq/l. Bei 25 Proben (7%) lag die Aktivität zwischen 100 und 300 mBq/l. Von den 30 Grundwasserproben lagen alle Aktivitäten unter 50 mBq/l. Der Median aller Proben lag bei 17 mBq/l, der Mittelwert bei 31 mBq/l.

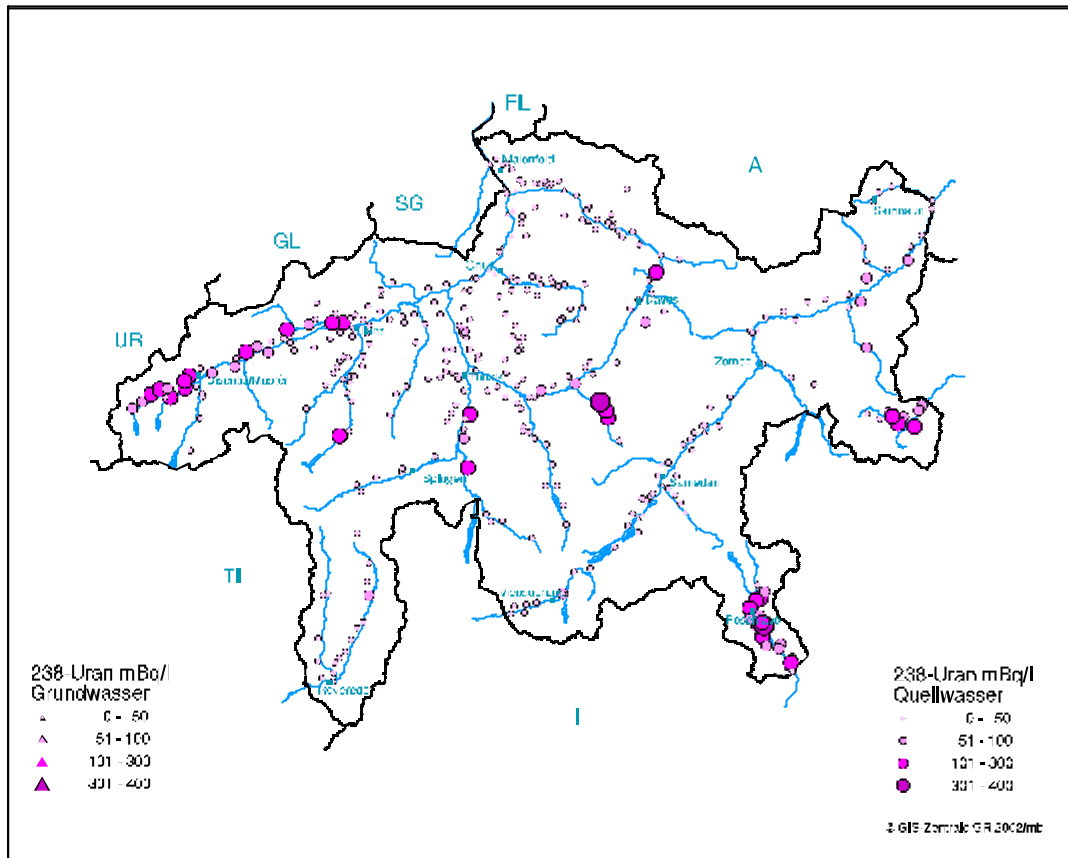


Abb. 21: Übersichtskarte Kanton Graubünden. Geographischen Darstellung der 360 Probenahmestellen mit den entsprechenden Aktivitätskonzentrationen für ^{238}U in mBq/l (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

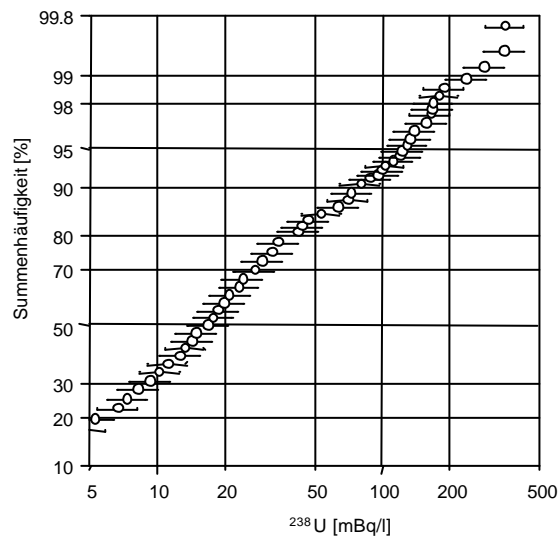


Abb. 22: Summenhäufigkeit der ^{238}U -Aktivitätskonzentrationen. Total 359 Proben. Die mit ICP-MS bestimmten Urangehalte wurden mit 12,4 mBq/l pro ppb U umgerechnet. Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

6.5.2 ^{226}Ra

Bei 356 Proben (99%) lag die Aktivität von ^{226}Ra unter 50 mBq/l. Lediglich bei 4 Proben (1%) lag der Wert über 50 mBq/l. Mit einer Aktivität von 95 mBq/l wurde der höchste Wert im Reservoir in Schnaus gefunden. Der Median lag bei 13 mBq/l der Mittelwert bei 15 mBq/l. Auch hier lagen alle Grundwasserwerte unter 50 mBq/l.

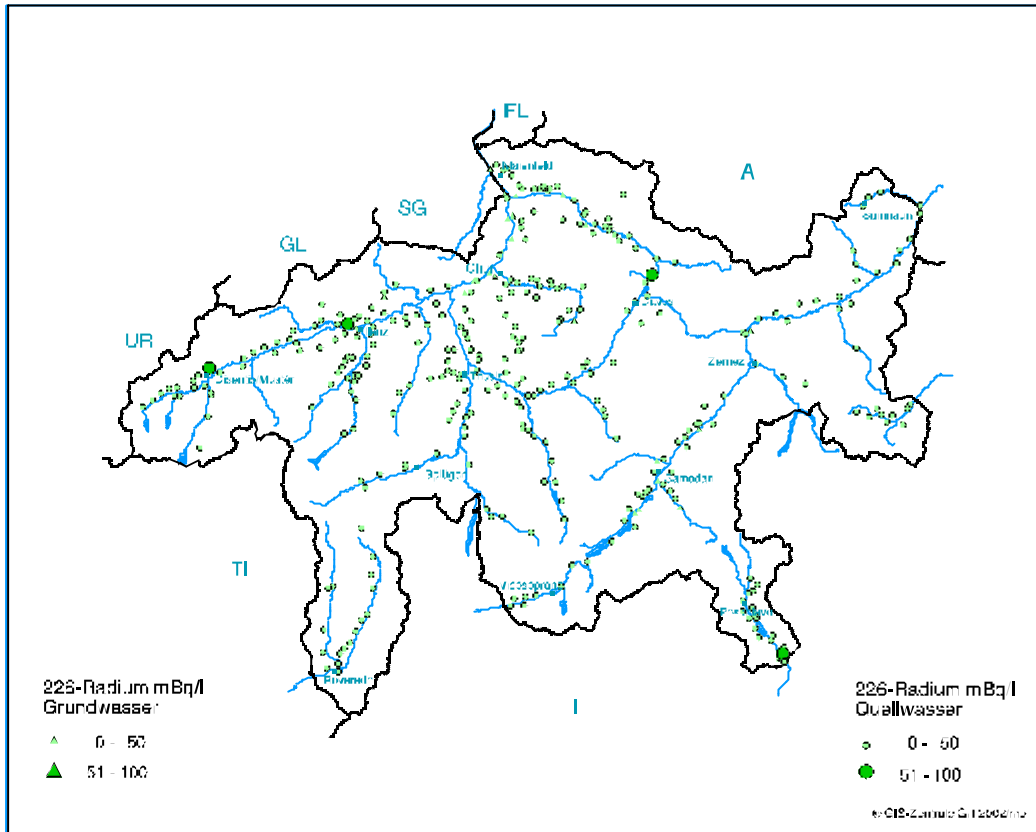


Abb. 23: Übersichtskarte Kanton Graubünden. Geographischen Darstellung der 360 Probenahmestellen mit den entsprechenden Aktivitätskonzentrationen für ^{226}Ra in mBq/l (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

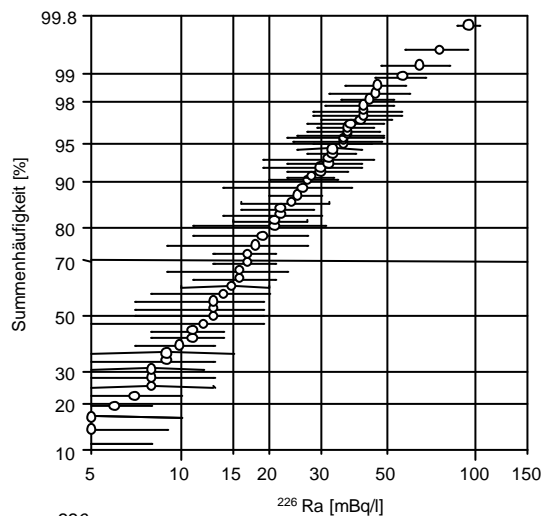


Abb. 24: Summenhäufigkeit der ^{226}Ra -Aktivitätskonzentrationen. Total 359 Proben. Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

6.5.3 ^{228}Ra

Bei 359 Proben (99,7%) lag die Aktivität von ^{228}Ra unter 40 mBq/l. Lediglich bei einer Probe (0,3%) lag der Wert über 40 mBq/l. Mit einer Aktivität von 55 mBq/l wurde der höchste Wert im Reservoir in Schnaus gefunden. Der Median und der Mittelwert lagen unterhalb der Beurteilungsgrenze von 15 mBq/l. Beim Grundwasser lagen alle Werte unter 20 mBq/l.

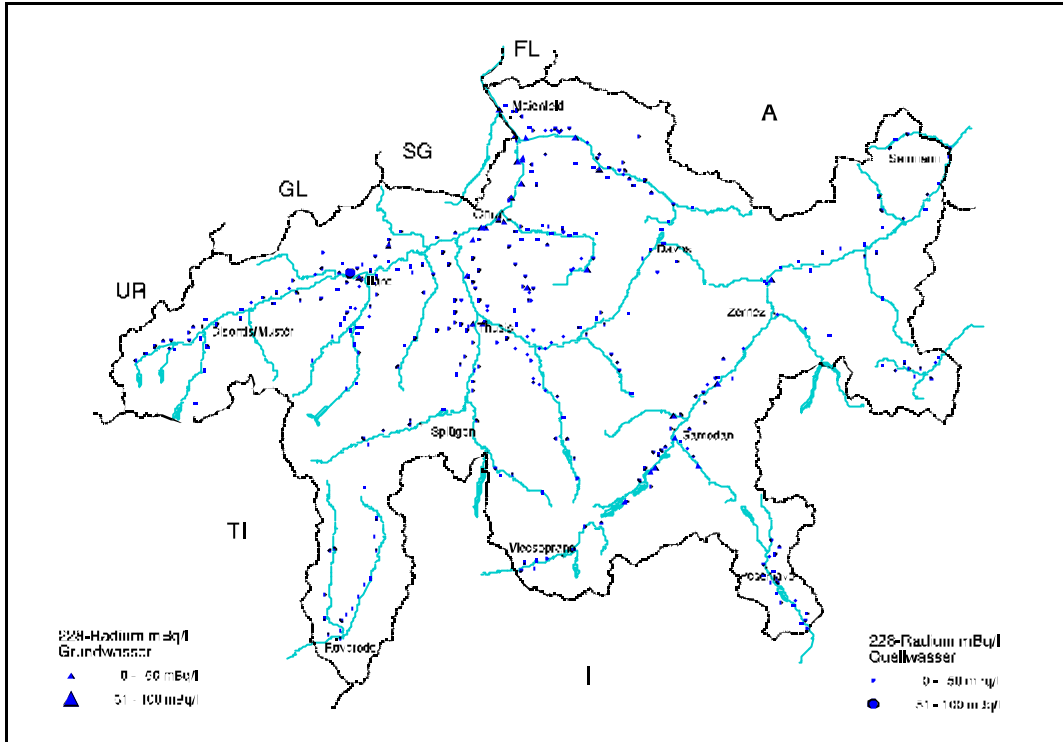


Abb. 25: Übersichtskarte Kanton Graubünden. Geographischen Darstellung der 360 Probenahmestellen mit den entsprechenden Aktivitätskonzentrationen für ^{228}Ra in mBq/l (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

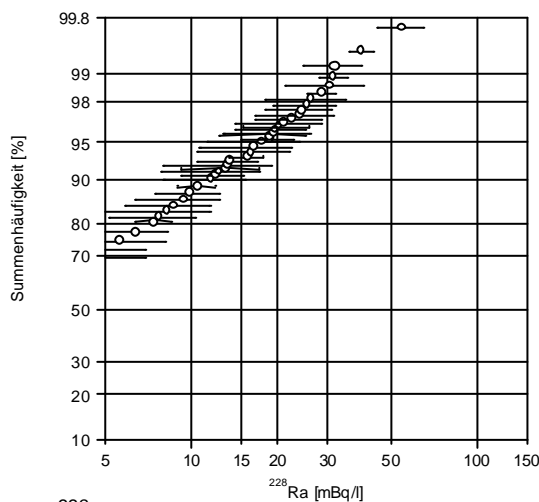


Abb. 26: Summenhäufigkeit der ^{228}Ra -Aktivitätskonzentrationen. Total 359 Proben. Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

6.5.4 ^{222}Rn

Die höchste ^{222}Rn -Aktivität wurde an der Placidusquelle in Disentis gefunden. Der gefundene Wert von 654 Bq/l stimmt gut mit dem bereits 1908 durch A. Schweizer (Schweizer 1916) gefundenen Wert von 47 Mache-Einheiten (entspricht 634 Bq/l) überein. Zahlreiche spätere Bestimmungen haben stets ähnliche Werte ergeben, so dass die Placidusquelle auch heute noch als stärkste radioaktive Quelle der Schweiz bezeichnet werden kann (Högl 1980). Mit 335 Bq/l wurde der zweithöchste Wert im Reservoir Leis in Vals gefunden. Bei 335 Proben (94 %) lag der Wert unter 50 Bq/l. Bei 13 Proben (4%) lag die Aktivität zwischen 50 und 100 Bq/l. Bei 5 Proben (1%) lag die Aktivität zwischen 100 und 200 Bq/l. Der Median lag bei 6 Bq/l, der Mittelwert bei 15 Bq/l. Bis auf das Pumpwerk in Pontresina mit einer Aktivität von 72 Bq/l lagen alle Aktivitäten in den Grundwässern unter 50 Bq/l.

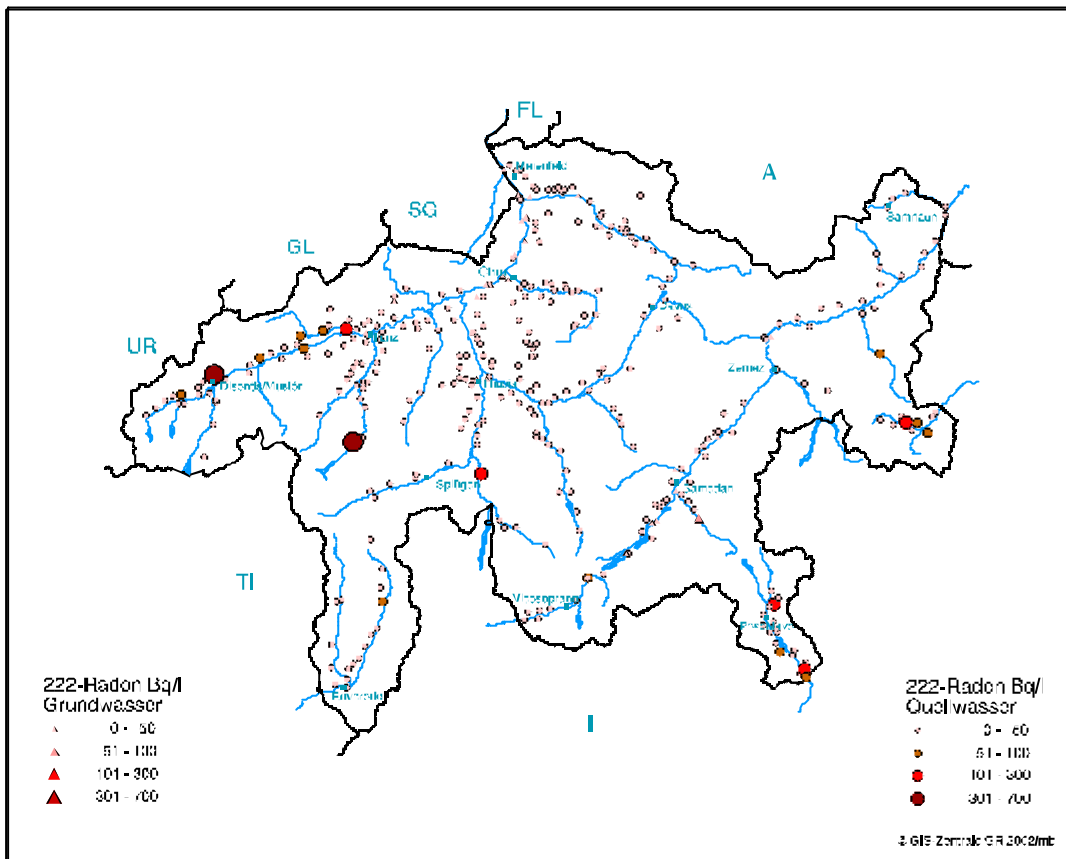


Abb. 27: Übersichtskarte Kanton Graubünden. Geographischen Darstellung der 360 Probenahmestellen mit den entsprechenden Aktivitätskonzentrationen für ^{222}Rn in Bq/l (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

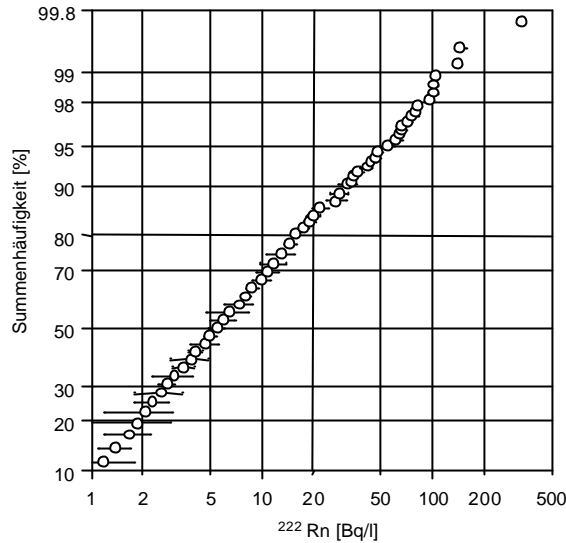


Abb. 28: Summenhäufigkeit der ^{222}Rn -Aktivitätskonzentrationen. Total 359 Proben. Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

6.6 Diskussion

6.6.1 Vergleich der Resultate mit den lebensmittelrechtlich festgelegten Höchstkonzentrationen

In der schweizerischen Lebensmittelgesetzgebung werden in der Fremd- und Inhaltsstoffverordnung (FIV 2002) folgende Höchstkonzentrationen für Radionuklide der Uran- und Thoriumreihe für flüssige Lebensmittel festgelegt:

- Gruppe 1: ^{224}Ra , ^{228}Th , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U : Grenzwert 10 Bq/l
- Gruppe 2: ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{230}Th , ^{232}Th , ^{231}Pa : Grenzwert 1 Bq/l

Die Grenzwerte gelten jeweils für die Summe der Aktivitätskonzentrationen der Radionuklide einer Gruppe.

Als Höchstkonzentration gilt die Konzentration eines Stoffes und seiner toxikologischen bedeutsamen Folgeprodukte, die in einem bestimmten Lebensmittel im Zeitpunkt der Abgabe an die Konsumenten vorhanden sein darf. Der Grenzwert ist die Höchstkonzentration, bei dessen Überschreitung das Lebensmittel für die menschliche Ernährung als ungeeignet gilt. Diese Grenzwerte gelten grundsätzlich auch für Radionuklide natürlichen Ursprungs. Sie gelten jedoch nicht für homöostatisch regulierte natürliche Nuklide wie Kalium-40, wo die Dosis nicht von der inkorporierten Aktivität abhängt.

Von den in der FIV erwähnten Radionukliden der Uran- und Thoriumreihen sind in Grund- und Quellwässern mit Trinkwasserqualität die Isotopen von Th, Pb und Po nicht zu erwarten, da sie sehr schlecht löslich sind. ^{235}U und ^{231}Pa , ein Tochterprodukt des ^{235}U , können aufgrund des natürlichen Isotopenverhältnisses gegenüber dem ^{238}U vernachlässigt werden, da die ^{235}U -Aktivität nur 4.6 % der ^{238}U -Aktivität ausmacht. Für die Summe der Aktivitätskonzentrationen in Gruppe 1 sind somit noch ^{224}Ra , ^{234}U und ^{238}U und für die Gruppe 2 ^{226}Ra und ^{228}Ra massgebend. ^{224}Ra wurde bei dieser Untersuchung nicht bestimmt, da die bisher in Schweizer Trinkwässern bestimmten Werte für ^{224}Ra immer unter 20 mBq/l lagen (BAG 1995).

Damit das Trinkwasser bezüglich den Radionukliden der Gruppe 2 den lebensmittelrechtlichen Anforderungen der FIV entspricht, muss die Höchstkonzentration für die Summe von ^{226}Ra und ^{228}Ra somit unter 1 Bq/l liegen. Die im Kanton Graubünden gemessenen Aktivitätskonzentrationen für die Gruppe 2 lagen alle deutlich unter diesem Wert (Maximalwert bei ^{226}Ra ca. 0.1 Bq/l und bei ^{228}Ra ca. 0.05 Bq/l).

Die für die Uranbestimmung gewählte Analysenmethode liefert nur das Gesamturan, das zu 99.27 Gewichts% aus ^{238}U besteht. Für eine Abschätzung der ^{234}U -Aktivität wird hier angenommen, dass ^{238}U und ^{234}U im Gleichgewicht sind. Aktivitätsverhältnisse zwischen ^{234}U und ^{238}U , die einen grösseren Wert als 1 aufweisen, sind zwar in Grund- und Quellwässern möglich und auch beobachtet worden (Surbeck 2002). Eine separate Bestimmung von ^{234}U erscheint aber nur sinnvoll bei hohen ^{238}U -Aktivitäten, die mindestens 30% des Grenzwertes für die Gruppe 1 ausmachen. Da der höchste bei dieser Messkampagne gefundene Wert für ^{238}U unter 4% des Grenzwertes lag, wurde auf eine separate Bestimmung von ^{234}U verzichtet.

Damit das Trinkwasser bezüglich den Radionukliden der Gruppe 1 den lebensmittelrechtlichen Anforderungen der FIV entspricht, muss die Höchstkonzentration für das ^{238}U somit unter 5 Bq/l liegen. Die im Kanton Graubünden gemessenen Aktivitätskonzentrationen für die Gruppe 1 lagen alle deutlich unter diesem Wert (Maximalwert von ca. 0.4 Bq/l).

Radon im Leitungswasser verursacht in Privathaushalten Exposition durch Ingestion und Inhalation. Das Radon kann durch direkten Verzehr von Leitungswasser aufgenommen werden. Vor allem beim Duschen, Waschen oder Kochen wird Radon aus Leitungswasser in die Raumluft freigesetzt, was zur Radonexposition durch Inhalation führt. Schätzungen der jährlichen effektiven Folgedosis, die von einem Erwachsenen durch die Ingestion von Wasser mit 1000 Bq/l Radon aufgenommen wird, schwanken zwischen 0.2 mSv und 1.8 mSv, abhängig vom jährlichen Wasserverbrauch und der Schwankungsbreite der eingesetzten Konversionsfaktoren, die aus der Aufnahme von Radon im Wasser bei $3.5 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq liegen. Die Erhöhung der Radonkonzentration in Gebäuden durch Leitungswasser ist abhängig von verschiedenen Parametern wie dem Gesamtwasserverbrauch im Gebäude, dem Raumvolumen des Gebäudes und der Belüftungsintensität. Sowohl das United Nations Scientific Committee of the Effects of Atomic Radiation (USCEAR) als auch das National Research Council in den USA schätzen, dass 1000 Bq/l Radon im Leitungswasser im Durchschnitt die Radonkonzentration in der Raumluft um 100 Bq/m^3 erhöhen (EU 2001). Nur bei 6 der rund 400 im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Quell-, Grund- und Mineralwässer lagen die Werte für das ^{222}Rn über 100 Bq/l. In den beiden Reservoirs, in den mit Abstand die höchsten Radonwerte gefunden wurden (Placidusquelle, Quelle Leis) wurden aus diesem Grund zusätzlich Radon-Luftmessungen durchgeführt (Kapitel 9.8). Die EU-Kommission über den Schutz der Öffentlichkeit vor der Exposition gegenüber Radon in Trinkwasser schlägt vor, dass bei Radonkonzentrationen unter 100 Bq/l keine Gegenmassnahmen vorgeschrieben werden müssen. Unter Berücksichtigung von Ingestion und Inhalation ist die jährliche effektive Dosis durch Wasser mit einer Radonkonzentration von 1000 Bq/l im Wesentlichen vergleichbar mit der Dosis durch eine Radon-Luftkonzentration von 200 Bq/m^3 , was aus Strahlenschutzgründen entsprechende Gegenmassnahmen rechtfertigt (EU 2001). An der Placidusquelle wurde mit 650 Bq/l zwar eine ähnlich hoch belastete Quelle gefunden, jedoch wird dieses Wasser nicht oder zumindest nicht mehr zu Trinkzwecken verwendet. Zudem gilt festzuhalten, dass dieser hohe Wert beim Einlauf in das Reservoir gemessen wird. Bis das radonhaltige Wasser in das Leitungsnetz gelangte und getrunken werden konnte, fand durch Entgasung und Zerfall des Radons eine sehr starke Reduktion statt. Da alle anderen gefundenen Radonwerte in den Quell-, Grund- und Mineralwässern deutlich unter 1000 Bq/l liegen und die Proben bis auf wenige Ausnahmen in den Reservoirs erhoben wurden, kann die Radonbelastung durch das Trinkwasser in Graubünden sowohl durch Ingestion wie auch durch Inhalation vernachlässigt werden. In der übrigen Schweiz werden ähnlich Verhältnisse anzutreffen sein. Die Radonkonzentrationen im Trinkwasser werden dort eher noch tiefer liegen als in Graubünden. Diese Messungen und Überlegungen zeigen, dass die ^{222}Rn -Konzentration in Trinkwasser nicht von lebensmittelrechtlicher Relevanz ist und es somit nicht nötig ist, für die Schweiz einen Höchstwert festzulegen.

6.6.2 Dosisabschätzung

Für total 359 Proben aus den Trinkwassernetzen des Kantons Graubünden liegen nun sowohl ^{226}Ra - und ^{228}Ra - als auch Uranbestimmungen vor. Für jedes der Wässer wurde die

zu erwartende Jahresdosis aufgrund der ^{226}Ra , ^{228}Ra und der Urankonzentrationen für vier Altersgruppen berechnet, unter der Annahme eines Gleichgewichts zwischen dem ^{234}U und dem ^{238}U . Da in der Schweizerischen Strahlenschutzverordnung keine Konsumraten und für das ^{228}Ra nur Dosisfaktoren für Erwachsene erwähnt sind, wurden folgende Konsumraten und Dosisfaktoren des Deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) für die Dosisberechnung übernommen.

Altersgruppe	Konsumrate [l/Jahr]	Dosisfaktor [$\mu\text{Sv/Bq}$]		
		^{238}U	^{226}Ra	^{228}Ra
0-1 Jahr	170 *)	0.34	4.7	30
1-2 Jahre	100	0.12	0.96	5.7
7-12 Jahre	150	0.068	0.8	3.9
Erwachsene	350	0.045	0.28	0.69

*) Nahrung ausschliesslich mit Trinkwasser zubereitet, nicht gestillt

Tab. 7: Konsumraten und Dosisfaktoren des Deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS)

Die Verteilung der jährlichen Dosis beim Konsum dieser Wässer ist in der folgenden Abbildung zu sehen. Unsicherheiten bei der Abschätzung ergeben sich dadurch, dass das ^{224}Ra nicht gemessen wurden und dass ein Gleichgewicht zwischen dem ^{234}U und dem ^{238}U angenommen wurde. Es ist aber nicht zu erwarten, dass diese Vernachlässigungen zu einer wesentlichen Erhöhung der maximalen Jahresdosis bei der am stärksten belasteten Altersgruppe führen.

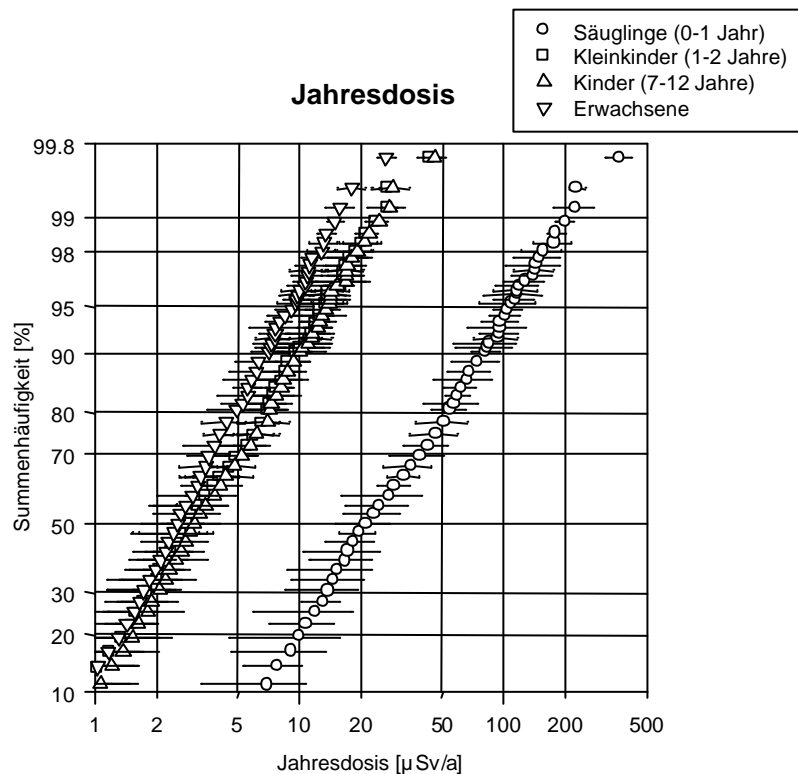


Abb. 29: Summenhäufigkeit der Jahresdosen für vier Altersklassen. Die Dosen wurden für jede der Proben aus den gemessenen Uran-, ^{226}Ra - und ^{228}Ra -Konzentrationen berechnet. Für die Berechnung wurden die Dosisfaktoren und Konsumraten des BfS benützt. Der angegebene Fehler entspricht ± 1 -sigma-Schranken. Um die Figuren trotz der grossen Anzahl Messungen übersichtlich zu halten, wurden bei tiefen Werten nicht alle Punkte eingezeichnet. Bis zu einer Summenhäufigkeit von 80% ist jeder zehnte Wert dargestellt, von 80% bis 90% jeder fünfte Wert, von 90% bis 95% jeder zweite Wert. Ab einer Summenhäufigkeit von 95% sind alle Werte eingetragen.

In der Trinkwasserrichtlinie der Weltgesundheitsorganisation (WHO) und der Europäischen Union wird für Trinkwasser ein Dosisrichtwert von 100 micro-Sievert pro Jahr ($\mu\text{Sv/a}$) festgelegt. Für Säuglinge würde bei 5% der Trinkwässer diese Limite von 100 $\mu\text{Sv/a}$ überschritten, unter der Annahme, dass die Säuglinge nicht gestillt werden und die Nahrung ausschliesslich mit Trinkwasser zubereitet wird. Die Limite gilt jedoch nicht für die Schweiz. Auch ein Wert von maximal 100 $\mu\text{Sv/a}$ liegt noch sehr tief im Vergleich zu der in der Schweiz zu erwartenden mittleren Strahlungsbelastung (natürlich und zivilisatorisch bedingt) von ca. 4'000 $\mu\text{Sv/a}$ (BAG 2002).

Die untenstehende Abbildung zeigt die relativen Beiträge der verschiedenen Nuklide zur Gesamtdosis bei Erwachsenen und bei Säuglingen. Bei den Erwachsenen ist ^{226}Ra , ^{228}Ra und Uran etwa in gleichem Mass für die Dosisbelastung in den untersuchten Trinkwässern verantwortlich. Im Gegensatz zu dieser Altersgruppe zeigt sich bei den Säuglingen, dass vor allem das ^{228}Ra wesentlich für erhöhte Dosiswerte verantwortlich ist.

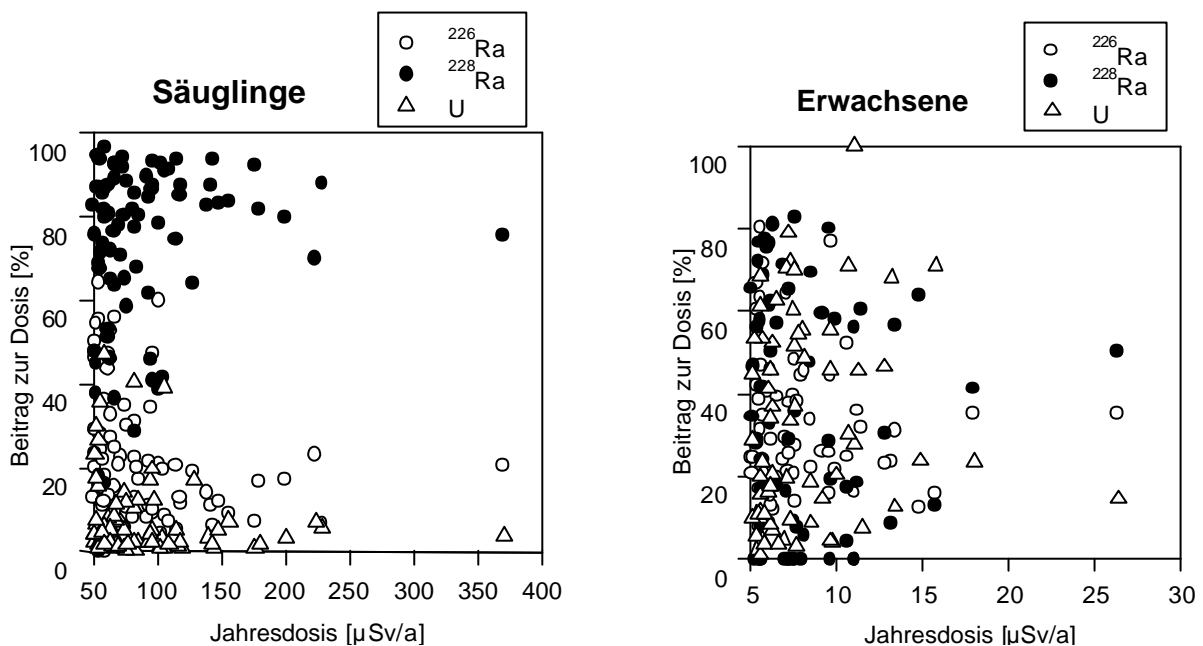


Abb. 30: Beitrag zur Dosis der gemessenen Uran-, ^{226}Ra - und ^{228}Ra -Konzentrationen bei Säuglingen und Erwachsenen.

6.7 Korrelationen zwischen den einzelnen Radionukliden

Interessant ist der Vergleich der gefundenen Konzentrationen der einzelnen Radionuklide untereinander. Aufgrund der geographischen Darstellungen der Probenahmestellen mit den entsprechenden Aktivitätskonzentrationen scheinen Wässer in den Regionen Surselva, Puschlav und Münstertal sowohl hohe ^{238}U - wie auch ^{222}Rn -Konzentrationen aufzuweisen.

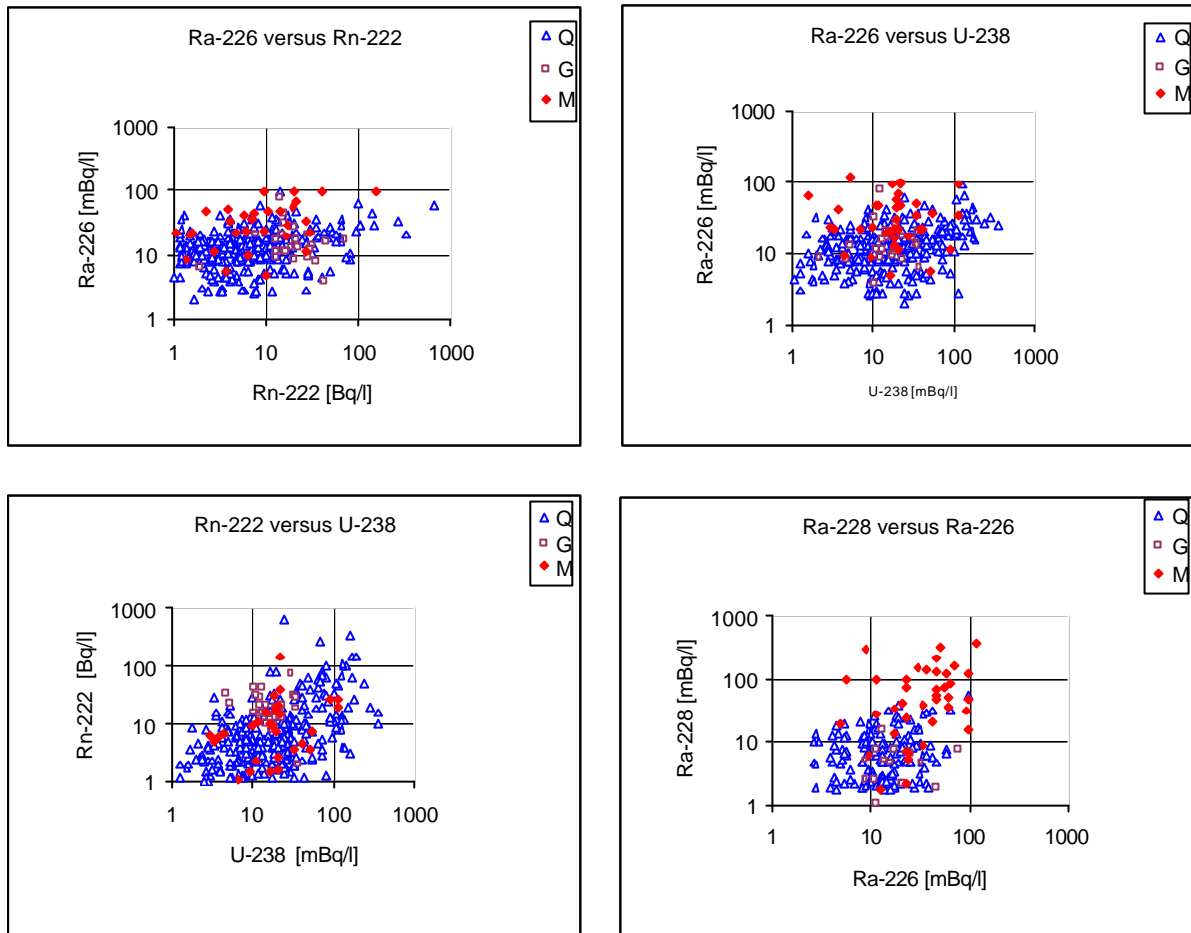


Abb. 31: Korrelationen zwischen den Gehalten an ^{226}Ra , ^{238}U , ^{222}Rn und ^{228}Ra in Quell- (Q), Grund (G)- und Mineralwässern (M). Um die Figuren übersichtlicher zu halten, wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Während das ^{226}Ra weder mit dem ^{238}U noch mit dem ^{222}Rn sowohl in Mineral-, wie auch in Grund- und Quellwässern korreliert, zeigt sich zwischen den Aktivitätskonzentrationen vom ^{238}U und dem ^{222}Rn ein deutlicher Zusammenhang. Insbesondere Grundwässer weisen bei erhöhten ^{238}U -Konzentrationen auch höhere ^{222}Rn -Konzentrationen auf. Das lässt sich folgendermassen erklären. Uran ist unter oxidierenden Bedingungen (hoher Sauerstoffgehalt im Wasser) gut löslich. Unter diesen Bedingungen reichern sich aber auch Auscheidungen von Eisenhydroxid entlang des Wasserpfades im Untergrund an. Das Radium adsorbiert an diesen Eisenhydroxidauscheidungen und zerfällt dabei in das Tochternuklid ^{222}Rn , das im Wasser gut löslich ist und sich dort anreichert. Hingegen ist unter reduzierenden Bedingungen (niedriger Sauerstoffgehalt im Wasser) sowohl die Löslichkeit des Urans im Wasser schlechter wie auch die Ausscheidung von Eisenhydroxid reduziert. Somit wird das Radium nicht an Eisenhydroxidauscheidungen adsorbiert und es entsteht auch kein ^{222}Rn . Sowohl das ^{226}Ra wie auch das ^{228}Ra ist in Mineralwässern gegenüber den Werten der Grund- und Quellwässer deutlich erhöht, obwohl das ^{226}Ra als Folgeprodukt des ^{238}U aus der Uran-Zerfallsreihe stammt, das ^{228}Ra hingegen als Tochterprodukt des ^{232}Th aus der Thorium-Zerfallsreihe.

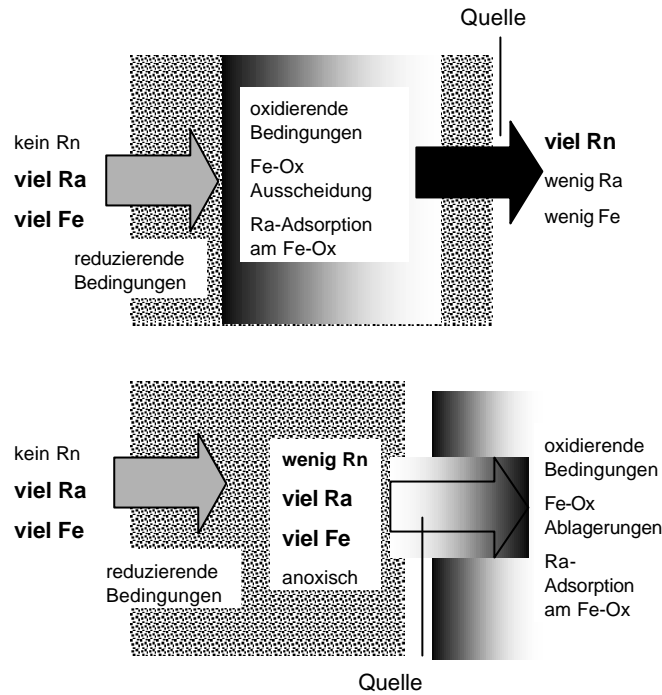


Abb. 32: Modellvorstellung über den Zusammenhang zwischen Radium- und Radon-Konzentrationen (BAG 2003)

6.8 Schlussfolgerungen

Die für sämtliche Trinkwassernetze des Kantons Graubünden bestimmten Gehalte an ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra und U zeigen, dass die lebensmittelrechtlich festgelegten Höchstkonzentrationen für diese natürlichen Inhaltsstoffe bei weitem nicht erreicht werden. Auch eine Abschätzung der durch das ^{226}Ra , ^{228}Ra und das Uran verursachten Strahlendosen lassen keinerlei Gefährdung der Gesundheit erkennen. Dem Grund für die in einigen Wässern gefundenen erhöhten Radionuklid-Konzentrationen soll aber trotzdem nachgegangen werden. Das ist einerseits von wissenschaftlichem Interesse, andererseits könnte es helfen, stark belastete, private Fassungen zu finden. Deshalb wurden in einer weiteren Kampagne Mineralwasserquellen, die zum Teil abgefüllt werden und sich im Handel befinden oder als Badewasser genutzt werden, beprobt und untersucht.

7 Gesamtüberblick über natürliche Radionuklide in Mineralwasser in Graubünden

Im Jahre 2002 wurden von den Medien besonders in Deutschland über erhöhte Radiumkonzentrationen in Mineralwässern berichtet. Verschieden Gesundheitsexperten zeigten sich über die gefundenen Werte erstaunt und beurteilten die gefundenen Werte als gesundheitsrelevant und besorgniserregend. Es wurden sogar mögliche Zusammenhänge zwischen erhöhter Leukämierate bei Kindern und einem hohen Gehalt an Radium im Trinkwasser laut (Plusminus 2000). Ende 2002 hat das deutsche Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in einer breit angelegten Studie, in der es das Vorkommen natürlicher Radionuklide in Mineralwässern in Deutschland untersucht hatte, die Ergebnisse publiziert. Als Grundlage für die gesundheitliche Bewertung der Untersuchungsergebnisse diente der von der Weltgesundheitsorganisation (WHO) und der Europäischen Union (EU) festgelegte Dosisrichtwert von 0.1 mSv/Jahr. Dieser Richtwert für Trinkwasser ist auf Mineralwasser nur übertragbar für Personen, die ihren Trinkwasserbedarf überwiegend oder ausschliesslich durch Mineralwasser decken. Das BfS stellte in dieser Studie folgende Ergebnisse fest: Bei zwei der 401 untersuchten Mineralwässer wurde der Dosisrichtwert von 0.1 mSv/Jahr für Erwachsene überschritten, sofern sie jährlich 350 Liter dieses Mineralwassers trinken. Bei etwa 20% der untersuchten Mineralwässer wurden Aktivitätskonzentrationen gemessen, aus denen bei Kleinkindern mit einem Alter unter einem Jahr eine Folgedosis von mehr als 0.1 mSv resultiert, wenn wie angenommen jährlich 170 Liter ausschliesslich dieses Mineralwassers konsumiert werde. Nahezu 90% dieser Wässer deutscher Herkunft stammten aus den Bundesländern Bayern, Baden-Württemberg, Hessen, Nordrhein-Westfalen und Rheinach-Pfalz. Der höchste Dosiswert von 6.5 mSv für Kleinkinder wurde für ein Mineralwasser aus Portugal gefunden. Das BfS forderte, dass der auf dem Etikett einiger Mineralwässer angegebene Zusatz "Geeignet für die Zubereitung von Säuglingsnahrung" auf Wässer mit niedrigen Konzentrationen natürlicher Radionuklide beschränkt werden sollte und dieser Vermerk bei Überschreitung des Dosisrichtwertes von 0.1 mSv/Jahr nicht angegeben werden sollte (BfS 2002).

Im Gegensatz zu Grund- und Quellwasser zeichnet sich Mineralwasser durch einen erhöhten und konstanten Gehalt an gelösten Mineralien aus. Aufgrund dieser Tatsache könnte angenommen werden, dass Mineralwasser auch höherer Konzentrationen an natürlichen Radionukliden im Vergleich zu Quell- oder Grundwasser aufweisen sollte. Um diese Hypothese beurteilen zu können, wurden die gleichen Untersuchungen wie bei den Quell- oder Grundwässern auf die Mineralwässer im Kanton Graubünden ausgedehnt.

7.1 Probenahme

In der gleiche Art und Weise wie bei den Trinkwasserversorgungen der Gemeinden im Kanton Graubünden wurden in einer zweiten Phase die Mineralwässer in Graubünden beprobt. Dabei wurden die Mineralwasserproben nicht wie beim Quellwasser in den Reservoirs bzw. wie beim Grundwasser in den Pumpwerken entnommen, sondern direkt bei der Mineralwasserfassung. Insgesamt wurden 42 Proben Mineralwasser erhoben und untersucht. Bei den erhobenen Mineralwässern handelt es sich zum Teil um solche, die für den Handel abgefüllt werden und im In- und Ausland vermarktet werden, andererseits wurden aber auch diejenigen Mineralwässer beprobt, die nicht abgefüllt werden oder nur einem sehr begrenzten Publikum in Heilbädern oder Trinkhallen zum Konsum angeboten werden. Bei der Probenahme, dem Transport und der anschliessenden Untersuchung im Labor wurde gleich vorgegangen wie beim Trinkwasser. Es wurden auch die gleichen Parameter mit den gleichen Methoden untersucht.

7.2 Resultate

Es wurden 42 Proben Mineralwasser untersucht. Die mittleren Aktivitäten von ^{238}U (Median bei 18 mBq/l), ^{226}Ra (34 mBq/l) und ^{228}Ra (45 mBq/l) lagen etwa in den gleichen Bereichen. Die Aktivitäten von ^{222}Rn (Median bei 5 Bq/l) lagen etwa um einen Faktor 200 höher als bei

^{238}U und ^{226}Ra . Um die Figuren trotz der grossen Anzahl Messungen übersichtlich zu halten, wurden bei tiefen Werten nicht alle Punkte eingezeichnet. Bis zu einer Summenhäufigkeit von 80% ist jeder zehnte Wert dargestellt, von 80% bis 90% jeder fünfte Wert, von 90% bis 95% jeder zweite Wert. Ab einer Summenhäufigkeit von 95% sind alle Werte eingetragen.

7.2.1 ^{238}U

Die beiden Proben mit den höchsten Werten für ^{238}U wurden in Tennigerbad (Bogn Tenigia) im Somvixertal und der Mineralquelle von Andeer (jeweils 110 mBq/l) gefunden. Bei 37 Proben (88%) lag die Aktivität unter 50 mBq/l. 3 Proben (7%) zeigten eine Aktivität zwischen 50 und 100 mBq/l. Der Median aller Proben lag bei 18 mBq/l, der Mittelwert bei 23 mBq/l.

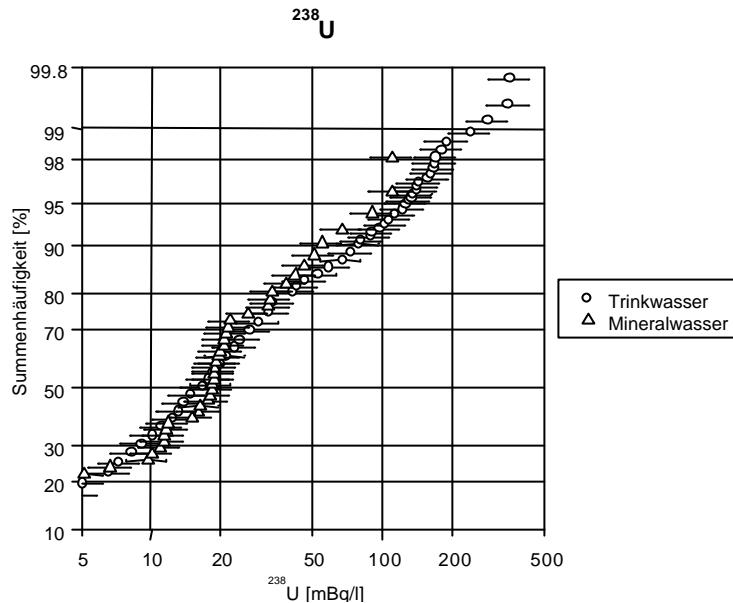


Abb. 33: Vergleich der Summenhäufigkeit der ^{238}U -Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern (359 Proben) und Mineralwässern (42 Proben). Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

7.2.2 ^{226}Ra

Bei 31 Proben (74%) lag die Aktivität von ^{226}Ra unter 50 mBq/l. Bei 11 Proben (26%) lag der Wert über 50 mBq/l. Mit einer Aktivität von 121 mBq/l wurde der höchste Wert an der Mineralquelle in Fideris Bad gefunden. Deutlich erhöhte Werte von 93 bis 97 mBq/l wurden auch an den Mineralquellen von Andeer, Bergün, Sotsass bei Scuol und Alvaneu-Bad gefunden. Der Median lag bei 34 mBq/l der Mittelwert bei 40 mBq/l.

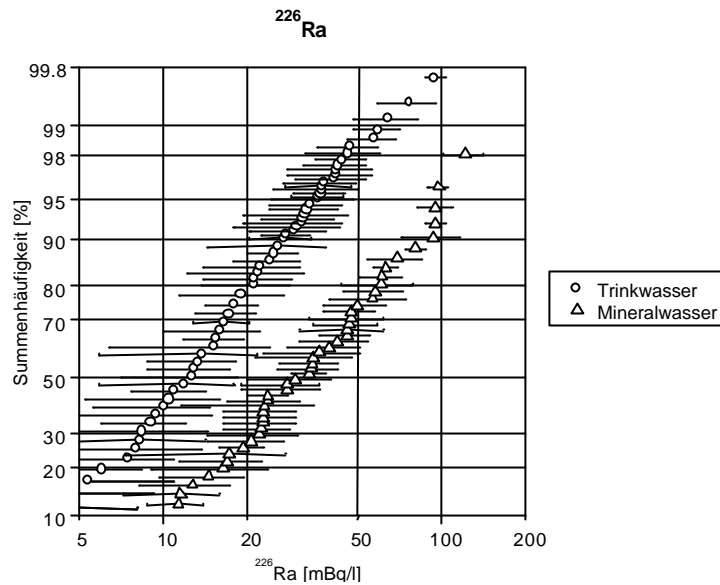


Abb. 34: Vergleich der Summenhäufigkeit der ^{226}Ra -Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern (359 Proben) und Mineralwässern (42 Proben). Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

7.2.3 ^{228}Ra

Bei 23 Proben (74%) lag die Aktivität von ^{228}Ra unter 50 mBq/l. Bei 19 Proben (26%) lag der Wert über 50 mBq/l. Mit einer Aktivität von 379 mBq/l wurde der höchste Wert an der Mineralquelle in Fideris Bad gefunden. Deutlich erhöhte Werte von 322 bzw. 293 mBq/l wurden auch an der Mineralquelle von Rhäzüns und der Konradinquelle im Val Sinistra bei Sent gefunden. Der Median lag bei 45 mBq/l der Mittelwert bei 76 mBq/l.

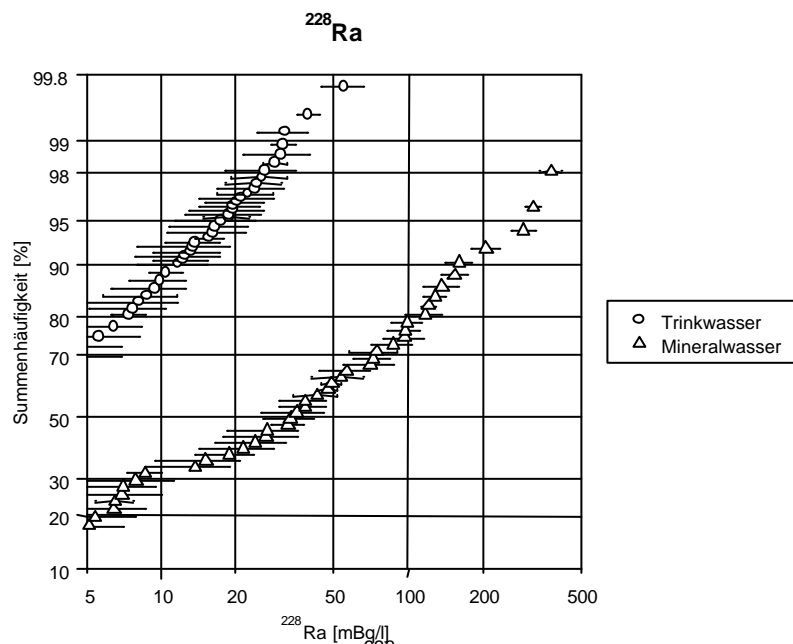


Abb. 35: Vergleich der Summenhäufigkeit der ^{228}Ra -Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern (359 Proben) und Mineralwässern (42 Proben). Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

7.2.4 ^{222}Rn

Die höchste ^{222}Rn -Aktivität wurde mit 150 Bq/l an der Mineralquelle Bergün gefunden. Bei allen anderen 41 untersuchten Mineralwasserproben (94 %) lag der Wert unter 50 Bq/l. Der Median lag bei 5 Bq/l, der Mittelwert bei 12 Bq/l.

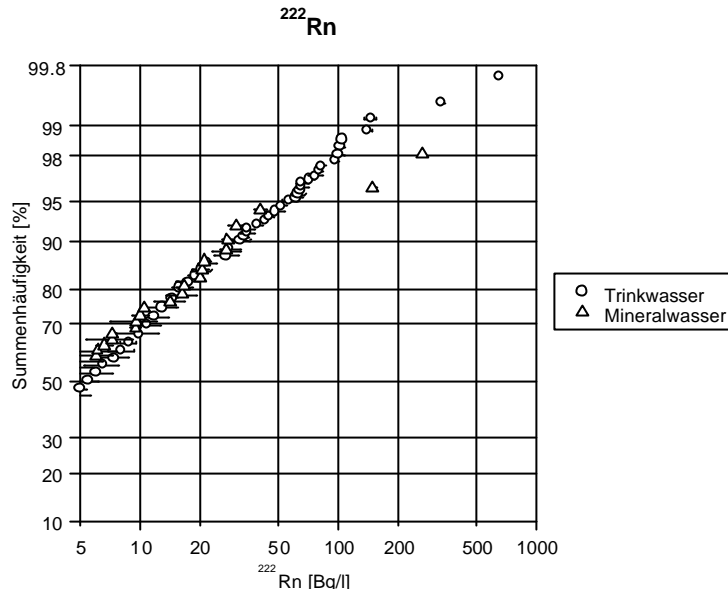


Abb. 36: Vergleich der Summenhäufigkeit der ^{222}Rn -Aktivitätskonzentrationen in Trinkwässern (359 Proben) und Mineralwässern (42 Proben). Die eingezeichneten Fehler sind ± 1 -sigma-Schranken.

7.3 Diskussion

Die EU-Trinkwasser-Richtlinie 98/83/EC vom 3.11.1998 legt fest, dass die Dosisbelastung durch den Konsum von Trinkwasser 0.1 mSv/a nicht überschreiten soll. Obwohl Art. 3a natürliche Mineralwässer ausdrücklich von dieser Richtlinie ausschliesst, hat Deutschland bei der Umsetzung in nationales Recht 0.1 mSv/a als Limite für natürliche Mineralwässer festgelegt. Im Gegensatz zur schweizerischen Gesetzgebung werden dabei zur Dosisberechnung altersabhängige Dosisfaktoren benützt. Es wird auch angenommen, dass der gesamte Trinkwasserbedarf durch Mineralwasser gedeckt wird. Eine breit angelegte Untersuchung des Deutschen Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) hat gezeigt, dass unter diesen Annahmen der Konsum zahlreicher in Deutschland verkaufter Mineralwässer in einzelnen Altersgruppen zu Dosen > 0.1 mSv/a führt. Wesentlich dafür verantwortlich ist der Gehalt an ^{226}Ra und insbesondere ^{228}Ra . Die gewählten Dosisfaktoren sind für das ^{228}Ra bis zu einem Faktor 6 höher als für das ^{226}Ra . Bei Mineralwasser für die Zubereitung von Säuglingsnahrung, bei Säuglingen die nie gestillt werden, führt das zu Limiten von 120 mBq/l für das ^{226}Ra und zu 20 mBq/l für das ^{228}Ra .

In Schweizer Mineralwässern werden die 120 mBq/l für das ^{226}Ra in einem Fall gerade erreicht. Etwa 60% der untersuchten Mineralwässer weisen jedoch Werte über 20 mBq/l für das ^{228}Ra auf. Die wenigen bisher vorhandenen ^{228}Ra Bestimmungen haben sogar Aktivitätskonzentrationen bis 379 mBq/l gezeigt. Das ist zwar bei weitem keine Überschreitung der gegenwärtigen gültigen schweizerischen Limiten, aber diese Mineralwässer sind problematisch für den Export. Ausserdem ist zu erwarten, dass eines Tages auch die Schweizer Konsumenten die Einhaltung der strengeren deutschen Limiten verlangen werden.

7.3.1 Vergleich des natürlichen Radionuklidgehaltes zwischen Mineralwasser und Trinkwasser

Unter Mineralwasser ist generell ein Grundwasser zu verstehen, das sich durch eine besondere chemische Beschaffenheit (erhöhte Mineralisation) und oft auch durch eine lange unterirdische Verweilzeit auszeichnet (Schmassmann 1980). Die Mineralisation des Grundwassers (Mineralwassers) ist das Resultat der Prozesse, welche im Untergrund entlang dem Fließpfad des Wassers ablaufen wie Lösung von Salzen, Karbonatlösung, Ionenaustausch, Hydrolyse und Oxidations- und Reduktionsvorgänge (Matthess 1994). Massgebend sind dabei die Temperatur, der Druck, der pH sowie das Redoxpotential. Die Mineralisation wird im Wesentlichen geprägt durch die zur Verfügung stehenden Mineralien, bzw. durch deren Löslichkeit, sowie durch die Zeit der Einwirkung, was der Verweildauer entspricht (Matthess 1994). Beim Durchfließen des Wirtsgesteines, welches erhöhte Gehalte an natürlichen Radionukliden aufweist, könnte theoretisch davon ausgegangen werden, dass auch erhöhte Konzentrationen dieser Radionuklide und deren Folgeprodukte bei stärker mineralisierten Wässern anzutreffen sind. Aus dieser Überlegung heraus ist es interessant, die Werte der ermittelten, natürlichen Radionuklide für ^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra und ^{222}Rn mit der Stärke der Mineralisation der untersuchten Quell-, Grund- und Mineralwässer zu vergleichen. Als Mass für den Ionengehalt eines Wassers wurde die elektrische Leitfähigkeit in Mikrosimens pro Zentimeter ($\mu\text{S}/\text{cm}$) herbeigezogen, was in der Grössenordnung der Gesamtmineralisation in Milligramm pro Liter (mg/l) entspricht. Weder beim ^{238}U noch beim ^{222}Rn scheint eine Korrelation zwischen der elektrischen Leitfähigkeit und der Aktivitätskonzentration zu bestehen. Insbesondere trifft es nicht zu, dass eine höhere Mineralisation des Wassers mit einer höheren Konzentration von ^{238}U oder ^{222}Rn einhergeht. Dies war auch kaum zu erwarten, da das Uran in Wässern nicht als Kation vorliegt sondern als Komplex in anionischer Form und somit kein Kationenaustausch stattfinden kann.

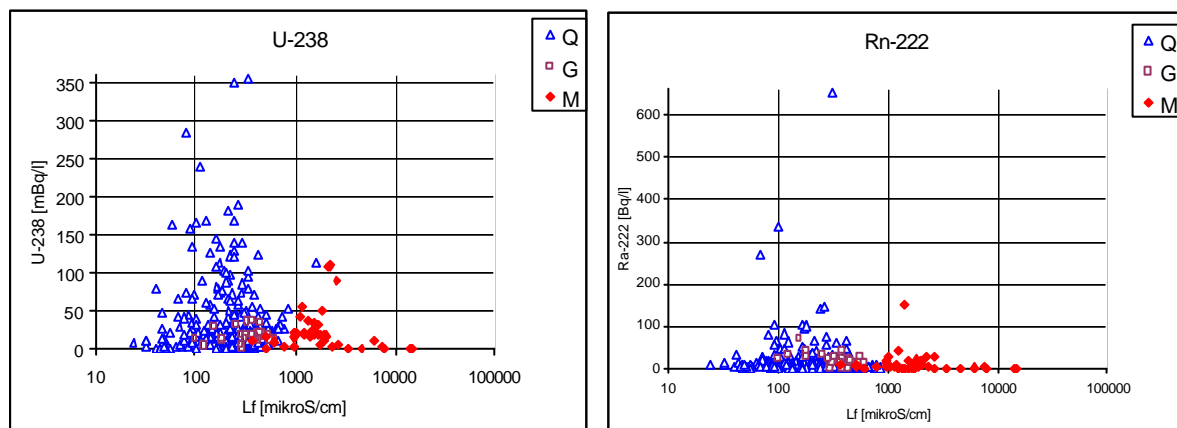


Abb. 37: Vergleich der Gehalte an ^{238}U (links) und ^{222}Rn (rechts) in Quell- (Q), Grund (G)- und Mineralwässern (M) mit der elektrischen Leitfähigkeit (logarithmisch). Um die Figuren übersichtlicher zu halten, wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Im Gegensatz zum ^{238}U und ^{222}Rn scheint jedoch eine Korrelation zwischen der Leitfähigkeit bzw. zwischen dem Mineralisationsgehalt und dem ^{226}Ra - sowie dem ^{228}Ra -Gehalt zu bestehen. Die stärker mineralisierten Wässer weisen tendenziell auch einen höheren Gehalt an ^{226}Ra und ^{228}Ra auf. Diese Feststellung ist auch aus der Abbildung der Summenhäufigkeit der ^{228}Ra - und ^{226}Ra -Aktivitätskonzentrationen ersichtlich. Der Grund für diese höheren Radium-Gehalte ist am ehesten auf die reduzierenden Bedingungen, die in Mineralwässern grundsätzlich vorherrschen, zurückzuführen. Da Mineralwässer in der Regel aus tieferen Schichten und Gesteinsformationen stammen und im Gegensatz zu oberflächennahem Grundwasser kaum mit Sauerstoff in Kontakt kommen, bleibt vorhandenes Eisen im Wasser gelöst und oxidiert nicht zu Eisenhydroxid. Somit adsorbiert das Radium nicht an den Eisenhydroxid-Ausscheidungen und kann gelöst in höheren Konzentrationen im

Mineralwasser gefunden werden. Diese Annahme wird durch die Tatsache erhärtet, dass die Mineralwässer keine höheren ^{222}Rn - und ^{238}U -Gehalten als die Trinkwässern aufweisen. Sowohl die Löslichkeit des Urans ist unter reduzierenden Bedingungen nämlich schlechter, wie auch die Bildung von Eisenhydroxid-Ausscheidungen und damit einhergehend mit höheren ^{222}Rn -Konzentrationen.

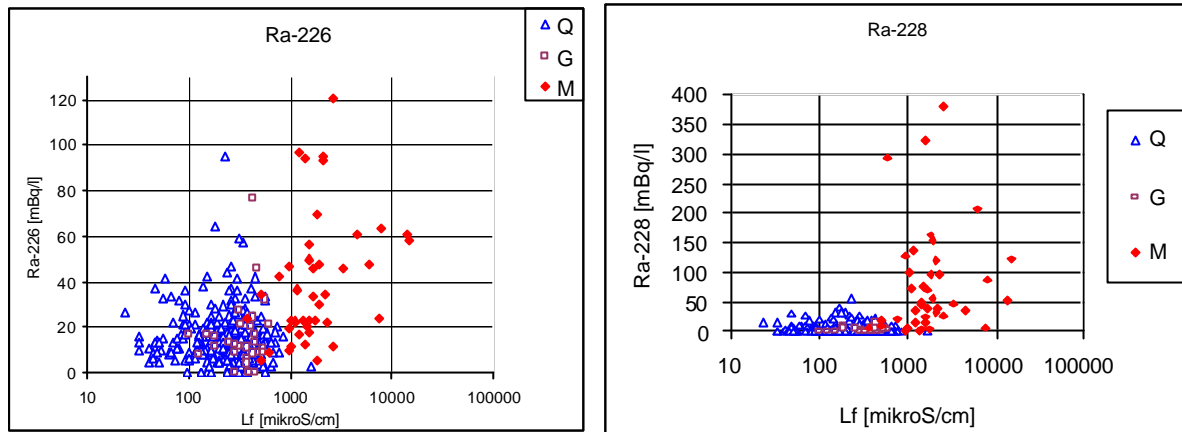


Abb. 38: Vergleich der Gehalte an ^{226}Ra (links) und ^{228}Ra (rechts) in Quell- (Q), Grund- (G) und Mineralwässern (M) mit der elektr. Leitfähigkeit (logarithmisch). Um die Figuren übersichtlicher zu halten, wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

7.3.2 Zusammenhänge zwischen natürlichen Radionukliden in Mineralwässern und anderen chemischen Parametern

Wie bereits im Kapitel "Geochemie" ausführlich beschrieben, ist der Gehalt an natürlichen Radionukliden viel enger mit der chemischen Zusammensetzung des Wassers verbunden, als mit den auf dem Fließpfad durchflossenen Gesteinsformationen. So ist für den Übertritt von Radium aus dem Gestein in das Wasser eine Kombination zwischen α -Rückstoß und Desorption als Kationenaustauschprozess massgebend (Feige & Wiegand 1998). Als Austauschpartner dienen häufig Barium und Strontium, aber auch andere zwei- und einwertige Kationen wie Natrium, Kalium, Magnesium und Calcium. In der Regel sollte ein hoher Radiumgehalt in Wässern auch mit einem erhöhten Arsengehalt einhergehen, sofern Arsen im Einzugsgebiet vorhanden ist, da sowohl Radium wie auch Arsen an gleichen Orten (Eisenhydroxidausscheidungen) adsorbieren. Aus diesem Grund sollten Wässer mit niedrigen Radiumgehalten auch kleine Arsenkonzentrationen aufweisen. Arsen kann aber besser desorbieren, da es bei einem Anstieg des pH-Wertes im Gegensatz zum Radium wieder löslich ist. Für Uran stellen silikatreiche Magmatite die wichtigsten primären Quellen dar. Uran kann aber auch das Calcium im Apatitgitter ersetzen. Das Uran liegt vor allem im mobilisierbaren Uranyl vor und bildet Komplexe mit Anionen wie Karbonaten, Phosphaten oder Sulfaten (Langmuir 1978). Als Ergänzung zum Vergleich von ^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra und ^{222}Rn mit der elektrischen Leitfähigkeit, wurden in einem weiteren Schritt die Konzentrationen dieser natürlichen Radionuklide mit den Gehalten der wichtigsten Kationen (Alkali-, Erdalkalimetalle, Silizium und Arsen) der untersuchten Mineralwässer verglichen.

Aus den Abbildungen ist unschwer zu erkennen, dass weder beim ^{226}Ra noch beim ^{228}Ra ein Zusammenhang mit den andern Kationen besteht. Die oben dargestellte Aussage, dass Wässer mit niedrigen Radiumgehalten auch kleine Arsenkonzentrationen aufweisen ist jedoch zutreffend. Die Werte für die übrigen Elemente scheinen dagegen eher zufällig verteilt zu sein. Beim ^{238}U und beim ^{222}Rn sind gegenüber den einwertigen Erdalkalimetallen Kalium, Lithium und Natrium hingegen klare Divergenzen festzustellen. Während Mineralwässer mit hohen Gehalten an K, Na oder Li praktisch kein ^{222}Rn oder ^{238}U enthalten, sind in den Mineralwässern mit höheren Konzentrationen an ^{222}Rn oder ^{238}U kein K, Na oder Li zu finden. Während die Mineralwässer mit den hohen K, Na- und Li-Gehalten alle aus dem Unterengadin (Scuol, Tarasp, Sent) stammen, sind die Mineralwässer mit hohen ^{222}Rn -

Gehalten in Bergün, Alvaneu, Sumvitg, Andeer, San Bernardino und diejenigen mit hohem ^{238}U -Gehalten in Sumvitg, Andeer, San Bernardino, Maladers und Churwalden zu finden. Hier scheint eine Beziehung zwischen den geologischen Verhältnissen und der Zusammensetzung dieser Mineralwässer zu bestehen.

Dass keine weiteren Zusammenhänge zwischen den natürlichen Radionukliden und den Kationen in Mineralwässern in Graubünden zu finden sind, ist jedoch nicht weiter erstaunlich. Bei den Mineralwässern handelt es sich um sehr spezielle Grundwässer, die sich aufgrund ihres unterirdischen Fließpfades und den unterschiedlichen Verweilzeit in den verschiedensten Gesteinsformationen gegenüber normalen Grundwässern hervorheben. Somit ist ein Vergleich dieser Mineralwässer in einem derart komplexen geologischen Gebiet wie es in Graubünden vorliegt auch nur sehr schwer möglich.

Um die folgenden, grafischen Darstellungen möglichst übersichtlich zu halten und um die Korrelationen zwischen den natürlichen Radionukliden und den einzelnen Elementen besser miteinander vergleichen zu können, wurden die Werte in den Abbildungen nur relativ, ohne eine absolute Skalierung der Ordinate und der Abszisse dargestellt. Zudem wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet. Bei den Balkendiagrammen ist die Häufigkeitsverteilung (y-Achse) gegen die Konzentration (x-Achse) des entsprechenden Elements aufgetragen. Bei den Punktdiagrammen wird die Konzentration des Elements des obersten Balkendiagramms (x-Achse) gegen die Konzentration des jeweiligen Elements des links davon liegenden Balkendiagramms (y-Achse) abgebildet.

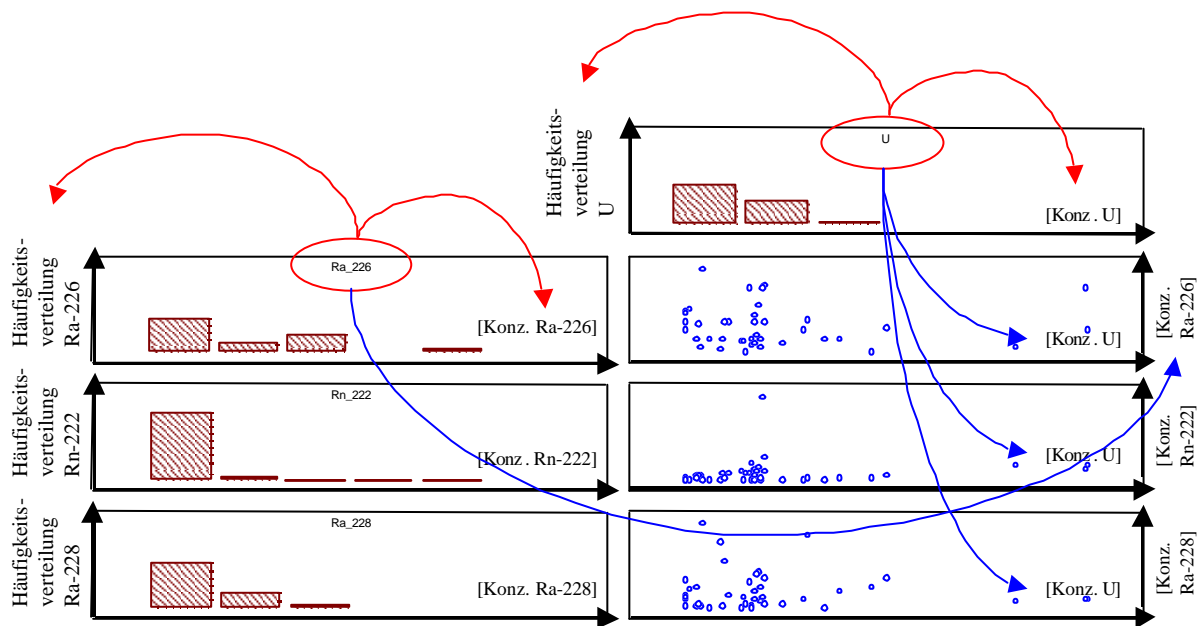


Abb. 39: Erklärung zur Darstellung der folgenden Diagramme

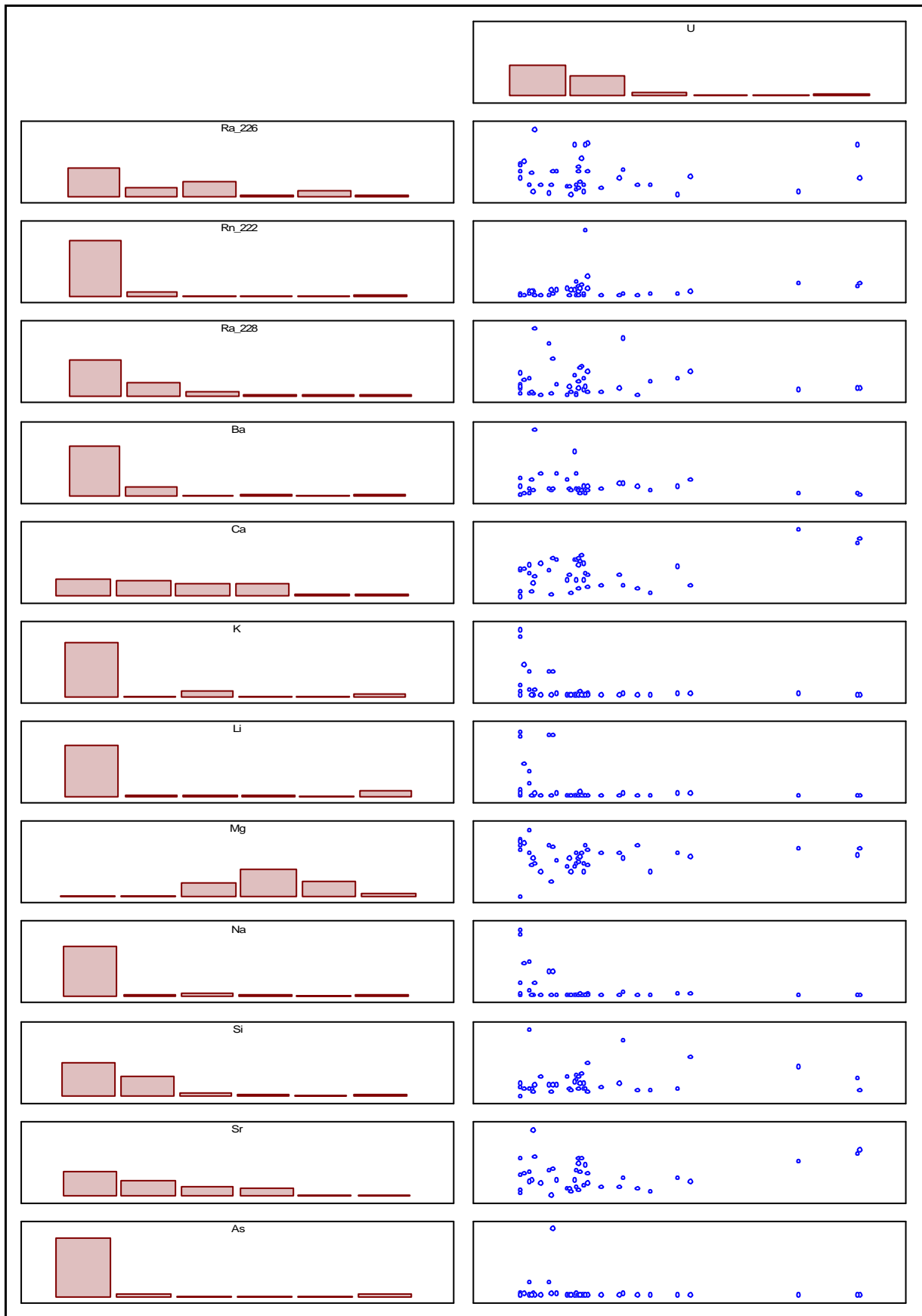


Abb. 40: Relativer Vergleich der Gehalte an Uran mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern. Die Messunsicherheit liegt bei etwa 15%.

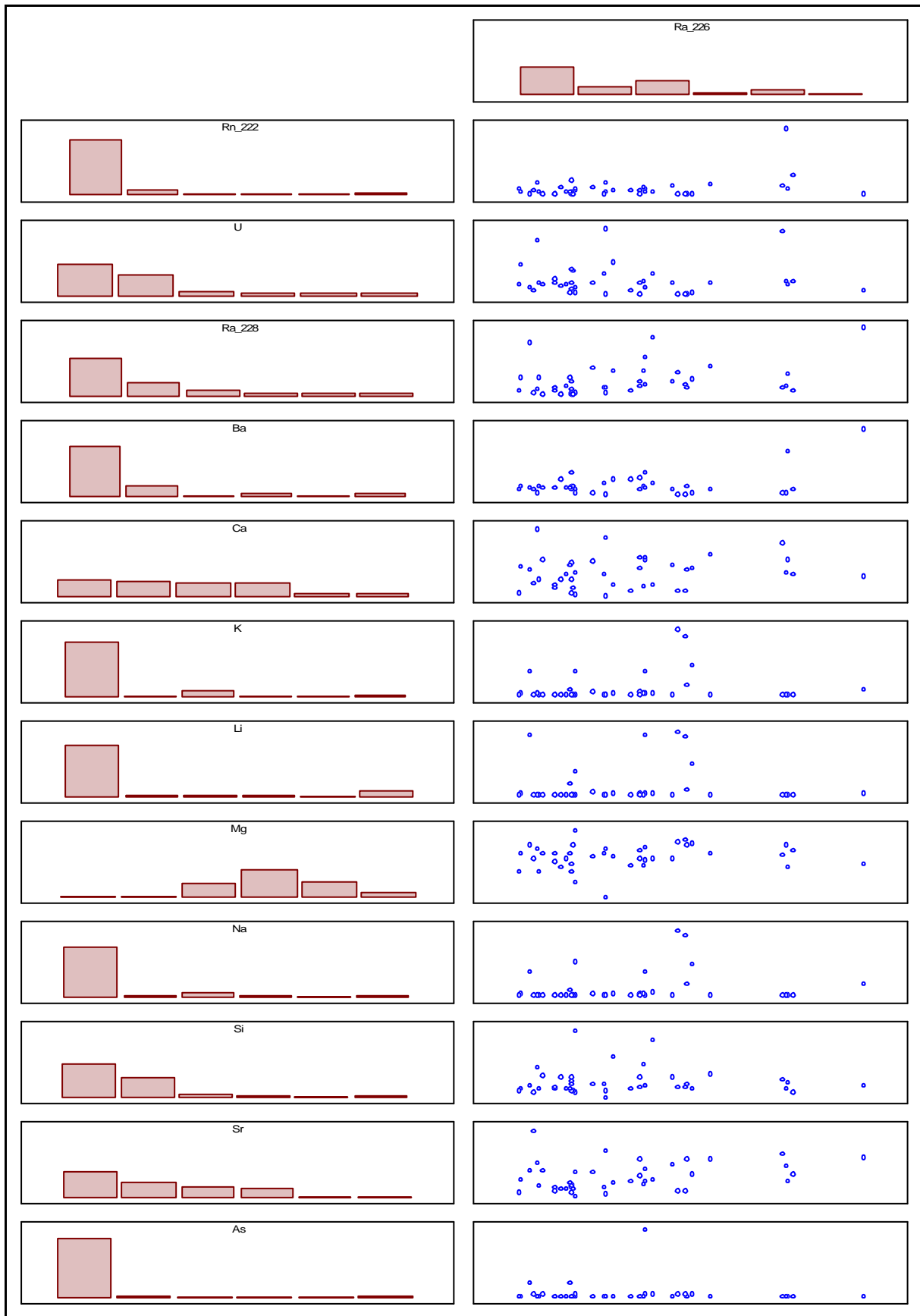


Abb. 41: Relativer Vergleich der Gehalte an ^{226}Ra mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern. Die Messunsicherheit liegt bei etwa 15%.

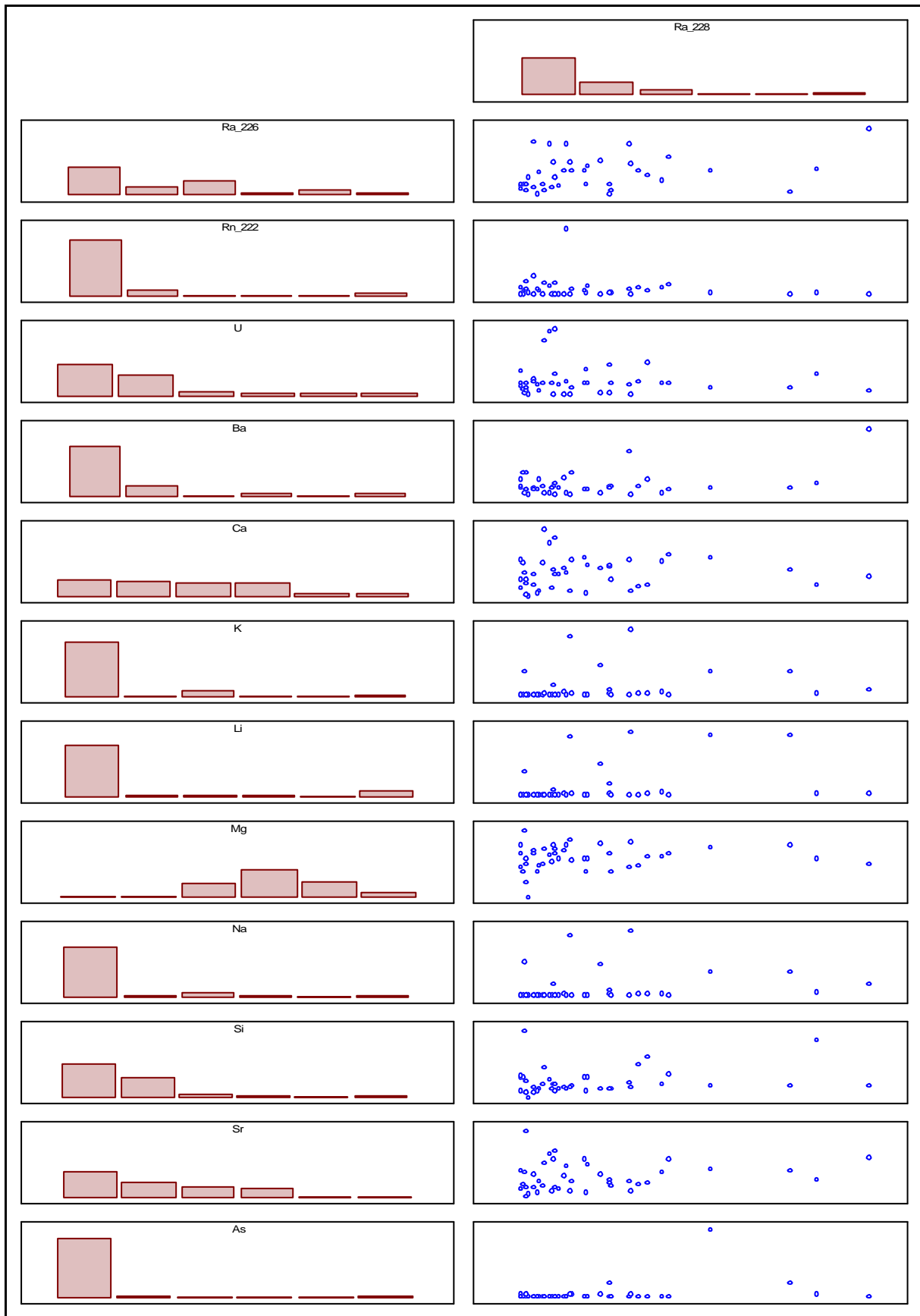


Abb. 42: Relativer Vergleich der Gehalte an ^{228}Ra mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern. Die Messunsicherheit liegt bei etwa 15%.

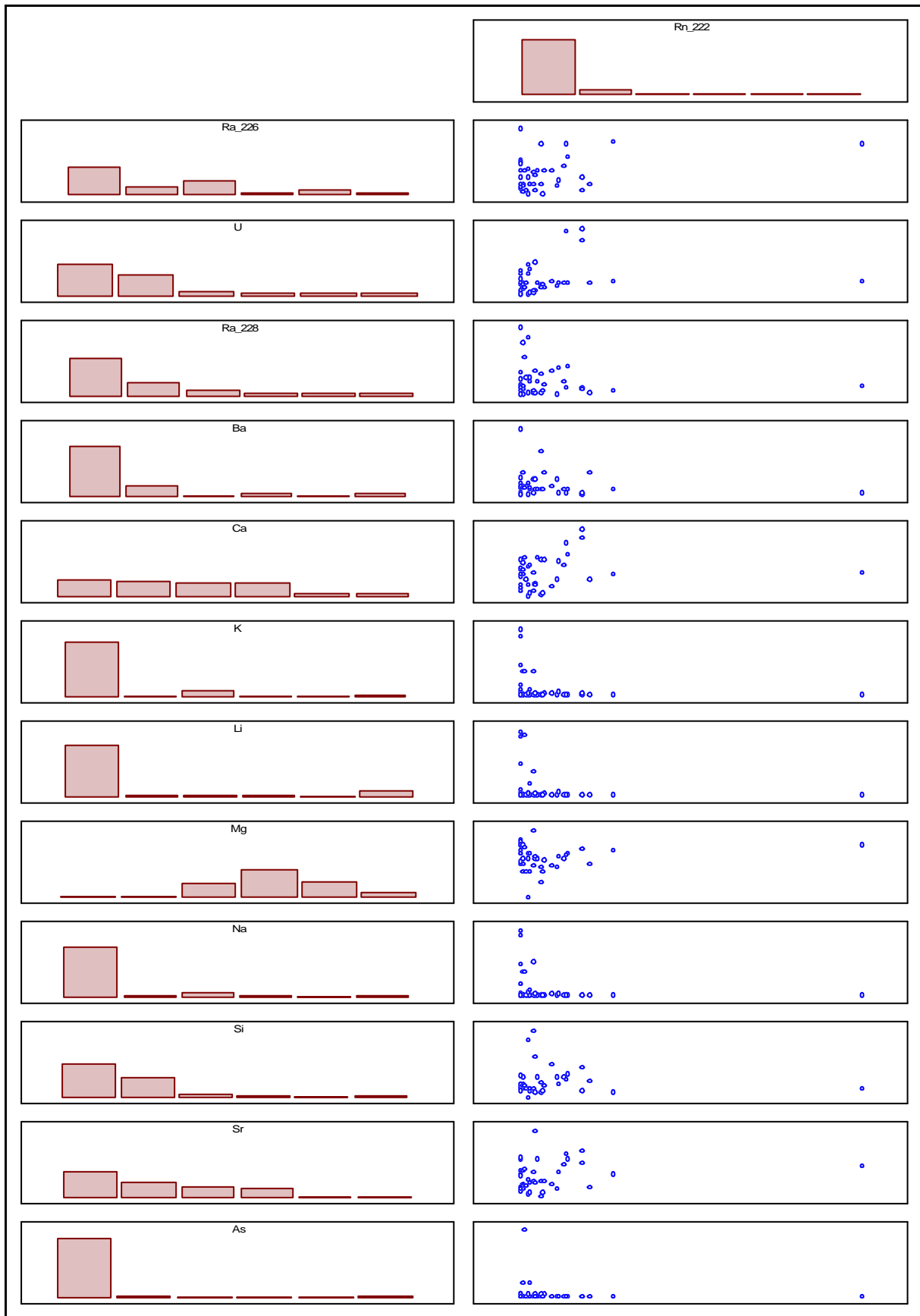


Abb. 43: Relativer Vergleich der Gehalte an ²²²Rn mit den wichtigsten Kationen in Mineralwässern. Die Messunsicherheit liegt bei etwa 15%.

8 Zusammenhänge zwischen Radon in Wohnräumen und natürlichen Radionukliden im Trinkwasser

8.1 Geschichtlich-medizinischer Exkurs

Anfang des 16. Jahrhunderts bürgerte sich im sächsisch-böhmischen Erzbergbau für chronische Lungenkrankheiten der Bergleute die Bezeichnung "Bergsucht" ein. In der ersten Hälfte des 19. Jahrhunderts stellte man fest, dass die Bergsucht im Bergbau-Revier "Schneeberg" einen besonders eigentümlichen Krankheitsverlauf hatte. Deshalb erhielt diese Krankheit den Namen "Schneeberger Lungenkrankheit". 1879 wurde die "Schneeberger Lungenkrankheit" erstmals als Lungenkrebs diagnostiziert. Die Ursache dieser Erkrankung blieb aber unbekannt. Um 1900 entdeckte man das Element Radon, das Prinzip der radioaktiven Strahlung sowie das Potential dieser Strahlung, Krebs auszulösen. Erst vor etwa vierzig Jahren fand man die wirkliche Ursache der "Schneeberger Lungenkrankheit". Man entdeckte, dass die eingeatmeten Radon-Zerfallsprodukte die Lungen so stark mit radioaktiver Strahlung belasten können, dass Lungenkrebs entsteht. Zwischen der Bestrahlung des Lungengewebes durch Radon-Zerfallsprodukte und dem Auftreten von Lungenkrebs können Jahrzehnte vergehen. Lungenkrebs als Folge von Radon kann nicht von Lungenkrebs unterschieden werden, welcher durch andere Faktoren wie Rauchen ausgelöst wurde (BAG 1996).

8.2 Gebietseinteilung

Radongas wandert aus dem Erdinnern durch Fels und Lockergestein zur Erdoberfläche. Je durchlässiger der Untergrund ist, desto leichter kann Radongas bis zur Erdoberfläche aufsteigen. Im Freien wird das Gas mit der Luft vermischt und stark verdünnt, Häuser stehen mit ihrem Fundament aber direkt in Kontakt mit radonreicher Bodenluft. Ob das Radongas ins Haus eindringen kann, hängt in erster Linie davon ab, wie abgedichtet das Haus im Kontakt zum Untergrund ist. Undichte Stellen in der Gebäudehülle sind Risse und Fugen in Böden und Wänden sowie Natur-Kellerböden aus Erde, Kies oder Stein. Warme Luft, die im Haus aufsteigt, bewirkt im Keller und den untersten Stockwerken einen kaum spürbaren Unterdruck. Dadurch entsteht eine Sogwirkung (Kamin-Effekt), so dass radonreiche Bodenluft noch stärker ins Gebäude gelangt (BAG 1996).

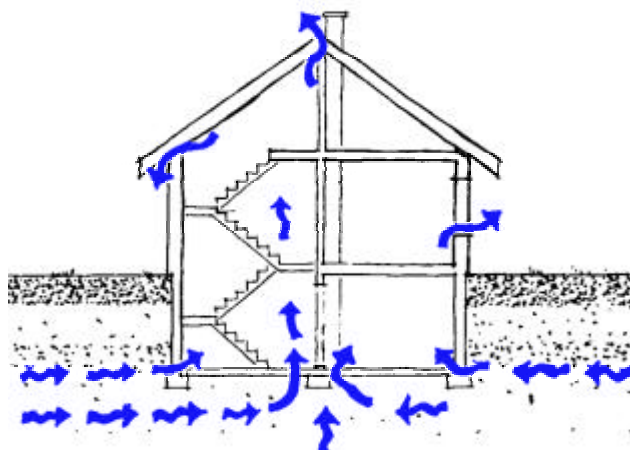


Abb. 44: Eindringen von radonreicher Bodenluft in Gebäude (BAG 1996)

Mit der Einführung der neuen Strahlenschutzverordnung (StSV 1994) haben die Kantone konkrete Aufgaben im Zusammenhang mit der Luftbelastung von Radon in Wohnräumen erhalten. In Graubünden wurde 1994 das Kantonale Labor und Lebensmittelkontrolle (KLLGR) für den Vollzug und die Umsetzung der Radonproblematik in Wohnräumen

beauftragt. Insbesondere hat das KLLGR den Auftrag erhalten, für genügende Messungen in Wohnräumen und in öffentlichen Gebäuden zu sorgen, die Gebiete mit erhöhten Radongaskonzentrationen zu bestimmen, Sanierungsmassnahmen bei Grenzwertüberschreitungen festzulegen und die notwendigen Massnahmen zu treffen, damit Neu- und Umbauten so erstellt werden, dass der Grenzwert nicht überschritten wird.

Das BAG, Fachstelle Radon empfiehlt, dass 20 Gebäude pro Gemeinde erfasst werden sollen, um eine Einschätzung des Radonrisikos vornehmen zu können. Um den kleinen Gemeinden Rechnung zu tragen, wird die Erfassung als genügend betrachtet, wenn die Anzahl gemessener Häuser gleich oder grösser der Quadratwurzel aller Wohngebäude entspricht. In Anlehnung an die Empfehlung des BAG, wurde in Graubünden folgendes Vorgehen zur Beurteilung und Einteilung des Kantons in Radongebiete gewählt:

- In Gemeinden mit mehr als 50 ständig bewohnten Häusern werden in mindestens 20 privaten Wohngebäuden sowie in allen kommunalen und kantonalen Gebäuden Radonmessungen durchgeführt.
- In Gemeinden mit weniger als 50 ständig bewohnten Häusern beschränken sich die Messungen auf mindestens 10 private Wohngebäude sowie die kommunalen und kantonalen Gebäude.

In der Praxis ist es sinnvoll, die politischen Gemeinden als Gebiete im Sinne der StSV zu betrachten. Liegen in einer Gemeinde genügend Messungen vor, kann mit dem arithmetischen Mittel folgende Einteilung vorgenommen werden:

Arithmetisches Mittel [Bq/m ³]		Einteilung
Wohnräume < 100	Keller < 500	"Kein Radongebiet"
Wohnräume > 200	Keller > 1000	"Radongebiet"

Wenn nicht entschieden werden kann, ob es sich bei einer Gemeinde um ein Radongebiet handelt oder nicht, können für die Gebietseinteilung die einzelnen, gemessenen Grenz- und Richtwertüberschreitungen sowie lokale geologische Gegebenheiten einbezogen werden.

8.3 Messungen und Massnahmen

Die Messungen zur Gebietseinteilung werden mit integrierenden, passiven Dosimetern in der Regel in den Wintermonaten durchgeführt. Die Dosimeter werden drei Monate exponiert. Pro Haus wird ein Dosimeter im tiefsten bewohnten Raum und ein zweites im Keller aufgestellt. Es werden nur Dosimeter verwendet, die durch das BAG geprüft und freigegeben worden sind.

Für Radonkonzentrationen in Wohn- und Aufenthaltsräumen gilt ein über ein Jahr gemittelter Grenzwert von 1000 Becquerel pro Kubikmeter (Bq/m³) und ein Richtwert von 400 Bq/m³ (StSV 1994). Für Radongaskonzentrationen im Arbeitsbereich gilt ein über die monatliche Arbeitszeit gemittelter Grenzwert von 3000 Bq/m³.

Ist der Richtwert nicht überschritten, wird den Hausbesitzern mitgeteilt, dass keine Massnahmen erforderlich sind. Ist der Richtwert aber nicht der Grenzwert überschritten wird den Hausbesitzern mitgeteilt, dass bei einem Umbau oder einer Sanierung, Massnahmen zur Senkung der Radongaskonzentration angezeigt sind. Ist der Grenzwert überschritten, werden im folgenden Winter nochmals Messungen durchgeführt, die mehrere Räume im Haus mit einbeziehen. Wird die Grenzwertüberschreitung bestätigt, wird der Besitzer aufgefordert, Massnahmen zur Senkung der Radongaskonzentration zu treffen.

Den Gemeinden, die als Radongebiet eingestuft wurden, wird mitgeteilt, dass sie bei Baugesuchen von Neu- und Umbauten, den Bauherrn auf diesen Sachverhalt aufmerksam machen müssen.

Bei Grenzwertüberschreitungen in Wohn- und Aufenthaltsräumen bietet das KLLGR zusammen mit Fachleuten der Fachstelle Radon des BAG eine Beratung an und zeigt

Sanierungsmassnahmen auf. Die Kosten der Sanierungsmassnahmen gehen zu Lasten der Eigentümer.

8.4 Vergleich der Radionuklidgehalte in Quell- und Grundwässern mit den Radonkonzentrationen in der Luft von Wohnräumen

Bis heute ist es nicht möglich, die Radongas-Konzentration in einem bestehenden Gebäude aufgrund der Bauweise und des geologischen Untergrundes abzuschätzen. Es ist auch nicht möglich, für das Auffinden von Häusern mit hoher Radongas-Konzentration ein allgemein gültiges Konzept anzugeben. Nur eine individuelle Messung kann sichere Angaben liefern, denn kein Haus ist gleich gebaut wie das andere, kein Haus ist so radondurchlässig wie das andere und kein Haus steht auf dem gleichen Untergrund wie das andere. Im Rahmen dieser Arbeit soll untersucht werden, ob in gleichen Gebieten die Radonkonzentrationen in Quell- und Grundwässern mit den Radonkonzentrationen in der Luft von Wohnräumen korrelieren und Radonmessungen in Quell- und Grundwässern als Screeningmethode zur Gebietseinteilung von Radongebieten in der Luft von Wohnräumen angewendet werden können, um dadurch die kosten- und zeitintensiven Luftmessungen zu ersetzen.

In den folgenden Karten wurden jeweils die Maximalwerte der untersuchten Konzentrationen von ^{222}Rn , ^{238}U , ^{226}Ra und ^{228}Ra in Quell- und Grundwässern pro Gemeinde aufgetragen und mit der Gebietseinteilung der Radonwerte in Wohnräumen verglichen.

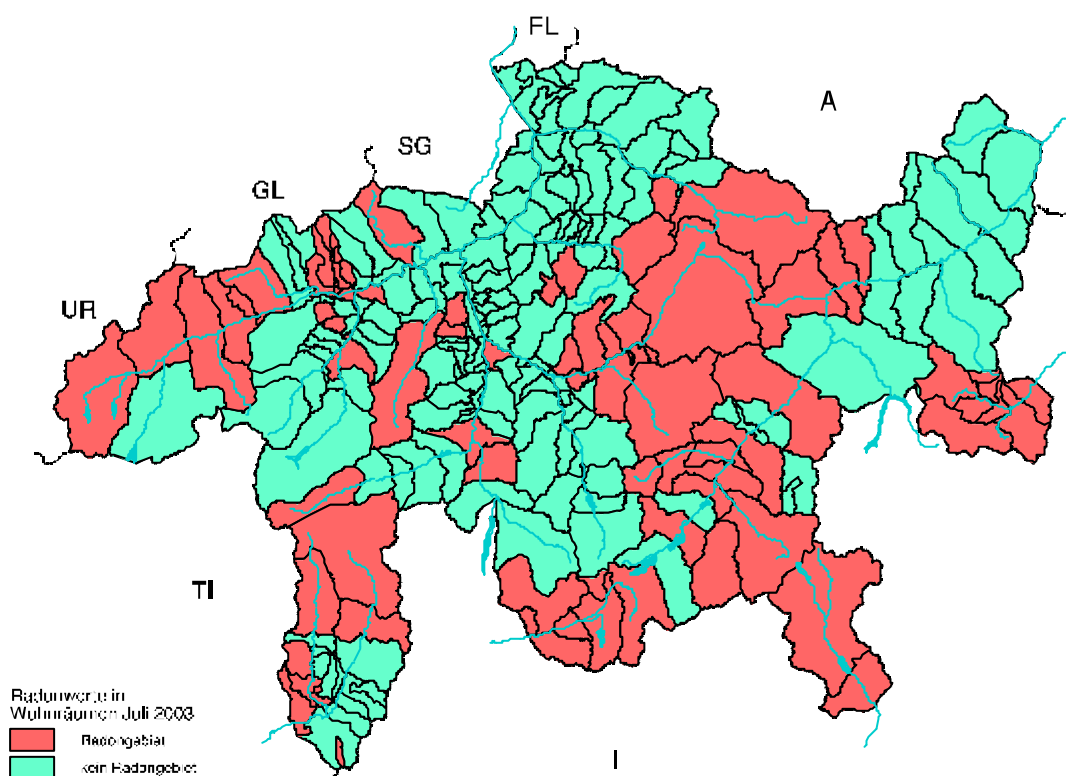


Abb. 45: Radon in Raumluft von Wohnräumen. Gemeindegarte Kanton Graubünden (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

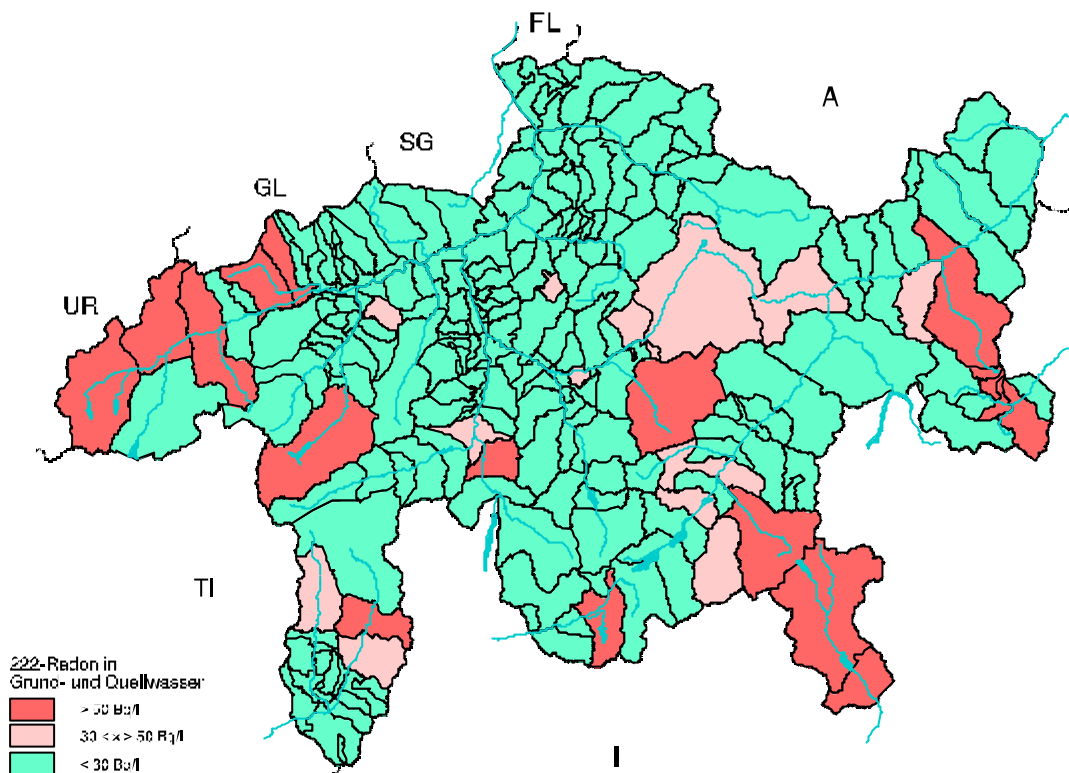


Abb. 46: ^{222}Rn in Grund- und Quellwasser. Gemeindekarte Kanton Graubünden (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

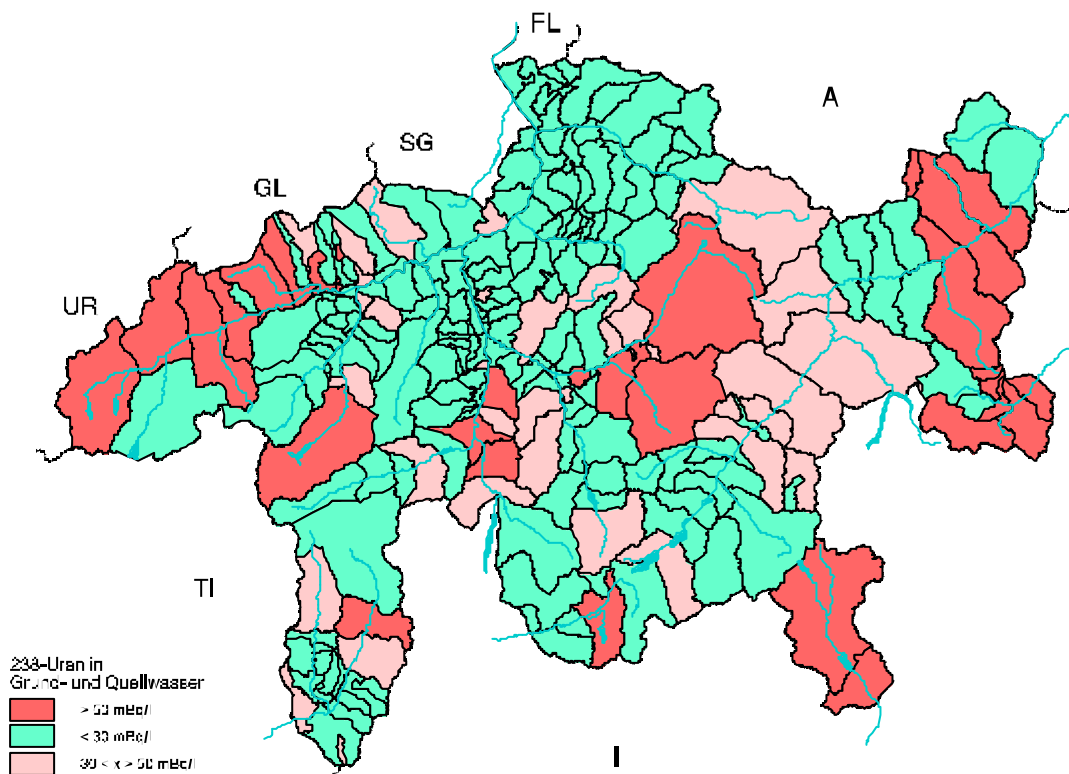


Abb. 47: ^{238}U in Grund- und Quellwasser. Gemeindekarte Kanton Graubünden (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden.)

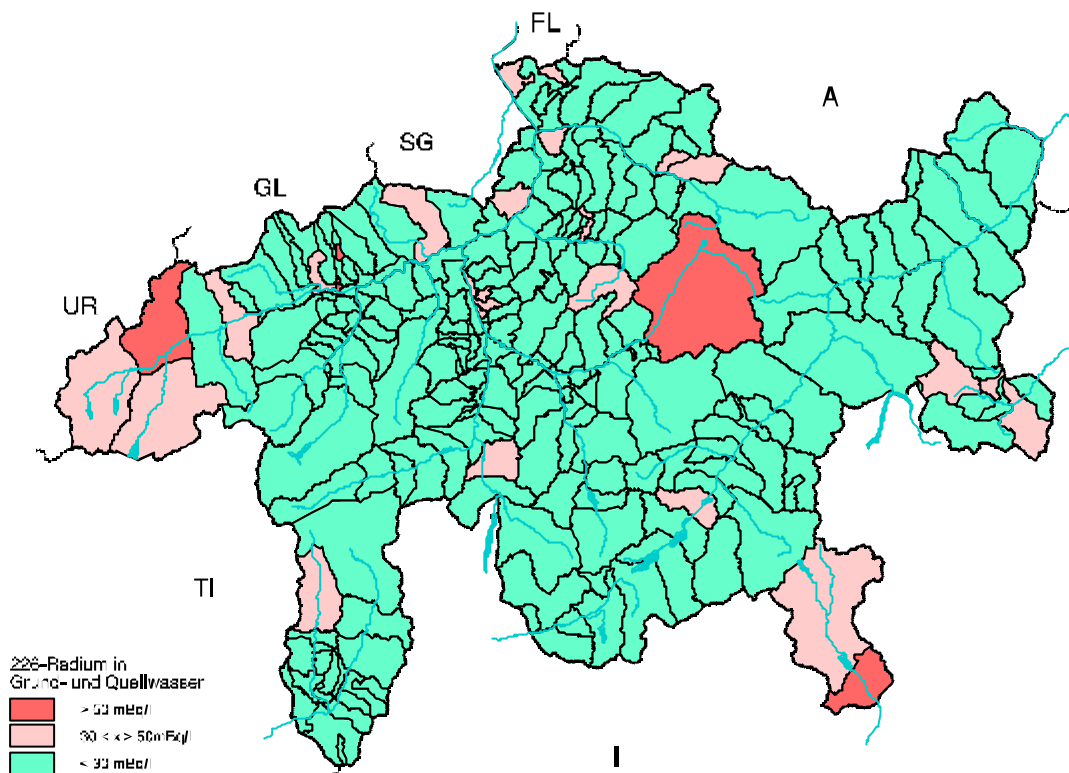


Abb. 48: ^{226}Ra in Grund- und Quellwasser. Gemeindekarte Kanton Graubünden (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden.)

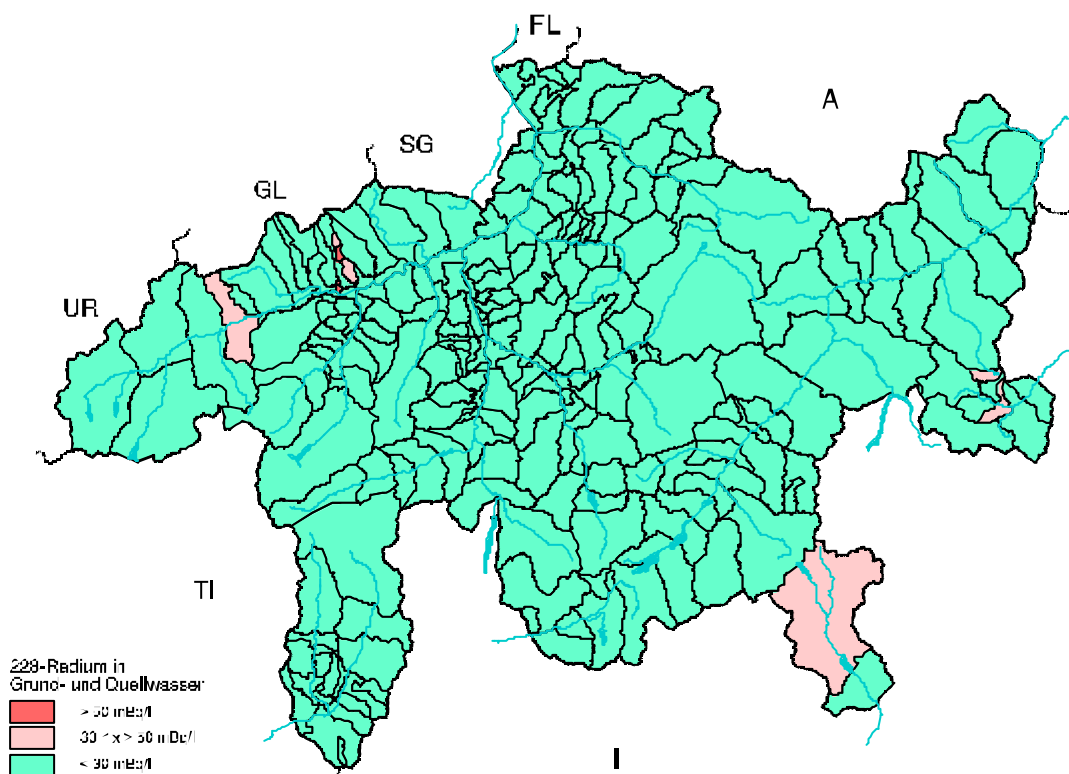


Abb. 49: ^{228}Ra in Grund- und Quellwasser. Gemeindekarte Kanton Graubünden (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden.)

Aus den geographischen Karten ist unschwer zu erkennen, dass vor allem die Gemeinden, in denen erhöhte Konzentrationen von ^{222}Rn ($> 30 \text{ Bq/l}$) und noch stärker bei denen erhöhte Konzentrationen von ^{238}U ($> 30 \text{ mBq/l}$) in Grund- und Quellwässern gemessen wurden, recht genau mit den Gemeinden übereinstimmen, welche auf Grund der Radon-Luftmessungen in Wohnräumen als Radongebiete eingeteilt wurden. Hingegen zeigen weder die ermittelten Werte von ^{226}Ra und wie zu erwarten war, noch weniger diejenigen von ^{228}Ra , das aus der ^{232}Th Zerfallsreihe stammt, Übereinstimmungen mit dieser Gebietseinteilung. Ob Messungen der Radionuklidkonzentrationen in Quell- und Grundwässern für eine Gebietseinteilung von Radongebieten herangezogen oder zumindest als Screeningmethode angewendet werden können, soll anhand von statistischen Testverfahren näher betrachtet werden. Bei nicht-parametrischen Tests wird das Ergebnis nicht quantitativ, sondern aufgrund von ja/Neinentscheiden oder der Gruppenzugehörigkeit ("Radongebiet" bzw. "Kein Radongebiet") bewertet. Diese Tests haben den Vorteil, dass sie robuster und daher nicht an normalverteilte Messwerte gebunden sind.

8.5 Prinzip der Vierfeldertafel

Für den Methodenvergleich von qualitativen Methoden bieten sich zur statistischen Auswertung der Vierfeldertest (z.B.: χ^2 -Test nach McNemar) oder die Bestimmung des Konkordanzindex Kappa an (Sachs 1997). Der Konkordanzindex Kappa zeigt das Mass der Übereinstimmung zweier Prüfverfahren bezüglich eines Analyseparameters an. In diesem Fall entspricht der Analyseparameter der Einteilung einer Gemeinde in "Radongebiet" oder "Kein Radongebiet".

Vierfeldertafel

		Methode B		
		Positiv	Negativ	Summe
Methode A	Positiv	a	c	a + c
	Negativ	b	d	b + d
	Summe	a + b	c + d	a + b + c + d

$$m = a + b + c + d$$

b = falsch positive Proben

c = falsch negative Proben

Testgrößen:

$$\text{Aussagewert der positiven Proben} = \frac{a}{a+b}$$

$$\text{Aussagewert der negativen Proben} = \frac{d}{c+d}$$

$$\chi^2\text{-Test} = \frac{(ad - cb)^2 (a + b + c + d)}{(a + c)(b + d)(a + b)(c + d)}$$

$$\text{Effizienz } P_o = \frac{a + d}{m}$$

$$\text{Irrtumsrate} = 1 - P_o$$

$$\text{Kappa} = \frac{P_o - P_c}{1 - P_c}$$

$$P_c = \left(\frac{a+b}{m}\right) \left(\frac{a+c}{m}\right) + \left(\frac{c+d}{m}\right) \left(\frac{b+d}{m}\right)$$

P_c = zufällige Effizienz (calculated probability)

Hinweise: Die Testgrößen werden in der Regel in Prozenten angegeben.

Nullhypothese H_0 : Die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Maximalwerte der natürlichen Radionuklide in Quell- und Grundwässern ist unabhängig von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen.

Bei der Prüfung einer Vierfeldertafel gilt für den Freiheitsgrad der Wert 1. Mit der üblichen Irrtumswahrscheinlichkeit $\alpha = 5\%$ ist $c^2_a = 3.841$. Ist c^2 grösser als c^2_a kann die Nullhypothese zurückgewiesen werden, d.h. die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Maximalwerte der natürlichen Radionuklide in Quell- und Grundwässern *sind nicht unabhängig* von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. Die Übereinstimmung zweier Prüfverfahren ist als genügend zu bezeichnen, wenn Kappa grösser gleich 81% ist.

Kappa	Übereinstimmung
<1%	keine
10-40%	schwache
41-60%	deutliche
61-81%	starke
81-100%	fast vollständige

Tab. 8: Bewertung des Konkordanzindex Kappa (nach Sachs 1997)

8.6 Statistische Auswertung der Radon-Gebieteinteilung aufgrund der Konzentrationen von ^{222}Rn , ^{238}U , ^{226}Ra und ^{228}Ra in Grund- und Quellwässern

Bei den ermittelten Maximalwerten pro Gemeinde von ^{222}Rn , ^{238}U , ^{226}Ra und ^{228}Ra in Grund- und Quellwässern wurde in den geographischen Karten eine Einteilung in drei Kategorien (rot: >50 (m)Bq/l, rosa: 30 bis 50 (m)Bq/l, grün: <30 (m)Bq/l) vorgenommen, im Gegensatz zur Radonkarte für die Luftmessungen, die nur zwei Kategorien ("Radongebiet" (rot), bzw. "Kein Radongebiet" (grün)) kennt. Um die beiden Methoden (Luftmessungen versus Wassermessungen) zur Gebieteinteilung miteinander vergleichen zu können, müssen die drei Kategorien bei den Wasseruntersuchungen auch auf zwei Kategorien reduziert werden. Bei den folgenden statistischen Auswertungen mittels Vierfeldertafeln wird zum einen angenommen, dass nur die Gemeinden mit Wasserwerten über 50 (m)Bq/l (rot) als "Radongebiet" angesehen werden (Einteilung 1). In Klammern und kursiv werden zusätzlich die Zahlen angegeben, unter der Annahme, dass die Gemeinden bereits mit Wasserwerten über 30 (m)Bq/l (rot und rosa) als "Radongebiet" anzusehen sind (*Einteilung 2*).

8.6.1 ^{222}Rn

		^{222}Rn Maximalwert in Quell- und Grundwässern			
		Positiv	Negativ	Summe	
Luftmessungen Wohnräumen	in	Positiv	14 (22)	53 (45)	67 (67)
		Negativ	3 (7)	138 (134)	141 (141)
		Summe	17 (29)	191 (179)	208 (208)

Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen

Positiv: Radongebiet (rot)

Negativ: Kein Radongebiet (grün)

Radongebieteinteilung aufgrund der Maximalwerte von ^{222}Rn in Quell- und Grundwässern

Positiv: >50 Bq/l (rot), in Klammern die Werte für >30 Bq/l (rot und rosa)

Negativ: <50 Bq/l (grün und rosa); in Klammern die Werte für <30 Bq/l (grün)

Ergebnis

Testgrösse		Einteilung 1	(Einteilung 2)
Aussagewert der positiven Proben	%	82.4	(75.9)
Aussagewert der negativen Proben	%	72.3	(74.9)
Effizienz	%	73.1	(75.0)
Irrtumsrate	%	26.9	(25.0)
c^2		21.3	(29.4)
c_a^2		3.841	(3.841)
Kappa	%	23.3	(32.7)

Da c^2 grösser als c_a^2 ist, kann die Nullhypothese bei beiden Einteilungen zurückgewiesen werden, d.h. die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Maximalwerte von 50 wie auch ab 30 Bq/l ^{222}Rn in Quell- und Grundwässern sind bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% *nicht unabhängig* von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. Die Übereinstimmung der beiden Prüfverfahren ist mit einem Kappa-Wert von 32.7% für die Einteilung bei einem Maximalwert ab 30 Bq/l in " Radongebiet" zwar etwas stärker als erst ab 50 Bq/l, jedoch auch in diesem Fall als eher schwach zu beurteilen. Die Irrtumsrate beträgt bei beiden Einteilungen etwa 26% und kann als mässig hoch eingestuft werden.

8.6.2 ^{238}U

		^{238}U Maximalwert in Quell- und Grundwässern			
		Positiv	Negativ	Summe	
Luftmessungen Wohnräumen	in	Positiv	21 (30)	46 (37)	67 (67)
		Negativ	6 (27)	135 (114)	141 (141)
		Summe	27 (57)	181 (151)	208 (208)

Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen

Positiv: Radongebiet (rot)

Negativ: Kein Radongebiet (grün)

Radongebieteinteilung aufgrund der Maximalwerte von ^{238}U in Quell- und Grundwässern

Positiv: >50 mBq/l (rot), in Klammern die Werte für >30 mBq/l (rot und rosa)

Negativ: <50 mBq/l (grün und rosa); in Klammern die Werte für <30 mBq/l (grün)

Ergebnis

Testgrösse		Einteilung 1	(Einteilung 2)
Aussagewert der positiven Proben	%	77.8	(52.6)
Aussagewert der negativen Proben	%	74.6	(75.5)
Effizienz	%	75.0	(69.2)
Irrtumsrate	%	25.0	(30.8)
c^2		29.5	(15.0)
c_a^2		3.841	(3.841)
Kappa	%	32.1	(26.7)

Da c^2 grösser als c_a^2 ist, kann die Nullhypothese bei beiden Einteilungen zurückgewiesen werden, d.h. die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Maximalwerte von 50 wie auch ab 30 mBq/l ^{238}U in Quell- und Grundwässern sind bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% *nicht unabhängig* von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. Die Übereinstimmung der beiden Prüfverfahren ist mit einem Kappa-Wert von 32.1% bei der Einteilung 1 zwar etwas stärker, jedoch auch in diesem Fall als eher schwach zu beurteilen. Die Irrtumsrate beträgt bei beiden Einteilungen etwa 26% und kann als mässig hoch eingestuft werden.

8.6.3 ^{226}Ra

		^{226}Ra Maximalwert in Quell- und Grundwässern		
		Positiv	Negativ	Summe
Luftmessungen Wohnräumen	in Positiv	4 (13)	63 (54)	67 (67)
	Negativ	0 (14)	141 (127)	141 (141)
	Summe	4 (27)	204 (181)	208 (208)

Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen

Positiv: Radongebiet (rot)

Negativ: Kein Radongebiet (grün)

Radongebieteinteilung aufgrund der Maximalwerte von ^{226}Ra in Quell- und Grundwässern

Positiv: >50 mBq/l (rot), in Klammern die Werte für >30 mBq/l (rot und rosa)

Negativ: <50 mBq/l (grün und rosa); in Klammern die Werte für <30 mBq/l (grün)

Ergebnis

Testgrösse		Einteilung 1	(Einteilung 2)
Aussagewert der positiven Proben	%	69.1	(48.1)
Aussagewert der negativen Proben	%	69.7	(70.2)
Effizienz	%	30.3	(67.3)
Irrtumsrate	%	67.1	(32.7)
c^2		8.6	(3.6)
c^2_a		3.841	(3.841)
Kappa	%	7.9	(11.2)

c^2 ist bei der Einteilung 2 kleiner als c^2_a , die Nullhypothese kann somit angenommen werden, d.h. die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Maximalwerte ab 30 mBq/l ^{226}Ra in Quell- und Grundwässern sind bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% *unabhängig* von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. c^2 ist bei der Einteilung 1 zwar grösser als c^2_a , die Nullhypothese kann zwar angenommen werden, ist jedoch nicht sehr stark. Mit einem Kappa-Wert von 11.2 bzw. 7.9% kann davon ausgegangen werden, dass keine Übereinstimmung zwischen den beiden besteht. Zudem ist die Irrtumsrate mit fast 70% als sehr hoch einzustufen.

8.6.4 ^{228}Ra

		^{228}Ra Maximalwert in Quell- und Grundwässern		
		Positiv	Negativ	Summe
Luftmessungen Wohnräumen	in Positiv	1 (5)	66 (62)	67 (67)
	Negativ	0 (0)	141 (141)	141 (141)
	Summe	1 (5)	207 (203)	208 (208)

Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen

Positiv: Radongebiet (rot)

Negativ: Kein Radongebiet (grün)

Radongebieteinteilung aufgrund der Maximalwerte von ^{228}Ra in Quell- und Grundwässern

Positiv: >50 mBq/l (rot), in Klammern die Werte für >30 mBq/l (rot und rosa)

Negativ: <50 mBq/l (grün und rosa); in Klammern die Werte für <30 mBq/l (grün)

Ergebnis

Testgrösse		Einteilung 1	(Einteilung 2)
Aussagewert der positiven Proben	%	100.0	(100.0)
Aussagewert der negativen Proben	%	68.1	(69.5)
Effizienz	%	68.3	(70.2)
Irrtumsrate	%	31.7	(29.8)
c^2		2.1	(10.8)
c^2_a		3.841	(3.841)
Kappa	%	2.0	(9.9)

c^2 ist bei der Einteilung 1 kleiner als c^2_a , die Nullhypothese kann somit angenommen werden, d.h. die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Maximalwerte ab 50 mBq/l ^{228}Ra in Quell- und Grundwässern sind bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% *unabhängig* von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. c^2 ist bei der Einteilung 2 zwar grösser als c^2_a , die Nullhypothese kann zwar angenommen werden, ist jedoch nicht sehr stark. Für beide Einteilungen liegt der Kappa-Wert unter 10%, was bedeutet, dass keine Übereinstimmung zwischen den beiden Prüfverfahren besteht. Die Irrtumsrate mit rund 30% kann als mässig hoch beurteilt werden.

8.7 Diskussion

Der offensichtliche Zusammenhang zwischen der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen und den gefunden Maximalwerten von ^{222}Rn und ^{238}U in Wässern, der sich beim Betrachten der geographischen Karten bereits gezeigt hat, konnte durch die statistischen Tests eindeutig erhärtet werden. Ebenso zeigte sich, dass das Vorkommen von erhöhten Konzentrationen von ^{226}Ra und ^{228}Ra , das zur ^{232}Th Zerfallsreihe gehört, in Quell- und Grundwässern kaum mit den Radongebieten übereinstimmen und eher zufällig sind. Dass sowohl bei der Wassermethode mit ^{222}Rn wie auch mit ^{238}U keine bessere Übereinstimmung mit der Luftmethode besteht, kann auf folgende Ursachen zurückgeführt werden.

Bei rund 37 Gemeinden liegt der Mittelwert der durchgeführten Luftmessungen nicht unter 100 Bq/m³ ("Kein Radongebiet") und auch nicht über 200 Bq/m³ ("Radongebiet") sondern dazwischen. Zur Gebietseinteilung dieser verdächtigen Gemeinden wurden die einzelnen, gemessenen Grenz- und Richtwertüberschreitungen sowie lokale geologische Gegebenheiten einbezogen. Auf Grund dieser Gegebenheiten wurden 14 der verdächtigen Gemeinden schlussendlich als "Radongebiet" eingeteilt, die anderen 23 Gemeinden wurden als "Kein Radongebiet" eingestuft. Diese verdächtigen Gemeinden liegen vor allem in den Kreisen Oberengadin, Sur Tasna, Müstair, Calancatal, Ruis und Imboden. Gerade in diesen Gebieten zeigen sich auch einige Abweichungen zwischen den Gebietseinteilungen nach der Luft- und der Wassermethode mit ^{222}Rn und ^{238}U .

Die Maximalwerte an ^{222}Rn und ^{238}U wurde praktisch ausschliesslich im Quellwasser der Gemeinden festgestellt. Die Proben für diese Untersuchungen wurden in den meisten Fällen in den Reservoirs erhoben. Die Distanzen zwischen den Reservoirs und dem Dorf- oder Stadtkern, wo die Gebäude liegen, in den die Luftmessungen durchgeführt wurden, sind zum Teil erheblich. Zudem liegen in der Regel auch recht grosse Entfernungen zwischen den Reservoirs und der eigentlichen Quellfassungen vor. Ferner legt das Quellwasser auf seinem Wasserpfad vom Eindringen als Regen in den Untergrund bis zum Austreten an der Quellfassung sehr grosse Distanzen in sehr unterschiedlichen geologischen Formationen zurück. Aus diesem Grund wurde darauf verzichtet, die Werte der Mineralwasseruntersuchungen bei der Bestimmung des Maximalwertes in einer Gemeinde miteinzubeziehen, da Mineralwasser oft sehr spezielle geologische Formationen durchwandert, die teilweise noch weniger mit dem Untergrund des besiedelten Gebietes übereinstimmen. Nur im Idealfall, wenn es sich beim Untergrund des besiedelten Gebietes und dem Untergrund des Einzugsgebietes des Wassers um die gleichen oder ähnlichen, geologischen Formationen handelt, werden die Resultate der Wassermethode mit der Luftmethode übereinstimmen können.

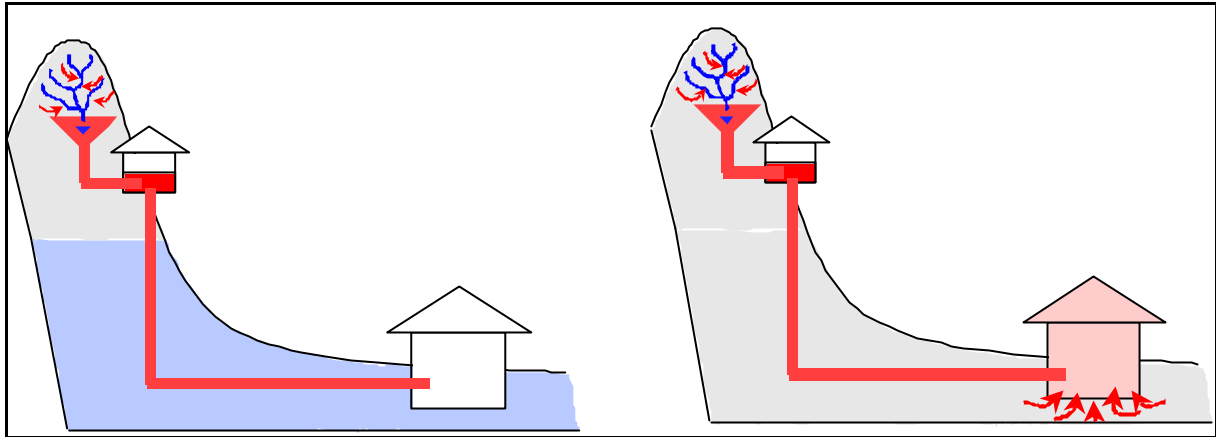


Abb. 50: Linke Abbildung: unterschiedlicher Untergrund beim Einzugsgebiet des Wassers und dem Standort des Gebäudes. Natürliche Radionuklide (rote Pfeile) können sich nur im Wasser anreichern. rechte Abbildung: gleicher Untergrund beim Einzugsgebiet des Wassers und dem Standort des Gebäudes. Radon (rote Pfeile) kann sich im Wasser wie auch in der Wohnraumluft anreichern.

Die Einteilung der Radongebiete mittels Luftmessungen wird auf Grund eines Mittelwertes aus 20 bis 30 Einzelmessungen in privaten und öffentlichen Gebäuden ermittelt. Da sich in einem derart grossen und spärlich bewohnten Kanton wie Graubünden die besiedelte Fläche einer Gemeinde in den wenigsten Fällen mit der ganzen Fläche der politischen Gemeinde deckt, kann bei der Extrapolation der Messungen vom besiedelten Teil der Gemeinde auf die ganze Gemeindefläche ein systematischer Fehler nicht ausgeschlossen werden. Dieser methodenbedingte Fehler muss in Anbetracht der Kosten und Zeit jedoch in Kauf genommen werden. Bei der Einteilung der Radongebiete mittels Wassermethode ist die Fehlerrate sogar noch grösser, da auf Grund eines einzelnen Maximalwertes auf die ganze Gemeindefläche extrapoliert wird.

8.8 Schlussfolgerungen

Aufgrund der in diesem Kapitel gewonnenen Erkenntnisse kann die Frage eindeutig bejaht werden, ob in gleichen Gebieten die Radonkonzentrationen in Quell- und Grundwässern mit den Radonkonzentrationen in der Luft von Wohnräumen miteinander korrelieren. Die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Wasserwerte >50 Bq/l von ^{222}Rn in Quell- und Grundwässern ist ganz klar nicht unabhängig von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. Damit wird die Bemerkung von Surbeck (1995) gestützt, dass Radonwerte >50 Bq/l in Wasser als Hinweis auf Radongebiete zu werten sind. Diese Aussagen treffen in analoger Art und Weise auch für das ^{238}U zu. Einmal mehr zeigt sich, dass zwischen dem Vorkommen von hohen Konzentrationen von ^{222}Rn und ^{238}U in Wässern eine Beziehung besteht. Das gleichzeitige Vorkommen von erhöhten Konzentrationen von ^{226}Ra wie auch von ^{228}Ra in Wässern und ein erhöhter Radongehalt in Wohnluft im gleichen Gebiet scheint dagegen eher zufällig zu sein.

Die Frage, ob Radon- oder auch Uranmessungen in Quell- und Grundwässern Luftmessungen in Wohnräumen zur Gebietseinteilung von Radongebiete ersetzen können, ist jedoch zu verneinen. Obwohl ein Abhängigkeit zwischen der Wassermethode und der Luftmethode besteht, ist die Übereinstimmung der beiden Prüfverfahren gestützt auf die statistischen Auswertungen als eher schwach zu beurteilen. Die Irrtumswahrscheinlichkeit beträgt etwa 25% unter der Annahme, dass die Gebietseinteilung auf Grund der Innenluftmessungen richtig ist. Die Unsicherheit dieser Einteilung dürfte aber insbesondere bei den Gemeinden mit Radon-Mittelwerten zwischen 100 und 200 Bq/m³ gross sein.

^{222}Rn - wie auch ^{238}U -Messungen in Quell- und Grundwässern sind als Screeningmethode zur Gebietseinteilung denkbar. Wenn in einem grösseren Gebiet, in dem hohe Radonbelastungen punktuell zu erwarten sind, ein Radonkataster erstellt werden soll und zuerst diese Regionen erfasst werden sollen, kann es durchaus sinnvoll sein in einer ersten

Phase ^{222}Rn - oder ^{238}U -Messungen in Trinkwässern durchzuführen. Obwohl beide Parameter auf Radongebiete hinweisen, ist die Bestimmung des Urans der Radonbestimmung eindeutig vorzuziehen. Zum einen hat das ^{222}Rn eine viel kürzere Halbwertszeit als das ^{238}U , das bedeutet, dass die Proben viel rascher nach der Probenahme untersucht werden müssen. Zudem lässt die Bestimmung des Urans mittels ICP-MS einen viel höheren Probendurchsatz zu, was einer Einsparung des Arbeits- wie auch Zeitaufwandes gleichkommt. Jedoch ist der finanzielle und apparative Aufwand für ein ICP-MS um ein Vielfaches grösser als für ein Radonmessgerät. Eine andere Möglichkeit Uran in Wässern zu bestimmen wäre die Analyse mittels Uran-adsorbierenden Schichten (Surbeck 2000). Der finanzielle Aufwand für Apparatur und Arbeitszeit ist vergleichbar mit dem Aufwand für die Radonmessung. Die Untersuchungen müssen aber nicht so schnell nach der Probenahme durchgeführt werden. Der Probendurchsatz ist allerdings nicht so hoch wie mit ICP-MS.

Als letztes gilt einmal mehr zu betonen, dass nur eine individuelle Messung sichere Angaben über die Radongaskonzentration in Wohnräumen liefern kann, denn kein Haus ist gleich gebaut wie das andere, kein Haus ist so radondurchlässig wie das andere und kein Haus steht auf dem gleichen Untergrund wie das andere.

9 Ausgewählte Hot-Spots

Aufgrund der gewonnenen Resultate und Erkenntnisse in den vorangehenden Kapiteln wurde beschlossen, den Gesamtüberblick über die natürlichen Radionuklide in Grund-, Quell- und Mineralwässern auf ein paar wenige, sog. Hot-Spots zu fokussieren, um das Auftreten von lokal erhöhten Konzentrationen genauer untersuchen und beurteilen zu können. Die Proben wurden in der ersten Phase in der Regel bei den Reservoireinläufen erhoben, um vor allem beim Radon Konzentrationsverluste in den Leitungen und im Reservoir zu verhindern. Andererseits konnten die Proben in dieser ersten Phase nicht direkt bei den einzelnen Quelfassungen erhoben werden, da dieses Vorgehen die zur Verfügung stehenden Kapazitäten für die Probenerhebungen und –untersuchungen bei weitem gesprengt hätte. Bei den folgenden Orten wurden aufgrund von erhöhten Konzentrationen eines oder mehrerer natürlicher Radionuklide weitere Untersuchungen durchgeführt. Dabei wurden alle einzelnen Quellen, welche das entsprechende Reservoir speisen beprobt und untersucht.

Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	^{226}Ra (mBq/l)	^{222}Rn (Bq/l)	Uran (mBq/l)
Fideris	Mineralquelle Fideris Bad	121	1	5
Andeer	Thermalquelle Heilbad	93	21	109
Bergün	Mineralquelle Bergün	95	150	21
Schnaus	Reservoir / E	95	14	123
Poschiavo	Pedecosta Reservoir / E	44	142	170
Bergün	Stugl Reservoir / E	0	16	352
Poschiavo	Pagnoncini Reservoir / E	26	10	357
Disentis	Reservoir Fontaunaetta / E	32	20	286
Disentis	Segnas Reservoir / E	27	48	240
Rueun	Reservoir / E	30	147	190
Vals	Reservoir Leis / E	21	335	166
Poschiavo	Prada Reservoir / E	15	28	181
Lü	Reservoir Sur Lüsai / A	30	103	144
Disentis	Placidusquelle / E	59	654	24

Tab. 9: Liste der Orte, bei welchen aufgrund von erhöhten Konzentrationen eines oder mehrerer natürlicher Radionuklide (fett markiert) die einzelnen Quellen, welche das entsprechende Reservoir speisen, beprobt und untersucht wurden (A: Auslauf, E: Einlauf).

Die Erkenntnisse bei der Probenahme und den Untersuchungen der einzelnen Quellen zeigte, dass einige Orte sich aufgrund verschiedener Kriterien, wie geografische Lage, Zustand und Zugänglichkeit der Quellen, Möglichkeit der Probenerhebung, chemische Zusammensetzung, sich weniger für deren Weiterverfolgung eigneten. Somit wurde die obige Liste nochmals gekürzt und die weiteren Untersuchungen auf die folgenden Hot-Spots fokussiert mit der Placidusquelle als Schwerpunkt.

Hot-Spot	Begründung
Mineralquelle Bergün	Gleichzeitig hoher Gehalt an ^{226}Ra (95 mBq/l) und ^{222}Rn (150 Bq/l), dürfte als Mineralquelle zeitlich konstante Zusammensetzung haben
Placidusquelle	Mit 654 Bq/l höchste Radonquelle der Schweiz
Quelle Leis	Hoher Gehalt an ^{222}Rn (335 Bq/l) und Uran (160 mBq/l), Vergleich mit Placidusquelle

Pedecosta Reservoir	Hoher Gehalt an ^{222}Rn (142 Bq/l) und Uran (170 mBq/l), hoher Gehalt an Arsen
Pagnoncini Reservoir	Hoher Gehalt an Uran (357 mBq/l), hoher Gehalt an Arsen Vergleich mit Reservoir Pedecosta

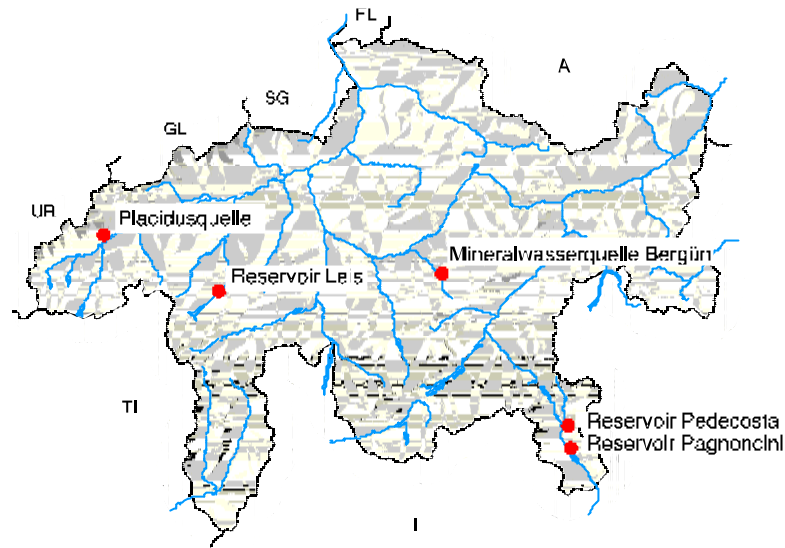


Abb. 51: Reliefkarte Kanton Graubünden mit den eingetragenen Hot-Spots (Karte erstellt von GIS Kompetenzzentrum Graubünden).

9.1 Placidusquelle in Disentis

9.1.1 Historischer Exkurs

Die St. Placidusquelle fällt durch ihren rotfarbenen Niederschlag des Eisens im Quellsediment auf. Dadurch unterscheidet sie sich in besonderer Weise von den anderen Quellen im Gebiet. Aufgrund dieses Charakteristikums wird die Quelle noch heute in der romanischen Sprache, als "aua cotschna", also "rotes Wasser" bezeichnet. Dieses Merkmal könnte der Anstoss zu einem noch teilweise heidnisch verstandenen Wasserkult gewesen sein, der in der religiösen Verehrung und Nutzung zu Heilzwecken bestanden haben könnte. Dies könnte aus der Tatsache hervorgehen, dass etwa 400 Meter unter der Quelle im 9./10. Jahrhundert von den Mönchen des Klosters Disentis die Placiduskapelle gebaut wurde (Müller 1971), vielleicht nicht nur zum Gedächtnis an den dort ermordeten Klosterpatron Placidus, sondern auch mit der Absicht, diesen hypothetischen heidnischen Brauch zu überwinden, indem man der Quelle und ihrer Heilkraft einen christlichen Sinn gab. Die Kraft zu heilen wurde der Quelle, dem heiligen Placidus und seiner Kapelle zugeschrieben. Es wird vermutet, dass in der Kapelle am Ort, wo der heilige Placidus der Legende nach ermordet wurde, kranke Gliedmassen zur Heilung der Blutstelle nahegebracht werden konnten. Somit hätte man den heidnischen Wasserkult zum christlichen Heilkult hinübergeleitet (Caminada 1961). Ein erster historischer Beleg für die Nutzung der St. Placidusquelle stammt aus dem 17. Jahrhundert. Aus einer Korrespondenz zwischen dem Kloster Muri und dem Kloster Disentis geht hervor, dass im Kloster dem Pater Mauritius Pfleger 1668 eine Trinkkur aus der roten Quelle empfohlen wurde. Auch habe Pater Adalgott Berther, der in Einsiedeln als Mönch eingetreten war, 1691 in seiner Heimat einen Kuraufenthalt gemacht und er "badete alldorten mit Rodtbrunnenwasser und tringte St. Mauritiuswasser" (Müller 1952). Möglich wäre, dass das Mauritiuswasser vom schon damals

blühenden Engadiner Kurort St. Moritz geliefert wurde. Näher liegt jedoch, dass das Placiduswasser mit der bekannten Mauritiusquelle verwechselt wurde. Höchstwahrscheinlich wurde das Wasser auch von der Quelle ins Kloster getragen, da der Patient gewiss nicht an Ort und Stelle badete, ausser dass jemand eine Hütte mit einer Wanne bei der Quelle erstellte, wofür es aber keine Belege gibt. In einem weiteren Dokument von 1740 wird die St. Placidusquelle auch erwähnt (Wenzin 1882). Es heisst dort, dass Quellen das fruchtbare Weideland bewässerten und dass sich unter diesen zahlreiche heilbringende Quellen mit Mineralgehalt befänden. Besonders genannt werden die Thermen des Somvixertals und die St. Placidusquelle bei Disentis, die für Fieberkranke überaus heilbringend sei. Die Nutzung der St. Placidusquelle blieb bis zum Bau des Kurhotels Disentiserhof in kleinem Rahmen, das heisst, dass man wie Pater Adalgott das Wasser trank und eher in seltenen Fällen auch darin badete.

Im Jahre 1874 wurde das Kurhotel Disentiserhof am östlichen Dorfeingang beim Val Sogn Placi errichtet, nachdem die alte Schlossruine entfernt worden war. Der Therapieteil des Kurhauses bestand aus Bädern für die Heilwasserkuren. Das Wasser wurde direkt an der Quelle luftdicht gefasst und in die Badeanlage geleitet. Damit sich die Gäste an der frischen Luft erholen konnten, wurde um das Hotelgebäude ein Park errichtet. Die Gäste wurden immer von einem Kurarzt betreut und beraten.

Ein Projekt, das ebenfalls in Verbindung mit der Nutzung der St. Placidusquelle in den siebziger Jahren geplant wurde, war eine Rheumastation. Dieses Therapiegebäude sollte am Dorfeingang gebaut werden. Die Realisation dieser Rheumastation scheiterte unter anderem wegen den fehlenden finanziellen Mitteln.

9.1.2 Allgemeine Übersicht

Die Placidusquelle entspringt etwa ein Kilometer oberhalb Disentis im Val Sogn Placi, einem nördlichen Seitental des Vorderrheins auf der linken Talseite. Die Quelfassung liegt 1364 Meter über Meer und weist die Koordinaten 708.600/174.800 der Landeskarte der Schweiz auf. Die Quelle wurde 1951/52 direkt im Felsen in einem sieben Meter langen Einschnitt gefasst und sorgfältig durch Beton und Lehm nach oben abgedichtet. Der Quellschacht befindet sich an der Grenze zwischen Fels und Bachschutt des Val St. Placi.

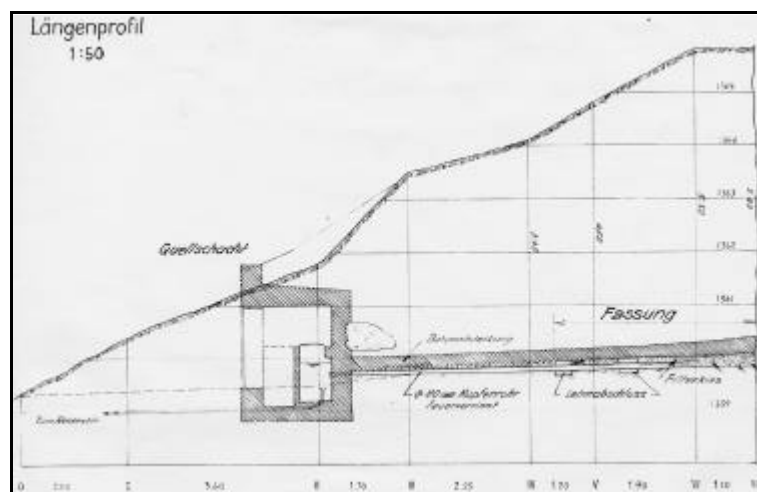


Abb. 52: Längensprofil der Neufassung 1951/1952 der Placidusquelle

Nach E. Niggli (1945) stammt das Wasser aus Klüften der südlichsten Randzone des Aarmassivs. Neben Graniten finden sich hornfelsartige Paragneise und turmalinhaltige Pegmatite, welche den hohen Gehalt an Fluor im Wassers von knapp 1 g/l erklären. Vielfach treten im stark zerklüfteten Gestein pyritische Vererzungen auf, welche für den hohen Eisengehalt des Wassers von rund 3 mg/l verantwortlich sind (Högl 1980).

9.1.3 Geologische Übersicht

Disentis befindet sich an der Kontaktstelle zwischen dem Aarmassiv und dem Tavetscher Zwischenmassiv. Das Aarmassiv, das mit autochthonen und parautochthonen Einheiten verbunden ist, besteht aus kristallinem Gestein, hauptsächlich aus Granit, Granodiorit, Diorit, Orthogneis und Amphibolit. Das Tavetscher Zwischenmassiv ist mit den Helvetischen Decken verbunden (tektonische Karte der Schweiz, 1980) und ist hauptsächlich aus Paragneis zusammengesetzt.

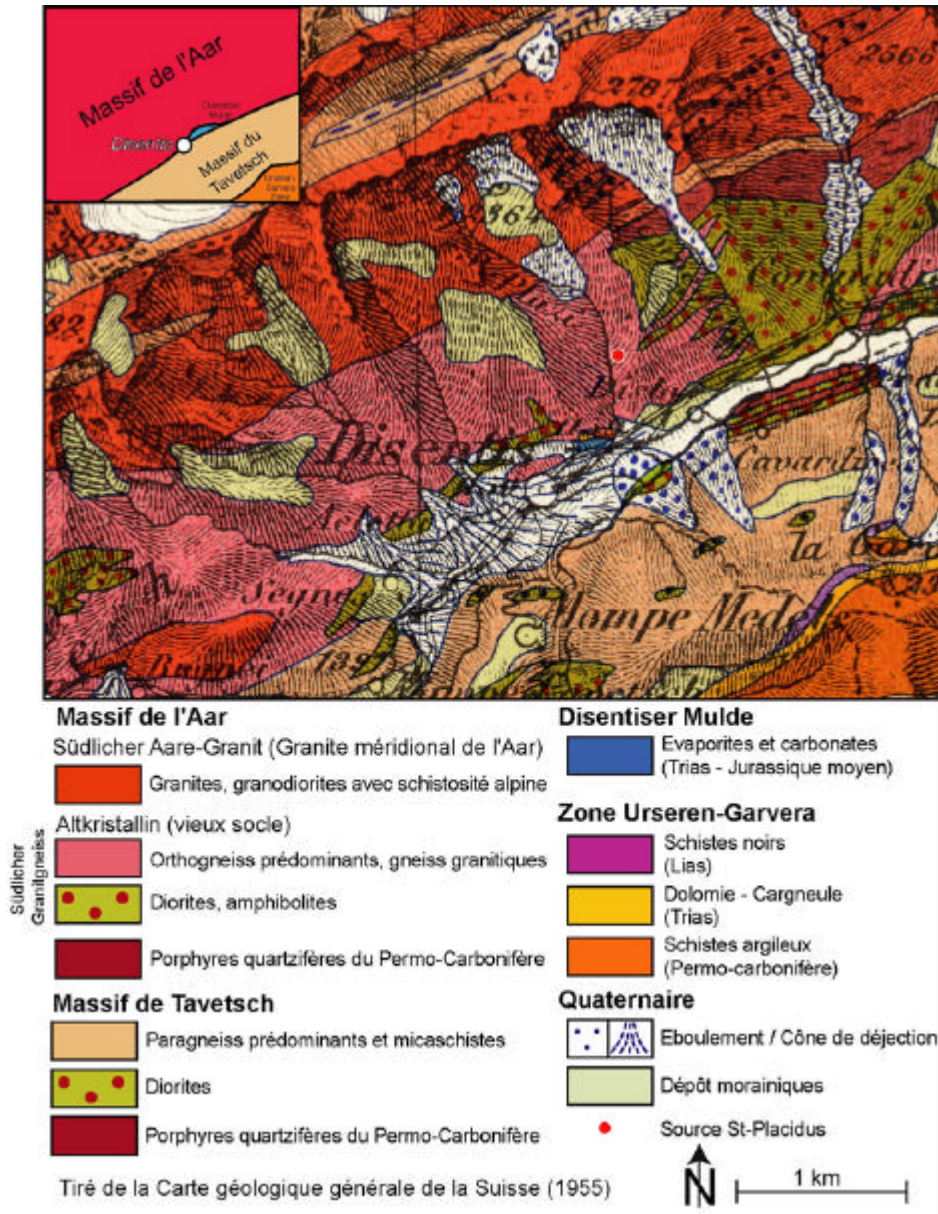


Abb. 53: Lokale, geologische Übersicht der Region bei Disentis (Gainon 2003)

Die Disentiser Mulde, eine feine mesozoische Schuppe aus Kalkgesteine von Trias bis Jura entstanden, ist in der Nähe des Klosters von Disentis sichtbar. Diese tektonische Einheit, welche zum Teil das Aarmassiv vom Tavetscher Zwischenmassiv trennt, ist strukturell noch nicht sehr gut bekannt. Die variszische Hauptschieferung und die dominierenden alpinen Verformungsbrüche verlaufen ungefähr parallel. Sie verlaufen beinahe vertikal und sind von Ost-Nord-Ost nach West-Süd-West orientiert.

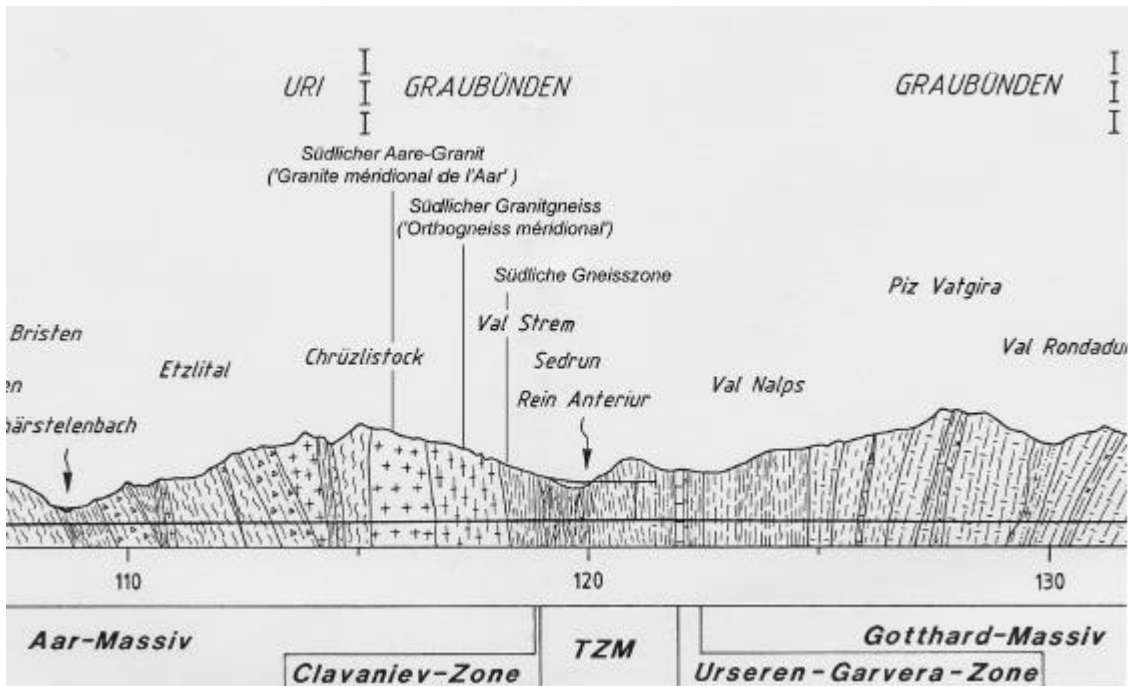


Abb. 54: Geologischer Nord-Süd Schnitt entlang der NEAT Tunnelbaustelle Alptransit (Löw 1999). Dieser Schnitt verläuft etwa 10 Kilometer westlich von Disentis.

9.1.4 Hydrogeologische Verhältnisse

In Anbetracht der vorherrschenden Gesteinstypen überwiegen in der Region von Disentis Kluttgrundwässer. Auf dem Panixerpass-Blatt der hydrogeologischen Karte wird beim Festgestein zwischen dem granitartigen Gestein von unterschiedlicher Durchlässigkeit und dem schieferartigen Gestein (Gneis reich an Glimmer und Schiefer) von geringer Durchlässigkeit unterschieden. Es ist allerdings möglich in diesen Gesteinsformationen an bestimmten Orten grosse Durchlässigkeiten vorzufinden. Lockergesteine sind ebenfalls in dieser Region zu finden und können in porösen Gegenden für die Entstehung von mehr oder weniger grossen Abflusssystemen verantwortlich sein.

An den Hängen und am Fusse der Hänge kommen zwei Arten von Ablagerungen vor:

1. Die Moränenablagerungen von unterschiedlicher Durchlässigkeit, von denen die wenig durchlässigen Schichten (Grund- oder Seitenmoränen) gute Voraussetzungen für das Auftreten von lokalen Abflusssystemen darstellen.
2. Schuttkegel und Hangablagerungen durch Steinschläge und Erdbeben weisen aufgrund ihrer groben Korngrösse im allgemeinen eine grosse Durchlässigkeiten auf. Dort können sich kleine, lokale Aquifere entwickeln.

In den Talböden der Alpen bilden sich oft sehr gute Grundwasserleiter. Die Flussablagerungen, bei Disentis durch den Rhein, welche diese Aquifere bilden, weisen durch die grosse Korngrösse eine grosse Durchlässigkeit auf, so dass qualitativ und quantitativ sehr gute Grundwasservorkommen gebildet werden.

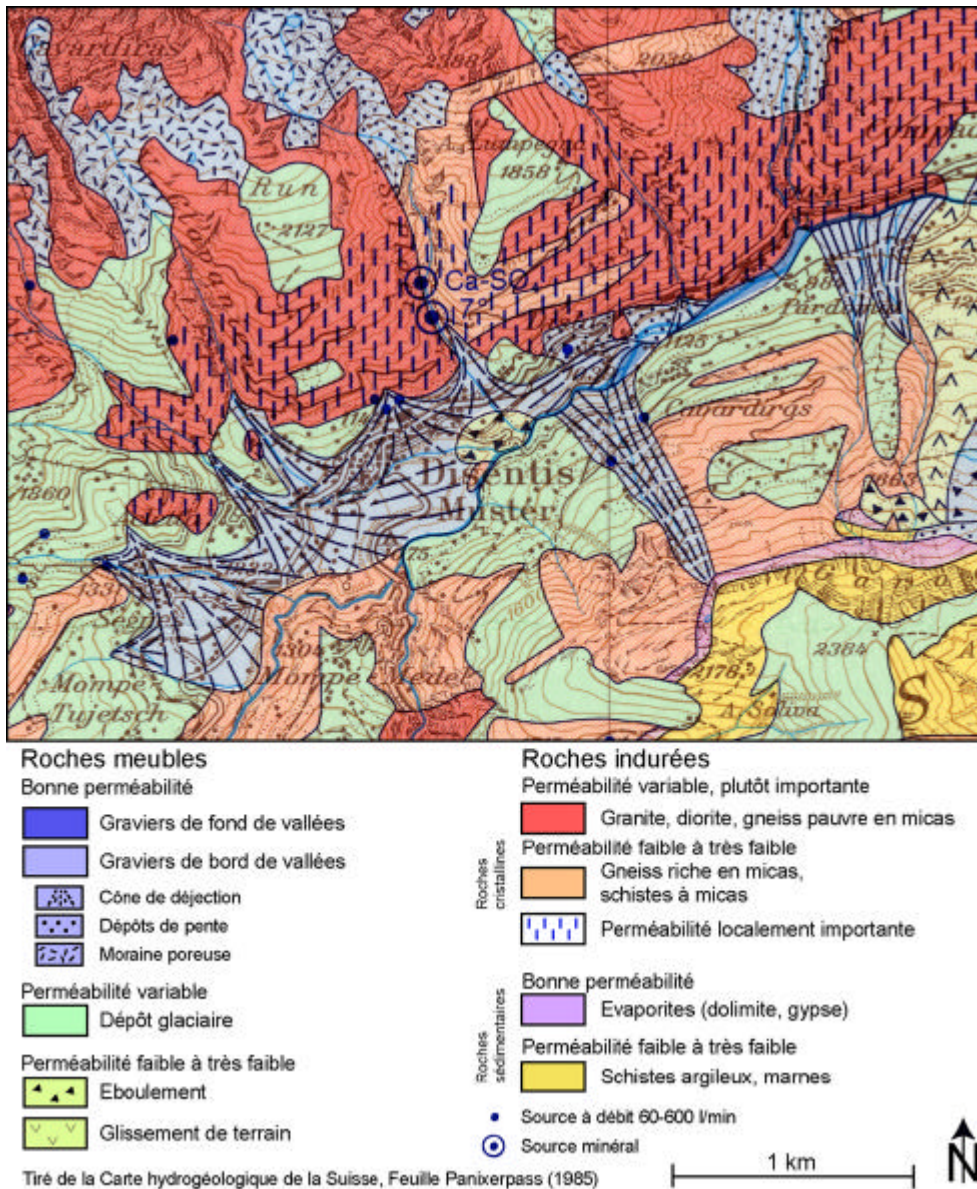


Abb. 55: Lokale, hydrogeologische Übersicht der Region bei Disentis (Gainon 2003)

9.1.5 Chemische und physikalische Wasseranalysen

Vom Frühling 2002 bis Herbst 2003 wurde das Wasser der Placidusquelle immer wieder beprobt, um die wichtigsten physikalischen Parameter, die chemischen Hauptkomponenten und die Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide zu untersuchen. Da das Val Sogn Placi stark lawinengefährdet ist, konnten während der Wintermonate keine Beprobungen durchgeführt werden. Aufgrund dieser Situation wurde die Installation von kontinuierlichen Messanordnungen ins Auge gefasst. Nach anfänglichen Startschwierigkeiten wurden die Messanordnungen optimiert und schliesslich konnten verlässliche, kontinuierliche Messungen für die Temperatur, die Leitfähigkeit und den ^{222}Rn -Gehalt während einer mehrmonatigen Zeitspanne durchgeführt werden. In der folgenden Tabelle sind die Resultate der durchgeführten Einzelmessungen für die wichtigsten Parameter aufgeführt. Es fällt auf, dass das ^{222}Rn ziemlich starke Schwankungen von 200 Bq/l aufweist. Aufgrund der Resultate der anderen Parameter kann die Placidusquelle jedoch als sehr konstant bezeichnet werden. Auf diese Aussage soll in den folgenden Abschnitten noch näher

eingegangen werden. Chemisch handelt es sich bei der Placidusquelle um ein weiches Calcium-Magnesium-Sulfat-(Hydrogenkarbonat)-Wasser.

Placidus- quelle	Temp. °C	pH	Leitfähigkeit 25°C µS/cm	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	²²⁶ Ra mBq/l	²²² Rn Bq/l	Uran mBq/l	²²⁸ Ra mBq/l
Max	7.5	6.6	345	21	<1.0	<1.0	144	9.9	43	7.8	2.8	59	718	29	63
Mittelwert	7.4	6.3	348	19	<1.0	<1.0	127	8.9	40	6.8	2.4	51	624	21	29
Min	7.2	5.9	350	15	<1.0	<1.0	102	8.4	38	5.7	2.0	46	518	11	17

Tab. 10: Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Placidusquelle von April 2002 bis Oktober 2003

9.1.5.1 Leitfähigkeit, Temperatur

In der Literatur wird immer wieder erwähnt, dass sich die Placidusquelle durch ihre Konstanz auszeichnet. Um diese Behauptung besser beurteilen zu können, wurden verschiedene Anläufe unternommen, um die elektrische Leitfähigkeit und die Temperatur während eines bestimmten Zeitraumes kontinuierlich messen zu können. Dabei erwies sich der hohe Eisengehalt des Wassers als hartnäckiges Problem. Durch den Kontakt des Wassers mit sauerstoffreicher Luft beim Quellaustritt bildeten sich erhebliche Mengen Eisenhydroxid, welche die Temperatur- und Leitfähigkeitsmesssonden beschlugen und somit die Funktionstüchtigkeit dieser empfindlichen Geräte schon nach wenigen Tagen einschränkte. Die Messanordnung wurde, wie in der Abbildung dargestellt, in der Folge optimiert, um diese Artefakte zu eliminieren. Im Herbst 2003 wurde während zwei Monaten kontinuierlich alle zwei Stunden die Temperatur und die Leitfähigkeit gemessen und registriert. Die Temperatur erwies sich während dieser Zeit als sehr konstant. Sie stieg nur gerade um 0.1°C an, was jedoch im Bereich der Messunsicherheit des verwendeten Messgerätes liegt. Bezüglich Temperatur kann die Placidusquelle somit wirklich als sehr konstant bezeichnet werden.

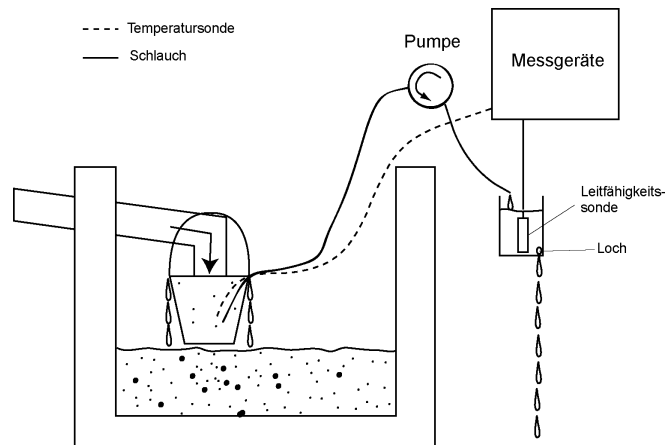


Abb. 56: Schematische Darstellung der optimierten Messanordnung für die kontinuierliche Leitfähigkeits- und Temperaturmessung

Die Resultate der Leitfähigkeitsmessungen während dieser Zeit brachten jedoch Erstaunliches zu Tage. Während die Resultate der durchgeführten Einzelmessungen immer Werte zwischen 345 bis 355 µS/cm lieferten, zeigte die Quelle einen Abfall von etwa 25 µS/cm nach den Niederschlägen vom 4. bis 10. Oktober 2003. Danach stieg die Leitfähigkeit wieder auf die durchschnittlichen Werte an. Es scheint jedoch sehr unwahrscheinlich, dass Regenwasser auf der Strecke zwischen der wenige Meter entfernten Quelfassung und dem Quellaustritt infiltriert, da zwischen dem Regenereignis und dem Abfall der Leitfähigkeit an

der Quelle doch etwa 3.5 Tage liegen, was etwas lange für die Wasserinfiltration durch nur zwei Meter hohes Erdreich scheint. Zudem zeigen die erhaltenen Resultate, dass die Niederschlagsmengen ziemlich gross sein müssen, um die Leitfähigkeit beim Quellaustritt beeinflussen zu können. So scheinen die Niederschlagsmengen von 16 mm vom 14. und 17. Oktober bzw. von 24 mm vom 29. bis 31. Oktober die Leitfähigkeit nicht beeinflusst zu haben. Dabei ist zu berücksichtigen, dass der Boden nach dem sehr trockenen Sommer 2003 eine ziemlich grosse Speicherkapazität aufwies.

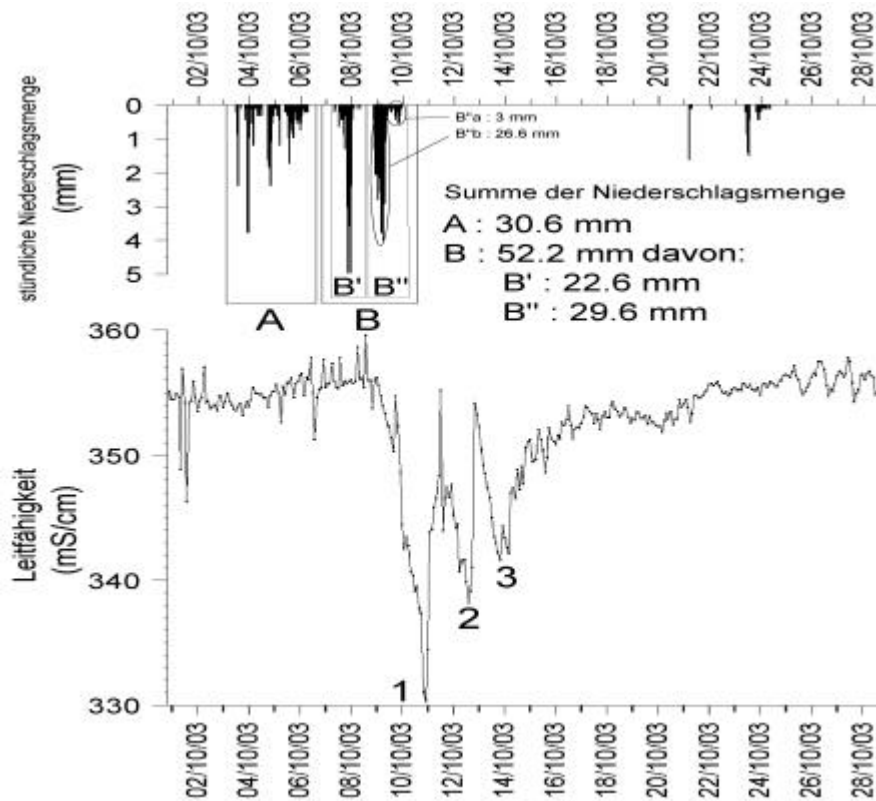


Abb. 57: Vergleich der Niederschlagsereignisse mit der elektrischen Leitfähigkeit an der Placidusquelle Anfangs Oktober 2003

Die Abbildung zeigt aber, dass das Regenereignis vom 3. bis 10. Oktober 2003 mit einer Niederschlagsmenge von 82.8 mm die elektrische Leitfähigkeit an der Placidusquelle beeinflusst hat. Dabei sind grundsätzlich folgende zwei Hypothesen denkbar.

Hypothese 1

- Das Regenereignis A sättigt den Boden und setzt zeitlich versetzt die Leitfähigkeit herunter (Peak 1)
- Das Regenereignis B' erzeugt den Peak 2
- Das Regenereignis B'' erzeugt den Peak 3

Hypothese 2

- Das Regenereignis A sättigt nur den Boden
- Ist der Boden einmal durch A gesättigt, gelangt ein Teil des Regenwassers B' ins System der Placidusquelle und setzt die Leitfähigkeit herunter (Peak 1)
- In der Folge erzeugt das Regenereignis B''b den Peak 2
- Schlussendlich sind die 3 mm vom Regenereignis B''a für den Peak 3 verantwortlich

Aufgrund dieses einmalig beobachteten Ereignisses ist es schwierig zu verstehen, welche genauen Zusammenhänge zwischen den Niederschlägen und der Leitfähigkeit bestehen. Die Hypothese 1 scheint jedoch die wahrscheinlichere zu sein. Um diese Zusammenhänge

genauer verstehen zu können, wären jedoch weitere Beobachtungen nötig. Dazu wäre es interessant, den Sauerstoffgehalt beim Quellaustritt zu messen, um feststellen zu können, ob mit dem Absinken der Leitfähigkeit ein Anstieg des gelösten Sauerstoffes einhergeht.

9.1.5.2 Kontinuierliche Radonmessungen

Das Val St. Placi ist im Winter stark Lawinen gefährdet, so dass während der Wintermonate eine Beprobung der Placidusquelle nicht möglich ist. Aus diesem Grund entwickelte Heinz Surbeck am CHYN eine Apparatur, welche kontinuierliche Radonmessungen durchführen kann. Die Apparatur, welche in einer ersten Phase durch eine Autobatterie betrieben wurde, konnte vor Wintereinbruch anfangs Oktober 2002 im Reservoir der Placidusquelle installiert werden. Mit grossen Erwartungen wurde am 24. März 2003 die Placidusquelle besucht, um den Zustand und die Funktionstüchtigkeit der Messapparatur zu kontrollieren und die aufgezeichneten Daten auswerten zu können. Die Apparatur hatte die Wintermonate schadlos überstanden. Einzig der semipermeable Gasaustausch-Schlauch, durch den das Radon-Gas vom Wasser passiv in die Lucaszelle der Messapparatur diffundieren sollte, war stark mit Eisenhydroxid beschichtet. Eine Auswertung der Daten zeigte, dass das Gerät während dem ganzen halben Jahr einwandfrei gemessen und die stündlichen Messungen auch registriert hatte.

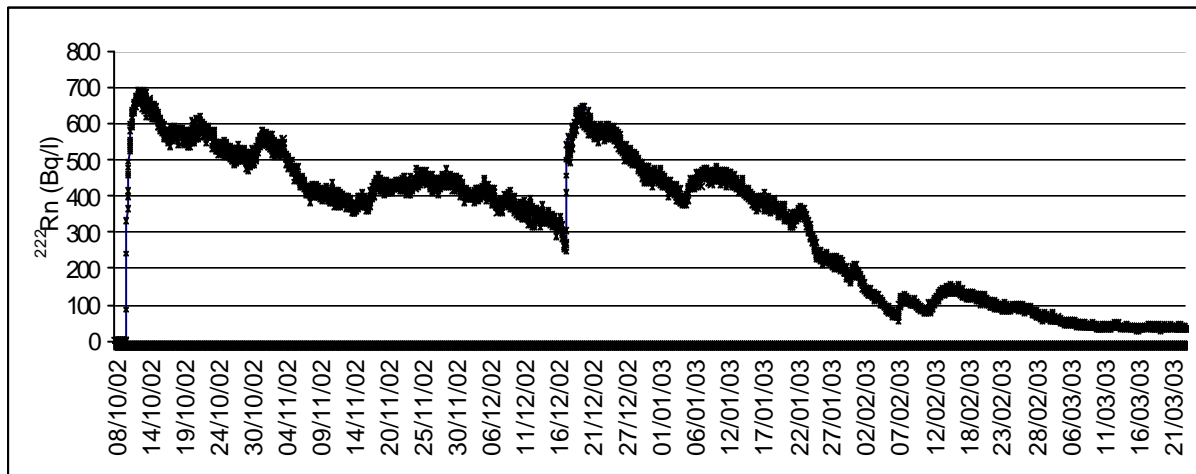


Abb. 58: Grafische Darstellung der kontinuierliche Radonmessungen an der Placidusquelle während den Wintermonaten 2002/2003 (erster Versuch).

Wie die Grafik zeigt, stimmen die ersten Radon-Messwerte im Oktober gut mit den analytischen Messungen von 650 Bq/l überein. Danach sinken die Werte jedoch stark bis auf 250 Bq/l ab. Kurz vor Weihnachten steigen die Werte jedoch wieder sprunghaft auf 650 Bq/l an (ev. Lawinnenniedergang). In der Folge nimmt die Radonkonzentration wieder gleichmässig ab und weist Ende März nur noch Konzentrationen um 40 Bq/l auf. Dass der Verlauf der kontinuierlichen Messwerte nicht mit der wirklichen Radonkonzentration der Placidusquelle übereinstimmen kann, ist offensichtlich, zumal die analytische Bestimmung anfangs April einen Wert von 608 Bq/l ergab. Das Problem für diese Abweichung wurde ziemlich rasch an der Messapparatur geortet. Durch den starken Belag des semipermeablen Gasaustausch-Schlauches mit Eisenhydroxid, wurde die Diffusion des Radon-Gases offensichtlich stark blockiert, zumal das Radon nur passiv vom Wasser in die Lucaszelle der Messapparatur gelangte. Zudem hatte sich in der Lucaszelle Feuchtigkeit angesammelt. Aufgrund dieser Erkenntnisse wurden diese Schwachstellen korrigiert und die Messapparatur optimiert. Um die Lucaszelle vor Feuchtigkeit zu schützen, wurden zwei Patronen mit Trockenmittel vorgeschaltet und um das Radongas effizienter in die Lucaszelle zu befördern, wurde eine Membranpumpe installiert. Als Stromlieferant wurde die Autobatterie durch ein Solar-Panel ersetzt.

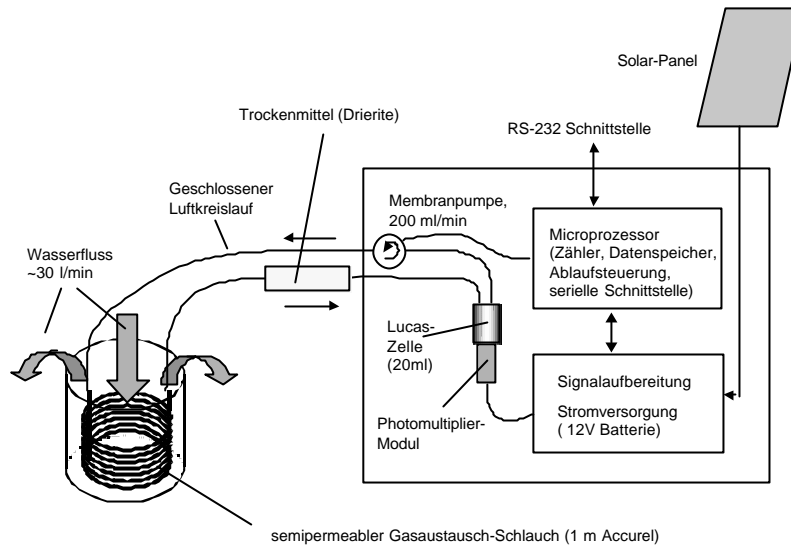


Abb. 59: Schematische Darstellung der Messapparatur für die kontinuierliche Radonmessungen an der Placidusquelle nach H. Surbeck.

Der Messzyklus wurde so gewählt, dass jeweils zu Beginn einer Stunde die Pumpe und der Detektor für eine Minute eingeschaltet werden. Die Anzahl der während dieser Minute registrierten Impulse wurden als Messwerte registriert. Dabei entsprechen 5 Impulse/min etwa 1 Bq/l Radon im Wasser. Der statistische Fehler (1 sigma) der Messwerte liegt bei $\pm 2\%$, die Kalibrierunsicherheit bei $\pm 10\%$.

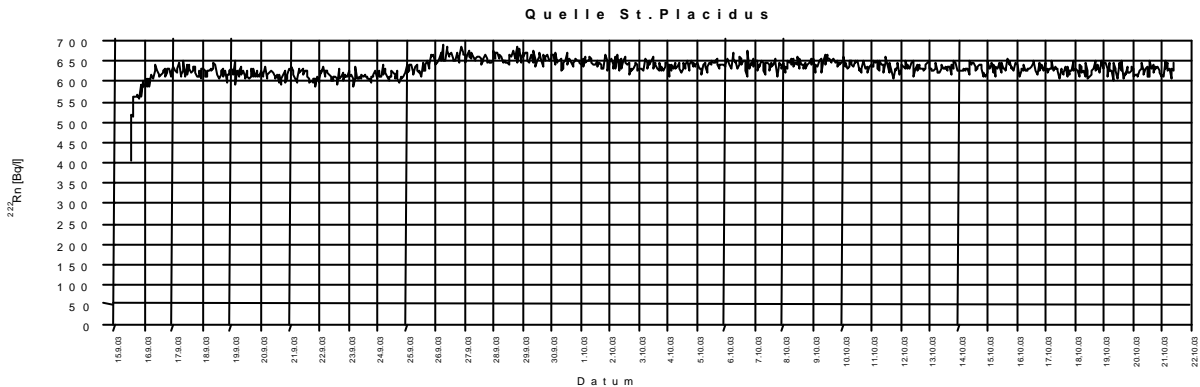
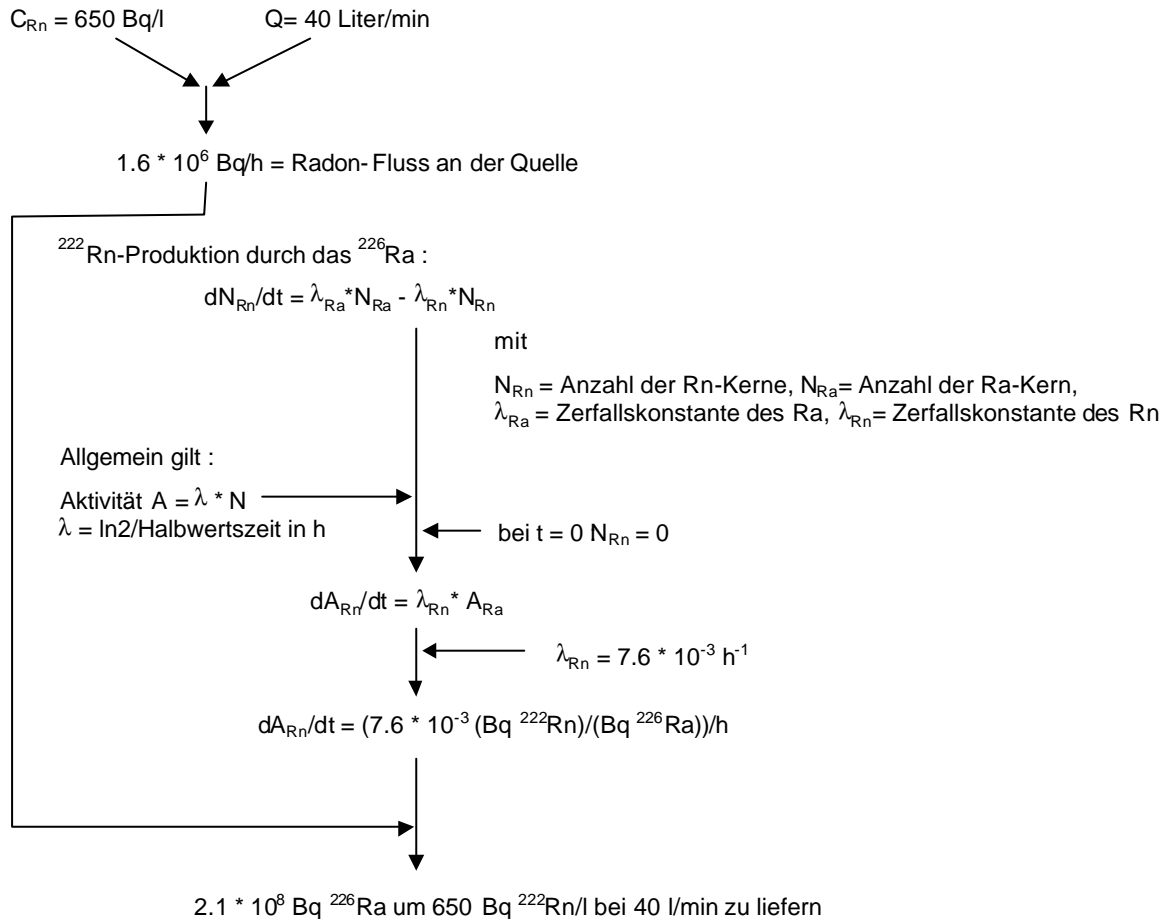


Abb. 60: Grafische Darstellung der kontinuierlichen Radonmessungen an der Placidusquelle September bis Oktober 2003 (zweiter Versuch).

Der zweite Versuch bestätigte die Vermutungen, dass es sich bei der Placidusquelle um eine sehr konstante Quelle bezüglich Radongehalt handelt. Die Werte liegen während der ganzen Messperiode konstant um 650 Bq/l. Der leichte Anstieg am 25. September fällt mit dem Besuch der Placidusquelle und der Deinstallation des Leitfähigkeitmessgerätes zusammen. Möglicherweise wurde der Gasaustausch-Schlauch oder der Eimer etwas anders platziert, so dass die Turbulenz kleiner wurde. Durch diese von Heinz Surbeck entwickelte Messapparatur konnte zum ersten Mal während einer längeren Zeitperiode der Radongehalt in Wasser kontinuierlich gemessen werden. Es ist zu hoffen, dass diese Messmethode weiterentwickelt und optimiert wird, um in Zukunft vermehrt sehr genau und effizient Radonmessungen in Wasser ohne grossen analytischen, zeitlichen und personellen Aufwand durchführen zu können.

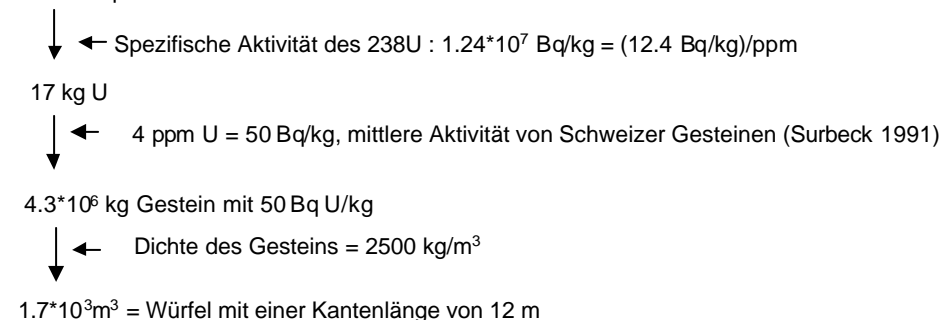
9.1.6 Wieviel ^{226}Ra braucht es um die ^{222}Rn -Aktivität im Wasser der Placidus-Quelle zu liefern?

Da das ^{222}Rn auf den Zerfall des ^{226}Ra zurückzuführen ist, kann die ^{226}Ra -Konzentration berechnet werden, die benötigt wird, um eine ^{222}Rn -Konzentration (C_{Rn}) von 650 Bq/l bei einer Quellschüttung (Q) von 40 Litern pro Minute beim Quellaustritt an der Placidusquelle zu ergeben.



Die Grösse des Untergrundes, aus dem $2.1 \cdot 10^8 \text{ Bq } ^{226}\text{Ra}$ ausgelaugt werden könnten, soll modellhaft durch Berechnen des Volumens eines Gesteinskörpers abgeschätzt werden.

Unter der Annahme, dass eine vollständige Auslaugung erfolgt, müssten von der Muttersubstanz ^{238}U ebenfalls $2.1 \cdot 10^8 \text{ Bq}$ vorhanden sein.



Da nur ein Teil des Radiums ausgelaugt und auf Fe-Hydroxiden deponiert wurde, ist dieses Volumen sicher erheblich grösser. Selbst bei nur 1% Auslaugung (Baertschi und Keil 1992) und Ablagerung wären aber immer noch nur $1.7 \cdot 10^5 \text{ m}^3$ Gestein nötig, was ein Würfel von 56 m Kantenlänge entspricht.

Auch wenn noch ein Faktor 100 für Verluste durch Zerfall des Radiums auf dem Weg vom Uran bis zum Fe-Hydroxid und des Radons vom Produktionsort (Fe-Hydroxid) bis zur Quelle berücksichtigt werden, beträgt das benötigte Gesteinsvolumen nur etwa $2 \cdot 10^7 \text{ m}^3$. Das ist ein Würfel mit einer Kantenlänge von weniger als 300 m. Zum Vergleich: beim Flimser Bergsturz waren $15 \text{ km}^3 = 1.5 \cdot 10^{10} \text{ m}^3$ Gestein in Bewegung (Würfel mit einer Kantenlänge von etwa 2.5 km).

Fazit: Hohe Rn-Konzentrationen wie bei der Placidusquelle brauchen weder hohe Urankonzentrationen im Einzugsgebiet noch extrem grosse Gesteinsmengen, die ausgelaugt werden können. Einzige Bedingung scheint eine genügend grosse Fe-Hydroxid Ablagerung für die Adsorption des Radiums nahe beim Quellaustritt zu sein. Eisen ist in der Umgebung der Placidusquelle reichlich in den Pyriten enthalten.

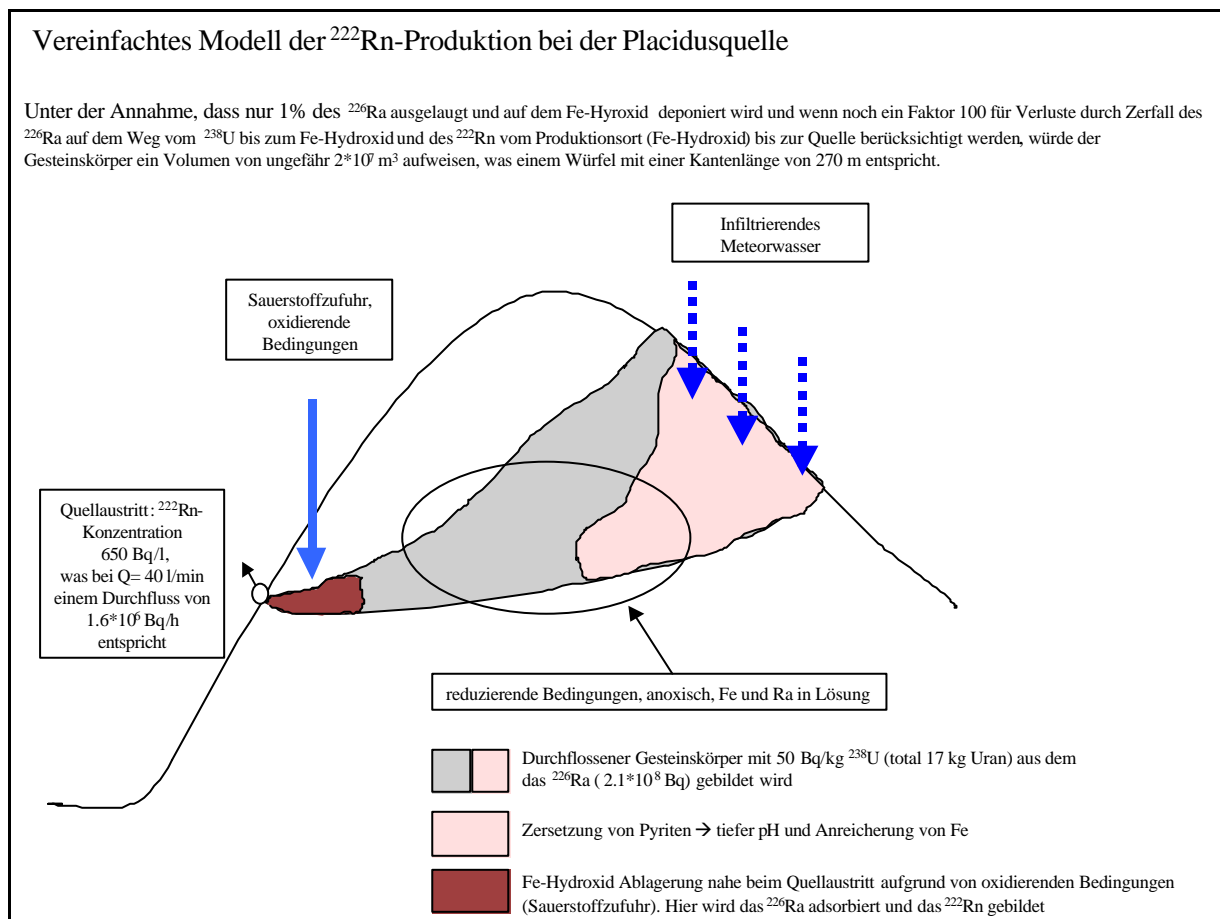


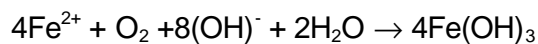
Abb. 61: Vereinfachtes Modell der ^{222}Rn -Produktion bei der Placidusquelle

9.1.7 Bildung von Eisenhydroxiden

Untersuchungen von ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{228}Ac und ^{137}Cs an Gesteinen in der näheren Umgebung der Placidusquelle haben gezeigt, dass diese keine erhöhten Aktivitätskonzentrationen aufweisen. Mikro- und makroskopische Untersuchungen des Gesteins bei der Quelle bestätigen die Resultate von Niggli (1944), wonach es sich bei den Felsformationen, aus denen die Placidusquelle entspringt um Orthogneise mit grünen Schieferungen handelt. In der Gegend der Placidusquelle sind häufig Gneise vorzufinden, welche mit Pyrit (FeS_2) angereichert sind. Zudem konnte durch ^{34}S -Isotopenmessungen

Diese Berechnungen zeigen, dass im Zeitraum von einem Jahr beim Quellaustritt eine Abweichung von 14'422 mol Fe²⁺ (= 805 kg Fe²⁺) auftritt. Diese negative Differenz bestätigt die Annahme, dass relativ grosse Eisenhydroxidablagerungen in der Nähe des Quellaustritts der Placidusquelle auftreten müssen, welche eine Adsorption des ²²⁶Ra und damit die Emanation des ²²²Rn ermöglichen.

Durch Betrachtung der Reaktion, bei der das Eisen zu Eisenhydroxid oxidiert wird, kann auf die benötigte Menge Wasser geschlossen werden, die benötigt wird, um 14'422 mol Fe²⁺ zum Ausfällen zu bringen.



Um die Hydroxide zu bilden, braucht es 4 Fe²⁺ Moleküle pro O₂ Molekül. Für ein Jahr braucht es somit 3'605 mol O₂ um die 14'422 mol Fe²⁺ zu fällen. Ein Liter sauerstoffgesättigtes Wasser enthält 10.4 mg O₂/l (= 0.325 mmol O₂/l). Die benötigte Menge an sauerstoffgesättigtem Wasser, um 14'422 mol Fe²⁺ zu fällen, kann folgendermassen berechnet werden.

$$V_{\text{H}_2\text{O gesättigt}} = 3'605 \text{ mol O}_2 / 0.325 \cdot 10^{-3} \text{ mol O}_2/\text{l} = 11'092'307 \text{ l} \\ = \underline{\underline{11'092 \text{ m}^3 \text{ O}_2\text{-gesättigtes Wasser/Jahr}}}$$

$$V_{\text{Placidus}} = 40 \cdot 60 \cdot 24 \cdot 365 = 21'024'000 \text{ l} = \underline{\underline{21'024 \text{ m}^3}}$$

Das Volumenverhältnis zwischen sauerstoffgesättigtem Wasser und dem Wasser der Placidusquelle beträgt somit:

$$V_{\text{H}_2\text{O gesättigt}} / V_{\text{Placidus}} \cdot 100 = \underline{\underline{53\%}}$$

Dieser Wert ist wahrscheinlich zu tief, weil bei dieser Berechnung von der Eisenmenge ausgegangen wurde, welche aus dem Pyrit entsteht. Daneben können aber auch andere Mineralien wie Chlorite oder Hämatite Eisen in das System einbringen. Diese Mineralien würde jedoch mehr Sauerstoff zur Bildung von Hydroxiden benötigen. Zudem können auch weitere vorhandenen Ionen wie Mn²⁺ oxidiert werden und Sauerstoff verbrauchen. Allerdings spielen diese chemischen Reaktionen wahrscheinlich eine eher untergeordnete Rolle. Tatsächlich würde für die Bildung der Eisenhydroxide mit sauerstoffgesättigtem Wasser etwa die Hälfte der effektiven Schüttung der Placidusquelle (etwa 20 l/min) ausreichen.

Bei diesen Hypothesen wird immer von Einzelmessungen der verschiedenen Parameter ausgegangen. Zudem wird angenommen, dass es sich bei der Placidusquelle bezüglich Schüttung und Zusammensetzung um eine sehr konstante Quelle handelt, was wahrscheinlich nicht immer zutrifft. Durch die Berechnungen der Massenbilanzen des Eisens und des Sulfates konnte jedoch gezeigt werden, dass es Sauerstoffeinträge in der Nähe der Placidusquelle haben muss, damit das Eisen, welches am Quellaustritt fehlt, auch ausfällen kann. Für die Bildung der hohen ²²²Rn-Konzentrationen beim Quellaustritt würden auch erheblich kleinere Eisenhydroxidablagerungen pro Jahr genügen. Für die Radonproduktion ist die gesamte Menge der möglicherweise über Tausende von Jahren abgelagerten Eisenhydroxide wesentlich, nicht die pro Jahr neu gebildete Menge. Daher würde auch ein sehr kleiner Zufluss von sauerstoffhaltigem Wasser über einen sehr langen Zeitraum genügen.

Die Konstanz der Radonkonzentration während des Hochwassereignisses im Oktober 2003 zeigt, dass der Zutritt des infiltrierten, sauerstoffreichen Niederschlagswassers nicht zwischen der Eisenhydroxidablagerung und dem Quellaustritt erfolgte. Dies ist ein weiterer Hinweis darauf, dass sich die Eisenhydroxidablagerung nahe beim Quellaustritt befindet.

9.1.9 Hydrogeologisches Fließmodell der Placidusquelle

Aufgrund der oben aufgeführten Beobachtungen, Messungen, Resultate und Bilanzen kann das vereinfachte Modell der ^{222}Rn -Produktion durch das folgende hydrogeologische Fließmodell ergänzt werden. Darin werden die möglichen Fließwege und die dabei ablaufenden hydrochemischen Reaktionen dargestellt.

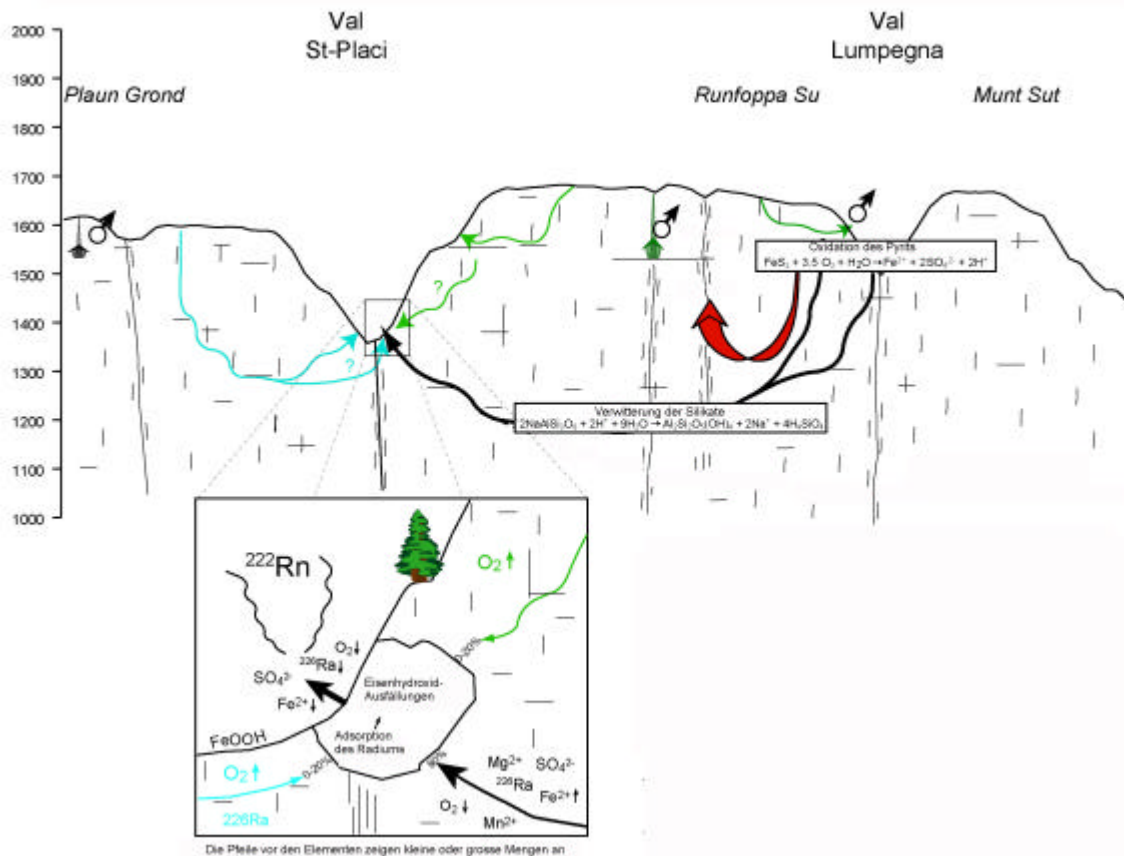


Abb. 62: Hydrogeologisches Fließmodell der Placidusquelle

Der Querschnitt verläuft parallel zum Vorderrheintal. Die grünen Pfeile symbolisieren die wenig mineralisierten Fließpfade, der rote Pfeil denjenigen der Quellen Runfoppa Sut. Die blauen Pfeile stellen die Wasserpfade der weiteren Quellen im Val Sogn Placi und des Klosters Disentis dar. Der schwarze Pfeil zeigt den Fließverlauf der Placidusquelle. Für die Placidusquelle sind grundsätzlich zwei hydrogeologische Herkünfte möglich. Die vergleichsweise hohe, konstante Temperatur von 7.5°C deutet darauf hin, dass die Placidusquelle durch ein regionales, thermales Tiefenwasser gespeist werden könnte. In diesem Fall sind die hydrogeologischen und hydrochemischen Abläufe vom unbekanntem Ort der Infiltration bis zum Quellaustritt sehr schwer zu charakterisieren. Die Annahme, dass es sich beim Wasser der Placidusquelle um ein lokales Grundwasser handelt, erlaubt dagegen die charakteristische Zusammensetzung der Placidusquelle erklären und ein vereinfachtes Fließmodell herzuleiten zu können.

Nach diesem Modell infiltriert das Niederschlagswasser in der Gegend Lumpegna-Munt Sut etwa 2 km nordöstlich der Placidusquelle auf etwa 1900 Meter über Meer (Gainon 2003). Durch Verwitterung des Pyrits, das in der Gegend reichlich vorhanden ist, reichert sich das Wasser mit Eisen, Sulfat und Protonen (H^+) an und wird aufgrund des Sauerstoffverbrauchs bei der Oxidation des Schwefels zu Sulfat immer stärker anoxisch. Dadurch entsteht ein Wasser mit sehr niedrigem pH, welches in der Lage ist, Silikate aufzulösen und dadurch weitere Ionen wie Mg^{2+} , Al^{3+} und H_4SiO_4 in das System einzubringen. In der Nähe der Quelle

gelangt ein mit Sauerstoff angereichertes Wasser in das System, so dass wieder oxidative Bedingungen vorliegen und das Eisen als Eisenhydroxid ausfällt. Diese Eisenhydroxidausfällungen adsorbieren sehr effizient das gelöste ^{226}Ra , welches sich somit in der Nähe der Quelle anreichert. An dieser Stelle findet die Bildung des ^{222}Rn durch Zerfall des ^{226}Ra statt. Das ^{222}Rn gelangt somit in hohen Konzentrationen zum Quellaustritt. Der Gehalt an Eisen ist beim Quellaustritt relativ niedrig, verglichen mit der Menge, welche unmittelbar vor der Quelle als Eisenhydroxid angereichert sein muss. Das Sulfat liegt beim Quellaustritt etwa in den gleichen Konzentration vor, wie am Ort der Entstehung beim Abbau des Pyrits, da es sehr beständig ist und kaum mit anderen Elementen interagiert.

9.2 Trinkwasserquelle Leis in Vals

9.2.1 Allgemeine Übersicht

Die Quelle Leis entspringt auf der westlichen Talseite des Valsertals etwa zwei Kilometer oberhalb von Vals. Die Quelfassung liegt 1577 Meter über Meer und weist die Koordinaten 731.980/163.410 der Landeskarte der Schweiz auf. Der Zugang zur Leisquelle erfolgt über eine Türe im Bachbett des Leisbaches. Durch diesen Zugang gelangt man in eine etwa zehn Meter in die Tiefe des Felsens reichende und etwa zwei Meter hohe Kaverne. Im hinteren Teil dieser Kaverne wird der kleine See durch eine Felsquelle von unten her gespiesen. Das Wasser wird unterhalb der Eingangstüre in einem Rohr gefasst und zum 50 Meter entfernten Reservoir geleitet. Es wird als Trinkwasser für die wenigen Häuser der Fraktion Leis benutzt.

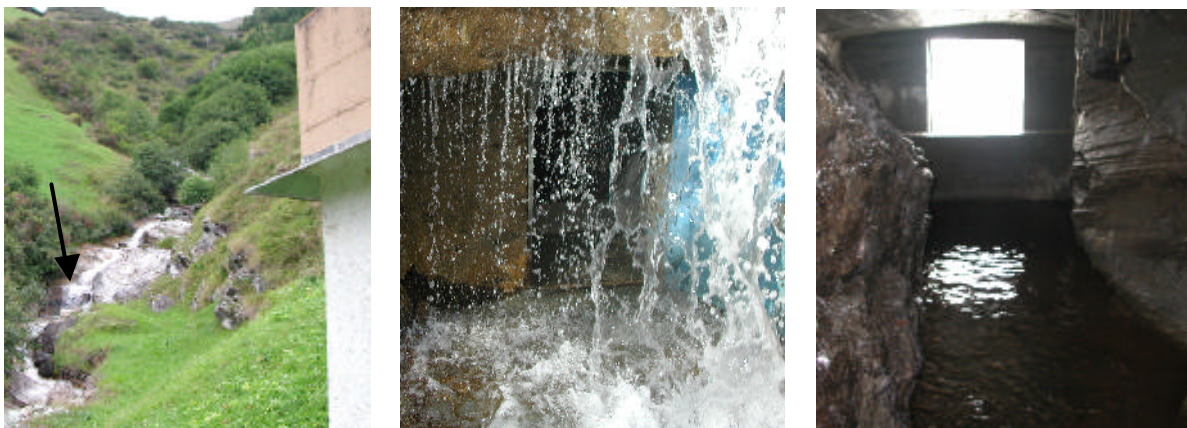


Abb. 63: Quelle Leis: Reservoir mit Blick auf Leisbach, wo die Eingangstüre zur Kaverne (Pfeil) liegt (links). Eingangstüre im Leisbach zur Kaverne (Mitte). Blick vom Quellaufstoss in der Kaverne nach aussen (rechts)

9.2.2 Geologische Übersicht

9.2.2.1 Felsgesteine und Felsoberfläche

Das Valsertal durchschneidet zwischen dem Zevreila-Stausee und Peiden alle tektonischen Einheiten des nördlichen Bündnerschiefergebietes. Das eigentliche Dorfgebiet von Vals liegt im unmittelbaren Stirnbereich der Adula-Decke und umfasst dementsprechend nur die unteren "Adula-nahen" Einheiten. Die Schichtflächen fallen generell mit 18-25° nach Nordosten ein, biegen aber nördlich und nordwestlich von Vals im eigentlichen Stirnbereich der Adula-Decke in eine subvertikale Lage um. Das südliche Dorfgebiet befindet sich noch auf dem kristallinen Kern der Adula-Decke. Entsprechend sind dort vor allem Gneise und Glimmerschiefer zu finden. Der Dorfkern liegt bereits im Bereich des Unteren Valser Mélange, ist aber vollständig mit Lockergesteinen bedeckt. Der Übergang vom Oberen Valser Mélange ist rund ein Kilometer östlich von Vals durch die markante Felsrippe der "Wissfluh" markiert. Nördlich von Vals steht die Aul-Schuppenzone mit den mächtigen, steilstehenden Aulmarmoren und Grüngesteinen an. Die Felsoberfläche fällt am Talhang mehr oder weniger hangparallel talwärts. Am Talrand fällt sie steil in den Untergrund ab und

die Felsmorphologie bildet in der Talebene vermutlich ein eiszeitlich geprägtes, trogförmiges Tal. Der tiefste Taleinschnitt ist von mächtigen Bachschutt/Schotter- und Bergsturzmaterial bedeckt und liegt gestützt auf reflexionsseismische Erkundungen vermutlich mehr als 100 Meter unter der heutigen Taloberfläche (Hartmann 1998).

9.2.2.2 Lockergesteine

In den höher gelegenen Berghängen besteht die quartäre Lockergesteinsbedeckung vor allem aus würmeiszeitlichen Moränen, welche oft zu Rutschungen oder Sackungen neigen. Vielfach ist das Moränenmaterial mit grobblockigem Hangschutt oder Felssturzmaterial vermischt. Die Mächtigkeit solcher Ablagerungen kann in einzelnen Gebieten schätzungsweise bis zu 50 Meter und mehr erreichen, wie durch die tiefen Materialabbaustellen für die Lawinenverbauungen auf der Leisalp unterhalb der Sattellücke belegt wird. An den Talflanken beiderseits von Vals sind ausserdem grössere postglaziale Fels- bis Bergstürze liegen geblieben. Das mächtigste Sturzereignis ist sicher der Bergsturz unterhalb des Felsgrates "Horn", welcher aufgrund seiner Morphologie vermutlich in mehreren Teilstürzen niedergegangen sein dürfte. Das eiszeitlich angelegte Valsertal wird zuunterst vermutlich durch feinkörnige Seeablagerungen aufgefüllt. Darüber folgen mächtige lehmig-kiesige Bachschutt- und sandig-kiesige Schotterablagerungen. Sie sind am Talrand häufig in wechselnder Folge mit grobblockigem Gehängelehm und -schutt verzahnt. Den obersten Talgrund bilden geringmächtige, feinkörnige Überschwemmungssedimente. Am Talrand liegt darüber oft versacktes Moränenmaterial, welches am Hangfuss stellenweise auf eine alte Bodenbildung überschoben wurde (Hartmann 1998).

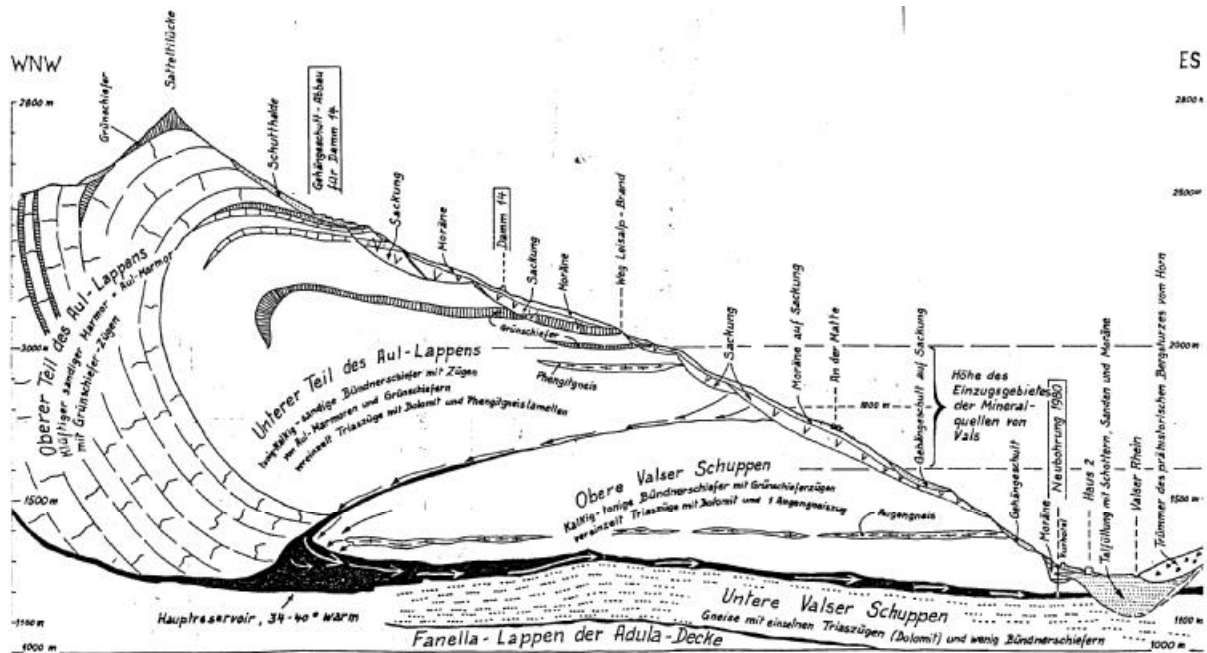


Abb. 64: Geologischer WNW-ES Schnitt der linken Talseite des Valsertals (Nabholz 1982). Dieser Schnitt verläuft etwa zwei Kilometer nördlich der Quelle Leis.

9.2.3 Hydrogeologische Verhältnisse

Im ganzen Gebiet um Vals treten an den Talflanken rund 300 Quellen aus. Es handelt sich dabei meistens um Quellen, bei denen keine tiefe Grundwasserzirkulation vorliegt. In der Regel tritt das Quellwasser aus quartären Lockergesteinen (Schuttquellen aus Hangschutt, versackter Moräne) oder hangparallelen Felsschichten (Felsquellen) aus. Aufgrund der geringen Zirkulationstiefe im Untergrund ist nur eine kurze Verweilzeit von wenigen Monaten bis Jahren zu erwarten. Das Infiltrationsgebiet dieser Quellen liegt meist unmittelbar oberhalb des Quellaustritts. Aufgrund der allgemein ostwärts einfallenden Schichten sind jeweils an der linken Talseite häufiger Quellen zu finden als an der rechten Talseite. Bei der Quelle Leis handelt es sich um eine Felsquelle, welche aus überwiegend kristallinen Gesteinen des Unteren Valser Mélange entspringt. Die natürliche Beschaffenheit des Quellwassers ist bei praktisch allen Quellen im Gebiet um Vals sehr ähnlich. Das Quellwasser ist im allgemeinen ein schwach mineralisiertes, weiches Wasser mit einem leicht basischen pH-Wert und enthält als Hauptbestandteile gelösten Kalk. Der Grundwasserspiegel liegt in der ganzen Talebene zwischen 0.5 – 3 Meter unter der Terrainoberfläche. Entsprechend ist die quartäre Lockergesteinsfüllung praktisch durchgehend wassergesättigt. Das Infiltrationsgebiet des Valser Mineralwassers soll gemäss einer Modellvorstellung von Nabholz (1985) auf einer mittleren Höhe von 1800 ± 200 Meter oberhalb der Quellen auf der Leisalp liegen. Dort versickert das Niederschlagswasser im Lockergestein und fliesst entlang der Grenze Obere Valser Schuppen/Aul-Lappen in die Tiefe, gelangt dort in grosse Triasvorkommen, wo das Wasser mineralisiert und bis auf eine Temperatur von 35-42°C aufgeheizt wird. Über den Grenz-Triaszug zwischen Unterem und Oberem Valser Schuppen gelangt dieses Mineralwasser schliesslich nach Vals, wo es sich beim Austritt mit Oberflächenwasser mischt.

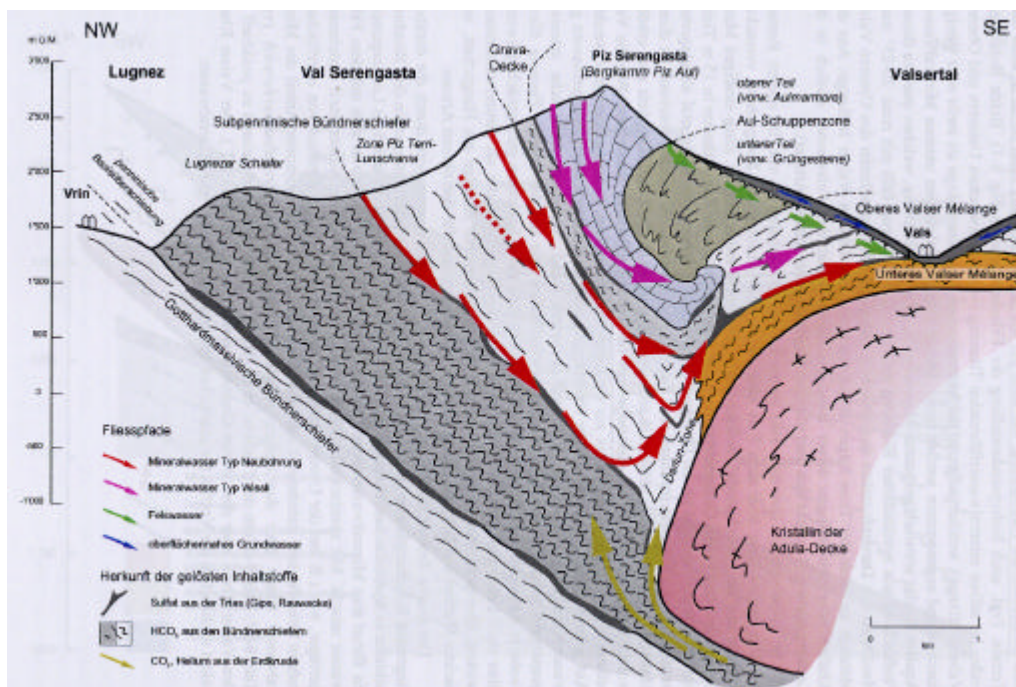


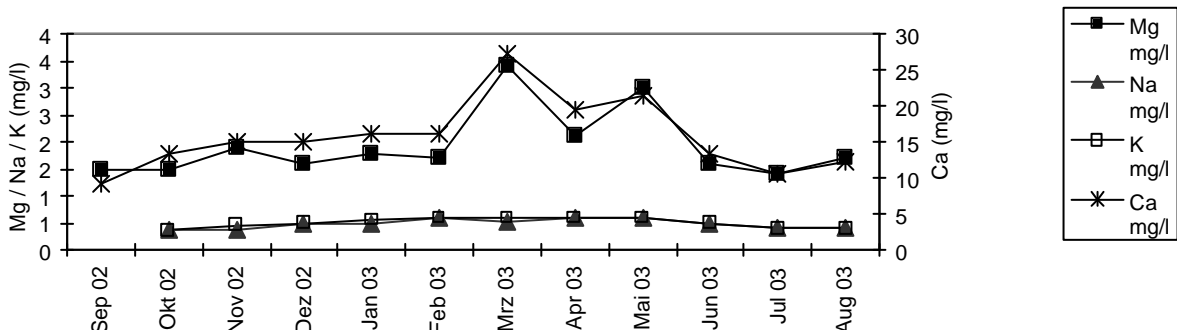
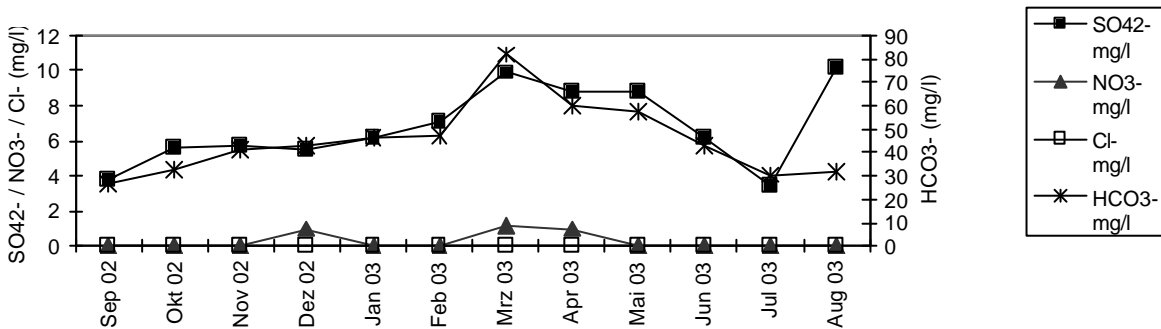
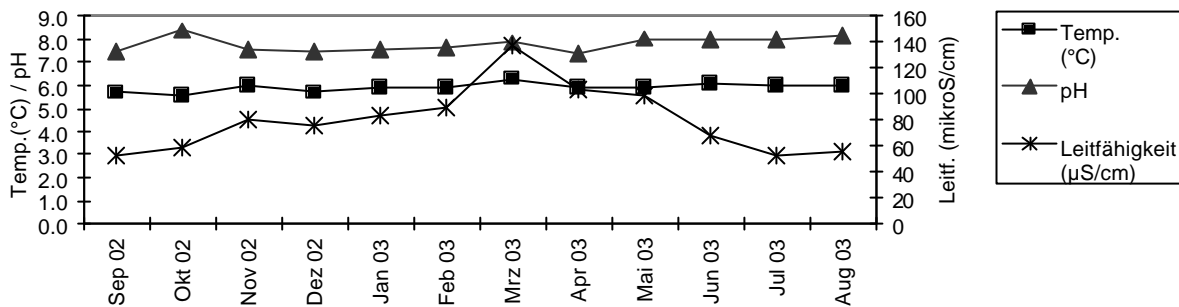
Abb. 65: Hydrogeologisches Fließmodell für die Mineralquellen von Vals (Hartmann 1998).

Nach Hartmann (1998) sind bei der Entstehung der Mineralquellen von Vals verschiedenartig entwickelte Grundwässer beteiligt. Die Einzugsgebiete dieser Wässer liegen beiderseits des Bergkammes des Piz Aul auf verschiedenen Höhenlagen. Die bis in unterschiedliche Tiefen reichenden Fließpfade führen zu einer separaten Entwicklung in der chemischen

Beschaffenheit und der Temperatur. Das eigentliche Mineral- und Thermalwasser von Vals gelangt über den Grenz-Triaszug zwischen Oberem und Unterem Valser Mélange nach Vals. Langjährige Tritium-Messreihen sowie Krypton-85-Messungen ergeben für das Mineralwasser eine breite Altersverteilung von rund 2-200 Jahren mit einem mittleren Alter von rund 80 Jahren. Im unteren Talabschnitt von Vals fließt das Mineralwasser aus einem unteren, artesisch gespannten Aquifer über den geklüfteten Fels teilweise ins Lockergestein. Dort mischt es sich in einem oberen Arteser mit einem schwächer mineralisierten, etwa 10-30 jährigen Grundwasser (Felswasser), welches aus dem aufgelockerten Felsbereich stammt. Die beiden artesischen Aquifere stehen in hydraulischer Verbindung und bewirken dadurch komplexe Mischungsverhältnisse im Bereich der Valser Mineralquellen.

9.2.4 Chemische und physikalische Wasseranalysen

Während einem Jahreszyklus wurde monatlich das Wasser der Quelle Leis beprobt, um die wichtigsten physikalischen Parameter, die chemischen Hauptkomponenten und die Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide zu untersuchen.



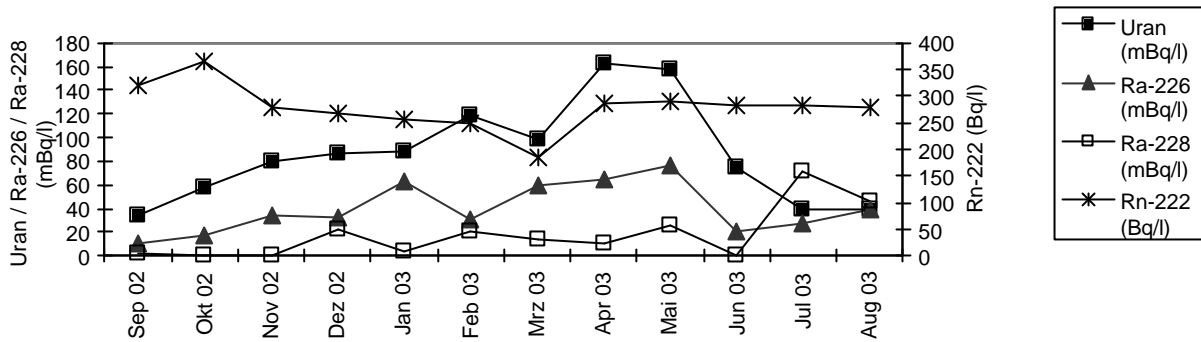


Abb. 66: Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Leis. Um die Figuren übersichtlicher zu halten wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Quelle Leis	Temp. °C	pH	Leitfähigkeit µS/cm	HCO ₃ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	²²⁶ Ra mBq/l	²²² Rn Bq/l	Uran mBq/l	²²⁸ Ra mBq/l
Max	6.3	8.4	137	82	<1.0	1.2	10.2	3.4	27	0.6	0.6	76	366	163	71.0
Mittelwert	5.9	7.8	80	45	<1.0	<1.0	6.8	1.9	16	0.5	0.5	39	279	87	18.1
Min	5.6	7.4	52	27	<1.0	<1.0	3.5	1.4	9	0.4	0.4	<15	186	35	<15

Tab. 11: Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Leis von September 2002 bis August 2003

9.2.4.1 Leitfähigkeit, Temperatur, pH

Die Mineralisation der Quelle Leis ist mit einer durchschnittlichen elektrischen Leitfähigkeit von 80 µS/cm sehr gering. Zusammen mit der Schneeschmelze im Frühling steigt die elektrische Leitfähigkeit jedoch bis auf 137 µS/cm an. Dies deutet paradoxerweise auf eine Infiltration von stärker mineralisiertem Oberflächenwasser hin. Mittels Isotopenmessungen mit $\delta^{18}\text{O}$ konnte gezeigt werden, dass die Quelle im Frühjahr durch einen hohen Anteil an jungem Schmelzwasser aus den Winterniederschlägen gespeist wird. Dementsprechend ist eine relativ kurze mittlere Verweilzeit von wenigen Monaten bis höchstens ein Jahr anzunehmen (Hartmann 1998). Die Temperatur schwankt nur sehr wenig zwischen 5.6 und 6.3°C. Der pH-Wert liegt um 7.8. Die Quelle scheint gut vor Oberflächeneinflüssen geschützt zu sein.

9.2.4.2 Ionenkonzentrationen

Einhergehend mit der geringen elektrischen Leitfähigkeit ist der Ionengehalt sowohl bei den Kationen als auch bei den Anionen sehr gering. Natrium, Kalium, Chlorid und Nitrat sind praktisch nicht vorhanden. Chemisch gesehen handelt es sich beim Wasser der Quelle Leis um ein sehr weiches Calcium-(Magnesium)-Hydrogenkarbonat-(Sulfat)-Wasser. Sowohl der Calcium- und Magnesiumgehalt wie auch der Gehalt an Hydrogenkarbonat und Sulfat steigen analog der Leitfähigkeit im Frühling zusammen mit der Schneeschmelze an.

9.2.4.3 Radionuklidkonzentrationen

Mit durchschnittlich 279 Bq/l weist die Quelle Leis eine der höchsten Konzentrationen an ²²²Rn in Graubünden auf. Im März fällt der Gehalt auf 186 Bq/l hinunter, was ebenfalls auf eine Verdünnung durch infiltrierendes Oberflächenwasser nahe beim Quellaustritt hinweist und die obige Annahme bestätigt. Die Urankonzentration steigt vom Herbst bis im Frühling kontinuierlich an (von 35 auf 163 mBq/l) mit einem kurzen Absinken im März. Im Laufe des Sommers nimmt der Urangehalt wieder kontinuierlich ab. Das Uran zeigt somit einen

ähnlichen Jahresverlauf wie das Hydrogenkarbonat und das Sulfat. Dies deutet auf ein oberflächennahes Grundwasser hin, wo das Uran in gut mobilisierbaren Uranyl (UO_2^{2+})-Komplexen vorliegt und unter anderem Verbindungen mit Anionen wie Hydrogenkarbonat und Sulfat bildet (Langmuir 1979). Die mittleren Konzentrationen von ^{226}Ra (39 mBq/l) und ^{228}Ra (18 mBq/l) liegen im gleichen Bereich wie die übrigen rund 360 untersuchten Trinkwässer in Graubünden.

9.3 Mineralwasserquelle Bergün

Die Mineralquelle Bergün liegt auf dem Gebiet der Gemeinde Bergün, unmittelbar nach dem Eingang zum Val Tuors, an dessen Südflanke auf ca. 1440 Meter über Meer (Landeskoordinaten 777'650 / 166'910). Sie ist von der Talstrasse leicht über einen Fussweg zu erreichen.



Abb. 67: Reservoir der Mineralwasserquelle Bergün: Aussenansicht (links) und Quelleinlauf innen (rechts)

9.3.1 Geologische Übersicht

In Anbetracht der komplexen geologischen Verhältnisse in der Umgebung von Bergün beschränkt sich diese geologische Übersicht auf das für die Quelle Bergün massgebliche Gebiet zwischen Val Tisch und Val Tuors. Darin befinden sich Alp Darlux, Piz Darlux, Tschimas da Tisch und Piz Freglas. Es können hier zwei oberostalpine tektonische Einheiten unterschieden werden. Die Ela-Decke und die Silvretta-Decke. Die Ela-Decke taucht im Val Tisch als Synklinale (Mulde) nach Norden ab und erscheint im unteren Val Tuors als Antiklinale (Gewölbe) wieder, wo sie den Talgrund und die Terrasse von Latsch bildet. Die Silvretta-Decke ist als Verkehrtserie ("auf dem Rücken" liegender Deckenteil) auf die Ela-Decke aufgeschoben und liegt heute in deren muldenförmigen Struktur. Sie bildet u.a. die vorgenannten Bergspitzen Darlux, Tisch und Freglas. Die geologische Schichtabfolge der Silvretta-Decke vom Piz Darlux bis zur Überschiebungsfläche auf die Ela-Decke ist also eine Verkehrtserie, d.h. die älteren Schichten liegen oben und jüngeren unten. Sie ist wie folgt gegliedert:

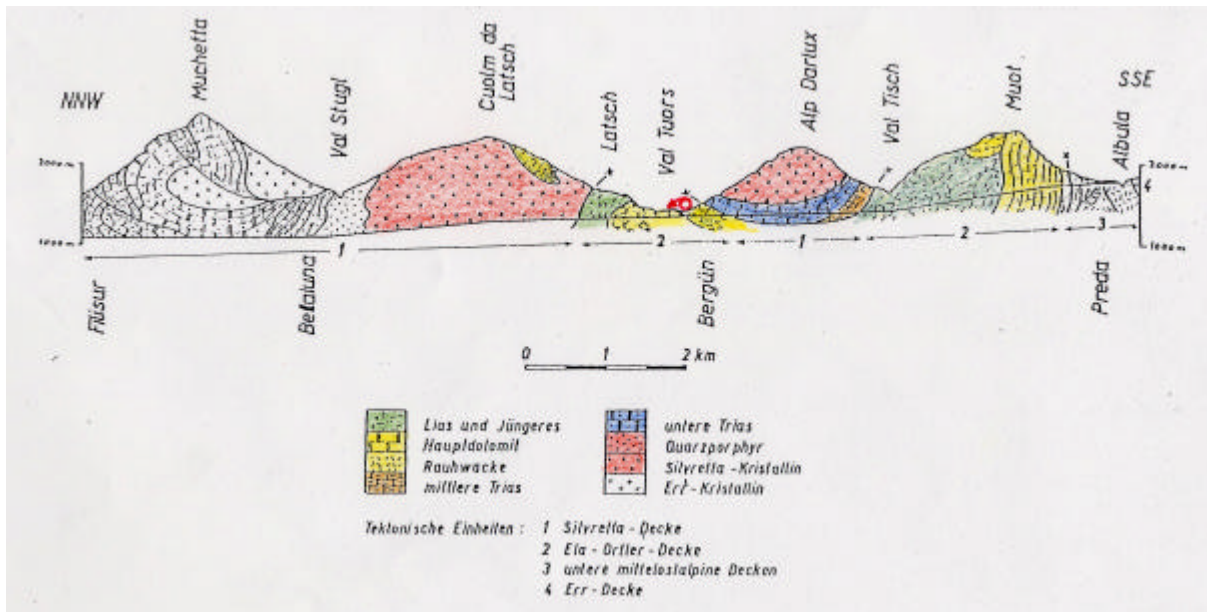


Abb. 68: Generelles Querprofil durch die Berge östlich der Route Filisur-Preda (Rissi 1992)

- 2573 - 2300 m ü. M. Altkristalline Gesteine, vorw. Gneise, Alter: Präperm
- 2300 - 1800 m ü. M. Eruptivgesteine: Quarzporphyr Sedimentgesteine: Verrucano und Buntsandstein, Alter: Perm
- 1800 - 1600 m ü. M. Sedimentgesteine: Kalke und Dolomite mit Gipseinlagerungen. Alter: Trias

Die darunter liegende Schichtabfolge der Ela-Decke im Bereich der Mineralquelle Bergün ist tektonisch stark beansprucht und kann summarisch wie folgt beschrieben werden:

- 1600 - 1400 m ü. M. Sedimentgesteine: vorwiegend Dolomite und Dolomitbreccien, unter geordnet Gips und Tonschiefer. Alter: Trias

Auf der nördlichen Seite des Val Tuors sind noch jüngere Schichten der Ela-Decke, die Allgäuschiefer, aufgeschlossen. Sie bilden die Terrasse von Latsch (Rissi 1992).

9.3.2 Hydrogeologische Verhältnisse

Im Untersuchungsgebiet sind zahlreiche Quellaustritte bekannt, die aber sehr unterschiedliche Ergiebigkeiten und Wasserqualitäten aufweisen. Es werden folgende Quellentypen unterschieden:

Hangschutt-Quellen

Sie liegen am Fusse von Schutthalden oder mitten in Abhängen, wo wasserdurchlässige Lockergesteine nach unten hin von undurchlässigen begrenzt sind, und dadurch das Hangschuttwasser an die Oberfläche gedrängt wird. Diese Quellen weisen je nach Niederschlags und Schneeschmelzverhältnissen meist grosse jahreszeitliche und z.T. sogar tägliche Ergiebigkeits- und Temperatur-Schwankungen auf. Ihre Wässer haben eine kurze Verweilzeit im Untergrund und sind zum allergrössten Teil kaum oder nur unwesentlich mineralisiert.

Felsquellen

Sie ergiessen sich aus anstehenden Felsformationen wie Spalten (Klüften), Karstlöchern (z.B. Kalke) oder flächenhaft aus porösem Gestein (z.B. Sandstein). Die Qualität und die Mineralisierung dieser Wässer sind abhängig von

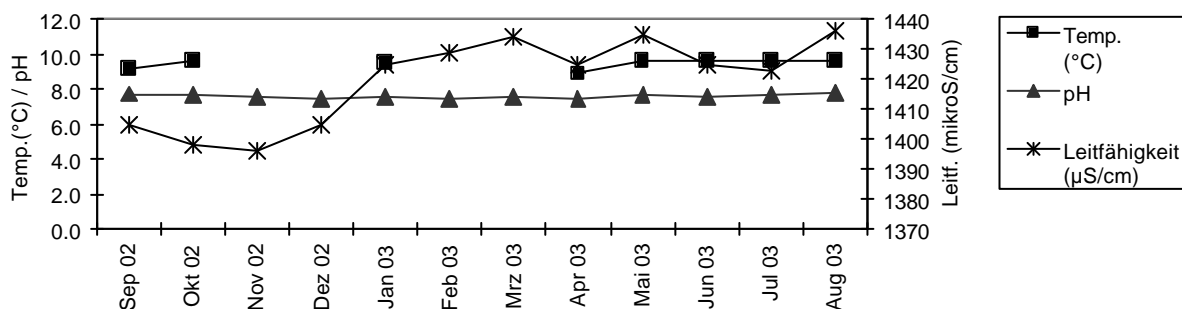
- der Herkunft des Wassers (juvenil, aus grosser Tiefe oder von Sickerwasser)
- der Qualität des zuvor versickerten Wassers
- der Art der Wasserzirkulation im Untergrund (Kluft-, Poren- oder Karstzirkulation)
- der Mineralogie des Grundwasserleiters und
- der Geometrie des Grundwasserleiters (Form und Mächtigkeit).

Bei den Felsquellen im Gebiet Val Tuors kann davon ausgegangen werden, dass sie durch ehemals versickertes Niederschlags- oder Schmelzwasser gespeisen werden und dass die Versickerung grösstenteils durch Klüfte und zum kleineren Teil durch Poren erfolgt. Für die Zirkulation im Untergrund sind ebenfalls Kluftsysteme in den Kristallingesteinen und Kluftsysteme mit feinen Karstbildungen in den dolomitisch-kalkigen Gesteinen und nur untergeordnet poröse Gesteine anzunehmen. Hingegen können Klüfte mit körnigem Material verfüllt sein, wodurch dann in diesen Klüften eine Porenzirkulation stattfindet.

Die Mineralquelle Bergün entspringt im untersten Val Tuors aus der Serie des Hauptdolomites mit eingeschuppten, gipsführenden Raiblerschichten. Sie ist seit vielen Jahrzehnten bekannt und wurde schon früh als Trinkwasser genutzt und als Limonade in Flaschen abgefüllt. In den Jahren 1970/71 wurde die Quelle neu gefasst. Das aus der Felsformation austretende Mineralwasser wird in einem Kies-/Sandfilter mittels einer drei Meter langen Sickerleitung (Fassungsstrang) gefasst und über ein Vollrohr in die Brunnenstube geleitet. Die Filterstrecke ist mit einer Betonplatte abgedeckt. Diese Betonplatte und die Vollrohrstrecke ist mit lehmigem Füllmaterial überdeckt und abgedichtet. Von der Brunnenstube führt eine Ableitung bis ins Dorf Bergün. Am Eingang zum Val Tuors wird ein öffentlich zugänglicher Laufbrunnen mit diesem Wasser gespeist (Rissi 1992).

9.3.3 Chemische und physikalische Wasseranalysen

Es wurden von verschiedenen amtlichen und auch privaten Laboratorien bereits sehr viele Wasseranalysen sowie eine Isotopenmessung durchgeführt. Die chemischen Analysen zeigen sehr einheitliche Ergebnisse. Einzig zwischen 1968 und 1989 wird eine leichte Verminderung der Mineralisation von 1437 auf 1362 mg/l festgestellt. Ob dies mit den analytischen Methoden oder mit der Neufassung der Quelle im Jahr 1970 oder mit natürlichen Begebenheiten im Zusammenhang stand, kann im Nachhinein nicht abschliessend beantwortet werden. Auf jeden Fall steht heute fest, dass die Werte seit 1989 gleich geblieben sind. Zusätzlich wurde während einem Jahreszyklus monatlich das Wasser der Mineralquelle Bergün beprobt, um die wichtigsten physikalischen Parameter, die chemischen Hauptkomponenten und die Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide zu untersuchen.



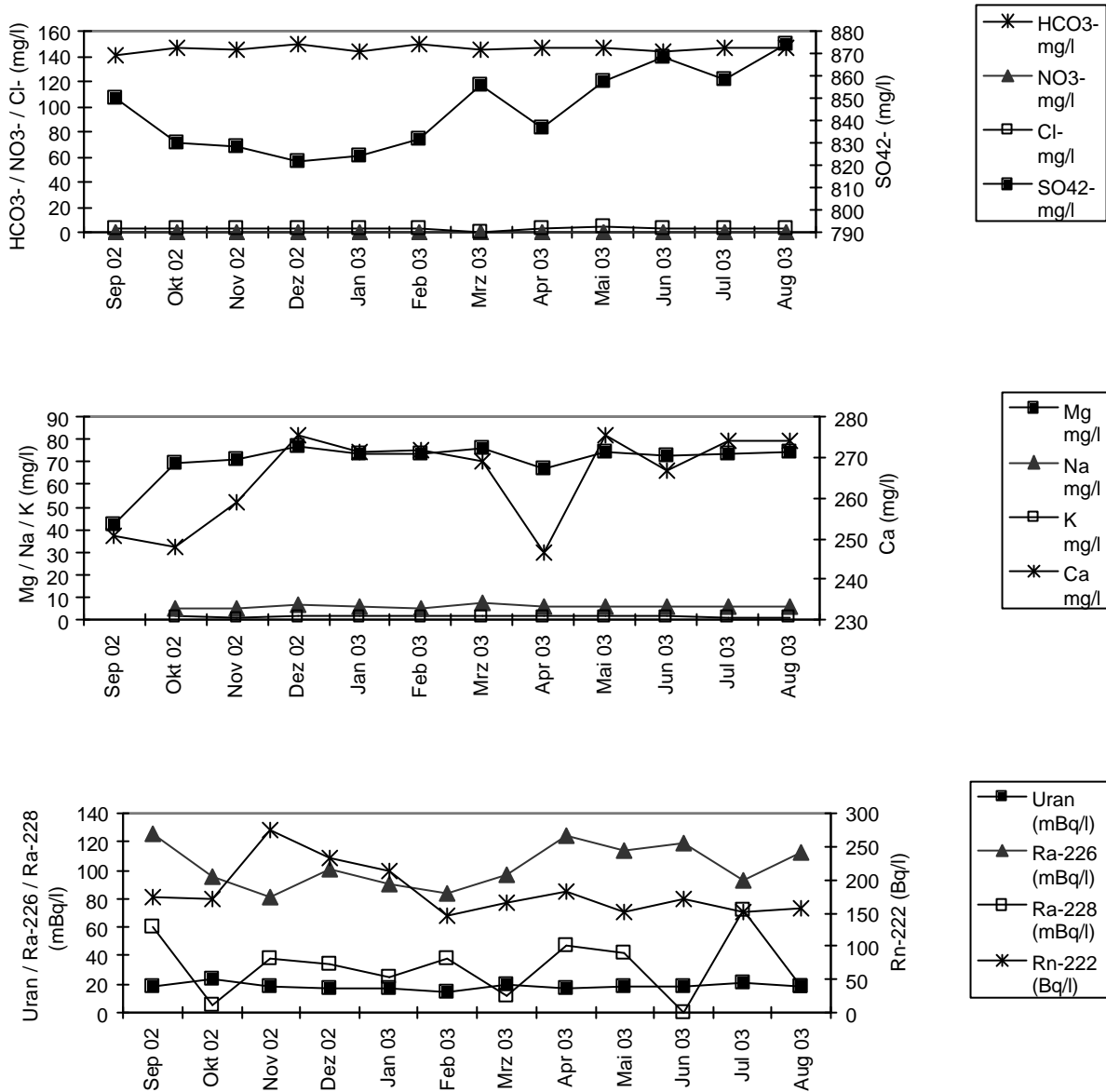


Abb. 69: Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Mineralwasserquelle Bergün. Um die Figuren übersichtlicher zu halten wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Bergün	Temp. °C	pH	Leitfähigkeit µS/cm	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	²²⁶ Ra mBq/l	²²² Rn Bq/l	Uran mBq/l	²²⁸ Ra mBq/l
Max	9.6	7.8	1436	150	5.1	<1.0	874	77	276	7.6	1.5	126	274	24	72
Mittelwert	9.45	7.6	1420	146	3.4	<1.0	845	70	265	6.0	1.4	103	182	19	33
Min	8.9	7.4	1396	142	2.6	<1.0	822	42	247	5.2	1.1	81	145	14	0

Tab. 12: Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Mineralwasserquelle Bergün von September 2002 bis August 2003

9.3.3.1 Leitfähigkeit, Temperatur, pH

Die Mineralisation der Mineralquelle Bergün ist mit einer durchschnittlichen elektrischen Leitfähigkeit von 1420 $\mu\text{S}/\text{cm}$ sehr hoch. Die Schwankung innerhalb der Messperiode ist sehr gering und liegt etwas über 1%. Auffallend sind auch die über das ganze Jahr hinweg äusserst geringen Schwankungen der Wassertemperatur von 8.9 bis 9.6°C, die zudem einiges über dem Jahresmittel von ca. 0 bis 5°C liegt und dem pH-Wert um 7.6. Daraus kann geschlossen werden, dass dieses Quellwasser aus grösserer Tiefe, bzw. aus dem tiefen Berginnern stammt (Rissi 1992). Die Angaben über die Quellergiebigkeit liegen zwischen 150 und 160 l/Min. Es kann immerhin festgehalten werden, dass auch dieser Parameter keine grossen Schwankungen aufweist, was ebenfalls auf eine entferntere Herkunft des Quellwassers schliessen lässt.

9.3.3.2 Ionenkonzentrationen

Einhergehend mit der hohen elektrischen Leitfähigkeit ist der Ionengehalt sowohl bei den Kationen als auch bei den Anionen sehr hoch. Chemisch gesehen handelt es sich beim Wasser der Mineralquelle Bergün um ein sehr hartes Calcium-Magnesium-Sulfat- (Hydrogenkarbonat)-Wasser. Natrium (6 mg/l) und Chlorid (3.4 mg/l) sind nur in kleinen Konzentrationen vorhanden, während Kalium und insbesondere Nitrat nur sehr gering oder gar nicht vorhanden sind. Alle Analysen bescheinigen dem Mineralwasser eine einwandfreie Qualität sowohl in chemischer, als auch in hygienischer Hinsicht. Die Werte sind unter Berücksichtigung der jeweiligen Messunsicherheit der einzelnen Parameter als sehr konstant zu bezeichnen. Die Aufnahme des Sulfates muss in der gipsführenden Trias, in den Raiblerschichten, also unter den mächtigen Gesteinsmassen von Altkristallins und Perm, stattfinden. Anhand der Isotopengehaltsbestimmungen im Laboratorium Hydroisotop in Attenkirchen von 1990 wurden mögliche Verweilzeiten von unter 2 Jahren oder von etwa 100 Jahren ermittelt. Aufgrund der kleinen Schüttungsschwankungen wurde die längere Verweilzeit als Grundlage angenommen und daraus ein vorhandenes Grundwasservolumen von $7,9 \cdot 10^6 \text{ m}^3$ abgeschätzt. Diese Menge würde ungefähr einem nutzbaren Wassergehalt von 1% in 1 km^3 Gestein entsprechen. Im möglichen Einzugsgebiet der Quelle Bergün zwischen Val Tuors und Val Tisch sind zwar mehrere km^3 Fels- und Lockergesteine vorhanden. Eine entsprechende hydrogeologische Bilanzierung kann jedoch nicht vorlegt werden, da das Entwässerungsregime der gewaltigen Gesteinsmasse nur bruchstückhaft bekannt ist. Über die Verweilzeiten des Wassers im Untergrund kann heute keine verbindliche Aussage gemacht werden. Es muss aber angenommen werden, dass das Quellwasser wahrscheinlich Wässer verschiedenen Alters beinhaltet. Das Wasser der Mineralquelle Bergün ist nachgewiesenermassen seit 1930 von bester Qualität. Sie ist als Mineralquelle offiziell anerkannt. Die gesetzlichen Grundwasserschutzzonen wurden bereits ausgeschieden. Chemismus, Temperatur und Ergiebigkeit schwanken nur in engem Rahmen. Die Quelle wird mit grosser Wahrscheinlichkeit durch Niederschlagswasser gespeist, das in der grossen Gebirgsmasse zwischen dem Val Tuors und dem Val Tisch entlang Klüften versickert und durch verschiedene Gesteinsserien zur Quelle zirkuliert (Rissi 1992).

9.3.3.3 Radionuklidkonzentrationen

Mit durchschnittlich 103 mBq/l weist die Mineralquelle Bergün eine der höchsten Konzentrationen an ^{226}Ra in Graubünden auf. Die Schwankungsbreite zwischen dem Maximalwert von 126 mBq/l und dem Minimalwert von 81 mBq/l liegt innerhalb der methodenbedingten, geschätzten Messunsicherheit von 30%. Dieser hohe ^{226}Ra -Gehalt erstaunt um so mehr, als das Mineralwasser mit durchschnittlich 182 Bq/l (Maximalwert 274 Bq/l) auch einen relativ hohen Gehalt an ^{222}Rn aufweist. Die mittleren Konzentrationen von ^{238}U (19 mBq/l) und ^{228}Ra (33 mBq/l) liegen im gleichen Bereich wie die übrigen rund 400 untersuchten Mineral- und Trinkwässer in Graubünden.

9.4 Trinkwasserquellen im Val Poschiavo

9.4.1 Geologische Übersicht

Der Felsuntergrund im Val Poschiavo besteht im wesentlichen aus Gesteinen von zwei tektonischen Einheiten. Die Unterostalpine Einheit beinhaltet primär das aus einzelnen Deckenteilen bestehende Bernina-Kristallin. Es baut im Südteil die linke Talflanke auf und bildet ungefähr ab Poschiavo nordwärts Hänge beider Talseiten. Der Fels ist über weite Strecken aufgeschlossen und relativ steil abfallend. Lokal ist er versackt und mit Gehängeschutt oder Moränenmaterial bedeckt. Beim Gestein handelt es sich vorwiegend um Ortho- und Paragneise. Die Penninische Einheit liegt unter dem Bernina-Kristallin und ist lokal im südwestlichen Teil von Poschiavo aufgeschlossen. Sie beinhaltet Kristallin- und Sedimentgesteine der Margna-Sella-Decke, die hier eine ostwärts abtauchende Antiklinale bildet. Das Kristallin besteht hauptsächlich aus Paragneisen und Paraschiefer. Die spätere glaziale Überprägung führte zur Bedeckung der Hänge mit Lockergesteinen. So ist die Felsoberfläche weitenteils vorwiegend unter Moränenmaterial verborgen. Die Gesamtmächtigkeit der Talfüllung mit Lockergestein beträgt im Gebiet von Pagnoncini etwa 160 Meter und nimmt gegen Poschiavo tendenziell ab (Sieber et al. 1993).

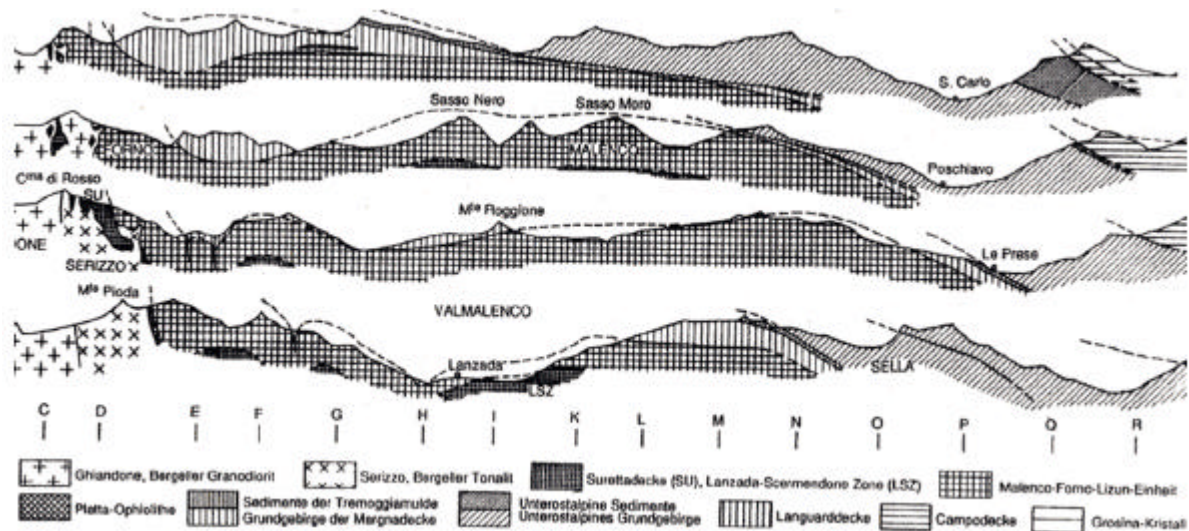


Abb. 70: Ost-West Profile zur tektonischen Karte des Berninamassivs und angrenzender Gebiete (Spiellmann 1993)

9.4.2 Hydrogeologische Verhältnisse

Der Talboden des Val Poschiavo kann in drei grössere, voneinander weitgehend unabhängige Grundwassergebiete eingeteilt werden. Das Grundwassergebiet des Lago di Poschiavo, das Grundwassergebiet um das Dorf Poschiavo und das Grundwassergebiet Ravisce. Die einzelnen Grundwassergebiete werden gegen einander durch die seitlichen, praktisch undurchlässigen Bachschuttfächer abgegrenzt. In den Bachschuttfächern sind in der Regel oberflächennah mässig bis gut durchlässige Bachschuttschichten anzutreffen. Sie sind grundwasserführend und bilden in den Randbereichen zu den Alluvionen des Talbodens randliche Bestandteile des Grundwasserleiters. Unter diesen oberflächennahen, durchlässigen Schichten folgen stark lehmhaltige, schlecht durchlässige Schichten (Sieber et al. 1993). An den Talflanken sind zahlreiche Quellaustritte bekannt, die aber sehr unterschiedliche Ergiebigkeiten und Wasserqualitäten aufweisen. Dabei handelt es sich sowohl um Felsquellen wie auch um Hangschuttquellen.

9.5 Trinkwasserquelle Pedecosta

9.5.1 Allgemeine Übersicht

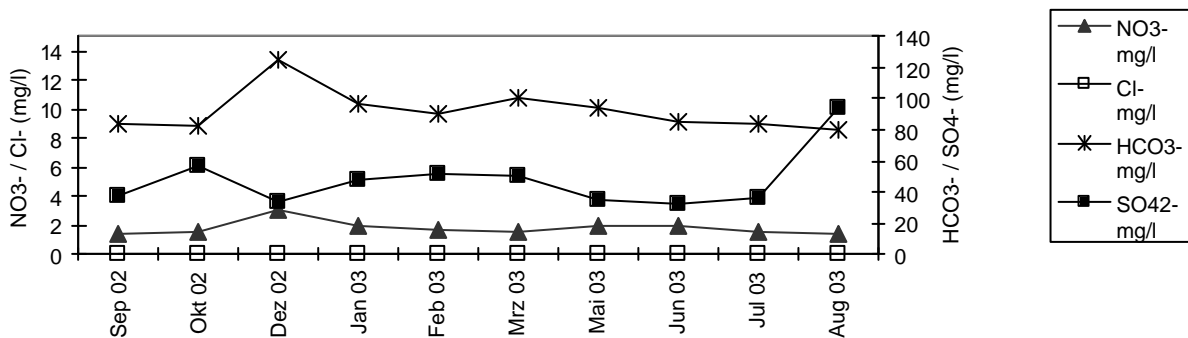
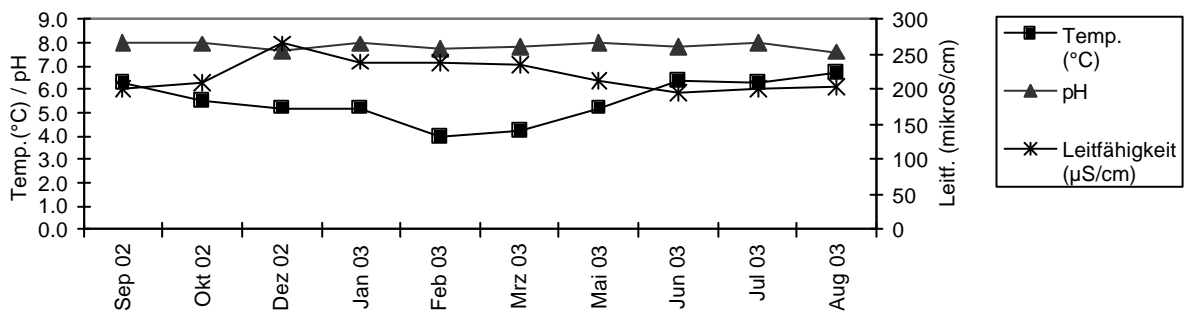
Die untersuchte Quelle von Pedecosta entspringt auf der östlichen Talseite des Val Poschiavo. Das neue Reservoir von Pedecosta, wurde im 2000/2001 neu erstellt und liegt wenige Meter oberhalb der Kantonsstrasse auf 1280 Meter über Meer mit den Koordinaten 803.100/137.600 der Landeskarte der Schweiz. Die Quelfassung befindet sich rund 100 Meter oberhalb des Reservoirs im Val da Li Acqui Marsci.



Abb. 71: Reservoir der Quelle Pedecosta: Aussenansicht (links) und Quelleinlauf innen (rechts)

9.5.2 Chemische und physikalische Wasseranalysen

Während einem Jahreszyklus wurde monatlich das Wasser im Reservoir der Quelle Pedecosta beprobt, um die wichtigsten physikalischen Parameter, die chemischen Hauptkomponenten und die Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide zu untersuchen.



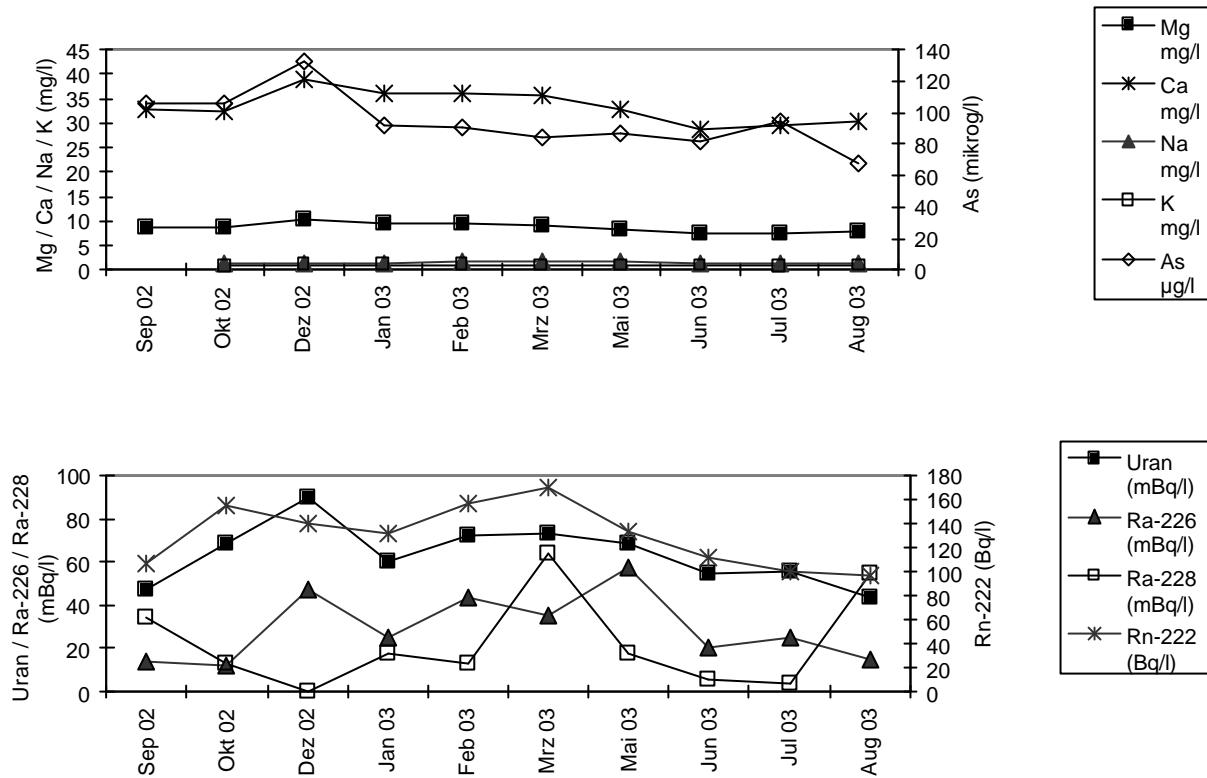


Abb. 72: Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Pedecosta. Um die Figuren übersichtlicher zu halten wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Pedecosta	Temp. °C	pH	Leitfähigkeit µS/cm	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	As µg/l	²²⁶ Ra mBq/l	²²² Rn Bq/l	Uran mBq/l	²²⁸ Ra mBq/l
Max	6.7	8.0	265	125	<1.0	3.1	94	10.3	39	1.9	1.0	133	57	169	89	64
Mittelwert	5.5	7.8	220	92	<1.0	1.8	48	8.7	33	1.5	0.9	94	30	130	63	22
Min	4.0	7.6	194	81	<1.0	1.4	32	7.5	29	1.3	0.8	67	12	96	43	<15

Tab. 13: Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Pedecosta von September 2002 bis August 2003

9.5.2.1 Leitfähigkeit, Temperatur, pH

Die Mineralisation der Quelle Pedecosta ist mit einer durchschnittlichen elektrischen Leitfähigkeit von 220 µS/cm eher gering. Die jahreszeitliche Schwankungsbreite von 70 µS/cm ist jedoch ziemlich hoch. Die Temperatur schwankt innerhalb des Jahreszyklus um fast 3°C zwischen 4.0 und 6.7°C. Der pH-Wert liegt um 7.8. Die Quelle scheint durch oberflächennahes Grundwasser gespeist zu werden, das recht stark auf Oberflächeneinflüsse reagiert.

9.5.2.2 Ionenkonzentrationen

Einhergehend mit der geringen elektrischen Leitfähigkeit ist der Ionengehalt sowohl bei den Kationen als auch bei den Anionen eher gering. Natrium, Kalium, Nitrat und Chlorid sind praktisch nicht vorhanden. Chemisch gesehen handelt es sich beim Wasser der Quelle Pedecosta um ein weiches Calcium-Magnesium-Hydrogenkarbonat-Sulfat-Wasser. Die

Quelle zeichnet sich durch ihren hohen Arsengehalt aus, der im Bereich von 67 bis 133 $\mu\text{g/l}$ jedoch stark schwankt.

9.5.2.3 Radionuklidkonzentrationen

Sämtliche natürliche Radionuklide kommen in der Quelle Pedecosta in erhöhten Konzentrationen vor, die deutlich über diejenigen anderer Trinkwässer in Graubünden liegen. Die Maximalwerte liegen für ^{222}Rn bei 169 Bq/l, für ^{226}Ra bei 57 mBq/l, für ^{228}Ra bei 64 mBq/l und für Uran bei 89 mBq/l. Die Konzentrationen unterliegen jedoch auch grösseren Schwankungen innerhalb eines Jahres. Das Uran zeigt einen ähnlichen Jahresverlauf wie das Hydrogenkarbonat und das Arsen. Dies deutet auf ein oberflächennahes Grundwasser hin, wo das Uran in gut mobilisierbaren Uranyl (UO_2^{2+})-Komplexen vorliegt und unter anderem Verbindungen mit Anionen wie Hydrogenkarbonat bildet (Langmuir 1979).

9.6 Trinkwasserquellen Pagnoncini

9.6.1 Allgemeine Übersicht

Die untersuchten Quellen von Pagnoncini entspringen auf der östlichen Talseite des Val Poschiavo. Das Reservoir von Pagnoncini liegt auf 1050 Meter über Meer und weist die Koordinaten 803.600/131.400 der Landeskarte der Schweiz auf. Diese Trinkwasserversorgung wurde im 1914/1915 erstellt und ist somit fast 90 Jahre alt. Das Reservoir wird von den beiden Quellen "Al Bait", welche rund 100 Meter südwestlich vom Reservoir im Wald gefasst wird und "Sass da Li Rondolli", welche rund 150 Meter nordöstlich direkt unter einem emporgragenden Felsen entspringt, gespeisen.



Abb. 73: Quellen in Pagnoncini: Reservoir Pagnoncini (links), Quelle Al Bait (Mitte) und Quelle Sass da Li Rondolli (rechts)

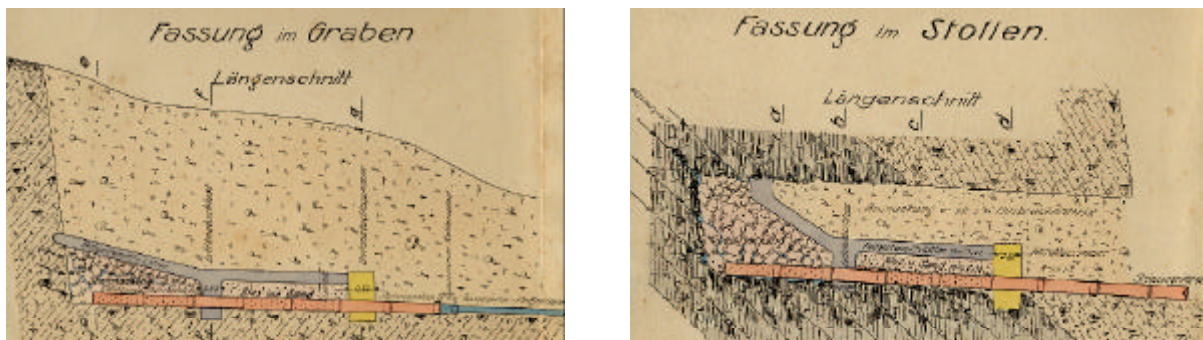


Abb. 74: Längenschnitt der Quellfassungen Al Bait (links) und Sass da Li Rondolli (rechts) 1914/1915

9.6.2 Chemische und physikalische Wasseranalysen

Während einem Jahreszyklus wurde monatlich das Wasser der Quellen Al Bait und Sass da Li Rondolli beprobt, um die wichtigsten physikalischen Parameter, die chemischen Hauptkomponenten und die Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide zu untersuchen.

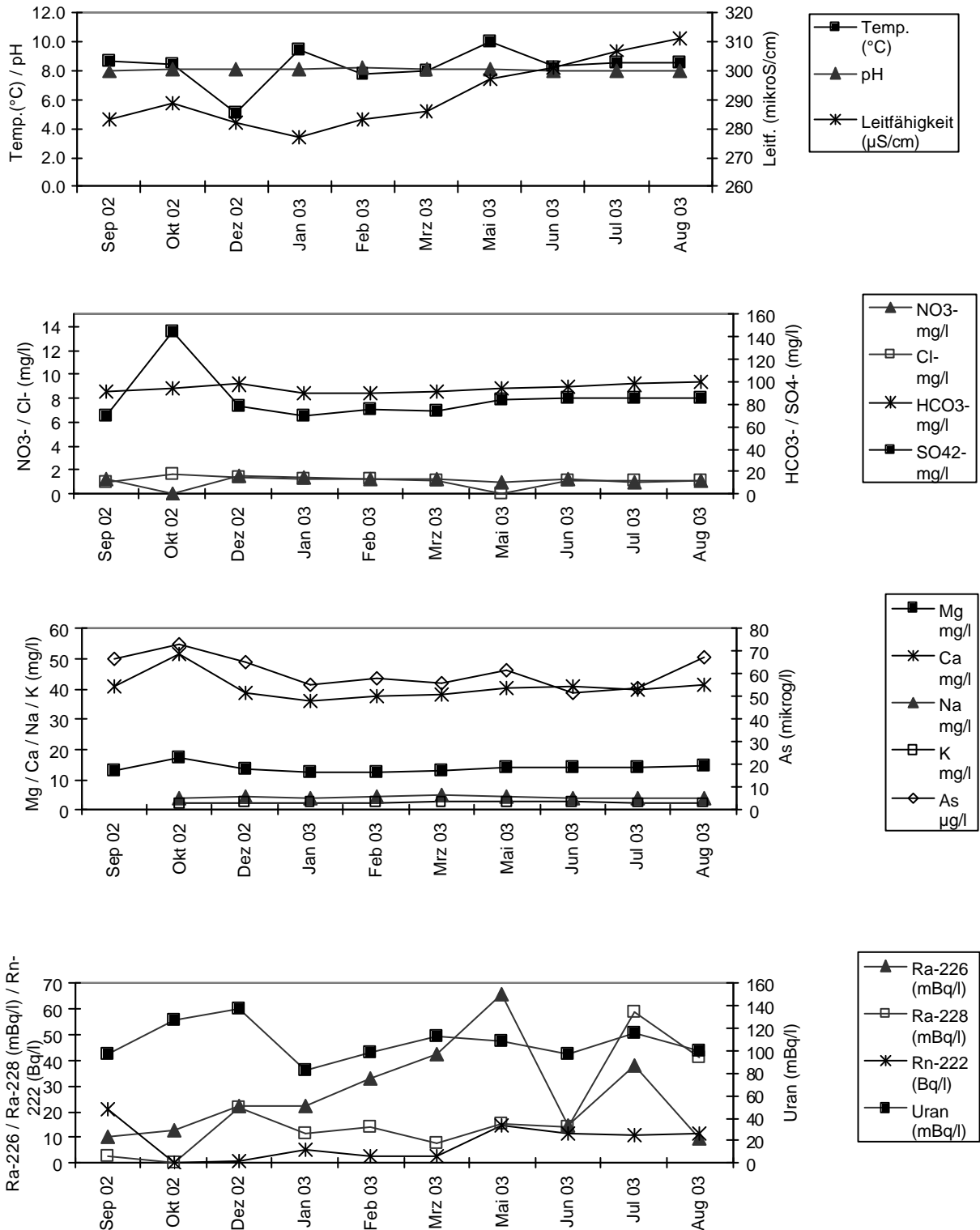
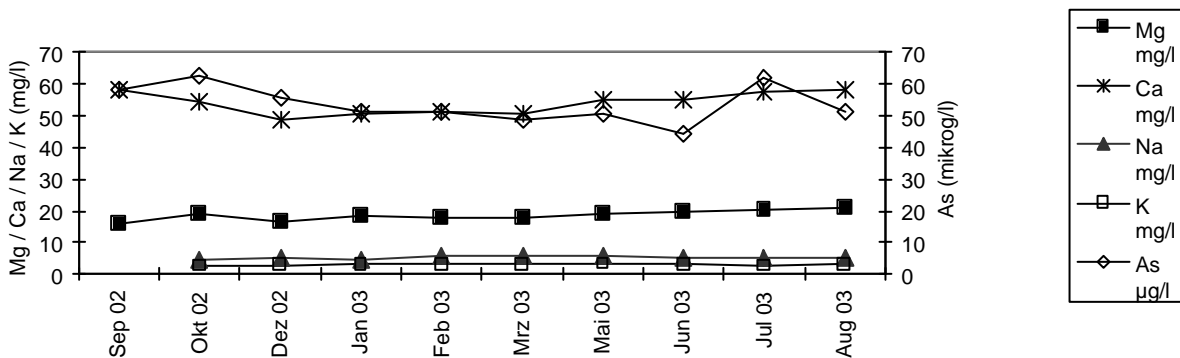
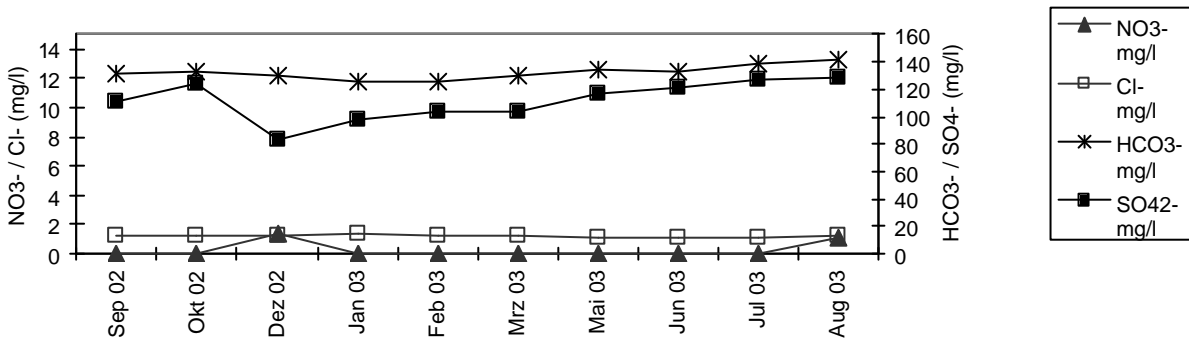
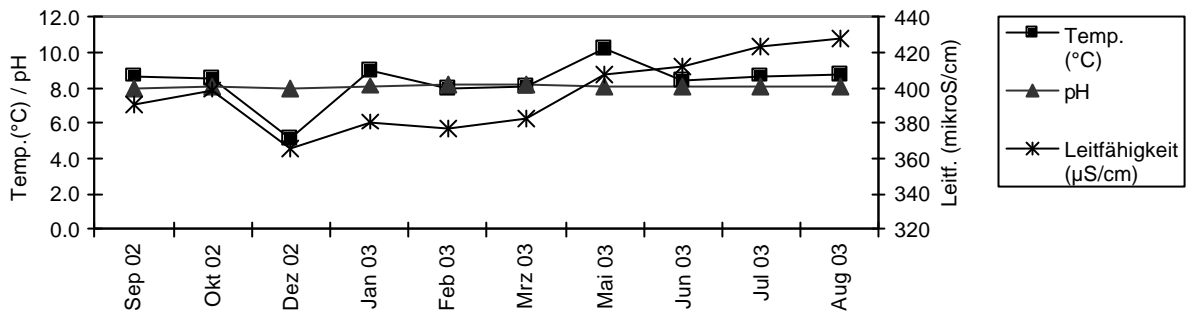


Abb. 75: Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Al Bait. Um die Figuren übersichtlicher zu halten wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Al Bait	Temp. °C	pH	Leitfähigkeit µS/cm	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	As µg/l	²²⁶ Ra mBq/l	²²² Rn Bq/l	Uran mBq/l	²²⁸ Ra mBq/l
Max	10	8.2	311	100	1.6	1.5	145	17	52	4.7	2.7	73	66	21	137	59
Mittelwert	8.3	8.1	292	94	1.1	1.1	85	14	41	4.1	2.5	61	27	8	108	19
Min	5.1	8.0	277	90	<1.0	<1.0	70	13	36	3.7	2.2	51	10	<0.5	82.9	<15

Tab. 14: Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Al Bait von September 2002 bis August 2003



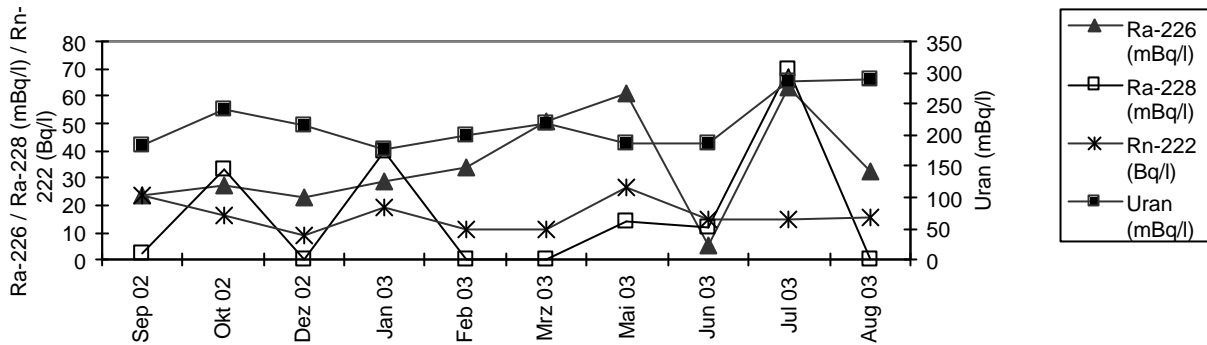


Abb. 76: Ganglinien der wichtigsten Hauptparameter der Quelle Sass da Li Rondolli. Um die Figuren übersichtlicher zu halten wurde auf die Darstellung der Fehlerbalken verzichtet.

Sass da Li Rondolli	Temp. °C	pH	Leitfähigkeit µS/cm	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	As µg/l	²²⁶ Ra mBq/l	²²² Rn Bq/l	Uran mBq/l	²²⁸ Ra mBq/l
Max	10.2	8.2	428	142	1.4	1.4	129	21	58	6.0	3.3	62	63	26	290	70
Mittelwert	8.4	8.1	397	132	1.2	0.3	112	19	54	5.3	3.0	54	35	16	218	17
Min	5.1	8.0	366	126	1.1	<0.1	84	16	49	4.6	2.6	44	5	9	178	<15

Tab. 15: Maximal-, Minimal- und Mittelwerte der Messresultate der Messkampagne der Quelle Sass da Li Rondolli von September 2002 bis August 2003

9.6.2.1 Leitfähigkeit, Temperatur, pH

Die Quellen von Pagnoncini sind nur rund 200 Meter voneinander entfernt und zeigen dementsprechend auch ähnliche chemische und physikalische Werte auf. Die Mineralisation der Quelle Al Bait liegt mit einer durchschnittlichen elektrischen Leitfähigkeit von 300 µS/cm um 100 µS/cm tiefer als diejenige der Quelle Sass da Li Rondolli. Die jahreszeitliche Schwankungsbreite beträgt bei beiden Quellen weniger als ±10%. Die tiefen Werte im Winter steigen im Laufe des Jahres bis im Sommer kontinuierlich an. Die Temperatur schwankt innerhalb des Jahreszyklus um 5°C zwischen 5.0 und 10°C. Der pH-Wert liegt um 8.1. Die Quelle scheint durch oberflächennahes Grundwasser gespeist zu werden, das recht stark auf Oberflächeneinflüsse reagiert.

9.6.2.2 Ionenkonzentrationen

Die unterschiedlichen Werte bei der elektrischen Leitfähigkeit der beiden Quellen, ist auf den höheren Gehalt der Hauptkationen und -anionen der Quelle Sass da Li Rondolli zurückzuführen. Natrium, Kalium, Nitrat und Chlorid sind praktisch nicht vorhanden. Chemisch gesehen handelt es sich beim Wasser der Quellen Al Bait und Sass da Li Rondolli um ein mittelhartes Calcium-Magnesium-Sulfat-Hydrogenkarbonat-Wasser. Die Quellen zeichnen sich zudem durch ihren hohen Arsengehalt aus, der im Bereich von 50 µg/l ziemlich konstant ist.

9.6.2.3 Radionuklidkonzentrationen

Abgesehen vom ²²²Rn kommen sämtliche natürliche Radionuklide in den Quelle von Pagnoncini in erhöhten Konzentrationen vor, die deutlich über denjenigen Konzentrationen anderer Trinkwässer in Graubünden liegen. Die Maximalwerte liegen für ²²²Rn bei 26 Bq/l, für ²²⁶Ra bei 66 mBq/l, für ²²⁸Ra bei 70 mBq/l und für Uran an der Quelle Sass da Li Rondolli bei 290 mBq/l und an der Quelle Al Bait bei 137 mBq/l. Die Konzentrationen unterliegen beim

Radium jedoch grösseren Schwankungen innerhalb eines Jahres. Das Uran zeigt einen ähnlichen Jahresverlauf wie das Sulfat und das Arsen. Dies deutet auf ein oberflächennahes Grundwasser hin, wo das Uran in gut mobilisierbaren Uranyl (UO_2^{2+})-Komplexen vorliegt und unter anderem Verbindungen mit Anionen wie Hydrogenkarbonat und Sulfat bildet (Langmuir 1979). In der Regel sollte ein hoher Radiumgehalt in Wässern auch mit einem erhöhten Arsengehalt einhergehen, da sowohl Radium wie auch Arsen an gleichen Orten (Eisenhydroxidausscheidungen) adsorbieren. Aus diesem Grund sollten Wässer mit niedrigen Radiumgehalten auch kleine Arsenkonzentrationen aufweisen. Arsen kann aber besser desorbieren, da es bei einem Anstieg des pH-Wertes im Gegensatz zum Radium wieder löslich ist.

9.7 Vergleiche zwischen den einzelnen Hot-Spots

Ein direkter Vergleich zwischen den einzelnen, weiterverfolgten Hot-Spots ist nur sehr begrenzt möglich. Aus Kapazitätsgründen konnten nicht alle fünf über den ganzen Kanton Graubünden verteilten Orte im Rahmen dieser Arbeit mit der gleichen Intensität untersucht werden. Das Schwergewicht der Untersuchungen wurde deshalb auf die Placidusquelle in Disentis gelegt. Trotzdem wird im folgenden Abschnitt versucht, Gemeinsamkeiten und Unterschiede der einzelnen Hot-Spots hervorzuheben und einander gegenüber zu stellen. Ein Ausblick für zukünftige Forschungsprojekte auf dem Gebiet der natürlichen Radionuklide in Grundwässern soll dieses Kapitel abschliessen.

9.7.1 Geologische Vergleiche

Die vier Quellen mit den höchsten Radonkonzentrationen entspringen aus nicht vergleichbaren tektonischen Formationen. Die Placidusquelle entspringt im Aarmassiv, das zur tektonischen Einheit des Parautochtons gehört. Die Quelle Leis entspringt in der Aduladecke, die zum Penninikum gehört. Die Mineralquelle Bergün entspringt in der Silvretta-Decke, die zum Ostalpin gehört. Die Quellen im Puschlav entspringen der Err-Bernina-Decke, die zum Unterostalpin gehört. Ausser der Randzone des Aarmassivs sind diese Formationen nicht für erhöhte Radionuklidgehalte bekannt. Die einzige geologische Gemeinsamkeit besteht darin, dass alle als Felsquellen aus Randzonen kristalliner Formationen entspringen.

Die stark erhöhten Urangehalte der Quellen Leis, Pedecosta und Pagnoncini und der hohe ^{226}Ra -Gehalt in der Quelle Bergün lassen sich nicht mit erhöhten Radionuklidgehalten der entsprechenden tektonischen Einheiten erklären. Wie bereits beim Radon erwähnt, ist ausser der Randzone des Aarmassivs keine dieser Formationen für erhöhte Radionuklidgehalte bekannt (Gilliéron 1988).

9.7.2 Hydrogeologische Vergleiche

Bezüglich der Äquivalentkonzentrationen der Hauptkationen und -anionen lassen sich die Hot-Spots folgendermassen vergleichen: Bei den Kationen überwiegt in allen Wässern das Calcium gegenüber dem Magnesium um etwa einen Faktor 2. Natrium und Kalium kommen dagegen nur in sehr geringen Mengen vor. Die Wässer der Hot-Spots sind bezüglich der Äquivalentkonzentrationen der Kationen sehr ähnlich.

Bezüglich der Anionen lassen sich die Hot-Spots in drei Gruppen einteilen. Die Quelle Leis gehört zur Gruppe der karbonathaltigen Wässer. Die Quellen im Puschlav weisen in etwa gleiche Äquivalentkonzentrationen Sulfat und Hydrogenkarbonat auf. Die Mineralwasserquelle in Bergün und die Placidusquelle gehören zur dritten Gruppe, bei der das Sulfat eindeutig dominiert. Chlorid und Nitrat kommen bei diesen Quellen praktisch nicht vor.

Neben den Äquivalentkonzentrationen der Anionen unterscheiden sich diese Wässer auch bezüglich der Leitfähigkeit und dem Arsengehalt. Während die Quelle Leis und die Placidusquelle sehr schwach mineralisiert sind, handelt es sich bei der Mineralquelle Bergün um ein sehr stark mineralisiertes Wasser. Die Quellen im Puschlav sind mittelharte Wässer, die sich bezüglich ihrem hohen Arsengehalt auszeichnen und sich diesbezüglich von den anderen Hot-Spots eindeutig unterscheiden.

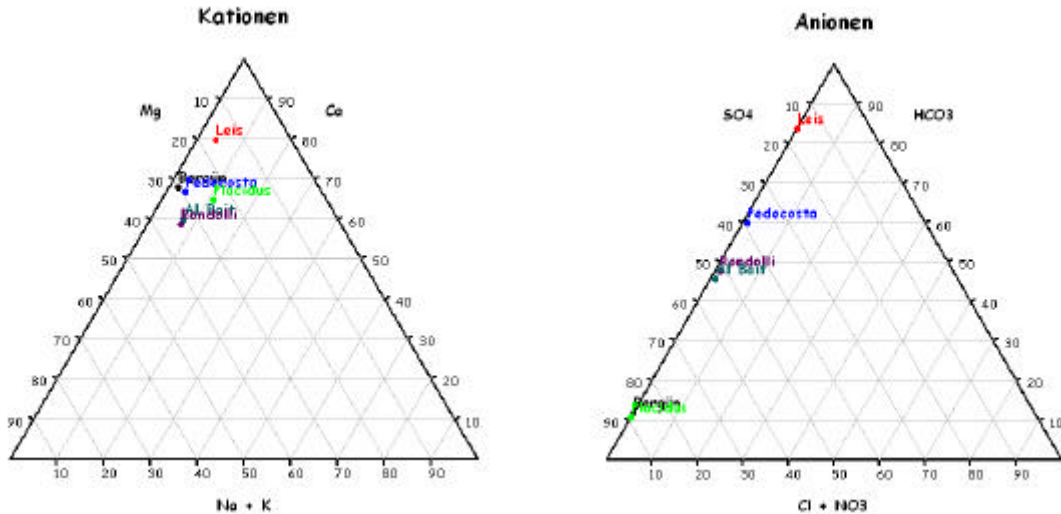


Abb. 77: Dreiecksdiagramme der Äquivalentkonzentrationen der Hauptkationen und –anionen.

Bei den Radionuklidzusammensetzungen lassen sich die Hot-Spots in drei Gruppen einteilen. Zur Gruppe 1 gehört die Placidusquelle und die Quelle Leis, die sich durch ihre hohen ^{222}Rn -Gehalte auszeichnen, während die anderen natürlichen Radionuklide nur in tiefen Konzentrationen vorhanden sind. Die Mineralquelle Bergün weist gleichzeitig erhöhte ^{222}Rn - und ^{226}Ra -Konzentrationen auf. Die Quellen im Puschlav bilden die dritte Gruppe, die die höchsten Urankonzentrationen aufweisen.

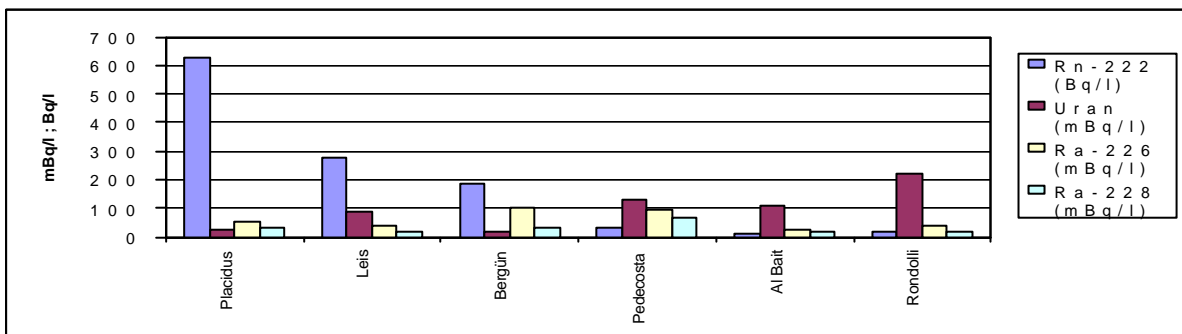


Abb. 78: Aktivitätskonzentrationen der natürlichen Radionuklide.

Die Placidusquelle, die Quelle Leis und die Mineralwasserquelle Bergün zeichnen sich durch eine kleine Schwankungsbreite der chemischen und physikalischen Parameter aus. Das ist ein Hinweis dafür, dass diese Quellen nur wenig durch Oberflächenwasser beeinflusst werden. Dagegen zeigen die Quellen im Puschlav starke Schwankungen aller Parameter. Hydrogeologische Gemeinsamkeiten der Hot-Spots sind keine zu erkennen.

9.7.3 Schlussfolgerungen und Ausblick

Sowohl der geologische wie auch der hydrogeologische Vergleich der Hot-Spots liefert keine schlüssigen Hinweise auf die Herkunft der erhöhten Radon-, Radium- und Urankonzentrationen. Insbesondere das Auftreten des kurzlebigen ^{222}Rn ist offenbar stark durch lokale, geochemische Verhältnisse bestimmt. Zum besseren Verständnis der Zusammenhänge müssten umfangreiche Untersuchungen wie bei der Placidusquelle auch bei den anderen Hot-Spots durchgeführt werden.

9.8 Radon-Luftmessungen Placidusquelle und Quelle Leis

Mit 650 Bq/l an der Placidusquelle und 330 Bq/l im Reservoir der Quelle Leis wurden mit Abstand die beiden Radon-Höchstwerte gefunden. Damit eignen sich diese beiden Quellen besonders gut, um den in Kapitel 6.6 erwähnten Einfluss der Radonkonzentration im Wasser auf die Raumluft in einem Gebäude beurteilen zu können. Daher wurden sowohl im Reservoir der Placidusquelle wie auch der Quelle Leis Radon-Luftmessungen durchgeführt.

9.8.1 Durchführung der Messungen

Um die Radongaskonzentration in der Raumluft im Reservoir der Placidusquelle wie auch der Quelle Leis zu bestimmen, wurde mittels der mobilen Messkette "AlphaGUARD" die Radonkonzentration kontinuierlich gemessen und aufgezeichnet. Der "AlphaGUARD" nutzt das Prinzip der Impulsionskammer (Alphaspektroskopie). Neben der Radonkonzentration wird die Lufttemperatur, der Luftdruck und die Luftfeuchtigkeit gemessen. Die Resultate können anschliessend ausgewertet und graphisch dargestellt werden.



Abb. 79: Reservoir der Placidusquelle (links) und Reservoir der Quelle Leis

9.8.2 Resultate

Die kontinuierlichen Radonmessungen wurden während einer Woche durchgeführt. Sowohl bei der Placidusquelle wie auch bei der Quelle Leis zeigen die Kurven der Radonkonzentration in der Luft einen ganz ähnlichen Verlauf. In der Nacht steigen die Radonkonzentrationen stark an (Placidusquelle: max. 32'000 Bq/m³, Quelle Leis: max. 43'000 Bq/m³) gegen Mittag nehmen sie wiederum stark ab und sinken auf etwa 4'000 Bq/m³ bzw. 20'000 Bq/m³. Danach steigen die Kurven wieder stark an. Dieser Tagesrhythmus darf aber mit Sicherheit nicht auf Schwankungen der Radonkonzentration im Wasser des Quellzulaufes zurückgeführt werden. Durch die zahlreichen Wasseranalysen an beiden Quellen und die kontinuierliche Radonmessung an der Placidusquelle kann dies eindeutig ausgeschlossen werden. Vielmehr muss der Grund für diese gleichmässigen Tagesschwankungen im Zusammenhang mit der Luftfeuchtigkeit und dem Luftdruck gesucht werden, dessen Kurven vor allem bei der Placidusquelle praktisch einen parallelen Verlauf wie die Radonkonzentrationen aufweisen. Der Verlauf der Kurve des Luftdrucks, der zwischen 860 und 880 mbar liegt, ist jedoch bei der gewählten Skalierung der y-Achse, auf der auch die Radonkonzentration angegeben wird, nicht erkennbar. Mit dem Absinken des Luftdrucks und der Luftfeuchtigkeit nimmt gleichzeitig auch die Radonkonzentration ab. Die Lufttemperatur hingegen zeigt einen antizyklischen Verlauf. Gegen Mittag steigt die Temperatur im Reservoir leicht an, in der Nacht sinkt sie wieder ab. Dabei ist festzuhalten, dass vor allem bei der Placidusquelle, die Türe zum Reservoir einen Spalt offen ist, damit

das überlaufende Wasser abfließen kann. Auf Grund dieser Beobachtungen muss die schwankende Radonkonzentration in der Luft auf einen Luftaustausch mit frischer Aussenluft zurückgeführt werden. Der Quellzulauf funktioniert dabei wahrscheinlich ähnlich einer Wasserstrahlpumpe, welche Luft ansaugt. Am Vormittag steigt die Aussentemperatur stark an und es strömt warme, trockene Aussenluft in das Reservoir, was zu einem Absinken der Radonkonzentration und der Luftfeuchtigkeit und zugleich zu einem Anstieg der Lufttemperatur im Reservoir führt. Bei der Quelle Leis sind diese Schwankungen weniger ausgeprägt. Der Luftaustausch zwischen Reservoir und Aussenluft ist dort auch schlechter möglich, da die Türe des Reservoirs völlig geschlossen ist. Die Luftfeuchtigkeit liegt in diesem Raum konstant bei 100%.

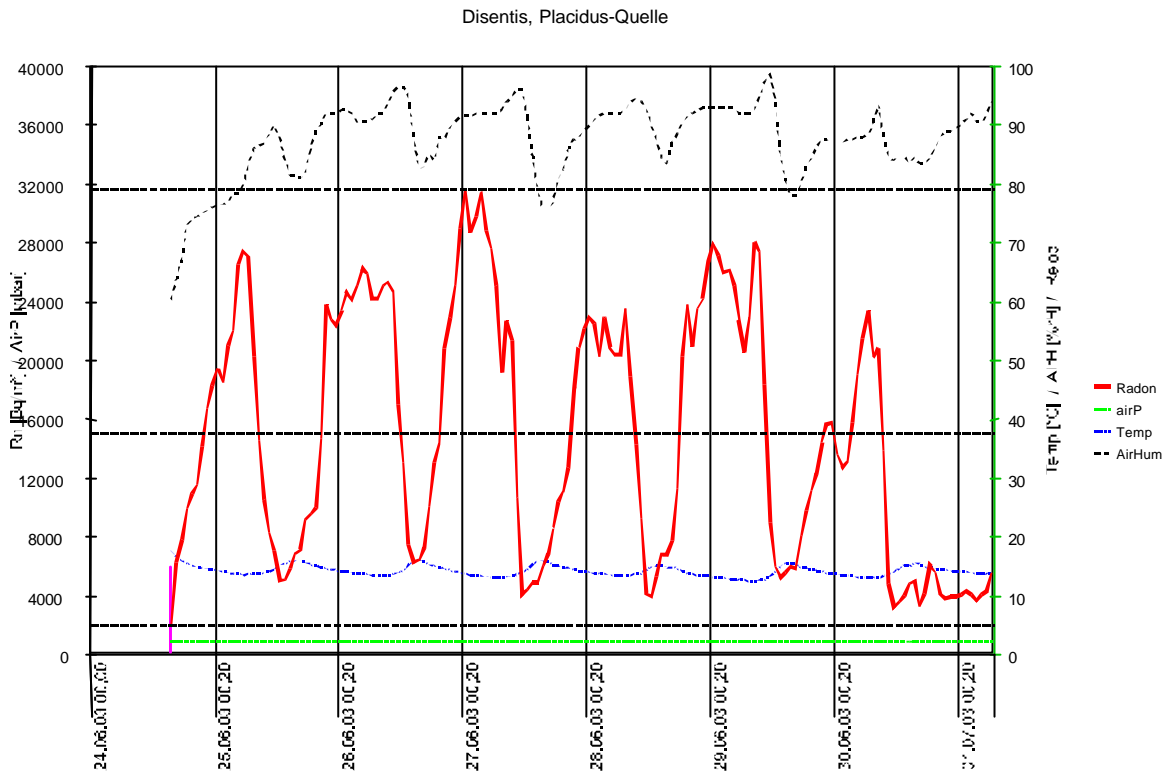


Abb. 80: Kontinuierliche Radonmessung der Luft im Reservoir der Placidusquelle

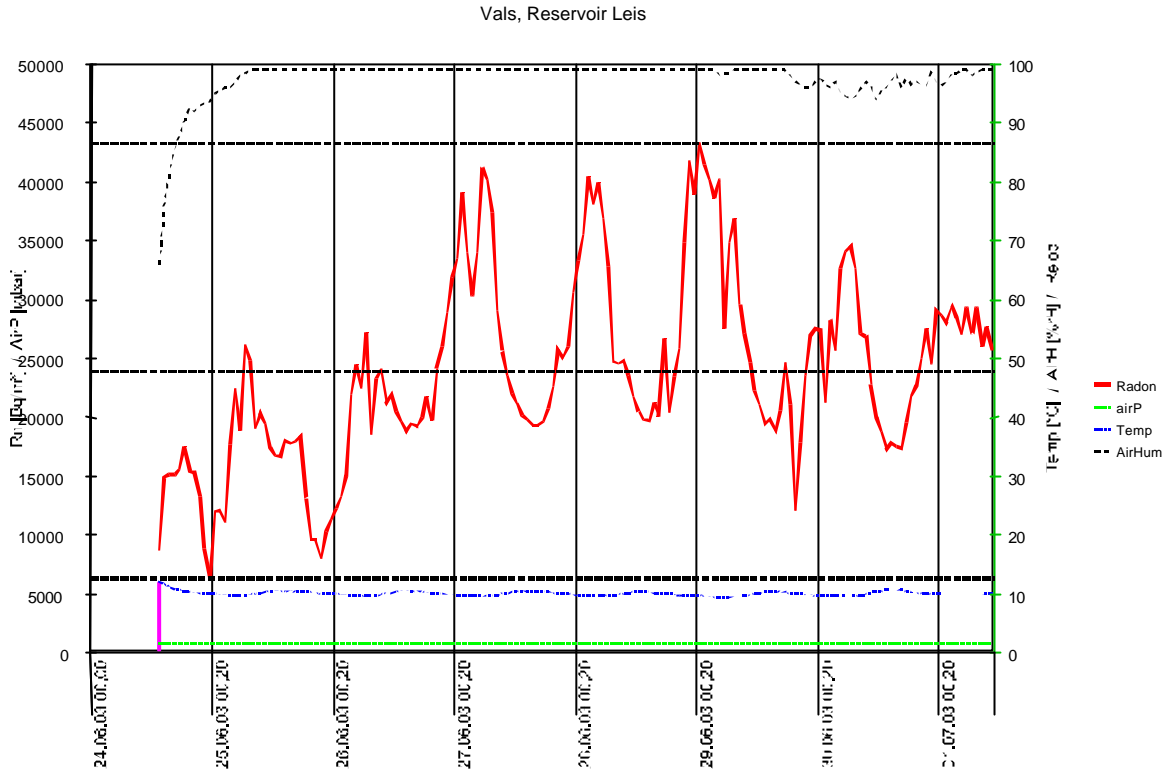


Abb. 81: Kontinuierliche Radonmessung der Luft im Reservoir der Quelle Leis

9.8.3 Umrechnung Radonkonzentration im Reservoir auf Privathaushalt

Um die gemessenen Radonkonzentrationen in der Luft der Reservoirs mit der Situation in einem Privathaushalt vergleichen zu können, müssen die gefundenen Werte unter Berücksichtigung des unterschiedlichen Wasserverbrauchs in einem Privathaushalt und der Quellschüttung im Reservoir sowie unter Berücksichtigung der verschiedenen Volumen der Reservoirs und einer Wohnung umgerechnet werden.

Parameter	Placidusquelle	Quelle Leis
Radonkonzentration Luft (Max.wert)	32'000 Bq/m ³	43'000 Bq/m ³
²²² Rn im Wasser	650 Bq/l	330 Bq/l
Schüttung pro Minute	40 l/min	245 l/min
Schüttung pro Tag	57'600 l/Tag	352'800 l/Tag
Luftvolumen Reservoir	2 m ³	56 m ³
Wasserverbrauch Privathaushalt	160 l/Person/Tag	160 l/Person/Tag
Anzahl Personen	5	5
Gesamter Wasserverbrauch pro Tag	800 l	800 l
Wohnfläche	120 m ²	120 m ²
Raumhöhe	2.3 m	2.3 m
Volumen Wohnung	276 m ³	276 m ³

Die Umrechnung der Quellschüttung pro Tag auf den gesamten Wasserverbrauch einer fünfköpfigen Familie im Privathaushalt ergibt sich wie folgt:

$$\frac{(\text{Radonkonzentration Luft}) * (\text{Gesamter Wasserverbrauch im Haushalt pro Tag})}{(\text{Quellschüttung pro Tag})} = \text{rel.Rn} - \text{Konz}_Q$$

Die Umrechnung des Luft-Volumens im Reservoir auf das Volumen einer mittleren 51/2 Zimmer-Wohnung ergibt sich wie folgt:

$$\frac{(\text{rel.Rn} - \text{Konz}_Q) * (\text{Volumen Wohnung})}{(\text{Luftvolumen Reservoir})} = \text{rel.Rn} - \text{Konz}_{QV}$$

Placidusquelle

$$\text{rel.Rn-Konz}_Q: \quad 32'000 \text{ Bq/m}^3 / 57'600 \text{ l} * 800 \text{ l} = 445 \text{ Bq/m}^3$$

$$\text{rel.Rn-Konz}_{QV}: \quad 445 \text{ Bq/m}^3 / 276 \text{ m}^3 * 2 \text{ m}^3 = \underline{\underline{3 \text{ Bq/m}^3}}$$

Quelle Leis

$$\text{rel.Rn-Konz}_Q: \quad 43'000 \text{ Bq/m}^3 / 352'800 \text{ l} * 800 \text{ l} = 98 \text{ Bq/m}^3$$

$$\text{rel.Rn-Konz}_{QV}: \quad 98 \text{ Bq/m}^3 / 276 \text{ m}^3 * 56 \text{ m}^3 = \underline{\underline{20 \text{ Bq/m}^3}}$$

Gemäss den Schätzungen des USCEAR, wonach 1000 Bq/l Radon im Leitungswasser im Durchschnitt die Radonkonzentration in der Raumluft um 100 Bq/m³ erhöhen, sollte nach Umrechnen der Verhältnisse im Reservoir auf den Privathaushalt bei 650 Bq/l Radon an der Placidusquelle die Radonkonzentration in der Raumluft bei 65 Bq/m³ und bei 330 Bq/l Radon an der Quelle Leis die Raumluftkonzentration bei 33 Bq/m³ liegen. Mit 20 Bq/m³ stimmt dieser Wert bei der Quelle Leis sehr gut überein. Hingegen liegt mit 3 Bq/m³ der Wert an der Placidusquelle um einen Faktor 20 tiefer als erwartet. Diese doch deutliche Abweichung kann folgendermassen erklärt werden. Im Gegensatz zum Reservoir einlauf der Quelle Leis, wo das Wasser hineinplätschert, was viel eher die Situation beim Duschen oder Waschen widerspiegelt, fliesst das Wasser beim Einlauf der Placidusquelle aus messtechnischen Zwecken in einen Eimer ohne zu plätschern, da der Auslauf des Rohres unterhalb der Wasseroberfläche liegt. Somit findet ein viel schwächerer Austausch des Radons zwischen der Wasser- und der Luftphase statt. Durch den offenen Türspalt bei der Placidusquelle findet zudem ein viel stärkerer Luftaustausch statt, was sich auch in der grossen Differenz zwischen der maximalen Radonkonzentration von 32'000 Bq/m³ in der Nacht und dem Minimum bei 4'000 Bq/m³ am Mittag widerspiegelt. Bei der Quelle Leis sinkt der Minimalwert nur auf etwa 20'000 Bq/m³. Würde man die Türe bei der Placidusquelle dicht verschliessen und das Wasser in das kleine Reservoir hineinplätschern lassen, so würde der Maximalwert wohl um einiges höher liegen. Die Situation im Reservoir der Quelle Leis widerspiegelt die Situation in einem Privathaushalt dagegen viel besser. Eimal mehr kann aber durch diese Raumluftmessungen gezeigt werden, dass durch gutes Belüften von Räumen der Radongehalt in der Luft drastisch und sehr effizient gesenkt werden kann.

10 Schlussfolgerungen und Ausblick

In diesem Kapitel sollen die im Rahmen dieser Arbeit gewonnen Erkenntnisse und Schlussfolgerungen als Antworten auf die in der Einleitung gestellten Fragen noch einmal zusammengefasst und mit einem Ausblick abgeschlossen werden.

10.1 Schlussfolgerungen

1. Sind erhöhte Konzentration von natürlichen Radionukliden der Uran- und Thorium-Zerfallsreihe in Grundwässern auf erhöhte Konzentration dieser Nuklide in geologischen Formationen zurückzuführen?

Sowohl der geologische wie auch der hydrogeologische Vergleich der Hot-Spots liefert keine schlüssigen Hinweise auf die Herkunft der erhöhten Radon-, Radium- und Urankonzentrationen. Insbesondere das Auftreten des kurzlebigen ^{222}Rn ist offenbar stark durch lokale, geochemische Verhältnisse bestimmt. Allein aufgrund erhöhter Konzentrationen von natürlichen Radionukliden in Quell- und Grundwässern kann nicht auf deren geologische Herkunft geschlossen werden.

2. Weisen stärker mineralisierte Quell- und Grundwässern auch höherer Konzentrationen an natürlichen Radionukliden auf?

Weder beim ^{238}U noch beim ^{222}Rn scheint eine Korrelation zwischen der elektrischen Leitfähigkeit und der Aktivitätskonzentration zu bestehen. Insbesondere trifft es nicht zu, dass eine höhere Mineralisation des Wassers mit einer höheren Konzentration von ^{238}U oder ^{222}Rn einhergeht. Dies war auch kaum zu erwarten, da das Uran in Wässern nicht als Kation vorliegt sondern als Komplex in anionischer Form und somit kein Kationenaustausch stattfinden kann. Im Gegensatz zum ^{238}U und ^{222}Rn scheint jedoch eine Korrelation zwischen der Leitfähigkeit bzw. zwischen dem Mineralisationsgehalt und dem ^{226}Ra - sowie dem ^{228}Ra -Gehalt zu bestehen. Die stärker mineralisierten Wässer weisen tendenziell auch einen höheren Gehalt an ^{226}Ra und ^{228}Ra auf. Der Grund für diese höheren Radium-Gehalte ist am ehesten auf die reduzierenden Bedingungen, die in Mineralwässern grundsätzlich vorherrschen, zurückzuführen. Da Mineralwässer in der Regel aus tieferen Schichten und Gesteinsformationen stammen und im Gegensatz zu oberflächennahem Grundwasser kaum mit Sauerstoff in Kontakt kommen, bleibt vorhandenes Eisen im Wasser gelöst und oxidiert nicht zu Eisenhydroxid. Somit adsorbiert das Radium nicht an den Eisenhydroxid-Ausscheidungen und kann gelöst in höheren Konzentrationen im Mineralwasser gefunden werden. Diese Annahme wird durch die Tatsache erhärtet, dass die Mineralwässer keine höheren ^{222}Rn - und ^{238}U -Gehalten als die Trinkwässern aufweisen. Sowohl die Löslichkeit des Urans ist unter reduzierenden Bedingungen nämlich schlechter, wie auch die Bildung von Eisenhydroxid-Ausscheidungen und damit einhergehend mit höheren ^{222}Rn -Konzentrationen.

3. Bestehen Zusammenhänge zwischen erhöhten Konzentrationen an natürlichen Radionukliden in Quell-, Grund- und Mineralwässern und anderen chemischen Parametern?

Zusammenhänge zwischen erhöhten Konzentrationen an natürlichen Radionukliden und anderen chemischen Parametern wurden insbesondere bei den Mineralwässern untersucht. Weder beim ^{226}Ra noch beim ^{228}Ra besteht ein Zusammenhang mit den andern Kationen. Die Aussage, dass Wässer mit niedrigen Radiumgehalten auch kleine Arsenkonzentrationen aufweisen ist jedoch zutreffend. Die Werte für die übrigen Elemente scheinen dagegen eher zufällig verteilt zu sein. Beim ^{238}U und beim ^{222}Rn sind gegenüber den einwertigen

Erdalkalimetallen Kalium, Lithium und Natrium hingegen klare Divergenzen festzustellen. Während Mineralwässer mit hohen Gehalten an K, Na oder Li praktisch kein ^{222}Rn oder ^{238}U enthalten, sind in den Mineralwässern mit höheren Konzentrationen an ^{222}Rn oder ^{238}U kein K, Na oder Li zu finden. Dass keine weiteren Zusammenhänge zwischen den natürlichen Radionukliden und den Kationen in Mineralwässern in Graubünden zu finden sind, ist jedoch nicht weiter erstaunlich. Bei den Mineralwässern handelt es sich um sehr spezielle Grundwässer, die sich aufgrund ihres unterirdischen Fliesspfades und den unterschiedlichen Verweilzeit in den verschiedensten Gesteinsformationen gegenüber normalen Grundwässern hervorheben. Somit ist ein Vergleich dieser Mineralwässer in einem derart komplexen geologischen Gebiet wie es in Graubünden vorliegt auch nur sehr schwer möglich.

4. Bestehen Zusammenhänge zwischen den geologisch-tektonischen Einheiten und dem Vorkommen von natürlichen Radionukliden in Quell- und Grundwässern?

Die vier Quellen mit den höchsten Radonkonzentrationen entspringen aus nicht vergleichbaren tektonischen Formationen. Die Placidusquelle entspringt im Aarmassiv, das zur tektonischen Einheit des Parautochtons gehört. Die Quelle Leis entspringt in der Aduladecke, die zum Penninikum gehört. Die Mineralquelle Bergün entspringt in der Silvretta-Decke, die zum Ostalpin gehört. Die Quellen im Puschlav entspringen der Err-Bernina-Decke, die zum Unterostalpin gehört. Ausser der Randzone des Aarmassivs sind diese Formationen nicht für erhöhte Radionuklidgehalte bekannt. Die einzige geologische Gemeinsamkeit besteht darin, dass alle als Felsquellen aus Randzonen kristalliner Formationen entspringen. Die stark erhöhten Urangehalte der Quellen Leis, Pedecosta und Pagnoncini und der hohe ^{226}Ra -Gehalt in der Quelle Bergün lassen sich nicht mit erhöhten Radionuklidgehalten der entsprechenden tektonischen Einheiten erklären. Wie bereits beim Radon erwähnt, ist ausser der Randzone des Aarmassivs keine dieser Formationen für erhöhte Radionuklidgehalte bekannt.

5. Kann aufgrund erhöhter Konzentrationen von natürlichen Radionukliden in Quell- und Grundwässern auf deren geologische Herkunft geschlossen werden?

Während die Mineralwässer mit den hohen K-, Na- und Li-Gehalten alle aus dem Unterengadin (Scuol, Tarasp, Sent) stammen, sind die Mineralwässer mit hohen ^{222}Rn -Gehalten in Bergün, Alvaneu, Sumvitg, Andeer, San Bernardino und diejenigen mit hohen ^{238}U -Gehalten in Sumvitg, Andeer, San Bernardino, Maladers und Churwalden zu finden. Hier scheint eine Beziehung zwischen den geologischen Verhältnissen und der Zusammensetzung dieser Mineralwässer zu bestehen.

6. Liegen die Konzentrationen der natürlichen Radionuklide im Trinkwasser in Graubünden unterhalb der lebensmittelrechtlich festgelegten Grenzwerte und sind diese Konzentrationen als gesundheitlich unbedenklich einzustufen?

Die für sämtliche Trinkwassernetze des Kantons Graubünden bestimmten Gehalte an ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra und U zeigen, dass die lebensmittelrechtlich festgelegten Höchstkonzentrationen für diese natürlichen Inhaltsstoffe bei weitem nicht erreicht werden. Auch eine Abschätzung der durch das ^{226}Ra , ^{228}Ra und das Uran verursachten Strahlendosen lassen keinerlei Gefährdung der Gesundheit nach schweizerischem Lebensmittelrecht erkennen. In der Trinkwasserrichtlinie der Weltgesundheitsorganisation (WHO) und der Europäischen Union wird für Trinkwasser ein Dosisrichtwert von $100 \mu\text{Sv/a}$ festgelegt. Für Säuglinge würde bei 5% der Trinkwässer diese Limite von $100 \mu\text{Sv/a}$ überschritten, unter der Annahme, dass die Säuglinge nicht gestillt werden und die Nahrung ausschliesslich mit Trinkwasser zubereitet wird. Die Limite gilt jedoch nicht für die Schweiz. Auch ein Wert von maximal $100 \mu\text{Sv/a}$ liegt noch sehr tief im Vergleich zu der in der Schweiz

zu erwartenden mittleren Strahlungsbelastung (natürlich und zivilisatorisch bedingt) von ca. 4'000 $\mu\text{Sv/a}$.

7. Korrelieren im gleichen Gebiet Radonkonzentrationen in Quell- und Grundwässern mit den Radonkonzentrationen in der Luft von Wohnräumen?

Aufgrund der gewonnenen Erkenntnisse kann die Frage eindeutig bejaht werden. Die Einteilung der Radongebiete aufgrund der Wasserwerte >50 Bq/l von ^{222}Rn in Quell- und Grundwässern ist ganz klar nicht unabhängig von der Radongebieteinteilung aufgrund von Luftmessungen in Wohnräumen. Radonwerte >50 Bq/l in Wasser sind als Hinweis auf Radongebiete zu werten. Diese Aussagen treffen in analoger Art und Weise auch für das ^{238}U zu. Einmal mehr zeigt sich, dass zwischen dem Vorkommen von hohen Konzentrationen von ^{222}Rn und ^{238}U in Wässern eine Beziehung besteht. Das gleichzeitige Vorkommen von erhöhten Konzentrationen von ^{226}Ra wie auch von ^{228}Ra in Wässern und ein erhöhter Radongehalt in Wohnluft im gleichen Gebiet scheint dagegen eher zufällig zu sein.

8. Können Radonmessungen in Quell- und Grundwässern Luftmessungen in Wohnräumen zur Gebietseinteilung von Radongebieten ersetzen?

Diese Frage ist zu verneinen. Obwohl eine Abhängigkeit zwischen der Wassermethode und der Luftmethode besteht, ist die Übereinstimmung der beiden Prüfverfahren gestützt auf die statistischen Auswertungen als eher schwach zu beurteilen. Die Irrtumswahrscheinlichkeit beträgt etwa 25% unter der Annahme, dass die Gebietseinteilung auf Grund der Innenluftmessungen richtig ist. Die Unsicherheit dieser Einteilung dürfte aber insbesondere bei den Gemeinden mit Radon-Mittelwerten zwischen 100 und 200 Bq/m^3 gross sein.

9. Können Radonmessungen in Quell- und Grundwässern als Screeningmethode zur Gebietseinteilung von Radongebieten in der Luft von Wohnräumen angewendet werden?

^{222}Rn - wie auch ^{238}U -Messungen in Quell- und Grundwässern sind als Screeningmethode zur Gebietseinteilung denkbar. Wenn in einem grösseren Gebiet, in dem hohe Radonbelastungen punktuell zu erwarten sind, ein Radonkataster erstellt werden soll und zuerst diese Regionen erfasst werden sollen, kann es durchaus sinnvoll sein in einer ersten Phase ^{222}Rn - oder ^{238}U -Messungen in Trinkwässern durchzuführen. Obwohl beide Parameter auf Radongebiete hinweisen, ist die Bestimmung des Urans der Radonbestimmung eindeutig vorzuziehen. Zum einen hat das ^{222}Rn eine viel kürzere Halbwertszeit als das ^{238}U , das bedeutet, dass die Proben viel rascher nach der Probenahme untersucht werden müssen. Zudem lässt die Bestimmung des Urans mittels ICP-MS einen viel höheren Probendurchsatz zu, was einer Einsparung des Arbeits- wie auch Zeitaufwandes gleichkommt. Jedoch ist der finanzielle und apparative Aufwand für ein ICP-MS um ein Vielfaches grösser als für ein Radonmessgerät. Eine andere Möglichkeit Uran in Wässern zu bestimmen wäre die Analyse mittels Uran-adsorbierenden Schichten. Der finanzielle Aufwand für Apparatur und Arbeitszeit ist vergleichbar mit dem Aufwand für die Radonmessung. Die Untersuchungen müssen aber nicht so schnell nach der Probenahme durchgeführt werden. Der Probendurchsatz ist allerdings nicht so hoch wie mit ICP-MS. Es gilt zu betonen, dass nur eine individuelle Messung sichere Angaben über die Radongaskonzentration in Wohnräumen liefern kann, denn kein Haus ist gleich gebaut wie das andere, kein Haus ist so radondurchlässig wie das andere und kein Haus steht auf dem gleichen Untergrund wie das andere.

10.2 Ausblick

Aus Kapazitätsgründen konnten nicht alle fünf über den ganzen Kanton Graubünden verteilten Hot-Spots im Rahmen dieser Arbeit mit der gleichen Intensität untersucht werden. Das Schwergewicht der Untersuchungen wurde deshalb auf die Placidusquelle in Disentis gelegt. Zum besseren Verständnis der Zusammenhänge müssten umfangreiche Untersuchungen wie bei der Placidusquelle auch bei den anderen Hot-Spots durchgeführt werden.

Untersuchungen im Rahmen dieser Dissertation könnten auch auf andere Alpenkantone ausgedehnt werden. Aus lebensmittelrechtlichen Überlegungen drängen sich solche umfangreichen Untersuchungen jedoch nicht unbedingt auf. Es ist kaum zu erwarten, dass in den Kantonen Uri, Tessin und Wallis völlig andere Verhältnisse als im Kanton Graubünden anzutreffen sind. In diesen Kantonen sind wohl auch keine Trinkwässer anzutreffen, die bezüglich natürlichen Radionukliden als gesundheitsgefährdend einzustufen sind. Aus wissenschaftlicher Sicht wäre ein Ausdehnen der in Graubünden durchgeführten Untersuchungen auf diese Kantone dennoch sehr interessant. Nicht ganz aus den Augen dürfen bezüglich natürlichen Radionukliden aber auch die Kantone aus dem Mittelland gelassen werden. In kristallinen Gesteinen sind Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen des ^{238}U , des ^{232}Th und des ^{235}U häufig in Schwermineralien eingeschlossen jedoch schlecht auslaugbar. Für das Wasser leichter zugänglich sind die Radionuklide in Sekundärmineralisationen, wie sie in der Molasse des Mittellandes durchaus anzutreffen sein könnten.

Aus gesundheitspolitischer Sicht wäre es zudem von grossem Interesse, die toxikologischen Grundlagen genauer zu beleuchten, die dazu führten, dass in der Schweiz andere Höchstwerte für natürliche Radionuklide in Trinkwasser als in der EU angewendet werden.

11 Statistische Grössen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine enorme Anzahl an Resultaten produziert. Hierfür wurden verschiedene Analysemethoden angewendet. Die Analysen wurden in akkreditierten Labors durchgeführt, welche nach der Norm ISO 1725 akkreditiert sind. Alle akkreditierten Labors müssen ihre verwendeten Untersuchungsmethoden validieren und Angaben zur Messunsicherheit darlegen und anwenden. Die Kenntnis der ungefähren Mess- und Ergebnisunsicherheit ist notwendig, um Analyseergebnisse korrekt zu interpretieren und die Zuverlässigkeit eines Ergebnisses zu charakterisieren. In diesem Kapitel sollen der Vollständigkeit halber, wichtige statistische Grössen kurz dargestellt und erläutert werden (KLLGR 2002, Kromidas 1999, Adam und Becker 2000, Eurachem 2000). Am Schluss des Kapitels sind die wichtigsten analytischen Kennzahlen der einzelnen untersuchten Parameter tabellarisch zusammengefasst.

Für die statistischen Berechnungen (Schätzungen) wird in der Regel von normalverteilten Variablen ausgegangen. In der Praxis sind die Messwerte jedoch nie genau normalverteilt. Robuste Schätzungen sind mathematisch aufwändig. Als einzige robuste Grösse wird der Median häufig verwendet.

Mittelwert (\bar{x})

Der arithmetische Mittelwert einer Grösse entspricht dem Durchschnitt aller Einzelwerte einer Analysenserie. Er berechnet sich nach:

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_i x_i \quad \bar{x} = \frac{1}{n} \sum_i x_i$$

Median (M)

Der Median wird auch als Zentralwert oder robuster Mittelwert bezeichnet. Zur Ermittlung des Medians werden die x -Werte der Grösse nach in einer Reihe sortiert (geordnete Reihe). Tritt ein Wert mehrmals auf, so wird er mit der Häufigkeit seines Auftretens in der Reihe notiert. Falls die Anzahl der x -Werte ungerade ist, ist der Wert in der Mitte der Median. Bei einer geraden Anzahl x -Werte ist der Durchschnitt der beiden mittleren Werte der Median. Der Median ist bei nicht normalverteilten Resultaten der bessere Schätzwert als der Mittelwert.

Standardabweichungen (s)

Die Standardabweichung ist ein Mass für die zufällige Streuung des Resultates. Sie berechnet sich nach:

$$s = \sqrt{\frac{S_{xx}}{n-1}} \quad s = \sqrt{\frac{S_{xx}}{n-1}} \quad \text{wobei } S_{xx} = \text{Summe der Fehlerquadrate}$$

Faustregel: Wenn die Werte normalverteilt (symmetrische Glockenkurve) sind, dann liegen

- im Bereich $\bar{x} \pm s$ 68 % aller Werte,
- im Bereich $\bar{x} \pm 2s$ 95.5 % aller Werte
- im Bereich $\bar{x} \pm 3s$ 99.7 % aller Werte.

Relative Standardabweichung (VK)

Variationskoeffizient

$$VK = 100 \cdot \frac{s}{\bar{x}} (\%)$$

Resultatberechnung

Die Resultate werden bei Absolutmethoden direkt aus dem Messwert berechnet (z.B. Titration) oder bei Relativmethoden aus einer Kalibriergeraden erhalten. In den meisten Fällen wird das Resultat aus einer linearen Gleichung erhalten. Nichtlineare Kalibriergeraden können in gewissen Fällen (z.B. exponentielle Funktion) durch eine Transformation linearisiert werden. Die Kalibriergerade erhält man aus verschiedenen Probenkonzentrationen durch eine lineare Regression.

Kalibrierfunktion:

$$y = a + b \cdot x \quad (y \text{ unbekannt})$$

wobei
 a = Achsenabschnitt der Kalibriergeraden
 b = Steilheit der Kalibriergeraden

Analysenfunktion:

$$x = \frac{y}{b} - \frac{a}{b} \quad (x \text{ unbekannt})$$

Die Parameter a und b der linearen Regression berechnen sich wie folgt:

$$a = \bar{y} - b \cdot \bar{x}$$

$$b = \frac{S_{xy}}{S_{xx}}$$

$$S_{xy} = \sum_i \sum_j x_{ij} \cdot y_{ij} - \frac{1}{n \cdot m} \sum_i \sum_j x_{ij} \cdot \sum_i \sum_j y_{ij}$$

$$S_{xx} = \sum_i \sum_j x_{ij}^2 - \frac{1}{n \cdot m} \left(\sum_i \sum_j x_{ij} \right)^2$$

Häufig wird jedoch eine Regression durch den Nullpunkt gewünscht ($a = 0$).

Einpunktkalibration ($n = m = 1$)

$$b = \frac{y}{x} \quad a = 0$$

Mehrpunktkalibration

$$b = \frac{\sum_i \sum_j x_{ij} \cdot y_{ij}}{\sum_{ij} x_{ij}^2} \quad a = 0$$

Berechnung der Korrelationskoeffizienten (r_{yx})

$$r_{yx} = b \sqrt{\frac{S_{xx}}{S_{yy}}} \quad a \neq 0$$

$$r_{yx} = \sqrt{1 - \frac{\sum \sum (y_{ij} - b \cdot x_{ij})^2}{S_{yy}}} \quad a = 0$$

Der Korrelationskoeffizient oder das Bestimmtheitsmass (r_{yx}^2) ist ein Mass für die Abhängigkeit und in gewissem Mass auch für die Linearität. Für eigentliche Linearitätstests sind jedoch andere statistische Verfahren heranzuziehen.

Streuung aus der Kalibriergeraden

Standardabweichung der Kalibriergeraden:

$$s_{xy} = \sqrt{\frac{n \cdot m - 1}{n \cdot m - 2}} \sqrt{1 - r_{yx}^2} \frac{s}{r_{yx}}$$

Es gilt im weiteren:

$$s_{xy} = \frac{s_{yx}}{b}$$

Konfidenzintervalle der Kalibriergeraden

Die obere und die untere Kurve des Vertrauensbereiches (Prognose-, Konfidenzintervalle) von Einfachbestimmungen erhält man aus der Gleichung

$$y_{\pm} = f(x)$$

$$y_{\pm} = a + b \cdot x \pm {}^{95\%} t_{f=n \cdot m - 2} \cdot s_{yx} \sqrt{1 + \frac{1}{n \cdot m} + \frac{(x - \bar{x})^2}{S_{xx}}}$$

Unrichtigkeit

Die Unrichtigkeit ist ein Mass für den systematischen Fehler und gilt für eine bestimmte Probe j.

$$\text{Unrichtigkeit} = M - \mu_j \quad \text{wobei } \mu = \text{richtiger Wert}$$

$$\text{rel. Unrichtigkeit} = 100 \cdot \frac{M - m_j}{m_j} (\%)$$

Die μ -Werte können aus folgenden Daten gewonnen werden:

- Theoretische Berechnung
- Wiederfindung
- Referenzmaterialien
- Ringversuche
- Referenzmethoden

Unpräzision

Die Unpräzision ist ein Ausdruck für die zufällige Streuung von Messwerten unter Wiederhol- oder Vergleichsbedingungen. Die Unpräzision hängt nur von der Verteilung ab und hat keinen Bezug zum richtigen Wert. Die Unpräzision kann auch aus externen Messungen ermittelt werden (Ringversuche).

Wiederholbarkeit (r)

Unter Wiederholbarkeit versteht man denjenigen Wert, unterhalb dessen man die absolute Differenz zwischen zwei einzelnen Resultaten unter *Wiederholbedingungen* mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit erwarten kann, wenn beide Resultate aus der gleichen Grundgesamtheit stammen (Vertrauensbereich). Wiederholbedingungen sind:

- gleiche Methode
- gleicher Analytiker oder Stellvertreter
- gleiche Geräte
- gleiches Laboratorium
- kurzer Zeitabstand (Messreihe) oder
- langer Zeitabstand (Regelkarte)

wobei für jeden Versuch eine Gesamtanalyse ausgehend von einer Teilprobe durchzuführen ist.

- Messreihe innerhalb kurzer Zeit (Tag):

$$\text{Wiederholbarkeit} = \sqrt{2} \cdot 3s \quad k = 3$$

- Messreihe über längere Zeit (Wochen):

$$\text{Wiederholbarkeit} = \sqrt{2} \cdot 2s \quad k = 2$$

Ringversuch mit mehreren Laboratorien und Doppelbestimmungen innerhalb der Laboratorien:

$$r = \sqrt{2} \cdot 2 \cdot s_r \quad k = 2$$

$$s_r = \sqrt{\frac{\sum_k \sum_j w_{jk}^2}{2 \cdot m \cdot p}}$$

Vergleichbarkeit

Unter Vergleichbarkeit versteht man denjenigen Wert, unterhalb dessen man die absolute Differenz zwischen einzelnen Resultaten unter Vergleichsbedingungen mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit erwarten kann, wenn sie aus der gleichen Grundgesamtheit stammen (Vertrauensbereich). Vergleichsbedingungen sind:

- gleiche Methode
- verschiedene unabhängige Operatoren
- verschiedene Geräte
- verschiedene Laboratorien

Somit kann die Vergleichbarkeit nur in Ringversuchen ermittelt werden. Es können auch Replicas von mehr als zwei Bestimmungen durchgeführt werden.

$$R = \sqrt{2} \cdot 2 \cdot s_R \quad k = 2$$

wobei

$$s_R = \sqrt{\frac{S_{xx}}{n \cdot m \cdot p - 1}}$$

$$S_{xx} = \sum_j \left(\sum_i \sum_k x_{ijk}^2 - \frac{1}{n \cdot m \cdot p} \left(\sum_i \sum_k x_{ijk} \right)^2 \right)$$

z-Score (z)

Der z-Score wird zur Beurteilung von Ringversuchsdaten verwendet:

$$z = \frac{\text{Unrichtigkeit}}{s_R}$$

Ausreisser

Bevor Daten statistisch ausgewertet werden, müssen Ausreisser iterativ entfernt werden. Für Einzelproben eignet sich der Grubbs-Test. Ausreisser bei linearen Regressionen werden am besten nach visueller Beurteilung entfernt. Als Ausreisser dürfen nur echte Extremwerte behandelt werden. Zur Identifizierung einzelner Ausreisserwerte werden zunächst der Mittelwert und die Standardabweichung der Analysendaten berechnet.

Die Analysenwerte x^* mit einer auffallend grossen Differenz zum Mittelwert werden nach folgender Bedingungsgleichung getestet:

$$G = \frac{x^* - \bar{x}}{s} \quad \text{wobei:}$$

$G = \text{Testgrösse}$
 $x^* = \text{„verdächtiger“ Messwert}$

Anschliessend wird mit dem Schwellenwert GT der Grubbs-Tabelle einseitig verglichen:

Kriterium	Beurteilung
$G < GT (f, P = 90 \%)$	kein Ausreisser
$GT (f, P = 90 \%) < G < GT (f, P = 95 \%)$	eventueller Ausreisser
$G > GT (f, P = 95 \%)$	signifikanter Ausreisser, ist in jedem Fall zu eliminieren

wobei $f = n-1$.

11.1 Qualitätsregelkarten

Prinzip

Zur visuellen Überwachung einzelner Merkmale oder Verfahrenskenngrössen (Einzelwert, Mittelwert, Blindwert, Wiederfindungsrate, Standardabweichung usw.) werden Stichprobenergebnisse aus fortlaufenden Kontrolluntersuchungen in einem Diagramm dargestellt. Die Abszisse entspricht der Zeitachse. Auf ihr werden die entsprechenden Zeitintervalle eingetragen. Auf der Ordinate werden die Kontrollwerte eingetragen. Zusätzlich zu den Kontrollwerten werden Warn- und Eingriffsgrenzen eingezeichnet. Diese Grenzen sind dabei abhängig vom untersuchten Prozess, welcher darüber entscheidet, welche stochastische Verteilung verwendet wird. Die Auswertung erfolgt stets nach dem

Eintrag eines neuen Wertes. Beim Auftreten einer Ausser-Kontroll-Situation sind Eingriffe in das Verfahren notwendig. Solche Situationen sind:

- Ein Kontrollwert liegt ausserhalb der Eingriffsgrenze
- Zwei oder mehr aufeinanderfolgende Kontrollwerte liegen ausserhalb der Warngrenze
- Eine definierte Anzahl Kontrollwerte liegt auf einer Seite des Sollwerts
- Eine definierte Anzahl von Kontrollwerten zeigt eine fallende bzw. steigende Tendenz

Aufbau einer Qualitätsregelkarte

Qualitätsregelkarten können klassisch als Karteikarten oder eleganter in EDV-Form geführt werden. In der untenstehenden schematischen Qualitätsregelkarte wurden folgende Schranken festgelegt:

- Warngrenze (gestrichelte Linie): Ein Überschreiten wird toleriert (z.B. $\pm 2s$)
- Spanne (fette Linie): Ein Überschreiten erfordert eine Korrekturmassnahme (z.B. $\pm 3s$)

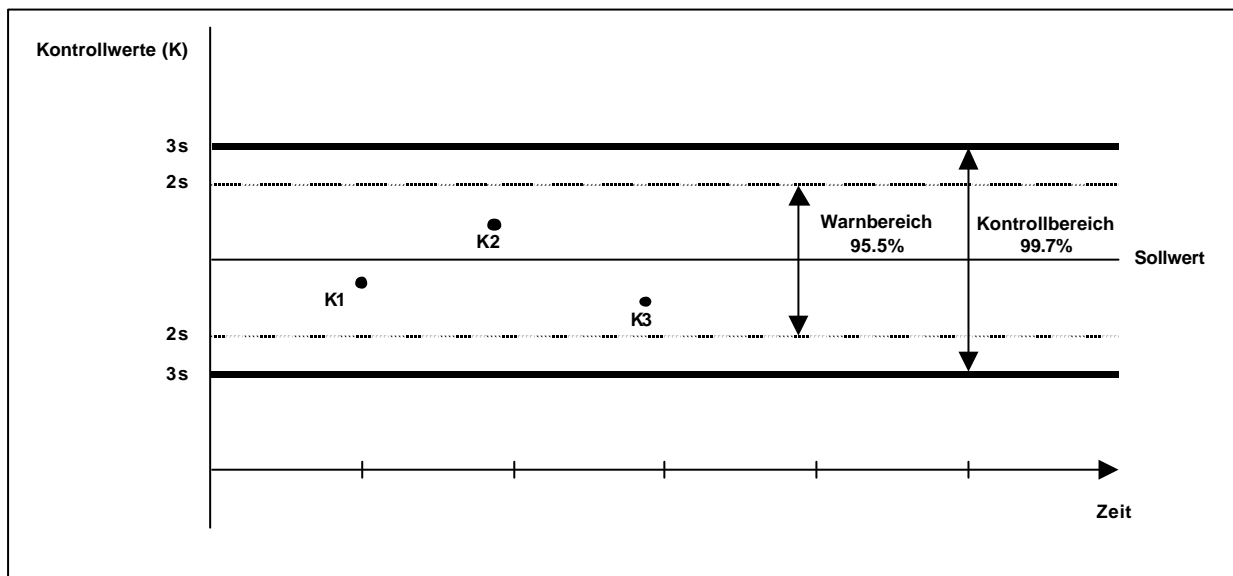


Abb. 82: Qualitätsregelkarte mit eingetragenen Kontrollwerten (K1-K3) zur Illustration

Die Kenndaten werden durch die Messung von Kontrollproben gewonnen, welche auch bei späteren Untersuchungen analysiert werden. Die Ermittlung der Kenndaten erfolgt über mehrere Tage und ergibt sich aus wenigstens 20 Wiederholungsmessungen. Aus den Messungen wird der Mittelwert und die Standardabweichung errechnet und anschliessend die Regelkarte konstruiert (Mittelwert = Zentrallinie, Warngrenze bei $\pm 2s$, Spanne bei $\pm 3s$, die Länge der y-Achse beträgt ca. $4s$). Nun werden die Analysenresultate der Vorversuche eingetragen. In vielen Fällen ist es sinnvoller, anstelle eines Mittelwertes einen bekannten Startwert zu definieren.

Mittelwert-Regelkarte

Die Mittelwert-Regelkarte ist für Präzisionskontrollen und die Aufdeckung von Fehlern geeignet. Aus n Analysen wird der Mittelwert berechnet und in die Regelkarte eingetragen. Die Spanne wird folgendermassen festgelegt:

$$\bar{x} \pm 3s$$

Blindwert-Regelkarte

Pro Analysenserie sollen im Minimum 2 Blindproben analysiert werden (z.B. am Anfang und am Ende einer Serie). Die Blindwert-Regelkarte kann analog der Mittelwert-Regelkarte erstellt werden.

Wiederfindungs-Regelkarte

Diese Regelkarte ist zur Ermittlung von matrixbedingten proportional-systematischen Abweichungen geeignet. Konstant-systematische Abweichungen hingegen können nur durch die Verwendung eines zertifizierten Referenzstandards aufgedeckt werden. In der Regel werden reale, aufgestockte Proben verwendet. Diese Proben haben den Vorteil, dass sie nicht weiter aufbewahrt werden müssen. Für jeden Matrixtyp (z.B. Trinkwasser, Abwasser) muss eine separate Karte geführt werden. Die Wiederfindungs-Regelkarte wird analog der Mittelwert-Regelkarte erstellt. Die 100%-Linie kann als Zentrallinie verwendet werden. Als Spanne kann auch die erweiterte Messunsicherheit und als Warngrenze die halbe Spanne gewählt werden.

Typ der Regelkarte	Notwendige Analysen	Benötigte Parameter aus Voruntersuchungen	Benötigte Parameter aus Analysen	Anwendungsbereich
Mittelwert-Regelkarte	Analyse von Kontrollproben	Spanne, Warngrenze	\bar{x}, s	Präzisionskontrolle; Aufdecken von groben Fehlern; Limitiert: Richtigkeit
Blindwert-Regelkarte	mind. 2 Blindwertbestimmungen	Spanne, Warngrenze	\bar{x}, s	Aufdecken von Fehlern des Messgerätes, Abweichungen bei Reagenzien
Wiederfindungs-Regelkarte	Analyse einer aufgestockten und einer nicht aufgestockten Probe	Spanne, Warngrenze	Sollwert oder Wiederfindung, s, u	Beurteilung der Richtigkeit

Tab. 16: Zusammenstellung der Qualitätsregelkarten und ihres Einsatzbereichs

11.2 Validierung von Analysemethoden

Validierungsverfahren von Analysemethoden sind in einem akkreditierten Labor möglichst zu vereinheitlichen und die dafür notwendigen Anforderungen festzulegen. Die Validierung eignet sich auch zur Prüfung, ob offizielle Methoden im eigenen Labor die Anforderungen erfüllen (Revalidierung). Eine vollständige Validierung ist selten möglich. Es ist eine sinnvolle und ausreichende Auswahl zu treffen.

Blindproben

Blindproben ohne Matrix, wie Reagenzienblindwert, Leerwert, Nullwert werden meistens zum Nullieren des Messgerätes verwendet. Als Blindproben mit Matrix werden echte Proben, welche den gesuchten Stoff nicht enthalten verwendet (Leerproben, Negativproben).

Standards für Kalibrationen

Die Kalibrationen werden in der Regel mit Referenzlösungen, welche die Matrix nicht enthalten, durchgeführt. Die Kalibration kann durch interne oder externe Standards erfolgen.

Proben

Echte Proben sind meistens aus einer Vielzahl von Stoffen zusammengesetzt, welche die Analyse stören können (Matrix). Statistisch gesehen handelt es sich immer um Stichproben, welche nach einem Probenahmeplan genommen werden können. Durch die Probenvorbehandlung (Probenteilung, praxisrelevante Behandlung, Mischen) wird aus der gesamten Stichprobe eine Teilprobe (Testprobe) gewonnen, welche für die Analysen

eingesetzt wird. Teilproben sind in geeigneter Weise aufzubewahren und evtl. zu konservieren. Verstärkte Proben werden aus Blindproben oder den Analyten enthaltenden Proben durch Zusatz von Standards im Labor hergestellt. Sie werden zur Berechnung der Wiederfindung benötigt.

Analyt

Die zu bestimmende Substanz in den Standards und Proben.

Analyse

Der qualitative Nachweis oder die quantitative Bestimmung des Analyten. Am Anfang der Analyse steht meistens die Probenaufbereitung (Extraktion des Analyten).

Carry-Over

Probenverschleppung zwischen den Proben in Probengefässen und Analysengeräten. Zur Bestimmung des Carry-Overs können Blindproben nach einer Probe oder einem Standard mit hohem Gehalt analysiert werden.

System Suitability Test

Nachweis, dass sich eine Analysenmethode auf einem vorhandenen Analysengerät in zufriedenstellender Weise durchführen lässt. Dazu dienen in erster Linie die üblichen Validierungsparameter.

Fehlerarten

Fatale Fehler beruhen in der Regel auf groben Versehen oder Vorfällen z.B. falsch abgelesenen Werten, Rechenfehlern, vergessenen Kommas und defekten Apparaturen.

Systematische Fehler verfälschen alle Messwerte in der gleichen Weise. Oft sind es unbekannte oder nicht berücksichtigte Variablen, die für diese Fehler verantwortlich sind. Zahlenmässig ist ein systematischer Fehler die Differenz zwischen dem Median der betrachteten Resultatreihe und dem richtigen Wert.

Als zufällige Fehler bezeichnet man unvermeidbare statistische Schwankungen um einen Mittelwert, z.B. Rauschen, Inhomogenitäten etc.. Alle statistischen Berechnungen erfassen nur die zufälligen Fehler.

Ringversuche

Mehrere Laboratorien untersuchen dieselben Proben mit einer genau vorgeschriebenen Methode mittels meist blinder Doppelbestimmungen. Ziel einer Methodenprüfung ist es, Aussagen über Präzision (Wiederholbarkeit und Vergleichbarkeit) und nach Möglichkeit über die Richtigkeit einer bestimmten Analysenmethode zu machen. Als Parameter dient dazu die Wiederfindung.

Bei Proficiency tests (Laborvergleich) handelt es sich um Ringversuche, bei denen die Methode frei wählbar ist. Der Schwerpunkt der Auswertung liegt auf der grafischen Darstellung der Resultate und zeigt dem einzelnen Labor, ob es die gesteckten Ziele erfüllt hat. Ein Laborvergleich liefert zwar keine statistischen Kenngrössen für die eingesetzte Methode, aber wertvolle Daten zur Abschätzung der Messunsicherheit.

Validierungsparameter

Die Validierung ist der experimentelle Nachweis nach formalen Kriterien, dass eine Methode die erwarteten Ergebnisse liefert. Die Bestimmung der Validierungsparameter (Kenngrössen) nennt man Charakterisierung einer Methode.

Selektivität

Durch eine selektive Methode kann der gewünschte Stoff eindeutig bestimmt werden.

Sensitivität

Fähigkeit der Methode, den gesuchten Stoff in positiven Proben nachzuweisen. Die Sensitivität kann durch Wiederfindungsversuche überprüft werden, bei denen der Analyt

einer echten Probe zugesetzt wird. Besser als die Wiederfindung ist die Analyse von bekannten Referenzmaterialien.

Spezifität

Fähigkeit der Methode, negative Proben als frei vom Analyten zu identifizieren.

Messbereich

Der Messbereich umspannt den kleinsten und grössten Messwert, der quantitativ erfasst werden kann. Der unterste Punkt ist grösser oder gleich der Bestimmungsgrenze.

Linearität

In der Regel ist der Messbereich linear und durch eine konstante relativ kleine Streuung um die Kalibriergerade gekennzeichnet. Die Linearität wird meistens am besten zuerst visuell beurteilt. Bei nichtlinearen Kalibrationen ist eine andere geeignete Funktion zu wählen und die Bestimmung der Linearität entfällt.

Empfindlichkeit

Unter der Empfindlichkeit versteht man das Verhältnis von Signalstärke zu Probenkonzentration oder Probenmenge.

Nachweisgrenze

Stoffe können unterhalb der Nachweisgrenze nicht mehr eindeutig nachgewiesen werden. Proben oberhalb der Nachweisgrenze unterscheiden sich deutlich von der Blindprobe.

Bestimmungsgrenze

Stoffe unterhalb der Bestimmungsgrenze lassen sich noch eindeutig nachweisen, aber nicht mehr quantitativ bestimmen. Daher wird auf die zahlenmässige Angabe eines Resultats verzichtet. Oberhalb der Bestimmungsgrenze lassen sich die Substanzen statistisch genau quantifizieren.

Robustheit

Bei der Robustheitsprüfung wird der Einfluss verschiedener Faktoren, welche durch die Arbeitsanweisung nicht vollständig festgelegt sind, intern getestet. Bei einem robusten Analyseverfahren muss trotz geringer Abweichungen die Zuverlässigkeit aufrecht erhalten werden können. Kriterien, nach denen die Robustheit eines Verfahrens ermittelt wird, können sein:

- verschiedene Analytiker
- verschiedene Geräte des gleichen Typs
- kleine Veränderungen der Verfahrensbedingungen
- kleine Temperaturabweichungen (z.B. Raumtemperatur)
- kleine Dosierfehler von Reagenzien (nicht der Probe!)
- unterschiedliche Qualitäten der Reagenzien etc.

Genauigkeit

Der Begriff Genauigkeit umfasst die Präzision und die Richtigkeit eines Verfahrens. Die Präzision eines Verfahrens kann laborintern ermittelt werden. Dagegen kann die Richtigkeit nur durch externe Vergleiche überprüft werden.

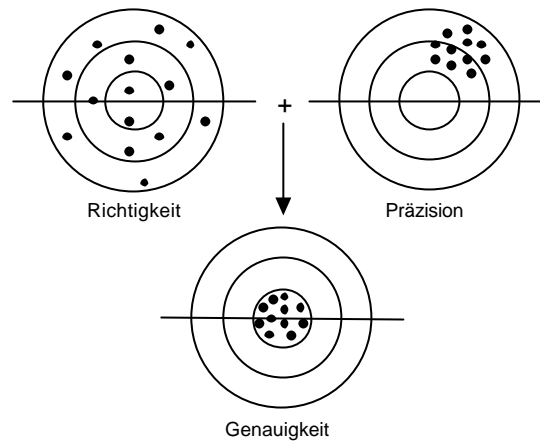


Abb. 83: Die Kombination von Richtigkeit und Präzision führt zur Genauigkeit

Für die Beurteilung der Richtigkeit eines Verfahrens stehen verschiedene Methoden zur Verfügung:

- Verwendung von zertifiziertem Referenzmaterial (optimal)
- Wiederfindung (beschränkte Aussagekraft)
- Der Vergleich mit anderen offiziellen Methoden
- Ringversuche (in beschränktem Mass)

In der Praxis werden reale Werte selten mit den vorgegebenen Sollwerten (Referenzmethoden, Referenzmaterialien) übereinstimmen. So ist es sinnvoll, anstelle der Richtigkeit die Unrichtigkeit, anstelle der Präzision die Unpräzision zu ermitteln. Abschliessend können dann Aussagen bezüglich Präzision und Richtigkeit einer Methode gemacht werden.

Unrichtigkeit

Die Unrichtigkeit ist die Differenz vom gemessenen minus dem richtigen Wert. Die relative Unrichtigkeit kann auch aus der Wiederfindung minus 100 erhalten werden. Der Wiederfindungsversuch hat nur eine beschränkte Aussagekraft zur Unrichtigkeit bei realen Proben.

Wiederholbarkeit

Die Wiederholbarkeit liefert das Vertrauensintervall zwischen zwei Messungen unter Wiederholbedingungen.

Vergleichbarkeit (Reproduzierbarkeit)

Die Vergleichbarkeit liefert das Vertrauensintervall zwischen zwei Laboratorien unter Vergleichsbedingungen. Sie ist kein absolutes Mass für die Unrichtigkeit.

11.3 Ermittlung der Validierungsparameter

Kalibration und Empfindlichkeit

Die Empfindlichkeit wird durch die Steigung b der Kalibriergeraden ausgedrückt, wobei die Einheiten anzugeben sind. Dazu werden Referenzlösungen ohne Matrix verwendet. Die Ermittlung der Kalibriergeraden ist eine Voraussetzung, damit die Resultate berechnet werden können.

1. Vorzugsweise wird eine lineare Regression mit $a = 0$ für die Kalibration verwendet.
2. Die Empfindlichkeit eignet sich für die Geräteüberwachung, wenn sie in Form von Regelkarten regelmässig dokumentiert wird.
3. Bei Absolutmethoden entfällt eine Kalibration, weil das Resultat aus der theoretischen Analysenfunktion berechnet wird (z.B. bei Titrationsen aus der Reaktionsgleichung).

Sensitivität

In der Regel wird die Sensitivität an verstärkten (aufgestockten, gespikten) Negativproben im Messbereich ermittelt und als Wiederfindung (Recovery, Score-Wert in %) ausgedrückt. Die Wiederfindung muss im erwarteten Bereich liegen.

$$\text{Wiederfindung} = 100 \cdot \frac{x}{m} = 100 \cdot \frac{x_{\text{nach Zusatz}} - x_{\text{vor Zusatz}}}{\text{zugesetzte Menge oder Konzentration}} \quad (\%)$$

Wichtig: Falls 100 minus die Wiederholbarkeit grösser als die Wiederholbarkeit ist, soll das Resultat durch die Wiederfindung korrigiert werden.

Die Wiederfindungen werden auch zur Beurteilung des Messbereiches und der Linearität benötigt.

In der Mikrobiologie kann die zugesetzte Menge oder Konzentration mit Hilfe eines parallelen Ansatzes mit einem Standard-Agar als Berechnungsgrundlage bestimmt werden. In den übrigen Fällen werden meistens Referenzmaterialien verwendet. Bei qualitativen Methoden werden nichtparametrische Tests durchgeführt.

Spezifität

Negativproben geben kein Signal über der Nachweisgrenze. Als Negativproben gelten auch echte Proben, welche mit Substanzen verstärkt wurden, welche die Bestimmung stören und in der Praxis vorhanden sein könnten.

Messbereich

Der Messbereich wurde bereits zur Bestimmung der Sensitivität definiert. Er wird möglichst praxisnahe ausgelegt und setzt eine Kalibrierfunktion im interessierenden Bereich voraus. Je nach Zweck der Analyse und den physikalischen Prinzipien kann der Messbereich eng sein oder über mehrere Zehnerpotenzen streichen, wobei dann die Anzahl Messpunkte zu erhöhen ist. Falls nur Produktspezifikationen (Höchstwert oder Mindestgehalt) überprüft werden müssen, genügt ein enger Messbereich. Es wird eine Kurvenanpassung berechnet, im Fall der linearen Regression. Die Beurteilung der Kurvenanpassung erfolgt visuell.

- Liegen Resultate von Proben erheblich ausserhalb des Messbereichs, muss ein weiterer Messbereich ermittelt werden.
- Bei qualitativen Analysen muss kein Messbereich definiert werden.

Linearität

Die Linearität der Messgeraden wird im Messbereich visuell beurteilt. Die Nichtlinearität leicht gekrümmter Kalibrierkurven kann wie folgt definiert werden:

$$y = a + b \cdot x + c \cdot x^2$$

$$\text{Nichtlinearität} = 100 \cdot \frac{c \cdot \bar{x}}{b} \quad (\%)$$

Nachweisgrenze (NG)

Ermittlung aus der Standardabweichung

Die Standardabweichung von x aus der Kalibriergeraden wird mit dem Erweiterungsfaktor $k = 3$ multipliziert:

$$NG = k \cdot s_{xy}$$

Festlegen eines Schwellenwertes

Der unterste Punkt des Messbereichs wird als Schwellenwert für die Nachweis- und Bestimmungsgrenze festgelegt. Bei qualitativen Methoden ist die Angabe einer NG obligatorisch.

Bestimmungsgrenze (BG)

Für die Bestimmungsgrenze wird ein Erweiterungsfaktor $k = 6$ gewählt.

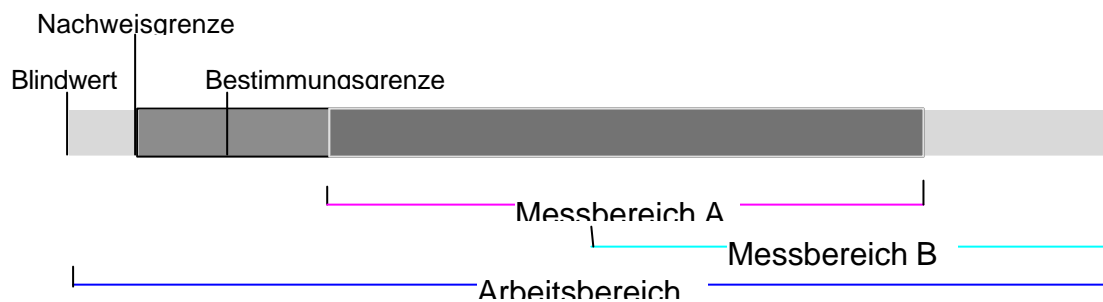


Abb. 84: Schematische Darstellung statistischer Kenndaten einer Analysenmethode für x .

Unrichtigkeit

Die Unrichtigkeit ergibt sich aus der Differenz des Medians und des richtigen Wertes (Sollwert). Die Unrichtigkeit einer Methode kann auch durch einen Methodenvergleich mit einer validierten Methode beurteilt werden. Die Unrichtigkeit ist der wichtigste, aber auch der am schwierigsten zu ermittelnde Validierungsparameter. Die Unrichtigkeit darf nicht wesentlich von der Unrichtigkeit der Referenzmethode abweichen. Unpräzision

Wiederholstandardabweichung

Die Wiederholstandardabweichung ermittelt sich aus einer Messserie von einer einzelnen oder von mehreren Proben sowie aus Regelkarten von Kontrollproben. Die Standardabweichung aus einer Messreihe ($m > 1$) kann am einfachsten aus der Streuung s_{xy} um die Messgerade gewonnen werden. Im Übrigen wird die Wiederholstandardabweichung s_r aus Doppelbestimmungen von Ringversuchen ($p = 7$) erhalten.

Vergleichsstandardabweichung (s_R)

Die Vergleichsstandardabweichung s_R kann nur durch Ringversuche bestimmt werden.

Ad hoc-Validierung

Es liegt im Verantwortungsbereich jedes Analytikers, sich bei der Durchführung analytischer Arbeiten durch die ad hoc-Validierung zu versichern, dass vertrauenswürdige Ergebnisse erhalten werden. Über die geeigneten Massnahmen entscheidet der Analytiker im Einzelfall. Sie sind vor allem dann unentbehrlich, wenn unerwartete Resultate erhalten werden.

Beispiele:

- Kalibration mit Referenzmaterialien
- Blindproben mit oder ohne Matrix (Negativkontrolle)

- Analyse von Referenzmaterialien oder mit Referenzmaterialien versetzten Proben (Positivkontrolle)
- Einfache oder mehrfache Wiederholung der Analyse (Wiederholbarkeit)
- Veränderung der Einwaagen oder Verdünnung sowie Untersuchung von Mischproben (Linearität)

11.4 Schätzen der Messunsicherheit

Durch die Angabe der Messunsicherheit kann die Vergleichbarkeit von Messwerten verbessert werden. Die alte Streitfrage, welches Labor nun eigentlich den richtigen Wert lieferte, sollte damit der Vergangenheit angehören. Durch eine einheitliche und vollständige Ermittlung der Messunsicherheit sollten die Unterschiede bei der Beurteilung von Messresultaten verschwinden. Es gibt verschiedene Verfahren, um mit relativ geringem Rechenaufwand realistische und robuste Schätzungen für die Messunsicherheit zu erhalten. Da die Schätzung von Streuungsparametern mit einer sehr grossen Unsicherheit behaftet ist, müssen diese aus möglichst zuverlässigen Daten gewonnen werden. Die Probeninhomogenität fester Proben wird jedoch nicht berücksichtigt, weil aus praktischen Gründen in der Regel Stichproben ohne Prüfplan untersucht werden. Ausserdem lassen sich zuverlässige Daten zur Probeninhomogenität nur äusserst schwer ermitteln.

Definition Messunsicherheit (u)

Die Messunsicherheit ist das Resultat einer vollständigen Fehlerabschätzung. Sie ist also umfassender als die statistische Standardabweichung oder der Vertrauensbereich. Namentlich die Faktoren, welche zwischen verschiedenen Laboratorien eine Rolle spielen können, sind zu berücksichtigen. Andererseits ist der wahre Fehler eines Resultates nie bekannt. Trotz grosser Messunsicherheit kann eine Resultatangabe genau richtig sein. Die Messunsicherheit muss für jeden Skalarwert x neu berechnet werden. Sie ist ungefähr proportional zum x -Wert, aber die RSD nimmt mit dem x -Wert ab (vgl. Horwitz-Gleichung). Sie verläuft jedenfalls nicht wie die Konfidenzintervalle einer Kalibriergeraden.

Berechnung von Standardabweichungen aus Streuungswerten

Alle Unsicherheiten müssen zuerst in Form einer Standardmessunsicherheit gebracht werden, bevor sie in den Gleichungen der Fehlerfortpflanzung kombiniert werden können.

Regeln der Fehlerfortpflanzung

Produkte

Die Analysenfunktion ist in den häufigsten Fällen ein Produkt bzw. ein Quotient der Parameter p_i mal eine Konstante K .

$$x = K \cdot \frac{p_1 \cdot p_2 \cdots p_i}{p_{i+1} \cdot p_{i+2} \cdots}$$

Dann gilt für die Fehlerfortpflanzung die Gleichung der Quadratsummen der relativen Unsicherheiten der einzelnen Parameter:

$$RSD_x = \frac{u}{x} = \sqrt{\sum_i \left(\frac{u_{p_i}}{p_i} \right)^2}$$

Aufgrund der quadratischen Fehlerfortpflanzung müssen die grössten RSD_{p_i} am genauesten abgeschätzt werden. Bei abhängigen Parametern darf die relative Messunsicherheit nur einmal berücksichtigt werden.

Summen

Für Summen bzw. Differenzen können nur Grössen mit denselben Einheiten verrechnet werden. Dann gilt die Fehlerfortpflanzung für die absoluten Beiträge der Messunsicherheit.

$$u = \sqrt{\sum_i (u_{xi})^2}$$

11.5 Abschätzung nach Horwitz

Horwitz-Gleichung

Im Normalfall (vor allem für chromatographische Methoden) gibt die Horwitz-Gleichung eine brauchbare Schätzung von u , falls spezifische Versuchsdaten fehlen. Sie basiert auf der Auswertung von sehr vielen internationalen Ringversuchen. Die Horwitz-Gleichung ist nur für Messgrössen in Konzentrationseinheiten verwendbar.

$$RSD_{Horwitz} = \frac{u}{x} = 2 \left(4 \frac{\log x}{2} \right) (\%) \quad (x \text{ in mg/L}) \quad \text{wobei}$$

$RSD = \text{Relative Standardmessunsicherheit } (u/x)$

Relative Horwitz-Gleichung

Falls die Messunsicherheit bei einer bestimmten Konzentration x_1 gut bekannt ist, kann sie mit dieser Formel leicht auf eine andere Konzentration x_2 umgerechnet werden.

$$\frac{RSD_{x2}}{RSD_{x1}} = 2 \left(\frac{\log \left(\frac{x_1}{x_2} \right)}{2} \right)$$

11.6 Korrektur mit Horrat-Faktor

Der Horrat-Faktor ist das Verhältnis der effektiven Vergleichbarkeit zur Vergleichbarkeit nach Horwitz. Entsprechend können zur Abschätzung der Messunsicherheit ausgehend von der Horwitzgleichung Korrekturen beispielsweise für Präzisionsanalysen einerseits und instabile Messungen andererseits eingeführt werden.

$$RSD = H_1 * H_2 * H_3 * RSD_{Horwitz}$$

Nach diesem vereinfachten Model werden die folgenden Haupteinflussfaktoren eingesetzt:

Probenvorbereitung

Beschreibung	H ₁
inhomogene oder instabile Probe	2

Probenaufbereitung

Beschreibung	H ₂
variable Wiederfindung	2

Messung

Beschreibung	H ₃
Präzisionsmessung (z.B. Titration mit Urter)er)	0.2
Kalibration mit internem Standard	0.5
instabile Kalibration	2

11.7 Vollständige Abschätzung nach EURACHEM

Typ A

Dieses Verfahren liefert die beste Abschätzung, ist jedoch sehr aufwändig. Die Standardmessunsicherheiten werden aus statistischen Validierungsdaten ermittelt:

- Unrichtigkeit
- Wiederfindung (Score, Recovery)
- Robustheitsprüfungen bezüglich aller p_i nach
- Wiederholversuchen (Wiederholstandardabweichung)
- Qualitätsregelkarten von Kalibrationen oder
- Kontrollproben
Die Messunsicherheit wird aus der Fehlertoleranz (Summe der absoluten Unrichtigkeit und der Langzeit-Wiederholbarkeit ($k = 2$)) abgeschätzt.
- Ringversuchen

Die Messunsicherheit wird aus R und der Unrichtigkeit des eigenen Labors abgeschätzt.

$$u_{\text{exp}} = |\text{Unrichtigkeit}| + \frac{R}{\sqrt{2}}$$

Typ B

Die Unsicherheiten der Einflussfaktoren werden aus bereits bekannten Daten ermittelt:

- Literaturangaben
- Fehlertoleranzen von Gerätenormen und Geräteherstellern ($k = 3$)

$$u_{\text{exp}} = |\text{Unrichtigkeit}| + 3 \cdot s$$

- Spezifikationen aus der Gerätewartung
- Methodenvergleiche
- Vergleich mit ähnlichen Fällen
- Modellrechnungen
- Eigene Erfahrungen

11.8 Wichtige Kennzahlen der untersuchten Parameter

In der folgenden Tabelle sind die wichtigsten Kennzahlen der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Parameter übersichtlich dargestellt. Die Messunsicherheit ist neben der Methode selbstverständlich auch von der gefundenen Konzentration abhängig. In der Tabelle wird jedoch der Übersicht halber die relative Messunsicherheit für die einzelnen Parameter angegeben.

Kapitel 11: Statistische Grössen

Parameter	Symbol	Ordnungs- zahl	Methode	Beurteilungs- grenze	Einheit	rel. Messun- sicherheit	Labor	Toleranz- Wert (FIV)	Grenz- Wert (FIV)
Aluminium	Al	13	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH	200 mg/l	
Antimon	Sb	51	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Arsen	As	33	ICP-MS	0.2	µg/l	15%	KLZH		0.05 mg/l
Barium	Ba	56	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Beryllium	Be	4	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Wismut	Bi	83	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Blei	Pb	82	ICP-MS	0.5	µg/l	15%	KLZH		0.01 mg/l (ab Wasserhahn)
Bor	B	5	ICP-MS	200	µg/l	15%	KLZH		
Cadmium	Cd	48	ICP-MS	0.1	µg/l	15%	KLZH		0.005 mg/l
Caesium	Cs	55	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Cer	Ce	58	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Chrom	Cr	24	ICP-MS	2	µg/l	15%	KLZH		0.02 mg/l (als Cr VI)
Kobalt	Co	27	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Eisen	Fe	26	ICP-MS	1000	µg/l	15%	KLZH	0.3 mg/l	
Gallium	Ga	31	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Germanium	Ge	32	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Gold	Au	79	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Hafnium	Hf	72	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Indium	In	49	ICP-MS	1	µg/l	15%	KLZH		
Iridium	Ir	77	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Kupfer	Cu	29	ICP-MS	1	µg/l	15%	KLZH	1.5 mg/l	
Lanthan	La	57	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Lithium	Li	3	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Mangan	Mn	25	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH	0.05 mg/l	
Molybdän	Mo	42	ICP-MS	1	µg/l	15%	KLZH		
Neodym	Nd	60	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Nickel	Ni	28	ICP-MS	2	µg/l	15%	KLZH		
Niob	Nb	41	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Osmium	Os	76	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Palladium	Pd	46	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Platin	Pt	78	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Rhenium	Re	75	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Rubidium	Rb	37	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Ruthenium	Ru	44	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Samarium	Sm	62	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Silber	Ag	47	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH	0.1 mg/l	
Tantal	Ta	73	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Tellur	Te	52	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Thallium	Tl	81	ICP-MS	0.1	µg/l	15%	KLZH		
Thorium	Th	90	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Uran	U	92	ICP-MS	0.1	µg/l	15%	KLZH		10 Bq/l
Vanadium	V	23	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Wolfram	W	74	ICP-MS	1	µg/l	15%	KLZH		
Yttrium	Y	70	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Zink	Zn	30	ICP-MS	2	µg/l	15%	KLZH	5 mg/l	
Zinn	Sn	50	ICP-MS	0.5	µg/l	15%	KLZH		
Zirkonium	Zr	40	ICP-MS	10	µg/l	15%	KLZH		
Radon-222	Rn	86	Alphaspektrometrie	0.5	Bq/l	10%	KLLGR		
Radium-226	Ra	86	Alphaspektrometrie	15	mBq/l	30%	KLLGR		1 Bq/l
Radium-228	Ra	88	Alphaspektrometrie	15	mBq/l	30%	KLLGR		1 Bq/l
Natrium	Na	11	ICP-OES	100	µg/l	5%	KLLGR		
Kalium	K	19	ICP-OES	100	µg/l	5%	KLLGR		
Eisen	Fe	26	ICP-OES	5	µg/l	5%	KLLGR		
Silizium	Si	14	ICP-OES	10	µg/l	5%	KLLGR		
Strontium	Sr	38	ICP-OES	10	µg/l	5%	KLLGR		
Gesamthärte			IC	-	fH°	10%	KLLGR		

Parameter	Symbol	Ordnungs- zahl	Methode	Beurtei- lungs- grenze	Einheit	rel. Messun- sicherheit	Labor	Toleranz- Wert (FIV)	Grenz- Wert (FIV)
Säurever- brauch			IC	-	fH°	5%	KLLGR		
Resthärte			IC	-	fH°		KLLGR		
Bicarbonat	HCO ₃ ⁻		IC	-	mg/l	5%	KLLGR		
Chlorid	Cl ⁻		IC	1	mg/l	15%	KLLGR		
Nitrat	NO ₃ ⁻		IC	1	mg/l	20%	KLLGR	40 mg/l	
Sulfat	SO ₄ ²⁻		IC	1	mg/l	15%	KLLGR		
Nitrit	NO ₂ ⁻		Photometrie	0.02	mg/l	15%	KLLGR	0.1 mg/l	
Magnesium	Mg		IC	1	mg/l	15%	KLLGR		
Calcium	Ca		IC	1	mg/l	15%	KLLGR		
Leitfähigkeit			physik. Methode	-	µS/cm	10%	KLLGR		
pH			physik. Methode	-		0.20%	KLLGR		
Temperatur			physik. Methode	-	°C	10%	KLLGR		

Tab. 17: Wichtige Kennzahlen der untersuchten Parameter

12 Literaturliste

Adam und Becker 2000

Adam, K.P., Becker, H.: Analytik biogener Arzneistoffe. Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft Stuttgart (2000)

Allegre und Michard 1973

Allegre, C.J., Michard, G.: Introduction à la géochimie. Collection SUP, Presses universitaires de France, Vendôme (1973)

Asikainen und Kahlos 1979

Asikainen, M., Kahlos, H.: Anomalously high concentrations of Uranium, Radium and radon in water from drilled wells in the Helsinki region. Geochim. Cosmochim. Acta Vol. 43, S 1681-1686 (1979)

Attendorn und Bowen 1997

Attendorn, H.G., Bowen, R.N.C.: Radioactive and stable isotope geology. Chapman & Hall, London-Weinheim-New York-Tokyo-Melborne-Madras (1997)

Azevedo et al. 1984

Azevedo, H.L., Amaral, E.C.S., Godoy J.M.: Evaluation of Ra-226 and Pb-210 Contamination on Sediments of the Receiving Waters of Brazilian Uranium Mining and Milling and their Transport downstream. Progress report for IAEA Research Contract No. 3431/RB, Instituto de Radioprotecao e Dosimetria-CNEN, Rio de Janeiro (1984)

BAG 1995

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 1994, Bundesamt für Gesundheit, Bern (1995)

BAG 1996

Radon von A bis Z, Bundesamt für Gesundheit, Bern (1996)

BAG 1997

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 1997, Bundesamt für Gesundheit, Bern (1997)

BAG 2002

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 2001, Bundesamt für Gesundheit, Bern (2002)

BAG 2003

Umweltradioaktivität und Strahlendosen in der Schweiz, 2002, Bundesamt für Gesundheit, Bern (2003)

Baertschi und Keil 1992

Baertschi, P. und Keil, R.: Urangelhalte von Oberflächen-, Quell und Grundwässern der Schweiz. NTB 91-26, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Wettingen (1992)

Balderer und Löw 2003

Balderer, W., Löw S.: Grundzüge der Hydrogeologie. Skript zu Vorlesung. Geolog. Institut ETH Zürich. (2003)

Bell 1954

Bell, K.G.: Uranium in precipitates and evaporites. Uranium and thorium in sedimentary rocks. In: Faul, H. (Hrsg.): Nuclear geology. Wiley, New York (1954)

BMU 1993

Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit Deutschland, Jahresbericht (1993)

Bloch und Craig 1981

Bloch, S., Craig, R.L.: Radioactive springs in the watershed of a proposed reservoir in Sequoyah Country, Oklahoma: Origin and environmental effect. *Geology* 9, S. 195-199, (1981)

Bosshard 1992

Bossahrd, E., Zimmerli B., Schlatter Ch.: Uranium in the Diet: Risk Assessment of its Nephro- and Radiotoxicity. *Chemosphere*, Vol. 24, No. 3, 309-321 (1992)

Böhm 2002

Böhm, Chr.: Radon im Wasser-Überblick für den Kanton Graubünden. *Jber. Natf. Ges. Graubünden* 111, S. 49-79 (2002)

Bowie und Horne 1952

Bowie, S.H.I., Horne, J.E.T.: Cheralite, a new mineral of monazite group. *Great Britain Geol. Survey Atomic Energy Dir. Rept.* 134, S. 1-5, (1952)

BfS 2002

BfS schliesst Untersuchung von Mineralwässern auf radioaktive Inhaltsstoffe ab. Bundesamt für Strahlenschutz in Deutschland. Pressemitteilung vom 30.9.2002 (2002)

Buttlar und Roth 1990

Buttlar, H.v., Roth, M.: Radioaktivität: Fakten, Ursachen, Wirkungen. Springer, Berlin-Heidelberg-New York-London-Paris-Tokyo-HongKong (1990)

Caminada 1961

Caminada, Chr.: Die verzauberten Täler. Die urgeschichtlichen Kulte und Bräuche im alten Rätien. Olten/Freiburg, Walter (1961)

Carlé 1975

Carlé, W.: Die Mineral- und Thermalwässer von Mitteleuropa. *Wissensch. Verlagsgesellschaft MBH*, Stuttgart (1975)

Cecile et al. 1984

Cecile, M.P., Goodfellow, W.D., Jones, L.D., Krouse, H.R., Shakur, M.A.: Origin of radioactive barite sinter, Flyby Springs, Northwest Territories, Canada. *Can. J. Earth Sci.* 21, S. 383-395 (1984)

Chung 1981

Chung, Y.: Radium-226 and radon-222 in southern California groundwater: Spatial variations and correlations. *Geophys. Res. Lett.* 8, S. 457-560 (1981)

Clever 1985

Clever, H.L.: Solubility Data Series, Vol. 2, Krypton-, Xenon-, Radon-Gas Solubilities. Pergamon Press, Oxford, S. 227-737 (1985)

Cramer et al. 1988

Cramer, J.J., Vilks, P., Larocque, J.P.A.: Near field analogue features from the Cigar lake Uranium Deposit. Proc. Natural Analogues in radioactive Waste Disposal. Symposium Brussels 28.-30.4.1987, B. Côme et al. CEC-Report Nr. Eur 11037 (1988)

Dean 1985

Dean, J.A.: Lange's Handbook of Chemistry. McGraw-Hill, New York (1985)

Dearlove et al. 1991

Dearlove, J.P., Longworth, G., Ivanovich, M., Kim, J.-I., Delakowitz, B., Zeh, P.: A study of groundwater colloids and their geochemical interactions with natural radionuclides in Gorleben aquifer systems. Radiochem. Acta 52-3, S. 83-89 (1991)

Dickson et al. 1981

Dickson, B.L., Meakins, R.L., Bland, C.J.: Radium removal from Australian spa waters. Bull. Aust. Radiation Protection Society, 1/82, S. 289-295 (1981)

Dickson 1990

Dickson, B.L.: Radium in groundwater. In: International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): The environmental behavior of Radium Vol. 1. Tech. Reports Ser. No. 310, IAEA, Wien, S. 335-372 (1990)

Dyck 1979

Dyck, W.: The mobility and concentration of uranium and its decay products in temperate surficial environments. In Kimberley, M.M. (Hrsg.): Uranium deposits, their mineralogy and origin. University of Toronto Press, Toronto, Reprint, S. 57-100 (1979)

Eikenberg et al. 2001

Eikenberg, J., Tricca, A., Vezzu, G., Bajo, S., Ruethi, M., Surbeck, H.: Determination of ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{224}Ra in natural water via adsorption on MnO_2 -coated discs. Journal of Environmental Radioactivity 54, 109-131 (2001)

EU 2001

Europäische Union: Empfehlung der Kommission über den Schutz der Öffentlichkeit vor der Exposition gegenüber Radon im Trinkwasser. Bekannt gegeben unter Aktenzeichen K(2001) 4580, 2001/928/Euratom (2001)

Eurachem 2000

Eurachem: Quantifying Uncertainty in Analytical Measurement. Citag Guide, London, second edition (2000)

Falbe und Regitz 1992

Falbe, J., Regitz, M.: Römpp Chemie Lexikon. Georg Thieme Verlag, Stuttgart-New York, 9. korr. u. verb. Aufl. (1992)

Feige und Wiegand 1998

Feige, S., Wiegand, J.: Einfluss des Kohlebergbaus auf das Radon-Potential. In: Winter, M., Henrichs, K., Doerfel (Hrsg.): Fachverband für Strahlenschutz. Tagungsband, Publikationsreihe Fortschritte im Strahlenschutz, TÜV-Verlag, Köln, Bd.II, S. 930-935 (1998)

Fetter 2001

Fetter, C.W.: Applied Hydrogeology. Forth Edition. Prentice-Hall Inc., New Jersey (2001)

Fiedler und Rösler 1988

Fiedler, H.J., Rösler, H.J.: Spurenlemente in der Umwelt. Enke, Stuttgart (1988)

FIV 2002

Fremd- und Inhaltsstoffverordnung SR 817.021.23 vom 26. Juni 1995, Stand 2002, EDMZ Bern (1995)

Füchtbaur 1988

Füchtbaur, H (Hrsg.), Dietrich, H., Müller, G., Richter, D.K., Schminke, H.-U., Schneider, H.-J., Valetton, I., Walther, H.W., Wolf, M.: Sedimente und Sedimentgesteine-Teil II Sediment-Petrologie. Schweizerbart'sche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart, 4. Neuberarb. Aufl. (1988)

Gainon (2003)

Gainon, F.: Etude hydrogéologique de la source radioactive de St-Placidus, Disentis, canton des grisons. Diplomarbeit Universität Neuchâtel (2003)

Gauthier-Lafaye und Weber 1989

Gauthier-Lafaye, F., Weber, F.: Natural fission reactors of Oklo. Econ. Geol., 84, S.

Gascoyne 1992

Gascoyne, M.: Geochemistry of the actinides and their daughters. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Hrsg.) Uranium-series Disequilibrium: Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, 2. Aufl., S. 34-61 (1992)

Gellermann und Dörr 1993

Gellermann, R., Dörr, H.: Bewertung der natürlichen Radioaktivität von Grundwasser. WLB Zeits. Umweltt., 11-12 (1993)

Gerthsen et al. 1986

Gerthsen, C., Kneser, H.O., Vogel, H.: Physik. Springer, Berlin-Heidelber-New York-Tokyo, 15. Neubearb. u. erw. Aufl. (1986)

Gilliéron 1988

Gilliéron F.: Zur Geologie der Uranmineralisation in den Schweizer Alpen. Herausgegeben von der Schweizerischen Geotechnischen Kommission, Geographischer Verlag, Bern (1988)

Greenwood and Earnshaw 1990

Greenwood, N.N., Earnshaw, A.: Chemie der Elemente. Übers. Von Hückmann, K., VCH, Weinheim-Basel-Cambridge-New York, 1. Korr. Nachdr. Der 1. Aufl. (1990)

Haberer 1999

Haberer K.: Radium 226 in Filterschlammern der Grundwasseraufbereitung. Vom Wasser, 92, 335-345 (1999)

Haberer 1999

Haberer K., Raff O.: Removal of Naturally Occuring Radionuclides from Drinking Water – An Overview. Vom Wasser, 93, 305-324 (1999)

Hartmann 1998

Hartmann P.: Mineralwasservorkommen im nördlichen Bündnerschiefergebiet mit Schwerpunkt Valsertal. Diss. Nr. 12'632, ETH Zürich (1998)

Högl 1980

Högl, O.: Die Mineral- und Heilquellen der Schweiz. Verlag Paul Haupt, Bern und Stuttgart (1980)

Höll 1986

Höll, K.: Wasser: Untersuchung, Beurteilung, Aufbereitung, Chemie, Bakteriologie, Virologie, Biologie. De Gruyter Verlag, Berlin-New York, 7. völlig neu bearb. Aufl. (1986)

Huang und Walker 1967

Huang, W.H., Walker, R.M.: Fossil alpha-particle tracks: a new method of age determination. Science 155, S. 1103-1106 (1967)

Jäckli 1985

Jäckli, H.: Erläuterungen zur Hydrogeologischen Karte der Schweiz 1:100'000 Blatt Panixerpass. Herausgegeben von der Schweizerischen Geotechnischen Kommission, Zürich (1985)

Jaworowski 1990

Jaworowski, Z.: Sources and the global cycle of Radium. In: International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): The environmental behavior of Radium Vol. 1. Tech. Reports Ser. No. 310, IAEA, Wien, S. 119-144 (1990)

Kaufmann und Bliss 1977

Kaufmann, R.F., Bliss, J.D.: Effect of Phosphate Mineralization and the Phosphate Industry on Ra-226 in Groundwater of Central Florida. Rep. EPA/520-6-77-010, United States Environmental Protection Agency, Las Vegas, NV (1977)

Kemski 1993

Kemski, J.: Radonmessungen in der Bodenluft zur Lokalisierung von Störungen im Neuwieder Becken (Mittelrhein). Bonner geow. Schr., 8, S. 1-144 (1993)

Kemski 1996

Kemski, J., Klingel, R., Siehl, A.: Die terrestrische Strahlung durch natürliche radioaktive Elemente in Gesteinen und Böden. In: Siehl, A. (Hrsg.): Umweltradioaktivität. Ernst, Berlin, S. 179-222 (1996)

Kigoshi 1971

Kigoshi, K.: Alpha recoil thorium-234: Dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. Science 173, S. 47-48 (1971)

Klingel et al. 1995

Klingel, R., Klinger, C., Thein., J.: Zur Mobilität von Uran und Radium. In: Merkel, B., Hurst, S., Löhnert, E.P., Struckmeier, W. (Hrsg.): Uranium in Mining and Hydrogeology. – Proc. Intern. Conf. Freiberg, Oct. 1995, Köln, Sven von Loga, S. 315-324 (1995)

KLLGR 2002

Qualitätsmanagement-Handbuch ISO/IEC 17025 und EN 45004 für das Kantonale Labor und Lebensmittelkontrolle Graubünden. Kantonales Labor und Lebensmittelkontrolle Graubünden, Chur. Nicht publ. (2002)

Korner und Rose 1977

Korner, L.A., Rose, A.W.: Radon in streams and ground waters of Pennsylvania as a guide to uranium deposits. U.S. Dept. of Energy Report GJO-1659-20 (1977)

Kromidas 1999

Kromidas, S.: Validierung in der Analytik, Wiley-VCH, Weinheim (1999)

Labhart 2001

Labhart, T. P.: Geologie der Schweiz. 5., überarbeitete Auflage. Ott Verlag, Thun (2001)

Langmuir 1978

Langmuir, D.: Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. Geochim. Cosmochim. Acta Vol. 42, S. 547-569 (1978)

Langmuir und Riese 1985

Langmuir, D., Riese, A.C.: The thermodynamic properties of radium. Geochim. Cosmochim. Acta Vol. 49, S. 1593-1601 (1985)

Levins et al. 1978

Levins, D.M., Ryan, R.K., Strong, K.P.: Leaching of radium from uranium tailings, Management, Stabilisation and Environmental Impact of Uranium Mill Tailings (Proc. Int. Symp. Knoxville, TN, 1981) International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, S. 3-23 (1978)

LMV 2002

Lebensmittelverordnung SR 817.02 vom 1. März 1995, Stand 2002, EDMZ Bern (1995)

Löw 1999

Löw, S., Wiss, R.: Vorerkundung und Prognose der Basistunnels am Gotthard und am Lötschberg. Verlag A.A. Balkema, Rotterdam (1999).

MAFF 1997

Radioactivity in Food and the Environment, annual report 1997 Ministry of Agriculture, Fisheries and Food (MAAF), Radiological Safety Division, Ergon House, 17 Smith Square, London, SW1P3JR (1997)

Matthess 1973

Matthess, G.: Die Beschaffenheit des Grundwassers. Bornträger, Berlin-Stuttgart (1973)

Matthess 1994

Matthess, G.: Die Beschaffenheit des Grundwassers. Lehrbuch der Hydrogeologie, Bd. 2. Bornträger, Berlin-Stuttgart (1994)

Molinari und Snodgrass 1990

Molinari, J., Snodgrass, W.J.: The chemistry and radiochemistry of Radium and the other elements of Uranium and Thorium natural decay series. In: International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): The environmental behavior of Radium Vol. 1. Tech. Reports Ser. No. 310, IAEA, Wien, S. 11-58 (1990)

Moore und Edmond 1984

Moore, W.S., Edmond, J.M.: Radium and barium in the Amazon River system. J. Geophys. Res. 89 C2, S. 2061-2065 (1984)

Müller 1952

Müller, I.: Die Abtei Disentis 1655-1696.: Zeitschrift für schweizerische Kirchengeschichte. Beiheft 15. Freiburg, Pulus (1952)

Müller 1971

Müller, I.: Geschichte der Abtei Disentis. Von den Anfängen bis zur Gegenwart. Zürich/Köln, Benziger (1971)

Nabolz 1982

Nabolz, W.: Hydrogeologischer Bericht über die Frage: Kann der Bau von Lawinenschutzdämmen auf der Leisalp oberhalb Vals die mineralisierten Thermalquellen von Vals beeinflussen. Nicht publ. (1982)

Osmond und Cowart 1976

Osmond, J.K., Cowart, J.B.: The theory and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology. Atomic Energy Review 144, S. 621-677 (1976)

Osmond und Cowart 1992

Osmond, J.K., Cowart, J.B.: Ground Water. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Hrsg.): Uranium-series Disequilibrium: Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, 2. Aufl., S. 290-333 (1992)

Osmond et al. 1983

Osmond, J.K., Cowart, J.B., Ivanovich, M.: Uranium isotopic disequilibrium in groundwater as an indicator of anomalies. Int. J. Appl. Radiat. Isot. Vol. 4, No. 1, S. 283-308 (1983)

Osmond und Ivanovich 1992

Osmond, J.K., Ivanovich, M.: Uranium-series mobilization and surface hydrology. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Hrsg.): Uranium-series Disequilibrium: Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, 2. Aufl., S. 259-289 (1992)

Philipsborn 1997

Philipsborn, H. von: Strahlenschutz-Radioaktivität und Strahlenmessung, Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen (Hrsg.), München, 5. Erw. Aufl. (1997)

Plusminus 2002

Presstext zum Fernseh-Beitrag der Sendung "Plusminus" vom 11. April 2000

Puigdomenech und Bruno 1988

Puigdomenech, I. und Bruno, J.: Modelling uranium solubilities in aqueous solutions: validation of a thermodynamic data base for the EQ3/6 geochemical codes. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., Stockholm. SKB Technical Report, 88-21 (1988)

Raff 1998

Raff, O., Haberer, K.: Radon-222 in Ground Water in the German Rhine-Nahe-Area. Vom Wasser, 90, 311-317 (1998)

Rissi 1992

Rissi, A.: Hydrogeologische Begutachtung der Mineralquelle Albula in Bergün/GR. Nicht publ. (1992)

Rogers und Adams 1969

Rogers, J.J.W., Adams, J.A.S.: Uranium. In: Wedepohl, K.H. (Hrsg.): Handbook of Geochemistry. Springer, Berlin-New York (1969)

Rosholt 1982

Rosholt, J.N.: Mobilisation and weathering. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Hrsg.) Uranium-series Disequilibrium: Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. Clarendon Press, Oxford, S. 167-180 (1982)

Sachs 1997

Sachs, L.: Angewandte Statistik, 8. Auflage. Springer, Berlin (1997)

Schassmann 1980

Schassmann, H.: Geologie und Genese der schweizerischen Mineral- und Heilwässer. In Högl (1980)

Schweizer 1916

Schweizer, A.: Über die Radioaktivität der Heilquellen der Schweiz. Ann. Schweizerischen balneologischen Gesellschaft 11/12 (1916)

Sieber et al. 1993

Sieber Cassina und Handke AG: Grundwasseruntersuchungen Val Poschiavo. Hydrogeologisches Gutachten. Schlussbericht. Nicht publ. Chur (1993)

Spicher 1980

Spicher, A: Tektonische Karte der Schweiz. Herausgegeben von der schweiz. Geol. Kommission (1980)

Spillmann 1993

Spillmann, P.: Die Gologie des penninisch-ostalpinen Grenzbereichs im südlichen Berninagebirge. Diss. Nr. 10'175, ETH Zürich (1993)

Surbeck 1991

Surbeck, H.: Radium und Radon im Boden, messtechnische und geologische Aspekte. In: Völkle, H., Borchardt, D. (Hrsg.): Messung von Radon und Radon-Folgeprodukten. Tagungsband, Publikationsreihe Fortschritte im Strahlenschutz, TÜV-Verlag, Köln, S. 132-142 (1991)

Surbeck 1993

Surbeck, H.: Nature and Extent of a Ra-226 Anomaly in the Western Swiss Jura Mountains. In: Proc. 1992 Int. Symp. on Radon and Radon Mitigation Technology, Sept 21-25, 1992, Minneapolis MN EPA-600/R-93-0836, NTIS PB 93-196202, Springfield VA, 1992 (1993)

Surbeck 1995

Surbeck, H.: Determination of natural radionuclids in drinking water; a tentative protocol. The Science of the total Environment 173/174, 91-99 (1995)

Surbeck 2000

Surbeck, H.: Alpha spectrometry sample preparation using selectively adsorbing thin films. Applied Radiation and Isotopes 53, 97-100 (2000)

StsV 1994

Strahlenschutzverordnung SR 814.501 vom 22. Juni 1994, Stand 2001, EDMZ Bern (1994)

Szalay und Samsoni 1969

Szalay, S. und Samsoni, Z.: Investigation of the leaching of uranium from crushed magmatic rock. *Geochem. Int.* 6, S. 613-623 (1969)

Tanner 1980

Tanner A.B.: Radon migration in the ground: a supplementary review. In: Gesell, T.F., Lowder, W.H. (Hrsg.): *The natural radiation environment, III*, Nat. Techn. Inform. Service, U.S. Dept. of Energy Rep. CONF-780422, S. 5-56 (1980)

Tillmans 1912

Tillmans, J., Heublein, O.: Über die kohlen-sauren Kalk angreifende Kohlensäure der natürlichen Wässer. *Gesundheitsing.*, 35, S. 669 (1912)

Tripathi 1979

Tripathi, V.S.: Comments on "Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits". *Geochim. Cosmochim. Acta* Vol. 43, S. 1989-1990 (1979)

Veeh 1967

Veeh, H.H.: Disposition of Uranium from the ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.* 3, S. 145-150 (1967)

Walker 1998

Walker, H.-S.: Radon-222 dans les eaux souterraines du canton de Fribourg. *Mitt. Gebiete Lebensm.Hyg.*, 98/6,700-704 (1998)

Welte 1962

Welte, D.H.: Sedimentologische Untersuchung uranhaltiger Keupersedimente aus der Umgebung von Lichtenfels bei Coburg. *Geologica Bavarica* Nr. 49, S. 92-123 (1962)

Wedepohl 1974

Wedepohl, K.H. (Hrsg.): *Handbook of Geochemistry*. Springer, Berlin-New York (1974)

Wenzin 1882

Wenzin, M.: *Descriptio brevis communitatis Desertinensis*. In Decurtins, C. (Hrsg.): Luzern, Schill (1882)

Wiegand 1993

Wiegand, J.: Geochemische und radiometrische Untersuchungen an den Graniten des Neuenburg-Thansteiner Massivs (Oberpfalz). Bonn, *Geowiss. Schriften* 10, Bonn (1993)

Wiegand 1997

Wiegand, J.: Radon and other radionuclides in organic carbon-rich sediments of Lower Carboniferous in the Rheinische Schiefergebirge (Germany). In: Virk, H.S. (Hrsg.): *Rare Gas Geochemistry – Applications in earth and environmental sciences*, Amritsar, India, S. 17-25 (1997)

13 Anhang

- 13.1 Resultate Radioaktivitätsmessungen Quell- und Grundwasser
- 13.2 Resultate Elementscreen Quell- und Grundwasser
- 13.3 Resultate Radioaktivitätsmessungen Mineralwasser
- 13.4 Resultate Elementscreen Mineralwasser
- 13.5 Gemeinden eingeteilt in "Radongebiet" bzw. "Kein Radongebiet"
- 13.6 Radonwerte für die Einteilung der Gemeinden in "Radongebiet" bzw. "Kein Radongebiet"
- 13.7 Resultate Radioaktivitätsmessungen, Elementscreen und chemische Parameter der weiterverfolgten Hot-Spots
- 13.8 Resultate kontinuierliche Radon-Luftmessungen Quelle Leis
- 13.9 Resultate kontinuierliche Radon-Luftmessungen Placidusquelle
- 13.10 Curriculum vitae

13.1 Resultate Radioaktivitätsmessungen Quell- und Grundwasser (nach Gemeinden geordnet)

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
45	20020945	Almens	Reservoir / A	177.842	751.080	780	Q	11.03.2002	4.0	7.6	490	13	12	16	14
148	20021260	Alvaneu	Reservoir / E	172.482	768.166	1181	Q	26.03.2002	5.2	8.2	338	10	2	<15	0
142	20021254	Alvaschein	Reservoir / A	172.025	762.000	1001	Q	26.03.2002	4.1	7.8	574	14	2	20	2
190	20021356	Andeer	Reservoir / A	163.042	752.912	1040	Q	03.04.2002	5.2	8.0	224	18	34	98	26
285	20021753	Andiast	Reservoir / E	183.125	727.950	1230	Q	24.04.2002	5.3	7.8	290	16	11	23	8
204	20021371	Ardez	Reservoir / E	185.938	810.691	1550	Q	03.04.2002	2.5	7.7	133	13	1	<15	3
205	20021372	Ardez	Reservoir Sur En / E	182.940	809.155	1560	Q	03.04.2002	2.0	7.9	156	22	15	<15	0
106	20021156	Arosa	Reservoir Quellen Maran / E	184.820	771.030	1810	Q	20.03.2002	4.4	7.9	334	3	27	34	13
107	20021157	Arosa	Reservoir auf den Wiesen / E	183.250	769.650	1920	Q	20.03.2002	3.8	8.1	259	47	22	44	5
108	20021158	Arosa	Reservoir Hüschi vor UV / E	182.910	769.310	1950	Q	20.03.2002	3.1	8.1	334	8	7	20	2
109	20021159	Arosa	Grundwasserpumpe Isla	182.875	771.775	1612	G	20.03.2002	4.9	8.1	288	13	22	<15	0
340	20021882	Arvigo	Reservoir / A	129.284	728.426	835	Q	01.05.2002	5.4	7.4	33	13	11	<15	0
350	20021943	Ausserferrera	Reservoir / A	158.004	753.638	1300	Q	06.05.2002	4.6	7.8	93	30	106	135	2
342	20021935	Avers	Avers-Cresta Reservoir / E	149.052	759.506	1959	Q	06.05.2002	1.9	7.6	165	10	2	22	0
343	20021936	Avers	Avers-Campsut Reservoir / E	150.252	756.738	1643	Q	06.05.2002	3.8	8.0	121	10	10	24	0
344	20021937	Avers	Avers-Juf Reservoir / A	146.252	764.472	2126	Q	06.05.2002	2.6	7.8	102	6	1	<15	0
345	20021938	Avers	Avers-Cröt Reservoir / E	148.978	757.570	1772	Q	06.05.2002	2.0	7.8	202	4	9	<15	0
185	20021351	Bergün	Reservoir / E	166.472	777.302	1367	Q	03.04.2002	3.0	8.1	249	13	4	130	5
186	20021352	Bergün	Preda Reservoir / A	162.578	779.308	1789	Q	03.04.2002	2.8	7.9	781	9	10	27	0
187	20021353	Bergün	Latsch Reservoir E	167.578	777.020	1601	Q	03.04.2002	4.2	8.1	249	25	11	140	11
188	20021354	Bergün	Stugl Reservoir / E	169.120	775.578	1576	Q	03.04.2002	3.4	8.1	241	0	16	352	0
319	20021832	Bever	Pumpwerk / A	158.800	786.350	1745	G	30.04.2002	3.4	8.4	100	17	22	<15	0
320	20021833	Bever	Reservoir Chastimels / E	158.970	787.500	1784	Q	30.04.2002	3.6	7.6	47	13	1	<15	6
123	20021231	Bivio	Reservoir / A	148.520	770.280	1798	Q	25.03.2002	3.1	8.1	156	18	1	34	0
39	20020890	Bonaduz	Reservoir / E	185.502	748.302	725	Q	06.03.2002	4.6	7.7	461	12	2	19	0
297	20021772	Bondo	Reservoir Motta	133.600	763.250	910	Q	24.04.2002	5.8	7.8	33	16	8	<15	0
239	20021609	Breil/Brigels	Reservoir Luvrena / E	181.280	723.130	1357	Q	17.04.2002	6.0	8.2	164	22	52	108	0
240	20021610	Breil/Brigels	Danis/Dardin Reservoir Dardin / E	179.880	722.540	1127	Q	17.04.2002	7.3	7.8	373	22	11	36	5
241	20021611	Breil/Brigels	Tavanasa Reservoir / E	179.140	723.720	850	Q	17.04.2002	7.2	7.9	218	29	64	50	17
151	20021263	Brienz	Reservoir / A	170.124	765.082	1146	Q	26.03.2002	3.6	7.9	720	18	8	29	0
265	20021712	Brusio	Reservoir Contrade di Sopra / E	128.300	806.480	1198	Q	22.04.2002	5.4	8.0	201	25	13	89	0
266	20021713	Brusio	Reservoir Brusio La Presa / E	127.500	806.200	940	Q	22.04.2002	7.3	8.0	182	28	35	78	9
341	20021883	Buseno	Reservoir / A	125.420	728.338	703	Q	01.05.2002	5.1	7.2	45	6	3	<15	0
5	20020802	Calfreisen	Reservoir / E	190.312	764.550	1300	Q	04.03.2002	3.1	7.9	261	0	1	<15	7
110	20021172	Cama	Reservoir / A	126.665	733.112	391	Q	20.03.2002	4.8	7.5	63	8	13	<15	9
269	20021716	Campascio	Reservoir Campascio / E	125.100	808.200	725	Q	22.04.2002	7.5	7.8	179	65	101	135	31
270	20021717	Campocologno	Reservoir Campocologno / E	123.700	808.450	643	Q	22.04.2002	7.1	7.5	115	9	82	16	2
296	20021771	Castasegna	Reservoir Gandaiola / E	133.400	760.950	750	Q	24.04.2002	5.2	7.8	78	10	9	<15	3
6	20020803	Castiel	Reservoir Pensa / E	190.150	765.520	1280	Q	04.03.2002	7.3	7.8	425	17	4	<15	20
349	20021942	Casti-Wergenstein	Reservoir / A	165.782	750.246	1531	Q	06.05.2002	4.9	7.9	274	23	4	<15	0
135	20021243	Castrisch	Reservoir / E	182.000	737.000	800	Q	25.03.2002	6.3	7.6	503	4	8	20	6
282	20021749	Celerina	Reservoir Schlattain (Quellen Zuondra) / E	154.600	787.450	1778	Q	23.04.2002	3.9	8.0	165	19	3	18	0
283	20021750	Celerina	Reservoir Blais (Quellen Laret) / E	153.700	784.950	1778	Q	23.04.2002	3.5	8.1	374	22	4	18	0
21	20020857	Chur	Brunnenstube Salvatoren / A	190.850	758.210	595	G	06.03.2002	8.5	7.7	406	20	8	18	0
22	20020858	Chur	Brunnenstube Schützenhaus	191.500	757.260	570	G	06.03.2002	-	7.9	321	27	20	20	0
23	20020859	Chur	Reservoir Städeli / A	189.350	760.150	855	Q	06.03.2002	4.5	8.2	281	27	1	<15	0
24	20020860	Chur	Reservoir Kopf Mittenberg / E	190.200	760.940	1060	Q	06.03.2002	5.1	8.0	549	15	4	19	0
98	20021111	Churwalden	Passugg Reservoir Untergrida	188.475	761.040	855	Q	18.03.2002	4.0	7.9	342	8	2	<15	2

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
102	20021152	Churwalden	Reservoir Halde Messkasten / E	182.010	761.700	1396	Q	20.03.2002	5.0	7.6	401	6	29	<15	7
103	20021153	Churwalden	Reservoir Pradaschier Sammelwasser Messkasten	183.575	760.050	1289	Q	20.03.2002	4.8	7.7	315	8	6	<15	12
85	20021098	Conters	Reservoir Gaissegga / E	196.940	779.700	1185	Q	18.03.2002	4.6	7.7	358	0	2	<15	5
156	20021268	Cumbel	Reservoir Raissens / E	176.615	733.485	1265	Q	26.03.2002	6.6	7.8	426	12	3	29	0
129	20021237	Cunter	Reservoir / A	164.458	764.246	1261	Q	25.03.2002	3.2	8.3	401	8	1	<15	21
248	20021618	Davos	Reservoir Sertig	182.630	783.600	1628	Q	17.04.2002	3.7	8.1	226	22	42	65	24
249	20021619	Davos	Reservoir Flüela	187.370	784.650	1660	Q	17.04.2002	4.3	7.6	71	22	21	<15	0
250	20021620	Davos	Schwarzseehaus Laret / N	191.000	785.450	1505	Q	17.04.2002	4.2	8.1	342	57	9	103	8
251	20021621	Davos	Wolfgang Hotel Kulm (Parsenn) / N	189.650	784.250	1631	Q	17.04.2002	4.1	8.3	190	22	4	<15	5
252	20021622	Davos	Bobbahnreservoir (Mischwasser) / E	186.350	782.450	1615	Q	17.04.2002	4.1	7.8	114	6	15	<15	2
253	20021623	Davos	Davos Dorf Restaurant Teufi / N	184.400	786.800	1700	Q	17.04.2002	4.4	8.0	88	25	1	20	5
254	20021624	Davos	Thurg.-Schaffh. Höhenklinik Wasserversorgungszentrale/N	184.800	781.100	1670	Q	17.04.2002	3.6	7.6	86	17	2	<15	0
255	20021625	Davos Monstein	Monstein Reservoir	175.800	778.800	1750	Q	17.04.2002	3.6	8.1	221	10	12	28	0
83	20021083	Degen	Bual da Rumein Reservoir / E	174.775	731.650	1252	Q	18.03.2002	7.4	7.6	586	17	8	18	3
211	20021404	Disentis	Mompé Medel Reservoir Mompé Medel / E	171.687	707.750	1377	Q	08.04.2002	2.6	8.0	242	9	6	45	0
212	20021405	Disentis	Mompé Tujetsch Reservoir Sur Prau Mompé Tujetsch / E	171.415	705.925	1664	Q	08.04.2002	3.8	7.6	89	21	20	159	0
213	20021406	Disentis	Reservoir Fontaunaetta / E	173.550	706.650	1351	Q	08.04.2002	5.1	7.8	81	32	20	286	5
217	20021410	Disentis	Segnas Reservoir Segnas / E	172.600	705.850	1396	Q	08.04.2002	5.1	7.5	114	27	48	240	2
224	20021539	Disentis	Cavardiras/Pardomat Reservoir Cavardiras / E	174.025	710.450	1165	Q	15.04.2002	5.6	8.2	390	6	4	72	0
305	20021786	Disentis	Placidusquelle / E	174.800	708.600	1364	Q	24.04.2002	7.5	6.1	312	59	654	24	7
46	20020946	Domat/Ems	Pumpe Isla / A	189.762	755.180	581	G	11.03.2002	8.8	7.6	432	76	14	<15	8
47	20020947	Domat/Ems	Pumpe Bagliel / A	188.304	753.211	581	G	11.03.2002	9.4	7.6	403	0	10	<15	5
48	20020948	Domat/Ems	Reservoir Juhi / A	187.824	753.578	685	Q	11.03.2002	4.0	8.0	253	8	3	<15	0
346	20021939	Donath	Reservoir / A	166.284	753.202	1038	Q	06.05.2002	5.9	8.0	332	15	4	<15	5
170	20021322	Duvin	Reservoir / E	175.250	735.875	1259	Q	02.04.2002	3.0	8.0	262	3	2	<15	2
289	20021757	Falera	Reservoir Glis / A	185.280	736.760	1290	Q	24.04.2002	4.5	7.7	102	28	5	31	0
55	20020955	Fanas	Reservoir Carjau Einlauf Löschwasser / E	206.460	769.050	980	Q	11.03.2002	7.9	7.6	442	18	4	<15	0
43	20020943	Feldis/Veulden	Reservoir / E	184.728	753.268	1470	Q	11.03.2002	2.8	7.7	368	11	4	<15	2
93	20021106	Felsberg	Pumpwerk Euli	189.692	754.450	571	G	18.03.2002	8.7	7.9	377	6	2	38	0
94	20021107	Felsberg	Reservoir Eichwald / E	190.264	754.505	670	Q	18.03.2002	7.8	8.1	342	7	2	<15	2
79	20021035	Fideris	Reservoir Rözawald / E	198.260	775.260	968	Q	13.03.2002	6.6	7.9	365	9	3	<15	1
182	20021348	Filisur	Reservoir / A	172.220	771.821	1032	Q	03.04.2002	5.3	8.2	166	0	1	81	0
183	20021349	Filisur	Jenisberg Reservoir / A	173.842	774.852	1444	Q	03.04.2002	4.3	8.0	310	17	12	24	0
10	20020807	Fläsch	Reservoir Sauweid / E	210.125	758.400	620	Q	04.03.2002	6.5	8.0	262	18	1	<15	7
11	20020808	Fläsch	Pumpwerk Mühle Wasserhahn Brünneli	209.420	757.400	490	G	04.03.2002	6.0	7.3	580	32	16	<15	5
66	20021008	Flerden	Reservoir / A	174.300	749.934	1340	Q	13.03.2002	4.3	7.6	336	8	9	<15	0
140	20021248	Flims	Reservoir Morissen / E	189.350	741.225	1128	Q	25.03.2002	5.2	8.1	229	21	2	34	0
157	20021269	Flond	Reservoir / A	180.850	732.085	1135	Q	26.03.2002	5.2	7.8	469	23	10	29	0
206	20021373	Ftan	Reservoir Chavols Ftan Grond / E	186.500	814.075	1708	Q	03.04.2002	2.0	7.9	318	15	3	21	0
178	20021341	Fuldera	Reservoir Fastais / E	166.300	823.200	1734	Q	02.04.2002	0.0	6.9	24	27	8	<15	16
74	20021030	Furna	Fam. L. & M. Bärtsch, Börtji Wasserhahn Küche / N	200.600	770.375	1350	Q	13.03.2002	7.9	7.8	316	8	2	<15	0
49	20020949	Fürstenu	Reservoir / A	176.704	755.480	705	Q	11.03.2002	4.6	7.6	532	4	5	16	12
118	20021180	Grono	Reservoir / E	123.400	731.201	344	Q	20.03.2002	4.4	7.7	99	0	3	<15	0
54	20020954	Grüsch	Reservoir Burg / E	205.975	767.750	724	Q	11.03.2002	8.6	7.8	507	5	3	<15	0
233	20021549	Guarda	Reservoir Tscharal / E	184.400	807.225	1720	Q	15.04.2002	0.0	7.1	73	5	28	<15	5
25	20020865	Haldenstein	Kaverne Carbura Hahn vor Katadyfilter	195.100	759.350	559	G	06.03.2002	7.1	8.2	294	9	0	<15	3
26	20020866	Haldenstein	Reservoir Haldenstein Hahn vor Katadyfilter / E	194.430	759.025	664	Q	06.03.2002	6.9	8.1	293	33	1	<15	10
338	20021880	Hinterrhein	Reservoir / A	155.192	734.904	1620	Q	01.05.2002	4.6	7.7	44	8	16	<15	0
30	20020870	Igis-Landquart	Pumpwerk Viertellöser Wasserhahn Brünneli	201.550	761.250	529	G	06.03.2002	8.3	7.5	479	46	16	21	2
31	20020871	Igis-Landquart	Messschacht Quellzulauf Grosse Isla / E	205.858	766.217	955	Q	06.03.2002	5.8	7.5	376	13	8	<15	3
32	20020873	Igis-Landquart	Messschacht Quellzulauf Zumsee / E	205.946	765.088	1012	Q	06.03.2002	7.0	7.7	367	4	8	<15	3
33	20020874	Igis-Landquart	Brunnenstube Motschnaquelle / A	205.925	766.574	936	Q	06.03.2002	8.1	7.4	546	3	7	<15	10

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
287	20021755	Ilanz	Reservoir St. Martin / E	181.375	734.550	780	Q	24.04.2002	7.5	7.7	670	9	3	<15	0
288	20021756	Ilanz	Pumpwerk Grappa Grossa	181.900	734.125	703	G	24.04.2002	13.6	7.7	431	24	0		7
351	20021944	Innerferrera	Reservoir / A	154.052	718.910	1480	Q	06.05.2002	2.5	7.8	87	15	7	46	0
12	20020809	Jenins	Reservoir Bardell / E	208.325	761.115	700	Q	04.03.2002	7.4	7.9	346	14	1	<15	2
87	20021100	Klosters-Serneus	Reservoir Monbiel / E	193.280	789.410	1370	Q	18.03.2002	4.0	7.9	150	0	2	19	11
88	20021101	Klosters-Serneus	Kirchbrunnen / N	193.900	786.270	1206	Q	18.03.2002	4.6	7.6	320	14	15	49	0
89	20021102	Klosters-Serneus	Reservoir Serneus Quelleinlauf Gemeindebrunnen / E	195.680	782.600	1051	Q	18.03.2002	4.1	8.1	260	11	0	<15	1
90	20021103	Klosters-Serneus	Reservoir Serneus Quelle Serneus Dorf / E	195.680	782.600	1051	Q	18.03.2002	4.7	8.0	330	3	3	<15	10
58	20020958	Küblis	Reservoir Fuestaus / E	198.225	778.775	890	Q	11.03.2002	6.9	7.4	577	0	11	<15	2
59	20020959	Küblis	Reservoir Tälsch Einlauf Abibela Saas / E	199.300	778.200	1105	Q	11.03.2002	5.9	8.0	261	37	1	<15	2
60	20020960	Küblis	Unterbrecherschacht Prumavals Abibela Saas / E	198.750	778.425	940	Q	11.03.2002	6.3	7.9	303	12	4	<15	5
274	20021741	La Punt	Reservoir Sürrovens	161.000	791.500	1753	Q	23.04.2002	4.2	7.8	504	5	9	46	7
275	20021742	La Punt	Reservoir Arschaida / E	162.000	790.000	1805	Q	23.04.2002	5.4	7.8	719	13	3	32	0
138	20021246	Laax	Pumpwerk Fops	187.210	738.895	1135	G	25.03.2002	6.3	7.6	376	11	16	19	0
139	20021247	Laax	Reservoir Luvanuz / E	188.202	739.000	1250	Q	25.03.2002	4.2	7.9	130	13	4	24	0
133	20021241	Ladir	Reservoir Gonda / E	183.880	734.650	1342	Q	25.03.2002	5.0	7.9	198	15	5	<15	32
95	20021108	Langwies	Reservoir Schluoch / E	188.545	773.450	1465	Q	18.03.2002	3.0	8.2	258	7	1	<15	0
101	20021114	Langwies	Litzirüti Reservoir Rütland / E	185.025	772.612	1540	Q	18.03.2002	4.0	7.9	331	20	14	21	7
146	20021258	Lantsch/Lenz	Reservoir / A	172.912	762.762	1450	Q	26.03.2002	3.9	8.0	430	4	3	27	18
203	20021370	Lavin	Reservoir Plattas / E	183.410	803.803	1515	Q	03.04.2002	2.0	7.6	48	14	2	<15	5
347	20021940	Lohn	Reservoir / E	168.658	751.630	1538	Q	06.05.2002	5.2	7.9	249	16	3	<15	3
111	20021173	Lostallo	Gabbiolo Reservoir / A	130.842	735.155	445	Q	20.03.2002	5.6	7.9	207	17	6	18	0
112	20021174	Lostallo	Reservoir / A	131.576	735.965	421	Q	20.03.2002	5.7	8.0	166	10	6	21	0
113	20021175	Lostallo	Sorte Reservoir / A	128.657	733.828	431	Q	20.03.2002	4.9	7.6	103	6	49	40	0
179	20021342	Lü	Reservoir Fops / A	167.750	824.550	1992	Q	02.04.2002	2.5	7.7	164	9	11	28	6
180	20021343	Lü	Reservoir Sur Lüsai / A	166.700	825.320	1827	Q	02.04.2002	0.5	7.5	164	30	103	144	0
96	20021109	Lüen	Reservoir Gerbi / E	189.315	765.918	1040	Q	18.03.2002	7.5	7.8	436	11	2	<15	19
153	20021265	Lumbrein	Reservoir / E	171.925	729.650	1477	Q	26.03.2002	5.4	8.1	241	8	2	18	10
134	20021242	Luven	Reservoir Einlauf links / E	180.225	734.187	1050	Q	25.03.2002	4.6	7.7	335	15	5	<15	6
76	20021032	Luzein	Hinterlunden Reservoir Säge Teilstube / E	202.250	773.550	836	Q	13.03.2002	6.3	7.8	428	4	3	<15	2
77	20021033	Luzein	Buchen Reservoir Latura / E	201.520	773.740	1011	Q	13.03.2002	4.0	7.7	386	4	4	<15	0
80	20021036	Luzein	Putz Reservoir Putz Galliplauna / E	199.910	775.550	1135	Q	13.03.2002	4.5	7.8	363	11	3	<15	0
81	20021037	Luzein	Pany Reservoir Ruobsteina 2 / E	200.750	777.900	1381	Q	13.03.2002	4.3	7.9	337	17	2	<15	2
82	20021038	Luzein	Reservoir Fliess / E	199.500	777.360	1060	Q	13.03.2002	6.1	7.9	336	12	1	<15	0
318	20021831	Madulain	Reservoir Madulain	162.800	791.200	1777	Q	30.04.2002	5.4	7.8	664	13	3	26	1
13	20020810	Maienfeld	Reservoir Bündte / E	209.200	759.600	605	Q	04.03.2002	6.8	8.1	229	5	0	<15	2
14	20020811	Maienfeld	Reservoir Bergli / E	209.420	760.300	773	Q	04.03.2002	8.4	7.9	377	24	2	<15	0
7	20020804	Maladers	Reservoir Fasa / E	189.660	762.010	1050	Q	04.03.2002	5.7	8.2	260	20	0	<15	0
15	20020812	Malans	Pumpwerk Rütönen	204.874	761.785	513	G	04.03.2002	9.9	7.2	610	21	15	<15	2
16	20020813	Malans	Reservoir Bannholz / E	206.018	762.923	642	Q	04.03.2002	7.1	8.2	348	16	0	<15	0
17	20020814	Malans	Reservoir Kälberweide / E	206.589	762.399	680	Q	04.03.2002	6.8	7.8	428	5	1	<15	14
97	20021110	Malix	Reservoir Oberdorf / E	186.945	759.385	1240	Q	18.03.2002	4.0	8.1	274	8	1	<15	0
122	20021230	Marmorera	Reservoir / A	151.700	769.820	1780	Q	25.03.2002	3.5	8.1	189	4	0	<15	2
72	20021014	Masein	Reservoir / A	174.396	751.482	920	Q	13.03.2002	5.6	7.7	326	3	6	<15	0
8	20020805	Mastrils	Reservoir Hohenbühl / E	204.310	760.229	635	Q	04.03.2002	6.3	7.8	351	10	2	<15	6
9	20020806	Mastrils	Pumpwerk Sarelli	205.125	759.964	514	G	04.03.2002	7.6	8.0	294	0	9	19	0
348	20021941	Mathon	Reservoir / E	167.248	750.904	1527	Q	06.05.2002	4.2	7.9	239	5	2	<15	0
220	20021535	Medel/Lucmagn	Curaglia Reservoir Curaglia / E	170.125	708.910	1466	Q	15.04.2002	3.8	7.3	54	9	6	<15	0
221	20021536	Medel/Lucmagn	Curaglia Reservoir Soliva / E	170.500	708.825	1466	Q	15.04.2002	5.6	7.8	203	5	16	<15	0
222	20021537	Medel/Lucmagn	Fuorns Reservoir Fuorns / E	166.400	708.400	1547	Q	15.04.2002	5.3	7.4	55	32	8	23	0
223	20021538	Medel/Lucmagn	Mutschnengia Reservoir / E	160.900	706.900	1636	Q	15.04.2002	3.8	7.5	103	9	7	17	2
334	20021876	Medels i.Rh.	Reservoir / A	157.388	742.538	1531	Q	01.05.2002	5.2	7.9	204	5	1	<15	2
114	20021176	Mesocco	San Bernardino Reservoir / E	147.432	735.066	1658	Q	20.03.2002	4.2	7.9	235	6	1	25	0

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
115	20021177	Mesocco	Pian S. Giacomo Reservoir / E	142.132	736.909	1203	Q	20.03.2002	3,9	7,7	177	8	4	<15	0
116	20021178	Mesocco	Mesocco Reservoir / A	138.880	736.660	790	Q	20.03.2002	4,0	7,7	153	16	8	22	0
4	20020801	Molinis	Reservoir Molinis / E	188.650	769.025	1090	Q	04.03.2002	3,6	7,8	425	23	2	<15	12
143	20021255	Mon	Reservoir / A	168.512	762.024	1231	Q	26.03.2002	3,0	8,0	460	14	1	<15	2
306	20021814	Morissen	Reservoir 1975 / E	176.750	732.600	1478	Q	29.04.2002	5,9	7,8	422	16	2	24	0
125	20021233	Mulegns	Reservoir / A	155.040	766.780	1522	Q	25.03.2002	4,2	8,1	257	15	2	<15	2
172	20021335	Müstair	Reservoir Grava / A	168.490	830.300	1300	Q	02.04.2002	4,0	7,9	234	11	5	73	0
173	20021336	Müstair	Reservoir Spinai / E	167.700	829.800	1350	Q	02.04.2002	2,0	8,0	289	8	3	74	13
149	20021261	Mutten	Reservoir / E	170.864	757.044	1480	Q	26.03.2002	4,1	7,8	358	5	2	<15	8
332	20021874	Nufenen	Reservoir / A	156.378	738.178	1569	Q	01.05.2002	4,2	7,7	223	11	1	<15	0
246	20021616	Obersaxen	Reservoir Stai / E	177.850	724.320	1384	Q	17.04.2002	3,8	7,4	141	19	12	24	25
247	20021617	Obersaxen	Reservoir Miraniga 2 / E	178.350	727.800	1483	Q	17.04.2002	4,1	7,7	105	19	26	22	20
2	20020799	Pagig	Reservoir Maiensäss / E	189.900	767.830	1424	Q	04.03.2002	3,4	7,8	307	42	1	<15	6
104	20021154	Parpan	Pumpwerk Gruoben Pumpe 1	180.416	762.045	1494	G	20.03.2002	5,7	7,5	385	4	43	<15	0
105	20021155	Parpan	Reservoir Heimberg / E	180.449	762.514	1573	Q	20.03.2002	2,8	7,9	248	12	5	<15	0
42	20020942	Paspels	Reservoir / E	177.864	754.378	757	Q	11.03.2002	4,9	7,6	446	42	17	<15	1
1	20020798	Peist	Reservoir Stein / E	189.395	770.255	1414	Q	04.03.2002	4,3	7,7	331	9	1	<15	0
189	20021355	Pignia	Reservoir / A	164.516	753.308	1065	Q	03.04.2002	4,1	8,2	389	9	1	31	9
243	20021613	Pigniu	Reservoir / E	185.850	728.125	1379	Q	17.04.2002	5,2	7,8	310	11	6	30	10
171	20021323	Pitasch	Reservoir / E	176.840	736.075	1117	Q	02.04.2002	5,1	8,1	248	3	0	<15	0
355	20021948	Pontresina	Pumpwerk	150.606	790.360	1830	G	06.05.2002	3,4	7,0	156	17	72	30	0
356	20021949	Pontresina	Reservoir Spuondas / E	152.053	789.578	1890	Q	06.05.2002	3,2	7,5	93	17	5	<15	5
357	20021950	Pontresina	Reservoir Funtanellas	153.425	788.655	1891	Q	06.05.2002	3,8	7,7	50	9	9	<15	0
193	20021360	Poschiavo	Le Prese Cantone Spindascio Res. Le Prese	129.500	803.330	1048	Q	03.04.2002	4,5	7,7	193	19	14	104	5
194	20021361	Poschiavo	Permunt Angeli Custodi Reservoir Colond	138.300	802.600	1185	Q	03.04.2002	5,4	7,4	154	5	29	43	4
195	20021362	Poschiavo	Pedecosta Reservoir Pedecosta	137.600	803.100	1258	Q	03.04.2002	4,0	7,7	242	44	142	170	0
196	20021363	Poschiavo	San Carlo Poschiavo Reservoir Somaino	135.650	802.250	1170	Q	03.04.2002	4,3	8,0	301	36	4	141	0
197	20021364	Poschiavo	Poschiavo Reservoir Capitolo	134.350	801.250	1130	Q	03.04.2002	5,2	8,1	240	18	8	122	0
198	20021365	Poschiavo	Annunziata Prada Reservoir Calcherin	131.320	802.350	1052	Q	03.04.2002	6,1	7,9	265	11	19	59	0
199	20021366	Poschiavo	Cologna Reservoir Cologna	133.140	802.950	1200	Q	03.04.2002	5,2	8,2	215	11	5	66	0
200	20021367	Poschiavo	Poschiavo S. Antonio Li Curt Reservoir Lungh	132.500	801.250	1115	Q	03.04.2002	3,5	8,0	140	16	0	58	2
201	20021368	Poschiavo	Pagnoncini Reservoir Pagnoncini	131.400	803.600	1052	Q	03.04.2002	5,0	8,1	346	26	10	357	9
202	20021369	Poschiavo	Prada Reservoir Prada	131.900	803.350	1075	Q	03.04.2002	5,2	7,9	216	15	28	181	0
264	20021711	Poschiavo	Miralago Reservoir Plattea	128.000	804.065	1010	Q	22.04.2002	4,8	8,2	97	19	66	71	0
360	20021994	Poschiavo	Acque Marche	137.138	803.804	1470	Q	07.05.2002	4,8	7,8	167	21	0	71	0
99	20021112	Praden	Reservoir Bühl	188.020	763.690	1250	Q	18.03.2002	2,0	8,2	261	8	1	<15	5
91	20021104	Pragg-Jenaz	Reservoir Fallapint Quelleinlauf Alp Praviat / E	199.890	772.975	818	Q	18.03.2002	3,6	7,8	360	13	2	<15	7
92	20021105	Pragg-Jenaz	Pumpwerk Suvaditsch	199.720	774.010	730	G	18.03.2002	8,6	7,3	555	9	29	<15	5
41	20020941	Pratval	Reservoir / E	177.864	754.378	720	Q	11.03.2002	5,2	7,6	445	14	13	<15	0
73	20021015	Präz	Reservoir / A	178.378	749.575	1278	Q	13.03.2002	4,0	7,9	397	14	3	<15	9
227	20021542	Rabius	Reservoir Pein / A	177.590	716.250	1053	Q	15.04.2002	5,7	7,7	126	16	64	169	3
260	20021706	Ramosch	Reservoir Ramosch / E	191.500	824.525	1290	Q	22.04.2002	5,9	8,0	393	13	1	24	2
294	20021768	Ramosch	Brunnenstube Raschwella	193.000	828.000	1260	Q	24.04.2002	5,2	8,0	292	17	25	86	0
40	20020891	Rhazüns	Reservoir / E	183.835	749.425	745	Q	06.03.2002	3,5	7,7	467	11	3	<15	0
160	20021272	Riein	Reservoir Brünnali	178.875	737.050	1316	Q	26.03.2002	7,5	7,5	426	25	46	43	23
130	20021238	Riom-Parsonz	Riom Reservoir / A	165.429	762.981	1325	Q	25.03.2002	2,4	8,2	215	10	9	33	0
131	20021239	Riom-Parsonz	Parsonz Reservoir / A	164.278	762.596	1363	Q	25.03.2002	3,7	7,7	446	8	5	<15	2
50	20020950	Rodels	Reservoir / A	177.864	754.378	719	Q	11.03.2002	5,0	7,6	449	34	18	<15	0
192	20021358	Rongellen	Reservoir / E	171.378	752.716	891	Q	03.04.2002	4,4	7,9	374	13	2	34	5
335	20021877	Rossa	Reservoir rechts / E	136.842	730.024	1290	Q	01.05.2002	5,6	7,8	91	36	35	35	4
336	20021878	Rossa	Reservoir links / E	136.538	729.264	1310	Q	01.05.2002	4,6	7,5	78	15	4	20	0
34	20020885	Rothenbrunnen	Reservoir / E	181.621	752.280	893	Q	06.03.2002	4,1	7,9	354	33	4	<15	0
35	20020886	Rothenbrunnen	Pumphaus / E	181.578	751.577	622	G	06.03.2002	9,5	7,8	442	0	11	16	1

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
119	20021181	Roveredo	Reservoir / A	121.633	731.012	378	Q	20.03.2002	5.9	7.4	93	5	20	<15	0
244	20021614	Rueun	Reservoir / E	182.475	730.850	862	Q	17.04.2002	8.1	7.7	264	30	147	190	16
286	20021754	Ruschein	Reservoir / A	183.300	733.850	1260	Q	24.04.2002	5.8	7.9	176	16	5	23	0
86	20021099	Saas	Reservoir Hof / E	197.850	781.500	1120	Q	18.03.2002	5.7	7.8	258	31	4	<15	3
310	20021818	Safien Platz	Reservoir Brauchwasser / E	171.775	743.320	1365	Q	29.04.2002	5.7	8.0	289	26	1	<15	0
311	20021819	Safien Thalkirch	Reservoir / E	166.900	740.525	1790	Q	29.04.2002	4.0	8.0	160	3	2	<15	0
312	20021820	Safien Thalkirch	Reservoir 1 / E	170.500	741.575	1830	Q	29.04.2002	4.3	7.8	256	9	9	<15	0
137	20021245	Sagogn	Reservoir Runs Einlauf links / E	184.400	738.900	860	Q	25.03.2002	8.7	7.8	370	16	2	<15	0
144	20021256	Salouf	Reservoir / A	167.783	762.650	1316	Q	26.03.2002	3.2	8.2	215	13	8	41	3
352	20021945	Samedan	Reservoir Champagna / E	156.690	788.920	1970	Q	06.05.2002	1.0	7.8	33	10	13	<15	13
353	20021946	Samedan	Reservoir San Peter / E	156.750	785.800	1800	Q	06.05.2002	3.5	8.0	362	21	5	23	0
354	20021947	Samedan	Pumpwerk / A	155.200	786.500	1720	G	06.05.2002	6.0	7.1	184	16	44	<15	5
290	20021764	Samnaun	Compatsch Reservoir Vaidum / E	205.480	825.180	1803	Q	24.04.2002	4.7	8.0	282	14	2	<15	0
291	20021765	Samnaun	Ravaisch Dorfplatz Brunnen / N	204.500	823.100	1799	Q	24.04.2002	4.5	8.1	343	15	3	<15	0
292	20021766	Samnaun	Samnaun Dorf Schmuggleralm (Foppa) / N	203.000	822.170	1845	Q	24.04.2002	2.8	8.1	356	21	7	19	0
121	20021183	San Vittore	Reservoir / A	122.600	729.111	294	Q	20.03.2002	5.8	7.5	67	9	9	43	10
64	20021006	Sarn	Reservoir / A	176.024	749.621	1288	Q	13.03.2002	5.3	7.6	420	10	9	18	3
128	20021236	Savognin	Reservoir / A	162.719	764.662	1290	Q	25.03.2002	3.4	8.3	240	16	0	<15	3
321	20021834	S-chanf	Reservoir Bügls / E	165.010	796.050	1790	Q	30.04.2002	3.4	7.9	357	18	10	31	0
322	20021835	S-chanf	Reservoir Quadres	165.250	793.700	1789	Q	30.04.2002	5.6	7.6	419	9	5	<15	10
323	20021836	S-chanf	Susanna Reservoir Guanscheras	168.250	794.600	1692	Q	30.04.2002	4.3	7.8	237	0	15	16	0
324	20021837	S-chanf	Reservoir Punt Ota	170.000	797.950	1750	Q	30.04.2002	3.2	7.6	69	14	6	30	0
63	20021005	Scharans	Reservoir / A	176.240	755.380	810	Q	13.03.2002	4.8	8.0	356	28	0	<15	0
44	20020944	Scheid	Reservoir / E	182.978	754.024	1430	Q	11.03.2002	3.8	7.8	403	6	4	17	0
56	20020956	Schiers	Pumpwerk Sand Wasserhahn Bränneli	204.723	770.124	630	G	11.03.2002	7.7	7.5	389	0	22	<15	7
57	20020957	Schiers	Reservoir Hochgrüpli Quelleinlauf nach UVAnl. / E / UV	204.484	771.685	730	Q	11.03.2002	5.5	7.6	392	9	5	<15	4
75	20021031	Schiers	Vorderlunden Reservoir Säge Teilstube / E	202.250	773.550	836	Q	13.03.2002	6.3	7.8	427	8	3	<15	11
238	20021608	Schlans	Reservoir / E	179.350	720.375	1232	Q	17.04.2002	5.7	8.1	93	18	6	28	0
136	20021244	Schluein	Reservoir Fuorbas / A	183.376	735.934	867	Q	25.03.2002	7.3	8.0	262	14	2	43	6
184	20021350	Schmitten	Reservoir / A	173.484	770.738	1310	Q	03.04.2002	6.1	7.9	278	17	10	44	2
132	20021240	Schnaus	Reservoir / E	182.460	732.600	821	Q	25.03.2002	6.4	7.9	227	95	14	123	55
207	20021374	Scuol	Reservoir San Jon / E	186.148	819.538	1420	Q	03.04.2002	0.5	8.0	341	27	6	97	0
208	20021375	Scuol	Reservoir Toff / E	187.220	818.135	1305	Q	03.04.2002	1.5	8.1	225	7	0	<15	0
258	20021704	Scuol	S-charl Brunnenplatz / N	178.300	820.985	1810	Q	22.04.2002	4.3	7.8	335	19	62	80	2
52	20020952	Seewis	Reservoir Spilidür Überlauf	205.750	767.400	695	Q	11.03.2002	7.5	7.8	455	14	4	<15	0
53	20020953	Seewis	Reservoir Zazaschg Überlauf	206.450	766.650	1022	Q	11.03.2002	6.8	7.7	445	8	6	<15	2
209	20021376	Sent	Reservoir d'aua Sur En / E	189.535	820.695	1180	Q	03.04.2002	2.5	8.2	179	13	19	74	0
259	20021705	Sent	Kurhaus Val Sinestra / N	192.900	820.900	1475	Q	22.04.2002	3.6	8.0	409	10	2	24	7
261	20021707	Sent	Stiftung Mengelberg Hof Zuort / N	195.200	820.350	1711	Q	22.04.2002	2.7	8.1	268	10	0	<15	0
159	20021271	Sevgein	Reservoir / E	180.750	736.625	945	Q	26.03.2002	4.0	8.0	376	15	3	32	0
245	20021615	Siat	Reservoir Via da cuolm	184.075	731.350	1362	Q	17.04.2002	5.4	8.0	153	11	8	17	0
61	20021003	Sils i.D.	Reservoir / A	174.420	754.622	783	Q	13.03.2002	4.0	7.9	331	6	11	<15	4
62	20021004	Sils i.D.	Grundwasser EWZ / A	173.842	756.640	680	G	13.03.2002	7.6	7.9	316	11	15	<15	1
358	20021951	Sils i.E.	Pumpwerk Chalchera	144.650	778.200	1790	G	06.05.2002	5.5	7.7	330	21	28	36	0
359	20021952	Sils i.E.	Reservoir Laret Einlauf Fex	144.650	778.500	1879	Q	06.05.2002	2.8	8.2	134	10	1	33	0
271	20021718	Silvaplana	Reservoir S-chaluottas / E	147.200	782.500	1904	Q	22.04.2002	2.1	7.8	136	8	6	15	0
272	20021719	Silvaplana	Reservoir Albana / A	150.300	781.500	1894	Q	22.04.2002	2.1	7.8	124	16	5	19	0
273	20021720	Silvaplana	Reservoir Anda Nuota 2	148.300	780.700	1912	Q	22.04.2002	1.5	7.8	126	11	13	<15	0
120	20021182	Soazza	Reservoir / A	136.500	736.925	620	Q	20.03.2002	4.6	7.5	82	11	81	73	7
295	20021770	Soglio	Reservoir Clüs / A	134.750	761.500	1195	Q	24.04.2002	5.0	7.9	148	17	10	27	0
337	20021879	Splügen	Reservoir / A	157.974	742.658	1457	Q	01.05.2002	4.9	7.8	360	5	5	34	0
78	20021034	St. Antönien	Restaurant Plätzli Wasserhahn WC-Anlage / N	205.000	780.500	1420	Q	13.03.2002	5.6	7.8	270	3	1	<15	0
164	20021316	St. Martin	Lunschania Milchraum Stall unterhalb Reservoir / N	169.315	734.015	1050	Q	02.04.2002	5.0	7.9	440	5	4	31	19

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
165	20021317	St. Martin	Brunnen St. Martin Dorf / N	170.725	733.275	1003	Q	02.04.2002	4,7	8,0	327	3	12	<15	4
276	20021743	St. Moritz	Pumpwerk San Gian 2	150.200	783.250	1780	G	23.04.2002	4,0	6,9	124	8	35	<15	0
277	20021744	St. Moritz	Pumpwerk Champfèr 1	149.750	782.500	1793	G	23.04.2002	5,9	8,1	184	12	31	<15	8
278	20021745	St. Moritz	Res. Aromesti Quellen Piz Nair Alp Giop / E	152.600	783.750	1958	Q	23.04.2002	2,6	7,8	126	13	4	<15	0
279	20021746	St. Moritz	Res. Aromesti Quellen Chantarella / E	152.600	783.750	1958	Q	23.04.2002	4,1	8,0	567	32	6	24	0
280	20021747	St. Moritz	Reservoir Alp Nova / E	152.900	783.000	2121	Q	23.04.2002	3,5	8,1	261	22	10	<15	9
281	20021748	St. Moritz	Brunnenstube Blais Glischa A	153.200	784.400	1912	Q	23.04.2002	4,2	8,0	408	16	8	21	0
3	20020800	St. Peter	Dorfladen LM Lager / N	189.250	768.375	1235	Q	04.03.2002	3,6	7,9	291	0	2	<15	1
174	20021337	Sta. Maria	Reservoir Pe'Dmunt / E	164.945	829.030	1460	Q	02.04.2002	3,0	8,0	421	37	66	124	0
175	20021338	Sta. Maria	Reservoir Craistas / E	166.590	827.215	1966	Q	02.04.2002	2,0	7,5	170	25	97	79	5
339	20021881	Sta. Maria i.C.	Reservoir / A	125.138	731.246	817	Q	01.05.2002	5,4	7,6	52	13	6	<15	0
302	20021777	Stampa	Maloja Reservoir La Palza / E	141.150	774.300	1910	Q	24.04.2002	1,9	7,7	144	10	18	17	20
303	20021778	Stampa	Caccior Reservoir Caccior	135.000	763.500	1000	Q	24.04.2002	8,2	7,5	167	14	28	17	2
304	20021779	Stampa	Stampa Coltura Borgonova Reservoir Duegn / E	135.300	765.300	1109	Q	24.04.2002	6,3	7,6	123	13	1	<15	5
145	20021257	Stierva	Reservoir / A	169.961	760.051	1491	Q	26.03.2002	2,4	8,0	315	0	3	<15	0
333	20021875	Sufers	Reservoir / E	159.924	748.112	1426	Q	01.05.2002	5,4	7,8	288	18	5	<15	11
225	20021540	Sumvitg	Reservoir Drest / E	176.450	714.570	1125	Q	15.04.2002	5,9	7,8	135	0	14	30	2
226	20021541	Sumvitg	Surrein Reservoir Surrein / E	175.070	714.380	1016	Q	15.04.2002	5,7	8,2	378	16	3	55	3
124	20021232	Sur	Rerservoir / A	154.662	768.760	1588	Q	25.03.2002	3,8	8,0	216	13	3	<15	2
166	20021318	Suraua	Reservoir Tersnaus / E	172.500	733.750	1140	Q	02.04.2002	5,7	7,7	283	8	3	<15	0
167	20021319	Suraua	Reservoir Uors Einlauf Quellen Uors / E	173.500	733.900	1083	Q	02.04.2002	6,6	7,5	427	17	6	<15	0
168	20021320	Suraua	Reservoir Surcasti Einlauf Quellen Surcasti / E	173.000	732.600	1055	Q	02.04.2002	4,4	7,4	446	8	5	<15	0
169	20021321	Suraua	Reservoir Camuns Einlauf Quellen / E	173.500	734.500	1250	Q	02.04.2002	2,6	8,1	226	8	2	<15	0
150	20021262	Surava	Reservoir / E	171.045	766.040	968	Q	26.03.2002	5,4	7,7	440	5	40	53	8
158	20021270	Surcuolm	Reservoir / E	179.740	730.440	1444	Q	26.03.2002	3,7	7,8	386	8	3	18	8
230	20021546	Susch	Reservoir Arsüras / E	181.080	801.330	1515	Q	15.04.2002	1,5	7,2	40	4	4	<15	0
231	20021547	Susch	Reservoir Pradatsch / E	180.800	801.720	1497	Q	15.04.2002	1,5	7,8	132	0	4	19	0
232	20021548	Susch	Grundwasserpumpe / A	181.315	802.570	1428	G	15.04.2002	4,5	8,0	253	13	32	33	5
141	20021249	Tamins	Reservoir / A	189.080	750.050	751	Q	25.03.2002	7,0	8,1	258	16	2	<15	0
234	20021550	Tarasp	Reservoir Flöcha / E	185.100	817.960	1505	Q	15.04.2002	4,2	7,6	200	13	34	19	8
65	20021007	Tartar	Reservoir / A	176.024	749.621	1010	Q	13.03.2002	5,3	7,7	411	11	2	23	6
309	20021817	Tenna	Reservoir Tenna / E	179.220	744.850	1750	Q	29.04.2002	3,9	8,1	204	10	1	<15	0
69	20021011	Thusis	Reservoir Crest / A	173.650	752.250	810	Q	13.03.2002	3,3	7,7	335	0	5	<15	3
70	20021012	Thusis	Reservoir Übernolla / E	172.912	752.378	790	Q	13.03.2002	4,1	7,7	350	3	6	<15	0
71	20021013	Thusis	Grundwasserpumpe / A	174.052	753.196	715	G	13.03.2002	9,2	7,6	447	17	13	23	8
147	20021259	Tiefencastel	Reservoir / A	170.444	763.763	851	Q	26.03.2002	5,4	7,7	637	3	3	27	0
126	20021234	Tinizong	Rona Reservoir / A	158.600	767.821	1408	Q	25.03.2002	3,9	8,1	169	8	2	<15	0
127	20021235	Tinizong	Reservoir / A	161.578	767.362	1332	Q	25.03.2002	3,8	8,2	257	7	1	<15	0
36	20020887	Tomils	Reservoir Rofna / E	180.482	753.420	1024	Q	06.03.2002	5,1	7,8	752	20	1	43	10
37	20020888	Tomils	Reservoir R Miur / E	181.020	753.022	867	Q	06.03.2002	4,6	7,8	856	16	2	54	0
38	20020889	Tomils	Reservoir Plaun Grund /	180.820	752.901	717	Q	06.03.2002	4,4	7,4	569	33	14	19	6
27	20020867	Trimmis	Pumpwerk Paulis Böm Wasserhahn Bränneli	197.280	761.040	535	G	06.03.2002	8,9	7,4	545	11	13	18	2
28	20020868	Trimmis	Reservoir Obersays Auslauf UV-Anlage / A	197.200	763.510	1162	Q	06.03.2002	2,5	7,9	286	11	1	<15	26
84	20021085	Trin	Reservoir Tignuppa / A	188.340	746.775	933	Q	18.03.2002	8,3	7,9	253	36	13	<15	6
228	20021543	Trun	Reservoir Pustget / E	178.450	718.125	860	Q	15.04.2002	5,2	8,1	118	21	11	89	11
229	20021544	Trun	Zignau Reservoir Zignau	177.475	719.975	840	Q	15.04.2002	6,0	8,1	154	42	7	54	31
68	20021010	Tschappina	Reservoir / A	172.785	747.263	1577	Q	13.03.2002	4,5	7,4	540	16	16	<15	2
100	20021113	Tschiertschen	Reservoir Bödem	187.060	765.380	1420	Q	18.03.2002	3,0	8,2	267	6	6	<15	6
177	20021340	Tschierv	Reservoir Plau dals bogns / A	167.168	820.821	1807	Q	02.04.2002	0,5	7,7	47	37	7	28	29
235	20021551	Tschlin	Martina Brunnen Bardola / N	197.280	830.280	1136	Q	15.04.2002	6,9	7,8	350	13	4	<15	0
236	20021552	Tschlin	Strada Tga sura Brunnen / N	195.380	828.470	1250	Q	15.04.2002	5,1	8,0	256	0	2	<15	0
237	20021553	Tschlin	Vinadi Hydrant / N	201.700	832.000	1086	Q	15.04.2002	4,8	8,1	317	5	0	<15	0
293	20021767	Tschlin	Acla da Fans BP Shop / N	204.850	832.050	1507	Q	24.04.2002	3,5	8,2	171	6	16	<15	0

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Quell-Grund-Wasser (Q/G)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
210	20021403	Tujetsch	Tschamut Reservoir Tschamut / E	168.025	697.050	1700	Q	08.04.2002	5.8	7.9	129	13	30	62	0
214	20021407	Tujetsch	Cavorgia, Reservoir Cavorgia / E	169.865	703.440	1443	Q	08.04.2002	3.7	8.0	205	11	11	101	0
215	20021408	Tujetsch	Selva Reservoir Selva / E	169.168	698.699	1595	Q	08.04.2002	5.1	8.1	214	5	12	90	12
216	20021409	Tujetsch	Surrein Reservoir Surrein / E	169.935	702.600	1478	Q	08.04.2002	3.5	8.0	77	11	18	41	16
218	20021411	Tujetsch	Sedrun Reservoir Milar / E	170.420	700.180	1509	Q	08.04.2002	5.0	7.6	58	41	3	163	9
219	20021412	Tujetsch	Sedrun Reservoir Salins / E	171.240	701.600	1510	Q	08.04.2002	5.0	7.4	142	38	11	126	2
284	20021752	Tujetsch	Sedrun Reservoir / E	171.450	702.975	1520	Q	24.04.2002	4.9	7.3	94	21	56	67	8
29	20020869	Untervaz	Pumpwerk Au Wasserhahn Brünneli	200.850	760.460	525	G	06.03.2002	9.5	7.6	432	8	21	23	0
67	20021009	Urmein	Reservoir / A	173.320	749.301	1310	Q	13.03.2002	4.6	7.6	378	0	6	<15	2
176	20021339	Valchava	Reservoir Pratlarsch / E	165.420	826.290	1532	Q	02.04.2002	1.5	7.6	174	19	46	113	39
161	20021273	Valendas	Reservoir / E	183.040	740.485	872	Q	26.03.2002	6.2	7.8	675	4	4	30	9
307	20021815	Valendas	Reservoir Carrera / A	183.600	742.650	921	Q	29.04.2002	6.9	7.8	549	20	2	21	0
308	20021816	Valendas	Reservoir Brün	182.550	742.900	1380	Q	29.04.2002	4.3	7.7	379	26	5	<15	8
162	20021314	Vals	Reservoir Ost / E	164.220	733.620	1307	Q	02.04.2002	4.4	8.0	277	4	3	<15	0
163	20021315	Vals	Reservoir Leis / E	163.410	731.980	1577	Q	02.04.2002	5.7	7.5	102	21	335	166	0
51	20020951	Valzeina	Reservoir Kaiserrain / E	201.562	764.987	1212	Q	11.03.2002	5.9	7.6	421	6	6	<15	12
325	20021867	Vaz/Obervaz	Reservoir Tgagalotta / E	179.255	762.321	1585	Q	01.05.2002	4.1	8.0	284	13	2	17	0
326	20021868	Vaz/Obervaz	Reservoir Sil Mott Einlauf Stetz / E	180.272	761.271	1652	Q	01.05.2002	3.1	7.7	269	8	5	<15	0
327	20021869	Vaz/Obervaz	Reservoir Tschantieni Sot Sammelwasser / E	176.335	759.893	1721	Q	01.05.2002	5.5	7.8	337	12	1	20	16
328	20021870	Vaz/Obervaz	Reservoir Crapera Einlauf Sanaspans / E	177.945	762.643	1635	Q	01.05.2002	3.8	8.1	178	16	2	33	0
329	20021871	Vaz/Obervaz	Reservoir Dieschen Einlauf Curtschin / E	177.827	762.173	1567	Q	01.05.2002	3.8	8.1	326	8	1	<15	0
330	20021872	Vaz/Obervaz	Reservoir Valetta Quelle Flydier / E	174.000	760.174	1278	Q	01.05.2002	5.8	7.7	351	8	5	16	0
331	20021873	Vaz/Obervaz	Reservoir Obersolis Sammelwasser / E	171.745	758.624	1207	Q	01.05.2002	3.9	8.0	514	25	3	36	0
155	20021267	Vella	Reservoir / E	176.050	732.100	1384	Q	26.03.2002	5.7	7.6	510	8	7	24	5
117	20021179	Verdabbio	Reservoir / A	126.112	732.335	553	Q	20.03.2002	5.8	7.5	51	4	1	<15	5
313	20021821	Versam	Reservoir / E	184.025	744.600	975	Q	29.04.2002	6.5	7.6	530	12	5	26	0
314	20021822	Versam	Reservoir Sculms Vorderhof / A	182.300	746.420	1070	Q	29.04.2002	5.1	7.8	418	2	2	24	0
267	20021714	Viano	Reservoir Viano Monas / E	126.200	808.400	1374	Q	22.04.2002	5.5	7.8	55	15	2	<15	0
298	20021773	Vicosoprano	Reservoir Pranzaira Quellgebiet Val Albigna / E	136.800	769.700	1180	Q	24.04.2002	5.5	7.6	41	10	32	80	3
299	20021774	Vicosoprano	Reservoir Pranzaira Quellgebiet Roticcio / E	136.800	769.700	1180	Q	24.04.2002	4.5	8.0	169	9	3	<15	0
300	20021775	Vicosoprano	Reservoir Casaccia Quellgebiet Sponda Casaccia / E	140.500	771.600	1480	Q	24.04.2002	6.1	8.0	272	9	77	19	16
301	20021776	Vicosoprano	Reservoir Casaccia Quellgebiet Fopet / E	140.500	771.600	1480	Q	24.04.2002	4.5	8.0	205	19	36	34	0
154	20021266	Vignogn	Reservoir / E	173.625	731.015	1300	Q	26.03.2002	7.1	7.8	544	3	3	24	5
152	20021264	Vrin	Reservoir Cons / E	167.975	726.350	1530	Q	26.03.2002	4.2	7.5	572	0	7	18	0
242	20021612	Waltensburg	Reservoir Ruinas / E	182.200	726.875	1150	Q	17.04.2002	7.1	7.9	274	16	57	65	0
256	20021626	Wiesen	Reservoir Oberdorf / E	175.900	774.200	1550	Q	17.04.2002	5.1	8.1	312	10	4	47	0
257	20021627	Wiesen	Ried Reservoir / E	175.000	773.500	1550	Q	17.04.2002	4.8	8.1	310	26	31	17	2
268	20021715	Zalende	Reservoir Zalende	124.500	807.500	680	Q	22.04.2002	7.7	7.8	126	17	18	23	0
181	20021344	Zernez	Reservoir Vallatscha / E	175.600	803.500	1551	Q	02.04.2002	3.8	7.6	47	13	10	47	10
262	20021708	Zernez	Hotel il Fuorn / N	172.100	812.150	1800	Q	22.04.2002	3.3	8.2	265	15	7	27	0
263	20021709	Zernez	Touristenlager Ova Spin Reservoir Ova Spin / E	173.250	808.200	1975	Q	22.04.2002	2.9	8.2	216	13	8	<15	0
191	20021357	Zillis	Reservoir / E	167.028	754.318	995	Q	03.04.2002	6.8	7.7	1652	3	8	113	0
18	20020815	Zizers	Ochsenweide Brunnen Leo / N	199.250	762.740	670	Q	04.03.2002	3.9	7.8	578	15	2	25	3
19	20020816	Zizers	Reservoir Bovel / E	200.425	762.825	677	Q	04.03.2002	6.2	7.9	535	18	1	17	13
20	20020817	Zizers	Pumpwerk Viertellöser	201.150	761.250	529	G	04.03.2002	7.9	7.5	484	9	13	17	0
315	20021828	Zuoz	Reservoir Bos-chetta	163.981	791.879	1880	Q	30.04.2002	3.8	7.5	391	10	7	<15	2
316	20021829	Zuoz	Reservoir Albanas / A	165.068	793.210	1880	Q	30.04.2002	3.5	8.2	138	8	6	<15	0
317	20021830	Zuoz	Pumpwerk Suotorivas / A	164.224	793.617	1650	G	30.04.2002	5.3	7.6	455	13	19	35	16

13.2 Resultate Elementscreen Quell- und Grundwasser (nach Nr. bzw. Protokoll Nr. geordnet)

Bei allen untersuchten Quell- und Grundwässern lagen die Werte für folgende Elemente unterhalb der Beurteilungsgrenze:

Parameter	Symbol	Beurteilungsgrenze	Einheit
Antimon	Sb	10	µg/l
Beryllium	Be	10	µg/l
Wismut	Bi	10	µg/l
Bor	B	200	µg/l
Cadmium	Cd	0.1	µg/l
Caesium	Cs	10	µg/l
Cer	Ce	10	µg/l
Kobalt	Co	10	µg/l
Eisen	Fe	1000	µg/l
Gallium	Ga	10	µg/l
Germanium	Ge	10	µg/l
Gold	Au	10	µg/l
Hafnium	Hf	10	µg/l
Indium	In	1	µg/l
Iridium	Ir	10	µg/l
Lanthan	La	10	µg/l
Mangan	Mn	10	µg/l
Neodym	Nd	10	µg/l

Parameter	Symbol	Beurteilungsgrenze	Einheit
Niob	Nb	10	µg/l
Osmium	Os	10	µg/l
Palladium	Pd	10	µg/l
Platin	Pt	10	µg/l
Rhenium	Re	10	µg/l
Rubidium	Rb	10	µg/l
Ruthenium	Ru	10	µg/l
Samarium	Sm	10	µg/l
Silber	Ag	10	µg/l
Tantal	Ta	10	µg/l
Tellur	Te	10	µg/l
Thallium	Tl	0.1	µg/l
Thorium	Th	10	µg/l
Vanadium	V	10	µg/l
Wolfram	W	1	µg/l
Yttrium	Y	10	µg/l
Zinn	Sn	0.5	µg/l
Zirkonium	Zr	10	µg/l

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
1	20020798	<10	<10	<2	<2	2	7	<0.2	<1	15	<0.5	0.2
2	20020799	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	10	<0.5	0.7
3	20020800	<10	<10	<2	<2	1	49	<0.2	<1	10	<0.5	0.2
4	20020801	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	23	<0.5	0.3
5	20020802	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.2
6	20020803	<10	<10	<2	<2	4	6	<0.2	<1	26	<0.5	0.8
7	20020804	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.3
8	20020805	<10	<10	<2	<2	<1	29	<0.2	<1	<10	<0.5	0.1
9	20020806	<10	<10	<2	<2	<1	247	1	<1	18	1	1.5
10	20020807	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	12	<0.5	0.1
11	20020808	<10	<10	<2	<2	<1	171	0	<1	32	<0.5	0.8
12	20020809	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	15	<0.5	0.2
13	20020810	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	11	<0.5	<0.1
14	20020811	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	13	<0.5	0.3
15	20020812	<10	22	<2	3	3	106	0	<1	40	<0.5	1.2
16	20020813	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	15	<0.5	0.4
17	20020814	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	21	<0.5	0.4
18	20020815	<10	<10	<2	<2	2	3	<0.2	<1	13	<0.5	2.1
19	20020816	12	<10	<2	<2	<1	5	<0.2	<1	17	<0.5	1.4
20	20020817	<10	<10	<2	<2	<1	22	<0.2	<1	29	<0.5	1.4
21	20020857	<10	<10	<2	<2	<1	12	<0.2	1	25	<0.5	1.4
22	20020858	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	24	<0.5	1.6
23	20020859	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	33	<0.5	1.1
24	20020860	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	13	<0.5	1.6
25	20020865	<10	<10	<2	<2	1	9	0	<1	<10	<0.5	0.2
26	20020866	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.2
27	20020867	<10	<10	<2	<2	1	18	0	<1	31	<0.5	1.4
28	20020868	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.7
29	20020869	<10	<10	<2	<2	<1	14	0	<1	35	<0.5	1.8
30	20020870	<10	<10	<2	<2	<1	14	0	<1	32	<0.5	1.7

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
31	20020871	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	11	<0.5	0.2
32	20020873	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	13	<0.5	0.4
33	20020874	10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	20	<0.5	0.7
34	20020885	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.7
35	20020886	<10	<10	<2	<2	<1	4	0	<1	18	<0.5	1.3
36	20020887	13	<10	<2	2	37	23	0	<1	<10	<0.5	3.5
37	20020888	16	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	<10	<0.5	4.4
38	20020889	<10	<10	<2	2	<1	73	0	<1	12	<0.5	1.5
39	20020890	<10	<10	<2	<2	2	1699	<0.2	<1	14	4	1.6
40	20020891	<10	<10	<2	<2	<1	8	<0.2	<1	<10	<0.5	1.0
41	20020941	<10	<10	<2	<2	<1	6	<0.2	<1	18	<0.5	1.2
42	20020942	<10	<10	<2	<2	<1	5	<0.2	<1	18	<0.5	1.2
43	20020943	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.6
44	20020944	<10	<10	<2	<2	1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.4
45	20020945	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.3
46	20020946	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	28	<0.5	1.0
47	20020947	<10	<10	<2	<2	2	10	0	<1	30	<0.5	1.2
48	20020948	<10	<10	<2	<2	2	8	0	<1	<10	<0.5	0.3
49	20020949	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	10	<0.5	1.3
50	20020950	<10	<10	<2	<2	<1	5	<0.2	<1	18	<0.5	1.1
51	20020951	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	31	<0.5	0.5
52	20020952	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	16	<0.5	0.6
53	20020953	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	19	<0.5	0.6
54	20020954	12	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.8
55	20020955	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	19	<0.5	0.2
56	20020956	<10	<10	<2	<2	<1	5	1	<1	28	<0.5	1.0
57	20020957	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	11	<0.5	0.2
58	20020958	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	23	<0.5	1.2
59	20020959	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	14	<0.5	<0.1
60	20020960	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	19	<0.5	0.2
61	20021003	<10	<10	<2	<2	15	7	0	<1	11	<0.5	0.6
62	20021004	<10	<10	<2	<2	5	6	1	<1	20	<0.5	1.0
63	20021005	<10	<10	<2	<2	3	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.1
64	20021006	<10	<10	<2	<2	1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.4
65	20021007	<10	<10	<2	<2	2	3	<0.2	<1	<10	<0.5	1.9
66	20021008	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.5
67	20021009	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.6
68	20021010	<10	<10	2	<2	1	<2	0	<1	<10	<0.5	0.4
69	20021011	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.6
70	20021012	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.8
71	20021013	<10	<10	<2	<2	<1	69	<0.2	<1	23	<0.5	1.8
72	20021014	<10	<10	<2	<2	<1	15	<0.2	<1	<10	<0.5	1.0
73	20021015	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.8
74	20021030	<10	<10	<2	<2	104	91	<0.2	<1	<10	<0.5	0.2
75	20021031	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	19	<0.5	0.7
76	20021032	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	19	<0.5	0.7
77	20021033	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	19	<0.5	0.4
78	20021034	<10	<10	<2	<2	1	32	<0.2	<1	11	<0.5	<0.1
79	20021035	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	14	<0.5	0.5
80	20021036	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	<1	12	<0.5	0.2
81	20021037	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	<1	18	<0.5	0.3
82	20021038	<10	<10	<2	<2	1	<2	<0.2	<1	18	<0.5	0.3
83	20021083	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	10	<0.5	1.4
84	20021085	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	<10	<0.5	0.8
85	20021098	<10	<10	<2	<2	34	13	<0.2	<1	19	1	0.3
86	20021099	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	20	<0.5	0.2
87	20021100	<10	<10	<2	<2	<1	<2	15	<1	44	<0.5	1.6
88	20021101	<10	<10	<2	<2	2	2	28	2	<10	<0.5	4.0
89	20021102	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	20	<0.5	0.6

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
90	20021103	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	32	1	0.9
91	20021104	<10	<10	<2	<2	<1	14	<0.2	<1	20	<0.5	0.7
92	20021105	<10	<10	<2	<2	1	28	1	<1	36	<0.5	1.0
93	20021106	<10	<10	<2	<2	1	510	1	<1	33	2	3.0
94	20021107	<10	<10	<2	<2	<1	3	8	<1	<10	<0.5	0.6
95	20021108	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	14	<0.5	<0.1
96	20021109	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	20	<0.5	0.6
97	20021110	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.4
98	20021111	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	15	<0.5	0.5
99	20021112	<10	<10	<2	<2	<1	6	<0.2	<1	18	<0.5	0.6
100	20021113	<10	<10	<2	<2	<1	2	0	2	20	<0.5	1.0
101	20021114	<10	<10	2	<2	<1	3	3	3	57	<0.5	1.7
102	20021152	<10	<10	2	<2	<1	<2	<0.2	<1	26	<0.5	0.8
103	20021153	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	10	<0.5	0.7
104	20021154	<10	<10	2	<2	9	87	<0.2	<1	29	2	0.8
105	20021155	<10	<10	<2	<2	3	5	<0.2	<1	18	1	0.3
106	20021156	<10	<10	2	<2	<1	<2	6	7	24	<0.5	2.7
107	20021157	<10	<10	4	<2	<1	3	2	7	24	<0.5	3.6
108	20021158	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	1	17	<0.5	1.6
109	20021159	<10	<10	<2	<2	<1	41	<0.2	3	36	<0.5	0.4
110	20021172	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	1	<10	<0.5	0.3
111	20021173	<10	<10	<2	<2	<1	7	3	2	12	<0.5	1.5
112	20021174	<10	<10	<2	<2	<1	559	8	2	<10	<0.5	1.7
113	20021175	<10	17	<2	2	3	1287	6	2	<10	<0.5	3.2
114	20021176	<10	30	<2	<2	2	37	1	<1	<10	1	2.0
115	20021177	<10	<10	<2	<2	<1	110	2	2	<10	<0.5	0.9
116	20021178	<10	<10	<2	<2	1	142	6	3	10	<0.5	1.8
117	20021179	<10	<10	<2	<2	<1	9	1	1	<10	<0.5	<0.1
118	20021180	<10	<10	<2	<2	1	29	1	2	<10	<0.5	0.5
119	20021181	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	1	<10	<0.5	1.1
120	20021182	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	4	<10	<0.5	5.9
121	20021183	<10	<10	<2	<2	<1	36	<0.2	1	<10	<0.5	3.4
122	20021230	<10	<10	9	<2	12	128	0	<1	<10	1	<0.1
123	20021231	<10	<10	<2	<2	<1	3	5	2	<10	<0.5	2.7
124	20021232	<10	<10	4	<2	<1	2	3	<1	47	<0.5	1.0
125	20021233	<10	<10	3	<2	3	2	3	<1	11	<0.5	0.4
126	20021234	<10	<10	10	<2	<1	<2	3	<1	<10	<0.5	0.1
127	20021235	<10	<10	9	<2	<1	<2	2	<1	<10	<0.5	0.3
128	20021236	<10	<10	<2	<2	<1	2	1	<1	17	<0.5	0.9
129	20021237	<10	<10	<2	<2	<1	7	0	<1	22	<0.5	1.2
130	20021238	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	13	<0.5	2.7
131	20021239	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	18	<0.5	1.0
132	20021240	<10	<10	<2	<2	2	<2	5	<1	171	1	9.9
133	20021241	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	308	<0.5	1.1
134	20021242	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	<10	<0.5	0.8
135	20021243	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	<1	10	<0.5	1.6
136	20021244	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	467	<0.5	3.4
137	20021245	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	45	<0.5	0.5
138	20021246	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	25	<0.5	1.5
139	20021247	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	<1	30	<0.5	2.0
140	20021248	<10	<10	<2	<2	<1	2	1	<1	29	<0.5	2.7
141	20021249	<10	<10	<2	<2	<1	3	0	<1	<10	<0.5	0.4
142	20021254	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	3	74	<0.5	1.6
143	20021255	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	21	<0.5	1.1
144	20021256	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	18	<0.5	3.3
145	20021257	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	15	<0.5	0.7
146	20021258	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	7	61	<0.5	2.2
147	20021259	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	78	<0.5	2.2
148	20021260	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	288	<0.5	1.1

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
149	20021261	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	28	<0.5	0.9
150	20021262	<10	11	<2	<2	<1	4	1	3	108	<0.5	4.3
151	20021263	13	<10	<2	<2	<1	6	<0.2	<1	66	<0.5	2.3
152	20021264	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	<10	3	1.5
153	20021265	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	<1	296	1	1.4
154	20021266	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.9
155	20021267	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.9
156	20021268	<10	<10	<2	<2	<1	11	<0.2	<1	<10	<0.5	2.3
157	20021269	<10	<10	<2	<2	<1	8	<0.2	<1	548	<0.5	2.4
158	20021270	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.5
159	20021271	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	15	<0.5	2.6
160	20021272	<10	<10	<2	4	3	20	<0.2	<1	47	2	3.4
161	20021273	<10	<10	<2	<2	<1	12	<0.2	<1	<10	<0.5	2.4
162	20021314	<10	<10	<2	<2	<1	4	2	<1	<10	<0.5	0.9
163	20021315	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	12	14	<0.5	13.4
164	20021316	<10	<10	<2	<2	2	29	<0.2	<1	<10	<0.5	2.5
165	20021317	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	<10	<0.5	0.7
166	20021318	<10	<10	<2	<2	4	2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.4
167	20021319	<10	<10	<2	<2	2	4	<0.2	<1	<10	<0.5	0.5
168	20021320	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.3
169	20021321	<10	<10	<2	<2	3	8	<0.2	<1	<10	1	0.4
170	20021322	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	<10	<0.5	0.8
171	20021323	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.9
172	20021335	<10	<10	<2	<2	<1	9	14	1	<10	<0.5	5.9
173	20021336	<10	<10	<2	<2	<1	18	2	1	12	<0.5	5.9
174	20021337	<10	<10	<2	<2	<1	4	4	23	10	<0.5	10.0
175	20021338	<10	<10	<2	<2	<1	16	1	<1	11	<0.5	6.3
176	20021339	<10	<10	<2	<2	5	4	1	<1	248	1	9.1
177	20021340	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	2	339	<0.5	2.2
178	20021341	<10	16	<2	<2	<1	<2	1	<1	311	<0.5	0.6
179	20021342	<10	<10	<2	<2	<1	3	0	<1	18	<0.5	2.3
180	20021343	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	<10	<0.5	11.6
181	20021344	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	1	<10	<0.5	3.8
182	20021348	<10	<10	<2	<2	<1	2	1	<1	158	1	6.6
183	20021349	<10	<10	<2	<2	<1	117	<0.2	<1	31	<0.5	1.9
184	20021350	<10	15	<2	<2	<1	11	0	2	45	<0.5	3.6
185	20021351	<10	<10	<2	<2	<1	9	2	2	54	<0.5	10.5
186	20021352	<10	<10	<2	<2	<1	9	<0.2	2	19	<0.5	2.2
187	20021353	<10	<10	<2	<2	<1	10	3	2	58	<0.5	11.3
188	20021354	<10	<10	<2	<2	<1	2	1	1	121	<0.5	28.4
189	20021355	<10	<10	<2	<2	<1	6	<0.2	<1	50	<0.5	2.5
190	20021356	<10	<10	<2	<2	4	169	1	<1	200	1	7.9
191	20021357	13	<10	<2	<2	<1	6	8	2	16	<0.5	9.1
192	20021358	<10	<10	<2	<2	<1	4	<0.2	<1	12	<0.5	2.7
193	20021360	<10	<10	<2	<2	<1	4	23	3	28	1	8.4
194	20021361	<10	<10	<2	<2	<1	9	156	<1	<10	<0.5	3.4
195	20021362	<10	<10	<2	<2	<1	12	94	1	34	<0.5	13.7
196	20021363	<10	<10	<2	<2	<1	2	4	2	29	<0.5	11.4
197	20021364	<10	<10	<2	<2	<1	7	9	2	24	<0.5	9.8
198	20021365	<10	<10	<2	<2	<1	3	46	2	21	<0.5	4.8
199	20021366	<10	<10	<2	<2	<1	3	1	<1	19	1	5.3
200	20021367	<10	<10	<2	<2	<1	4	29	2	11	<0.5	4.7
201	20021368	<10	<10	2	<2	<1	12	66	3	13	<0.5	28.8
202	20021369	<10	<10	<2	<2	1	23	39	3	<10	<0.5	14.6
203	20021370	<10	<10	<2	<2	<1	2	3	<1	<10	<0.5	1.2
204	20021371	<10	<10	<2	<2	<1	3	2	<1	11	<0.5	0.6
205	20021372	<10	<10	<2	<2	<1	<2	4	1	<10	<0.5	1.2
206	20021373	<10	<10	<2	<2	1	5	0	<1	28	<0.5	1.7
207	20021374	<10	<10	<2	<2	<1	51	2	26	83	1	7.8

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
208	20021375	<10	<10	7	<2	<1	2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.1
209	20021376	<10	54	<2	<2	<1	16	1	1	71	1	5.9
210	20021403	<10	<10	<2	<2	<1	<2	21	<1	<10	<0.5	5.0
211	20021404	<10	<10	<2	<2	<1	3	2	1	23	<0.5	3.6
212	20021405	<10	<10	<2	<2	1	4	6	<1	<10	<0.5	12.8
213	20021406	<10	<10	<2	<2	<1	13	<0.2	2	<10	<0.5	23.1
214	20021407	<10	<10	<2	<2	<1	<2	7	2	<10	<0.5	8.2
215	20021408	<10	<10	<2	<2	<1	2	18	2	<10	<0.5	7.3
216	20021409	<10	15	<2	<2	<1	3	6	1	<10	<0.5	3.3
217	20021410	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	2	11	<0.5	19.4
218	20021411	<10	<10	3	6	1	6	<0.2	<1	<10	2	13.2
219	20021412	<10	<10	3	<2	1	<2	<0.2	4	<10	<0.5	10.2
220	20021535	<10	<10	<2	<2	<1	<2	9	<1	<10	<0.5	0.3
221	20021536	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	23	<0.5	1.1
222	20021537	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	3	<10	<0.5	1.8
223	20021538	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	<1	<10	<0.5	1.4
224	20021539	<10	<10	<2	<2	<1	<2	23	1	<10	<0.5	5.8
225	20021540	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	7	21	<0.5	2.4
226	20021541	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	1	<10	<0.5	4.4
227	20021542	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	4	22	<0.5	13.6
228	20021543	<10	61	<2	<2	2	<2	0	1	21	<0.5	7.2
229	20021544	<10	<10	<2	<2	<1	<2	5	1	297	<0.5	4.3
230	20021546	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.1
231	20021547	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	2	<10	<0.5	1.5
232	20021548	<10	<10	<2	<2	<1	24	4	2	20	<0.5	2.7
233	20021549	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	<10	<0.5	0.3
234	20021550	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	2	<10	<0.5	1.5
235	20021551	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.0
236	20021552	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.9
237	20021553	<10	36	<2	<2	2	<2	1	<1	<10	<0.5	1.2
238	20021608	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	2	12	<0.5	2.2
239	20021609	<10	<10	<2	<2	<1	<2	8	9	32	<0.5	8.7
240	20021610	<10	37	<2	<2	1	<2	0	<1	270	<0.5	2.9
241	20021611	<10	37	<2	<2	4	<2	5	<1	264	<0.5	4.0
242	20021612	<10	13	<2	<2	<1	<2	1	<1	15	<0.5	5.2
243	20021613	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	5	34	<0.5	2.4
244	20021614	<10	<10	<2	<2	<1	<2	8	2	66	1	15.3
245	20021615	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	2	36	<0.5	1.4
246	20021616	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	<1	215	<0.5	1.9
247	20021617	<10	<10	<2	4	2	11	6	1	56	<0.5	1.8
248	20021618	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	2	21	<0.5	5.2
249	20021619	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	1	<10	<0.5	0.4
250	20021620	<10	<10	<2	<2	2	22	<0.2	12	34	<0.5	8.3
251	20021621	<10	<10	3	<2	2	9	<0.2	<1	13	<0.5	0.3
252	20021622	<10	<10	<2	<2	<1	3	0	<1	<10	<0.5	0.4
253	20021623	<10	<10	<2	<2	9	28	1	1	<10	<0.5	1.6
254	20021624	<10	<10	<2	<2	<1	10	1	<1	<10	<0.5	0.2
255	20021625	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	<1	<10	<0.5	2.2
256	20021626	<10	<10	<2	<2	<1	2	0	3	37	<0.5	3.8
257	20021627	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	1	23	<0.5	1.3
258	20021704	<10	<10	<2	<2	<1	21	<0.2	31	82	<0.5	6.5
259	20021705	<10	<10	<2	<2	1	40	<0.2	<1	<10	<0.5	1.9
260	20021706	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	15	<0.5	2.0
261	20021707	<10	<10	<2	<2	1	48	<0.2	<1	<10	1	0.4
262	20021708	<10	<10	<2	<2	5	27	0	7	204	<0.5	2.2
263	20021709	<10	<10	<2	<2	<1	6	0	<1	<10	<0.5	0.7
264	20021711	<10	<10	<2	<2	<1	3	18	3	<10	<0.5	5.8
265	20021712	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	2	<10	<0.5	7.2
266	20021713	<10	<10	<2	<2	<1	<2	12	3	17	<0.5	6.3

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
267	20021714	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	<0.1
268	20021715	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	3	<10	<0.5	1.8
269	20021716	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	2	12	<0.5	10.9
270	20021717	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	3	<10	<0.5	1.3
271	20021718	<10	<10	<2	<2	<1	3	1	<1	<10	<0.5	1.2
272	20021719	<10	<10	<2	<2	<1	3	18	<1	34	<0.5	1.6
273	20021720	<10	<10	<2	<2	<1	<2	4	<1	20	<0.5	1.1
274	20021741	<10	<10	<2	<2	<1	5	2	4	32	<0.5	3.7
275	20021742	<10	<10	<2	<2	<1	4	0	5	34	<0.5	2.6
276	20021743	<10	<10	<2	<2	<1	17	1	<1	<10	<0.5	0.4
277	20021744	<10	<10	<2	<2	<1	25	9	<1	72	<0.5	0.9
278	20021745	<10	<10	<2	<2	<1	3	44	<1	188	<0.5	1.1
279	20021746	<10	<10	<2	<2	<1	8	5	1	43	<0.5	1.9
280	20021747	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	243	<0.5	0.6
281	20021748	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	3	21	<0.5	1.7
282	20021749	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	2	53	<0.5	1.5
283	20021750	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	4	68	<0.5	1.5
284	20021752	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	2	13	<0.5	5.4
285	20021753	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	<10	<0.5	1.9
286	20021754	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	2	55	<0.5	1.8
287	20021755	27	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.9
289	20021757	<10	82	<2	<2	<1	11	2	<1	20	<0.5	2.5
290	20021764	<10	<10	<2	<2	7	15	<0.2	<1	<10	<0.5	0.5
291	20021765	<10	24	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	1.1
292	20021766	<10	<10	<2	<2	2	28	<0.2	<1	<10	2	1.5
293	20021767	<10	14	<2	<2	2	30	0	<1	<10	<0.5	0.3
294	20021768	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	2	35	<0.5	7.0
295	20021770	<10	<10	<2	<2	<1	3	21	1	<10	<0.5	2.2
296	20021771	<10	<10	<2	3	4	8	9	2	<10	<0.5	0.8
297	20021772	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	11	<0.5	0.9
298	20021773	<10	21	<2	<2	2	3	2	<1	<10	<0.5	6.4
299	20021774	<10	<10	<2	<2	<1	<2	3	1	<10	<0.5	0.2
300	20021775	<10	38	7	3	4	6	4	1	45	<0.5	1.5
301	20021776	<10	<10	<2	<2	<1	2	2	2	21	<0.5	2.8
302	20021777	<10	20	<2	<2	<1	3	3	<1	24	<0.5	1.3
303	20021778	<10	<10	<2	<2	<1	<2	25	<1	11	<0.5	1.4
304	20021779	<10	<10	<2	<2	1	<2	43	<1	<10	<0.5	0.6
305	20021786	22	32	<2	3	<1	70	<0.2	<1	12	<0.5	2.0
306	20021814	<10	<10	<2	<2	<1	<2	0	<1	<10	<0.5	2.0
307	20021815	10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	10	<0.5	1.7
308	20021816	<10	36	<2	<2	2	3	<0.2	<1	17	1	1.0
309	20021817	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.8
310	20021818	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.4
311	20021819	<10	<10	<2	<2	<1	<2	1	<1	<10	<0.5	<0.1
312	20021820	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	<10	<0.5	0.5
313	20021821	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	27	<0.5	2.1
314	20021822	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	16	<0.5	1.9
315	20021828	<10	<10	<2	<2	<1	2	1	<1	11	1	0.4
316	20021829	<10	<10	<2	<2	<1	3	4	2	15	1	0.6
317	20021830	<10	<10	<2	<2	<1	36	11	3	37	<0.5	2.8
318	20021831	<10	<10	<2	<2	<1	4	<0.2	6	17	<0.5	2.1
319	20021832	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	2	16	<0.5	1.2
320	20021833	<10	<10	<2	<2	<1	<2	7	<1	10	<0.5	1.2
321	20021834	<10	<10	<2	<2	<1	3	7	2	142	<0.5	2.5
322	20021835	<10	<10	<2	<2	<1	2	1	2	70	<0.5	0.7
323	20021836	<10	34	<2	<2	<1	2	3	<1	17	2	1.3
324	20021837	<10	<10	<2	<2	<1	<2	7	1	<10	<0.5	2.4
325	20021867	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	44	<0.5	1.4
326	20021868	<10	<10	<2	<2	2	29	<0.2	<1	<10	<0.5	0.4

Nr	ProtNr	Li mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Mo mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l
327	20021869	<10	<10	<2	<2	<1	87	<0.2	<1	13	<0.5	1.6
328	20021870	<10	11	<2	<2	1	212	<0.2	<1	68	1	2.6
329	20021871	<10	<10	<2	<2	<1	4	<0.2	<1	48	<0.5	1.0
330	20021872	<10	<10	<2	<2	3	5	<0.2	<1	12	<0.5	1.3
331	20021873	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	<1	16	<0.5	2.9
332	20021874	<10	<10	<2	<2	<1	3	<0.2	<1	<10	<0.5	0.2
333	20021875	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	149	<0.5	0.7
334	20021876	<10	<10	<2	<2	8	190	<0.2	<1	<10	2	0.2
335	20021877	<10	<10	<2	<2	<1	6	1	2	<10	<0.5	2.8
336	20021878	<10	<10	<2	<2	1	3	2	2	<10	<0.5	1.6
337	20021879	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	2	10	<0.5	2.7
338	20021880	<10	<10	<2	<2	<1	2	<0.2	<1	<10	<0.5	<0.1
339	20021881	<10	<10	<2	<2	<1	25	2	<1	<10	<0.5	<0.1
340	20021882	<10	<10	<2	<2	1	28	0	1	<10	<0.5	0.3
341	20021883	<10	<10	<2	<2	<1	65	<0.2	<1	<10	<0.5	<0.1
342	20021935	<10	<10	<2	<2	<1	4	0	<1	167	<0.5	1.8
343	20021936	<10	<10	<2	<2	<1	3	1	<1	90	<0.5	2.0
344	20021937	<10	<10	<2	<2	1	22	3	<1	<10	<0.5	<0.1
345	20021938	<10	<10	<2	<2	<1	72	<0.2	<1	64	<0.5	0.1
346	20021939	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	57	<0.5	1.0
347	20021940	<10	<10	<2	<2	75	431	<0.2	<1	<10	1	0.2
348	20021941	<10	<10	<2	<2	2	16	<0.2	<1	<10	<0.5	0.2
349	20021942	<10	<10	<2	<2	<1	<2	<0.2	<1	72	<0.5	0.7
350	20021943	<10	<10	<2	<2	35	12	2	2	<10	<0.5	9.5
351	20021944	<10	18	<2	<2	2	5	2	1	15	<0.5	3.7
352	20021945	<10	<10	<2	<2	<1	3	11	<1	<10	1	0.9
353	20021946	<10	<10	<2	7	3	4	<0.2	1	55	<0.5	1.9
354	20021947	<10	<10	<2	<2	<1	76	1	<1	14	<0.5	1.0
355	20021948	<10	16	<2	<2	2	54	5	2	<10	<0.5	2.4
356	20021949	<10	11	<2	<2	<1	3	4	1	<10	<0.5	0.7
357	20021950	<10	14	<2	<2	<1	3	6	<1	<10	<0.5	0.3
358	20021951	<10	<10	<2	<2	1	3	1	4	<10	<0.5	2.9
359	20021952	<10	<10	<2	<2	<1	<2	2	3	<10	<0.5	2.7
360	20021994	<10	<10	<2	<2	<1	<2	5	1	12	<0.5	5.7

13.3 Resultate Radioaktivitätsmessungen Mineralwasser (nach Gemeinden geordnet)

Nr.	Protokoll Nr.	Gemeinde	Bezeichnung Probenahme	Koordinaten (y)	Koordinaten (x)	m ü. M.	Mineralwasser (M)	Datum Probenahme	Temp (°C)	pH	Leitfähigkeit (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)
402	20022787	Alvaneu-Bad	Quelle Heilbad	170.624	768.462	988	M	01.07.2002	14.5	7.3	1253	97	40.8	22.0	15
397	20022782	Andeer	Heilbad	163.242	752.246	982	M	01.07.2002	17.1	7.1	2093	93	20.6	109.4	32
403	20022788	Bergün	Quelle Bergün	166.902	777.424	1390	M	01.07.2002	12	7.4	1393	95	150.4	21.2	49
389	20022651	Churwalden	Theophil Quelle			750	M	24.06.2002	-	6.4	1127	22	4.6	41.9	72
381	20022643	Fideris	Mineralquelle Fideris Bad				M	24.06.2002	7	6.2	2655	121	0.9	5.1	379
379	20022477	Ftan	Obere Fuschna	185.75	815.73	1260	M	12.06.2002	8	6.4	3410	46	0.4	0.4	47
382	20022644	Klosters-Serneus	Serneus Quelle Serneus Bad Schlangenbrunnen				M	24.06.2002	8	6.8	780	42	6.0	3.8	21
383	20022645	Maladers	Richard Quelle Nr. 2			650	M	24.06.2002	-	7	1227	17	0.5	18.7	33
384	20022646	Maladers	Richard Quelle Nr. 1			650	M	24.06.2002	-	6.3	1441	21	1.5	16.1	43
385	20022647	Maladers	Petersquelle			670	M	24.06.2002	-	7.3	1682	34	0.3	32.5	38
386	20022648	Maladers	Georg Quelle			640	M	24.06.2002	-	7.3	1541	17	0.4	26.4	14
387	20022649	Maladers	Vinzens Quelle			625	M	24.06.2002	-	7.4	1343	23	0.5	38.3	0
388	20022650	Maladers	Stefan Quelle			600	M	24.06.2002	-	5.9	1045	11	2.7	20.7	99
390	20022652	Malix	Allegra Quelle			1020	M	24.06.2002	-	7.3	511	5	10.1	16.3	19
401	20022786	Mesocco	S. Bernardino Quelle S. Bernardino	147.578	734.738	1608	M	01.07.2002	9.9	6	2632	11	27.4	89.7	27
398	20022783	Rhazüns	Rhazüns 1	181.842	751.024	622	M	01.07.2002	17.8	6.8	1570	50	3.7	33.5	322
399	20022784	Rhazüns	Rhazüns 2	181.844	751.136	622	M	01.07.2002	15.8	6.6	962	46	14.2	21.7	128
400	20022785	Rhazüns	Rothenbrunnen Quelle Rothenbrunnen	181.682	751.726	622	M	01.07.2002	16.2	6.6	1178	36	7.3	55.1	137
364	20022462	Scuol	Sfondraz	185.96	816.955	1185	M	12.06.2002	7.4	6.4	7890	63	0.7	1.6	87
365	20022463	Scuol	Lischana	186.175	819.225	1164	M	12.06.2002	7.9	6.5	7460	24	6.1	3.1	5
366	20022464	Scuol	Chal'zina	186.57	817.96	1240	M	12.06.2002	8.1	6.3	964	19	16.4	15.0	0
367	20022465	Scuol	Tulai	186.53	818.01	1230	M	12.06.2002	7.9	6.1	1009	23	30.4	18.4	7
368	20022466	Scuol	Vi	187.11	818.03	1320	M	12.06.2002	7.9	6.1	1773	23	1.0	6.7	2
369	20022467	Scuol	Clozza	187.3	818.52	1290	M	12.06.2002	8.1	6	1542	23	1.6	20.7	24
370	20022468	Scuol	Sotsass	187.385	819.04	1285	M	12.06.2002	8.6	6.1	2084	95	9.6	17.5	118
371	20022469	Scuol	Rablönch	187.89	820.06	1185	M	12.06.2002	10.2	6.1	1955	47	10.5	11.9	56
372	20022470	Scuol	San Jon	185.68	818.77		M	12.06.2002	7.1	8	1431	13	0.2	18.0	2
373	20022471	Scuol	Funtana Cotschna	185.6	820.16		M	12.06.2002	6.2	7.7	984	10	6.6	4.3	6
405	20022830	Sent	Val Sinistra Konradin				M	02.07.2002		6.5	617	9	1.4	9.7	293
406	20022831	Sent	Val Sinistra Ulrich				M	02.07.2002		6.4	6110	47	2.3	10.9	207
407	20022832	Sent	Val Sinistra Thomas				M	02.07.2002		6.1	2377	22	4.9	3.3	97
396	20022781	Sumvitg	Mineralquelle Brunnen Tenigerbad				M	01.07.2002	12.9	7.3	2244	34	27.7	109.9	38
374	20022472	Tarasp	Bonifacius	185.06	814.65	1211	M	12.06.2002	5.2	6.3	4570	61	0.5	0.0	35
375	20022473	Tarasp	Carola	185.875	816.67	1186	M	12.06.2002	7.5	5.8	1878	6	3.6	50.7	97
376	20022474	Tarasp	Emerita	185.88	816.845	1186	M	12.06.2002	5.4	6.5	13940	61	0.6	0.0	53
377	20022475	Tarasp	Lucius	185.88	816.845	1186	M	12.06.2002	5.2	6.6	15080	58	0.8	0.0	121
378	20022476	Tarasp	Tarasper Schwefelquelle	183.72	814.68		M	12.06.2002	6.9	11.1	510	34	4.0	0.0	9
380	20022642	Untervaz	Friewis Mineralquelle				M	24.06.2002	13.1	7.5	370	24	9.5	10.1	7
395	20022780	Uors-Peiden	Mineralquelle Peiden Bad				M	01.07.2002	13.8	6.6	1980	30	16.8	19.7	154
392	20022777	Vals	Obere Fassung				M	01.07.2002	22.3	6.9	1520	56	20.0	18.8	74
393	20022778	Vals	Untere Fassung				M	01.07.2002	18.6	6.8	1691	46	7.3	18.9	70
394	20022779	Vals	Neubohrung				M	01.07.2002	29.7	6.8	1814	69	21.3	20.0	161

13.4 Resultate Elementscreen Mineralwasser (nach Nr. bzw. Protokoll Nr. geordnet)

Bei allen untersuchten Mineralwässern lagen die Werte für folgende Elemente unterhalb der Beurteilungsgrenze:

Parameter	Symbol	Beurteilungsgrenze	Einheit
Antimon	Sb	10	µg/l
Beryllium	Be	10	µg/l
Wismut	Bi	10	µg/l
Cadmium	Cd	0.1	µg/l
Cer	Ce	10	µg/l
Kobalt	Co	10	µg/l
Gallium	Ga	10	µg/l
Germanium	Ge	10	µg/l
Gold	Au	10	µg/l
Hafnium	Hf	10	µg/l
Indium	In	1	µg/l
Iridium	Ir	10	µg/l
Lanthan	La	10	µg/l
Neodym	Nd	10	µg/l
Niob	Nb	10	µg/l

Parameter	Symbol	Beurteilungsgrenze	Einheit
Osmium	Os	10	µg/l
Palladium	Pd	10	µg/l
Platin	Pt	10	µg/l
Rhenium	Re	10	µg/l
Ruthenium	Ru	10	µg/l
Samarium	Sm	10	µg/l
Silber	Ag	10	µg/l
Tantal	Ta	10	µg/l
Tellur	Te	10	µg/l
Thallium	Tl	0.1	µg/l
Thorium	Th	10	µg/l
Vanadium	V	10	µg/l
Wolfram	W	1	µg/l
Yttrium	Y	10	µg/l
Zinn	Sn	0.5	µg/l

Nr	ProtNr	Li mg/l	B mg/l	Al mg/l	Cr mg/l	Mn mg/l	Fe mg/l	Ni mg/l	Cu mg/l	Zn mg/l	As mg/l	Rb mg/l	Zr mg/l	Mo mg/l	Cs mg/l	Ba mg/l	Pb mg/l	U mg/l	Ca mg/l	K mg/l	Mg mg/l	Na mg/l	Si mg/l	Sr mg/l
364	20022462	5217	98350	<10	27	43	<1000	5	3	5	6	434	<10	<1	528	20	1	0.1	337	115	41	1246	4	6
365	20022463	4127	36297	<10	10	<10	<1000	20	3	<2	4	101	<10	<1	<10	<10	<0.5	0.2	285	92	51	1345	27	6
366	20022464	26	424	<10	<2	<10	<1000	7	<1	<2	0	<10	<10	<1	<10	43	<0.5	1.2	214	3	23	8	8	2
367	20022465	<10	<200	<10	<2	<10	<1000	8	<1	2	<0.2	<10	<10	<1	<10	89	<0.5	1.5	221	2	26	4	7	3
368	20022466	<10	<200	13	<2	1167	6662	6	<1	<2	0	<10	<10	<1	<10	100	<0.5	0.5	395	2	20	5	9	3
369	20022467	12	<200	<10	<2	591	<1000	9	4	4	<0.2	<10	<10	<1	<10	34	<0.5	1.7	396	1	26	4	6	3
370	20022468	<10	<200	<10	<2	589	2063	19	<1	3	1	<10	<10	<1	<10	204	<0.5	1.4	427	2	23	7	7	4
371	20022469	160	933	30	<2	472	4532	2	<1	<2	18	23	<10	<1	25	96	<0.5	1.0	419	6	28	50	5	4
372	20022470	<10	<200	<10	<2	<10	<1000	4	2	4	11	<10	<10	5	<10	22	<0.5	1.5	417	2	34	6	9	7
373	20022471	<10	<200	<10	<2	<10	<1000	<2	<1	<2	8	<10	<10	33	<10	12	<0.5	0.3	196	1	29	2	3	18
374	20022472	698	1092	<10	<2	15	<1000	<2	<1	<2	<0.2	104	<10	<1	40	18	<0.5	<0.1	322	37	40	505	6	10
375	20022473	145	2292	<10	<2	444	1213	14	9	16	1	19	<10	<1	13	31	1	4.1	359	7	34	108	4	5
376	20022474	9980	153303	11	66	<10	1282	<2	5	<2	12	752	16	<1	557	<10	<0.5	<0.1	107	225	43	2375	5	2
377	20022475	10731	160824	10	65	<10	<1000	<2	4	<2	13	807	20	<1	620	<10	<0.5	<0.1	108	248	43	2587	5	2
378	20022476	41	7269	15	5	<10	<1000	<2	<1	<2	1	<10	<10	<1	<10	<10	<0.5	<0.1	62	1	0	21	1	1
379	20022477	239	603	<10	3	77	<1000	3	<1	<2	1	48	<10	<1	15	62	<0.5	<0.1	343	14	37	125	5	6
380	20022642	32	<200	<10	<2	<10	<1000	<2	<1	<2	7	<10	<10	<1	<10	11	<0.5	0.8	79	1	12	5	3	1
381	20022643	266	665	<10	<2	191	1910	5	1	24	0	<10	<10	<1	<10	222	<0.5	0.4	256	21	26	467	5	10
382	20022644	58	290	<10	<2	19	<1000	<2	<1	<2	<0.2	<10	<10	<1	<10	47	<0.5	0.3	107	5	24	43	4	4
383	20022645	16	<200	<10	<2	240	<1000	6	2	2	0	<10	<10	<1	<10	19	<0.5	1.5	132	1	28	40	4	2
384	20022646	26	<200	<10	<2	580	<1000	14	1	6	0	<10	<10	<1	<10	21	<0.5	1.3	266	2	30	45	4	2
385	20022647	26	<200	<10	<2	587	<1000	15	<1	5	0	<10	<10	<1	<10	39	<0.5	2.6	277	2	33	8	6	3
386	20022648	24	<200	<10	<2	346	<1000	12	<1	4	0	<10	<10	<1	<10	24	<0.5	2.1	177	2	33	19	5	2
387	20022649	19	<200	<10	<2	76	<1000	12	<1	3	0	<10	<10	<1	<10	36	<0.5	3.1	149	2	40	30	4	2
388	20022650	<10	<200	<10	<2	966	<1000	9	1	5	0	<10	<10	<1	<10	28	2	1.7	216	2	19	29	4	3
389	20022651	41	<200	<10	<2	432	<1000	7	<1	2	<0.2	<10	<10	<1	<10	43	<0.5	3.4	94	1	19	2	3	1
390	20022652	<10	<200	<10	<2	<10	<1000	<2	<1	2	<0.2	<10	<10	<1	<10	11	<0.5	1.3	95	1	19	2	3	1
391	20022776	<10	<200	<10	<2	<10	<1000	<2	7	6	3	<10	<10	13	<10	10	<0.5	5.4						
392	20022777	11	<200	<10	<2	20	1561	3	2	<2	0	<10	<10	1	<10	14	<0.5	1.5	372	2	30	11	8	9
393	20022778	11	<200	<10	<2	39	1235	2	16	5	0	<10	<10	<1	<10	15	<0.5	1.5	436	2	30	11	9	10
394	20022779	13	<200	183	<2	21	1349	<2	<1	6	1	<10	<10	2	<10	18	<0.5	1.6	466	2	34	14	10	10
395	20022780	382	555	19	<2	34	<1000	2	2	29	1	50	<10	<1	62	<10	<0.5	1.6	398	14	32	121	6	7
396	20022781	<10	<200	11	<2	<10	<1000	3	<1	2	3	<10	<10	9	<10	<10	<0.5	8.9	636	3	38	5	4	13
397	20022782	13	<200	<10	<2	134	<1000	4	<1	3	3	<10	<10	6	<10	<10	<0.5	8.8	589	4	33	15	8	11
398	20022783	278	1380	<10	<2	894	4561	40	<1	4	22	25	<10	1	22	46	<0.5	2.7	181	9	30	149	23	5
399	20022784	115	542	<10	<2	515	<1000	13	<1	<2	3	13	<10	1	10	33	<0.5	1.8	161	6	24	62	14	3
400	20022785	184	795	<10	<2	599	1482	25	<1	4	4	11	<10	1	<10	69	<0.5	4.4	169	6	32	62	16	4
401	20022786	19	<200	23	<2	1246	7004	<2	<1	<2	1	17	<10	<1	<10	<10	<0.5	7.2	723	8	37	20	12	9
402	20022787	<10	<200	<10	<2	13	<1000	5	13	89	1	<10	<10	3	<10	17	2	1.8	269	1	37	3	3	6
403	20022788	<10	<200	<10	<2	10	<1000	2	<1	2	1	<10	<10	5	<10	<10	<0.5	1.7	287	1	40	7	4	8
405	20022830	10958	127918	<10	23	520	<1000	5	2	<2	395	598	<10	<1	1243	26	<0.5	0.8	323	89	40	928	5	7
406	20022831	10737	139068	11	30	748	<1000	7	2	3	2169	623	<10	<1	994	25	<0.5	0.9	432	91	39	950	5	7

407	20022832	2430	20532	<10	7	644	4906	8	2	7	413	148	<10	<1	266	28	<0.5	0.3	376	19	33	237	4	4
-----	----------	------	-------	-----	---	-----	------	---	---	---	-----	-----	-----	----	-----	----	------	-----	-----	----	----	-----	---	---

13.5 Gemeinden eingeteilt in "Radongebiet" bzw. "Kein Radongebiet"

Radongebiete (67 Gemeinden)

Alvaneu	Conters i.P.	Mesocco	Schlans	Trun
Andeer	Davos	Morissen	Schmiten (GR)	Tschiertschen
Arvigo	Disentis/Muster	Müstair	Schnaus	Tschieriv
Ausserferrera	Filisur	Parpan	Siat	Tujetsch
Bergün/Bravuogn	Flims	Pontresina	Sils i.D.	Valchava
Bever	Fuldera	Poschiavo	Silvaplana	Vicosoprano
Bondo	Guarda	Prüz	Soazza	Wiesen (GR)
Breil/Brigels	Hinterrhein	Rossa	Soglio	
Brienz/Brinzauls	Ilanz	Rueun	Sta. Maria V.M.	
Brusio	Klosters-Serneus	Ruschein	Stampa	
Buseno	La Punt-Chamues-ch	Safien	Sumvitg	
Castaneda	Ladir	Samedan	Suraua	
Castasegna	Lang wies	San Vittore	Surava	
Castrisch	Lavin	Sarn	Surcuolm	
Celerina/Schlarigna	Lü	S-chanf	Susch	

keine Radongebiete (141 Gemeinden)

Almens	Flerden	Mathon	Savognin	Trimmis
Alvaschein	Flond	Medel (Lucmagn)	Says	Trin
Andiast	Ftan	Medels i.Rh.	Scharans	Tschappina
Ardez	Furna	Molinis	Scheid	Tschlin
Arosa	Fürstenu	Mon	Schiers	Tumegl/Tomils
Avers	Grono	Mulegns	Schluen	Untervaz
Bivio	Grüsch	Mutten	Scuol	Urmein
Bonaduz	Haldenstein	Nufenen	Seewis i.P.	Valendas
Braggio	Igis	Obersaxen	Selma	Vals
Caldfreisen	Innerferrera	Pagig	Sent	Valzeina
Cama	Jenaz	Paspels	Sevegin	Vaz/Obervaz
Castiel	Jenins	Peist	Sils i.E./Segl	Vella
Casti-Wergenstein	Küblis	Pignia	Splügen	Verdabbio
Cauco	Laax	Pigniu	St. Antönien	Versam
Cazis	Lantsch/Lenz	Pitasch	St. Antönien-Ascharina	Vignogn
Chur	Leggia	Portein	St. Martin	Vrin
Churwalden	Lohn (GR)	Praden	St. Moritz	Waltensburg/Vuorz
Clugin	Lostallo	Pratval	St. Peter	Zernez
Cumbel	Lüen	Ramosch	Sta. Maria i.C.	Zillis-Reischen
Cunter	Lumbrein	Rhätzüns	Stierva	Zizers
Degen	Luven	Riein	Sufers	Zuoz
Domat/Ems	Luzein	Riom-Parsonz	Sur	
Donat	Madulain	Rodels	Tamins	
Duvin	Maienfeld	Rongellen	Tarasp	
Falera	Maladers	Rothenbrunnen	Tartar	
Fanas	Malans	Roveredo	Tenna	
Feldis/Veulden	Malix	Saas i.P.	Thusis	
Felsberg	Marmorera	Sagogn	Tiefencastel	
Fideris	Masein	Salouf	Tinizong-Rona	
Fläsch	Mastrils	Samnaun	Trans	

13.6 Radonwerte für die Einteilung der Gemeinden in "Radongebiet" bzw. "Kein Radongebiet" (Die grau markierten Gemeinden sind als "Radongebiete" eingeteilt worden)

Gemeinde	Unter-suchte Häuser	Ø Rn in Wohnräumen (Bq/m ³)	Max. Rn-Wert (Bq/m ³)	Häuser 400<Rn<1'000 Bq/m ³ (%)	Häuser Rn>1'000 Bq/m ³ (%)
Almens	20	102	400	5	0
Alvaneu	22	245	1060	9	5
Alvaschein	10	78	290	0	0
Andeer	25	203	820	16	0
Andiast	20	165	880	10	0
Ardez	33	113	510	3	0
Arosa	28	88	380	4	0
Arvigo	11	248	750	18	0
Ausserferrera	11	858	2380	46	36
Avers	24	110	700	4	0
Bergün/Bravuogn	21	231	890	10	0
Bever	23	182	877	13	0
Bivio	20	58	190	0	0
Bonaduz	25	175	763	16	0
Bondo	26	567	2590	31	12
Braggio	10	41	120	0	0
Breil/Brigels	260	310	7800	15	5
Brienz (GR)	12	591	1980	42	16
Brusio	36	629	2670	12	22
Buseno	10	173	540	10	0
Calfreisen	10	36	80	0	0
Cama	20	116	460	5	0
Castaneda	12	172	514	8	0
Castasegna	23	488	1950	17	17
Casti-Wergenstein	8	44	80	0	0
Castiel	12	42	140	0	0
Castrisch	20	228	1430	5	5
Cauco	6	94	152	0	0
Cazis	30	110	650	0	0
Celerina/Schlarigna	20	248	1470	5	5
Chur	90	53	180	0	0
Churwalden	27	133	320	0	0
Clugin	9	163	470	11	0
Conters Prättigau im	20	315	2670	15	5
Cumbel	11	157	490	9	0
Cunter	21	80	170	0	0
Davos	29	173	1250	3	3
Degen	12	99	400	0	0
Disentis/Mustér	468	345	>10000	10	6
Domat/Ems	25	188	950	8	0
Donat	23	77	210	0	0
Duvin	12	114	250	0	0
Falera	21	91	200	0	0
Fanas	25	125	680	4	0
Feldis/Veulden	16	63	200	0	0
Felsberg	25	175	1440	12	0
Fideris	32	114	580	6	0
Filisur	26	214	1580	8	4
Fläsch	22	61	200	0	0
Flerden	13	82	530	0	0
Flims	23	309	1870	9	9
Flond	12	111	270	0	0
Ftan	25	93	260	0	0
Fürstenu	20	123	250	10	0
Fuldera	27	182	780	7	0
Furna	22	62	120	0	0
Grono	20	136	280	0	0
Grüsch	35	101	870	5	0
Guarda	24	251	1530	4	4

Gemeinde	Unter-suchte Häuser	Ø Rn in Wohnräumen (Bq/m ³)	Max. Rn-Wert (Bq/m ³)	Häuser 400<Rn<1'000 Bq/m ³ (%)	Häuser Rn>1'000 Bq/m ³ (%)
Haldenstein	20	77	190	0	0
Hinterrhein	10	606	1830	30	20
Igis	47	50	570	0	0
Illanz	21	227	1790	5	10
Innerferrera	9	89	170	0	0
Jenaz	29	86	350	0	0
Jenins	21	70	220	0	0
Klosters-Serneus	31	508	3690	6	16
Küblis	26	149	660	4	0
La Chamues-ch Punt	20	264	1410	15	5
Laax (GR)	22	123	290	0	0
Ladir	11	196	480	9	0
Langwies	23	192	1030	9	4
Lantsch/Lenz	24	112	540	4	0
Lavin	26	398	1680	23	8
Leggia	12	83	170	0	0
Lohn (GR)	11	51	130	0	0
Lostallo	21	135	590	5	0
Lü	14	320	1940	7	7
Lüen	14	133	330	0	0
Lumbrein	22	126	390	0	0
Luven	12	117	220	0	0
Luzein	39	106	370	0	0
Madulain	28	156	450	7	0
Maienfeld	21	54	140	0	0
Maladers	24	110	670	8	0
Malans	28	63	240	0	0
Malix	21	125	478	5	0
Marmorera	10	75	240	0	0
Masein	24	104	450	4	0
Mastrils	21	96	790	5	0
Mathon	10	88	310	0	0
Medel (Lucmagn)	21	169	890	7	0
Medels Rheinwald im	9	82	180	0	0
Mesocco	27	201	1350	2	0
Molinis	13	117	350	0	0
Mon	13	96	200	0	0
Morissen	10	217	850	20	0
Müstair	32	318	3950	9	3
Mulegns	8	102	290	0	0
Mutten	10	84	400	0	0
Nufenen	12	97	210	0	0
Obersaxen	20	90	290	0	0
Pagig	13	63	410	0	0
Parpan	22	367	2930	27	5
Paspels	21	59	290	0	0
Peist	21	69	460	5	0
Pignia	11	125	530	0	0
Pigniu	14	77	180	0	0
Pitasch	12	87	130	0	0
Pontresina	22	180	3870	5	0
Portein	9	45	160	0	0
Poschiavo	32	347	3930	22	6
Praden	11	147	330	0	0
Präz	12	178	1250	17	0
Pratval	16	77	240	6	0
Ramosch	28	107	610	0	0
Rhâzüns	21	92	630	0	0
Riein	11	148	490	9	0

Gemeinde	Unter-suchte Häuser	Ø Rn in Wohnräumen (Bq/m ³)	Max. Rn-Wert (Bq/m ³)	Häuser 400<Rn<1'000 Bq/m ³ (%)	Häuser Rn>1'000 Bq/m ³ (%)
Riom-Parsonz	21	94	440	5	0
Rodels	18	136	540	6	0
Rongellen	11	74	150	0	0
Rossa	11	193	560	18	0
Rothenbrunnen	23	86	350	0	0
Roveredo (GR)	26	89	3200	0	0
Rueun	20	353	9622	30	10
Ruschein	21	216	980	14	0
S.Vittore	23	242	672	30	0
S-chanf	22	262	2240	23	0
Saas (GR)	24	76	210	0	0
Safien	26	208	1840	8	4
Sagogn	21	117	193	0	0
Salouf	21	61	200	0	0
Samedan	24	182	1380	0	4
Samnaun	30	77	380	0	0
Santa Maria (Müstair)	20	316	950	35	0
Sarn	11	295	1020	9	9
Savognin	26	117	450	4	0
Says	20	43	280	0	0
Scharans	24	116	380	0	0
Scheid	16	40	110	0	0
Schiers	27	140	910	7	0
Schlans	20	221	840	15	0
Schluain	22	142	440	5	0
Schmitten (GR)	23	234	520	22	0
Schnaus	20	357	1800	15	10
Scuol	37	113	410	0	0
Seewis im Prättigau	32	90	290	0	0
Selma	10	116	480	0	0
Sent	32	89	550	3	0
Sevgein	10	84	540	0	0
Siat	18	903	4780	39	22
Sils im Domleschg	24	219	1260	8	8
Sils im Engadin/Segl	20	126	860	5	0
Silvaplana	18	355	1370	33	6
Soazza	22	204	1480	0	5
Soglio	21	413	2640	29	5
Splügen	23	144	550	4	0
St.Antönien	13	48	90	0	0
St.Antönien Ascharina	11	154	390	0	0
St.Martin (GR)	10	81	170	0	0
St.Moritz	30	142	2780	7	0
St.Peter	20	82	350	0	0
Sta.Maria in Calanca	10	127	270	0	0
Stampa	27	401	1840	19	11
Stierva	12	84	340	0	0
Sufers	14	141	410	7	0
Sumvitg	19	341	2276	5	11
Sur	11	190	2450	0	0
Suraua	46	170	500	7	0
Surava	20	326	2910	5	5
Surcuolm	11	292	1760	8	17
Susch	26	291	1400	23	4
Tamins	23	152	469	4	0
Tarasp	30	158	970	12	0
Tartar	10	135	350	0	0
Tenna	11	94	390	0	0
Thusis	21	129	470	5	0
Tiefencastel	21	161	1440	5	0
Tinzong-Rona	22	100	490	5	0

Gemeinde	Unter-suchte Häuser	Ø Rn in Wohnräumen (Bq/m ³)	Max. Rn-Wert (Bq/m ³)	Häuser 400<Rn<1'000 Bq/m ³ (%)	Häuser Rn>1'000 Bq/m ³ (%)
Trans	10	35	2900	0	10
Trimmis	21	37	270	0	0
Trin	26	172	740	8	0
Trun	19	351	1770	32	5
Tschappina	11	154	830	27	0
Tschiertschen	20	179	1170	5	5
Tschieriv	28	174	1430	7	4
Tschlin	24	99	440	4	0
Tujetsch	20	259	4420	5	5
Turnegl/Tomils	22	69	160	0	0
Untervaz	27	98	300	0	0
Urmein	12	104	400	0	0
Valchava	22	261	2010	9	5
Valendas	22	120	480	5	0
Vals	26	112	330	0	0
Valzeina	11	136	400	9	0
Vaz/Obervez	33	147	2460	0	3
Vella	20	126	248	0	0
Verdabbio	12	92	270	0	0
Versam	24	162	5930	8	0
Vicosoprano	20	261	2035	5	5
Vignogn	11	121	710	0	0
Vrin	20	144	1110	0	5
Waltensburg/Vuorz	21	176	1654	0	0
Wiesen (GR)	22	173	1170	0	5
Zernez	30	168	440	3	0
Zillis-Reischen	23	128	920	4	0
Zizers	24	60	212	0	0
Zuoz	23	136	1300	0	4

Suraua	46	170	500	7	0
Camuns	12	56	130	0	0
Surcasti	12	226	350	0	0
Tersnaus	11	75	280	0	0
Uors Peiden	11	311	500	27	0

13.7 Resultate Radioaktivitätsmessungen, Elementscreen und chemische Parameter der weiterverfolgten Hot-Spots

Bei allen untersuchten Wässern lagen die Werte für folgende Elemente unterhalb der Beurteilungsgrenze:

Parameter	Symbol	Beurteilungsgrenze	Einheit
Antimon	Sb	10	µg/l
Beryllium	Be	10	µg/l
Wismut	Bi	10	µg/l
Blei	Pb	0.5	µg/l
Bor	B	200	µg/l
Cadmium	Cd	0.1	µg/l
Caesium	Cs	10	µg/l
Cer	Ce	10	µg/l
Chrom	Cr	2	µg/l
Kobalt	Co	10	µg/l
Gallium	Ga	10	µg/l
Germanium	Ge	10	µg/l
Gold	Au	10	µg/l
Hafnium	Hf	10	µg/l
Indium	In	1	µg/l
Iridium	Ir	10	µg/l
Lanthan	La	10	µg/l
Lithium	Li	10	µg/l
Neodym	Nd	10	µg/l

Parameter	Symbol	Beurteilungsgrenze	Einheit
Nickel	Ni	2	µg/l
Niob	Nb	10	µg/l
Osmium	Os	10	µg/l
Palladium	Pd	10	µg/l
Platin	Pt	10	µg/l
Rhenium	Re	10	µg/l
Rubidium	Rb	10	µg/l
Ruthenium	Ru	10	µg/l
Samarium	Sm	10	µg/l
Silber	Ag	10	µg/l
Tantal	Ta	10	µg/l
Tellur	Te	10	µg/l
Thallium	Tl	0.1	µg/l
Thorium	Th	10	µg/l
Vanadium	V	10	µg/l
Wolfram	W	1	µg/l
Yttrium	Y	10	µg/l
Zinn	Sn	0.5	µg/l
Zirkonium	ZR	10	µg/l

Quelle Leis, Vals

Nr.	ProtNr.	Bezeichnung Probenahme	Datum Probenahme	Temp. (°C)	pH	Leitf. (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)	Gesamt harte fh°	Säure verbr. fh°	Rest harte fh°	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	Fe µg/l	Al µg/l	Mn µg/l	Cu µg/l	Zn µg/l	As µg/l	Mo µg/l	Ba µg/l	U µg/l
B37	20024089	Leis Quelle, Reservoir	04.09.2002	5.7	7.4	53	10	320	35	3	2.9	2.2	0.7	26.8	<1.0	<1.0	4	2	9			40	<10	<1	<2	2	12	<10	3	
B69	20024824	Leis Quelle, Reservoir	23.10.2002	5.6	8.4	59	17	366	58	0	4	2.7	1.3	33	<1.0	<1.0	6	2	14	0	0	<10	<10	<1	<2	3	12	<10	5	
B72	20025357	Leis Quelle, Reservoir	26.11.2002	6.0	7.5	80	34	280	81	0	4.5	3.4	1.1	41.5	<1.0	<1.0	6	2	15	0	0	<10	<10	<1	<2	2	12	11	7	
B74	20030088	Leis Quelle, Reservoir	15.12.2002	5.7	7.5	76	32	268	87	22	4.4	3.5	0.9	42.7	<1.0	1	6	2	15	0	1	<10	<10	2	4	2	12	10	7	
B 78	20030174	Leis Quelle, Reservoir	14.01.2003	5.9	7.6	83	62	258	89	4	4.8	3.8	1	46.4	<1.0	<1.0	6	2	16	0	1	<10	<10	<1	3	2	10	<10	7	
B 90	20030416	Leis Quelle, Reservoir	12.02.2003	5.9	7.7	89	31	249	119	21	4.7	3.9	0.8	47.6	<1.0	<1.0	7	2	16	1	1	<5	<10	<10	<1	<2	2	15	13	10
B 95	20030745	Leis Quelle, Reservoir	17.03.2003	6.3	7.9	137	60	186	99	14	8.2	6.7	1.5	81.8	<1.0	1.2	10	3	27	1	1	20	<10	<10	<1	<2	2	9	11	8
B 100	20031128	Leis Quelle, Reservoir	13.04.2003	5.9	7.4	104	64	287	163	10	5.8	4.9	0.9	59.8	<1.0	1	9	2	20	1	1	<5	<10	<10	<1	<2	2	13	14	13
B 112	20031456	Leis Quelle, Reservoir	12.05.2003	5.9	8.0	99	76	290	157	26	6.6	4.7	1.9	57.4	<1.0	<1.0	9	3	22	1	1	6	<10	<10	<1	<2	3	13	14	13
B122	20031913	Leis Quelle, Reservoir	09.06.2003	6.1	8.0	68	20	284	76	0	4	3.5	0.5	42.7	<1.0	<1.0	6	2	13	1	1	<10	<10	<1	4	4	12	<10	6	
B127	20032551	Leis Quelle, Reservoir	15.07.2003	6.0	8.0	52	28	281	40	71	3.2	2.5	0.7	30.5	<1.0	<1.0	4	1	11	0	0	<5	<10	<10	<1	2	3	14	<10	3
B133	20033033	Leis Quelle, Reservoir	12.08.2003	6.0	8.2	56	39	278	38	46	3.7	2.6	1.1	31.7	<1.0	<1.0	10	2	12	0	0	<5	<10	<10	<1	<2	2	11	<10	3

Mineralquelle Bergün

Nr.	ProtNr.	Bezeichnung Probenahme	Datum Probenahme	Temp. (°C)	pH	Leitf. (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)	Gesamt h�rte fH°	S�ure verbr. fH°	Rest h�rte fH°	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	Fe µg/l	Al µg/l	Mn µg/l	Cu µg/l	Zn µg/l	As µg/l	Mo µg/l	Ba µg/l	U µg/l
B19	20024032	MW Brunnenstube	03.09.2002	9.2	7.8	1405	126	173	18	60	79.9	11.6	68.3	141.6	3	<1.0	850	42	251				65	23	1	9	1	112	<10	1
B62	20024804	MW Brunnenstube	22.10.2002	9.6	7.7	1398	96	172	24	5	90.4	12.1	78.3	147.7	2.7	<1.0	830	69	248	6	2		<10	17	<1	2	1	6	<10	2
B71	20025304	MW Brunnenstube	21.11.2002		7.6	1396	81	274	19	39	93.7	11.9	81.8	145.2	2.9	<1.0	829	71	259	5	1		<10	11	2	4	1	4	<10	1
B73	20030087	MW Brunnenstube	16.12.2002		7.5	1405	101	233	17	34	100.5	12.3	88.2	150.1	3	<1.0	822	77	276	6	1		<10	14	2	8	1	4	<10	1
B 79	20030226	MW Brunnenstube	15.01.2003	9.5	7.6	1425	91	212	17	25	98.1	11.8	86.3	144	2.6	<1.0	825	74	272	6	2		<10	13	<1	5	1	4	<10	1
B 91	20030498	MW Brunnenstube	19.02.2003		7.4	1429	84	145	14	38	98	12.3	85.7	150.1	3.1	<1.0	832	74	272	5	1	20	11	12	<1	3	1	4	<10	1
B 99	20030755	MW Brunnenstube	18.03.2003		7.6	1434	96	165	20	12	98.5	11.9	86.6	145.2	<1.0	<1.0	856	76	269	8	2	30	<10	16	<1	3	1	5	<10	2
B 101	20031132	MW Brunnenstube	15.04.2003	8.9	7.5	1425	124	183	17	47	89	12	77	146.4	4	<1.0	837	67	247	6	2	<5	<10	13	<1	5	1	5	<10	1
B 111	20031455	MW Brunnenstube	13.05.2003	9.6	7.7	1435	114	151	19	42	99.3	12.1	87.2	147.7	5.1	<1.0	857	74	276	6	2	30	<10	16	<1	<2	1	5	<10	2
B124	20031949	MW Brunnenstube	11.06.2003	9.6	7.6	1425	119	171	18	0	96.4	11.8	84.6	144	4	<1.0	869	73	267	6	1	30	<10	15	<1	<2	1	4	<10	1
B128	20032571	MW Brunnenstube	17.07.2003	9.6	7.7	1423	92	152	21	72	98.7	12	86.7	146.4	3.1	<1.0	859	74	274	6	1	6	<10	15	<1	5	1	5	<10	2
B132	20033024	MW Brunnenstube	12.08.2003	9.6	7.8	1436	112	157	19	18	99.1	12	87.1	146.4	3.7	<1.0	874	75	274	6	1	30	27	14	<1	4	1	4	<10	2

Quelle Pedecosta, Poschiavo

Nr.	ProtNr.	Bezeichnung Probenahme	Datum Probenahme	Temp. (°C)	pH	Leitf. (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)	Gesamt h�rte fH°	S�ure verbr. fH°	Rest h�rte fH°	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	Fe µg/l	Al µg/l	Mn µg/l	Cu µg/l	Zn µg/l	As µg/l	Mo µg/l	Ba µg/l	U µg/l
B23	20024036	neues Reservoir Pedecosta	03.09.2002	6.3	8.0	200	14	106	48	34	11.8	6.9	4.9	84.2	<1.0	1.4	38	9	33				<10	<10	<1	7	106	2	21	4
B65	20024809	neues Reservoir Pedecosta	22.10.2002	5.5	8.0	210	12	155	68	13	11.7	6.8	4.9	83	<1.0	1.5	57	9	32	1	1		<10	<10	<1	8	106	2	19	6
B75	20030089	neues Reservoir Pedecosta	16.12.2002	5.2	7.6	265	48	140	90	0	13.9	10.2	3.7	124.5	<1.0	3.1	34	10	39	1	1		<10	<10	4	11	133	1	22	7
B 87	20030316	neues Reservoir Pedecosta	28.01.2003	5.2	8.0	239	26	131	60	18	12.9	7.9	5	96.4	<1.0	2	48	10	36	1	1		<10	<10	<1	9	92	1	20	5
B 92	20030561	neues Reservoir Pedecosta	25.02.2003	4.0	7.7	237	44	156	72	14	12.8	7.4	5.4	90.3	<1.0	1.7	52	9	36	2	1	<5	<10	<10	<1	10	90	1	19	6
B 96	20030752	neues Reservoir Pedecosta	17.03.2003	4.2	7.8	235	35	169	73	64	12.6	8.2	4.4	100.1	<1.0	1.6	50	9	36	2	1	<5	<10	<10	<1	7	84	1	20	6
B 113	20031468	neues Reservoir Pedecosta	12.05.2003	5.2	8.0	213	57	133	68	18	11.6	7.7	3.9	94	<1.0	2	36	8	33	2	1	<5	19	<10	<1	6	87	2	18	6
B123	20031915	neues Reservoir Pedecosta	10.06.2003	6.4	7.8	194	20	112	55	6	10.2	7	3.2	85.4	<1.0	1.9	32	8	29	1	1	<5	<10	<10	<1	6	81	1	16	4
B129	20032666	neues Reservoir Pedecosta	21.07.2003	6.3	8.0	200	25	101	56	4	10.5	6.9	3.6	84.2	<1.0	1.6	37	8	30	1	1	<5	<10	<10	3	15	94	2	18	4
B134	20033323	neues Reservoir Pedecosta	25.08.2003	6.7	7.6	203	15	96	43	55	10.8	6.6	4.2	80.5	<1.0	1.4	94	8	31	1	1	<5	<10	<10	<1	9	67	1	17	3

Quelle Al Bait, Poschiavo

Nr.	ProtNr.	Bezeichnung Probenahme	Datum Probenahme	Temp. (°C)	pH	Leitf. (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)	Gesamt h�rte fH°	S�ure verbr. fH°	Rest h�rte fH°	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	Fe µg/l	Al µg/l	Mn µg/l	Cu µg/l	Zn µg/l	As µg/l	Mo µg/l	Ba µg/l	U µg/l
B24	20024037	Quelle AL Bait unten	03.09.2002	8.7	8.0	283	10	21	97	3	15.5	7.5	8	91.5	1	1.2	70	13	41				<10	<10	<1	8	67	4	<10	8
B63	20024807	Quelle AL Bait unten	22.10.2002	8.5	8.1	289	13	0	128	0	20	7.7	12.3	94	1.6	<0.1	145	17	52	4	2		<10	<10	2	11	73	4	<10	10
B77	20030091	Quelle AL Bait unten	16.12.2002	5.1	8.1	282	22	1	137	22	15.2	8	7.2	97.6	1.4	1.5	78	14	39	4	3		<10	<10	<1	9	65	5	<10	11
B 88	20030317	Quelle AL Bait unten	28.01.2003	9.5	8.1	277	22	5	83	12	14.2	7.4	6.8	90.3	1.3	1.4	70	13	36	4	3		<10	<10	<1	9	55	3	<10	7
B 93	20030562	Quelle AL Bait unten	25.02.2003	7.8	8.2	283	33	2	99	14	14.6	7.4	7.2	90.3	1.2	1.3	76	13	38	5	3	<5	<10	<10	<1	7	58	4	<10	8
B 97	20030753	Quelle AL Bait unten	17.03.2003	8.0	8.1	286	43	3	113	8	14.9	7.5	7.4	91.5	1.1	1.3	74	13	38	5	3	<5	<10	<10	<1	6	56	4	<10	9
B 115	20031470	Quelle AL Bait unten	12.05.2003	10.0	8.1	297	66	14	108	16	15.8	7.7	8.1	94	<1.0	1	85	14	41	4	3	<5	<10	<10	<1	5	62	4	<10	9
B125	20031985	Quelle AL Bait unten	11.06.2003	8.3	8.0	301	15	11	98	14	16	7.8	8.2	95.2	1.1	1.2	85	14	41	4	3	<5	<10	<10	2	7	51	3	<10	8
B130	20032667	Quelle AL Bait unten	21.07.2003	8.6	8.0	307	38	11	117	59	15.7	8	7.7	97.6	1.1	1	85	14	40	4	2	<5	<10	<10	<1	9	54	3	<10	9
B135	20033324	Quelle AL Bait unten	25.08.2003	8.6	8.0	311	10	11	100	41	16.3	8.2	8.1	100.1	1.1	1.1	86	15	41	4	2	<5	<10	<10	<1	8	68	2	12	8

Quelle Sass Da Li Rondolli, Poschiavo

Nr.	ProtNr.	Bezeichnung Probenahme	Datum Probenahme	Temp. (°C)	pH	Leitf. (µS/cm)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	Uran (mBq/l)	Ra-228 (mBq/l)	Gesamt h�rte fH°	S�ure verbr. fH°	Rest h�rte fH°	HCO ₃ ⁻ mg/l	Cl ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	Mg mg/l	Ca mg/l	Na mg/l	K mg/l	Fe µg/l	Al µg/l	Mn µg/l	Cu µg/l	Zn µg/l	As µg/l	Mo µg/l	Ba µg/l	U µg/l
B25	20024038	Quelle Sass Rondoli oben	03.09.2002	8.7	8.0	391	24	24	183	3	21.1	10.7	10.4	130.6	1.2	<1.0	111	16	58				<10	<10	<1	10	58	6	11	15
B64	20024808	Quelle Sass Rondoli oben	22.10.2002	8.5	8.1	399	27	16	242	33	21.5	10.9	10.6	133	1.3	<1.0	124	19	54	5	3		<10	<10	<1	15	62	5	11	19
B76	20030090	Quelle Sass Rondoli oben	16.12.2002	5.1	8.0	366	23	9	216	0	19.1	10.6	8.5	129.4	1.3	1.4	84	17	49	5	3		<10	<10	<1	8	55	5	<10	17
B 89	20030318	Quelle Sass Rondoli oben	28.01.2003	9.0	8.1	381	29	19	178	40	20.1	10.3	9.8	125.7	1.4	<1.0	99	18	51	5	3		<10	<10	<1	10	51	5	<10	14
B 94	20030563	Quelle Sass Rondoli oben	25.02.2003	8.0	8.2	377	34	11	199	0	20	10.3	9.7	125.7	1.3	<1.0	104	18	51	6	3	<5	<10	<10	<1	9	51	5	<10	16
B 98	20030754	Quelle Sass Rondoli oben	17.03.2003	8.1	8.2	383	51	11	218	0	20.2	10.6	9.6	129.4	1.3	<1.0	103	18	51	6	3	<5	<10	<10	<1	9	49	5	<10	18
B 114	20031469	Quelle Sass Rondoli oben	12.05.2003	10.2	8.0	408	61	26	185	14	21.6	11	10.6	134.2	1.1	<1.0	116	19	55	6	3	5	<10	<10	<1	9	51	5	<10	15
B126	20031986	Quelle Sass Rondoli oben	11.06.2003	8.4	8.1	412	5	15	187	12	21.7	10.9	10.8	133	1.1	<1.0	122	20	55	5	3	<5	<10	<10	<1	9	44	4	<10	15
B131	20032668	Quelle Sass Rondoli oben	21.07.2003	8.7	8.1	423	63	15	286	70	22.6	11.4	11.2	139.1	1.1	<1.0	127	20	57	5	3	<5	<10	<10	<1	13	62	5	<10	23
B136	20033325	Quelle Sass Rondoli oben	25.08.2003	8.8	8.1	428	32	16	290	0	23.2	11.6	11.6	141.6	1.2	1.1	129	21	58	5	3	<5	<10	<10	<1	8	51	5	11	23

Placidusquelle, Disentis

Datum	25.04.02	29.08.02	19.09.02	08.10.02	10.10.02	18.10.02	30.10.02	16.04.03	05.06.03	14.08.03	26.08.03	25.09.03	28.10.03
Gesamthärte (fH°)		13.0	-	13.4	-	13.8	13.4	14.8	14.1	-	-	-	-
Säureverbrauch (fH°)		1.2	-	1.7	-	1.6	1.7	1.6	1.7	-	-	-	-
Resthärte (fH°)		11.8	-	11.7	-	12.2	11.7	13.2	12.4	-	-	-	-
HCO ₃ ⁻ mg/l		14.6	-	20.7	-	19.5	20.7	19.5	20.7	-	-	-	-
(Cl ⁻ mg/l)		n.d.	-	n.d.	-	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-	-	-	-
NO ₃ ⁻ mg/l		n.d.	-	n.d.	-	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-	-	-	-
NO ₂ ⁻ mg/l		-	-	-	-	n.d.	n.d.	-	-	-	-	-	-
NH ₄ ⁺ mg/l		-	-	-	-	-	n.d.	-	-	-	-	-	-
SO ₄ ²⁻ mg/l		144	-	102	-	129	106	138	142	-	-	-	-
F ⁻ mg/l		-	-	-	-	-	0.8	-	-	-	-	-	-
K ⁺ mg/l		2.7	-	2.0	-	2.1	2.3	2.8	2.2	-	-	-	-
Na ⁺ mg/l		7.8	-	6.2	-	6.8	5.7	7.6	6.5	-	-	-	-
Fe ²⁺ mg/l		-	-	-	-	-	2.7	2.0	2.9	-	-	-	-
Mg ²⁺ mg/l		8.6	-	8.4	-	8.9	8.5	9.9	9.2	-	-	-	-
Ca ²⁺ mg/l		37.8	-	39.9	-	40.6	39.5	42.8	41.2	-	-	-	-
H ₂ SiO ₃ mg/l		-	-	-	-	-	-	55.0	39.9	-	-	-	-
Leitfähigkeit 20° - m S/cm	312	309	-	313	-	311	314	312	313	-	-	-	-
Leitfähigkeit 25° - m S/cm		345	-	349	-	347	350	348	349	-	-	-	-
pH (Labor)	6.1	6.3	-	6.6	-	6.4	6.2	5.9	6.3	-	-	-	-
Temperatur pH (°C)		11.4	-	11.0	-	12.8	19.1	13.2	14.8	-	-	-	-
²²² Rn Bq/l	654	718	-	520	-	689	663	608	518	-	-	-	-
²²⁶ Ra mBq/l	59	-	-	-	-	-	-	47	46	-	-	-	-
²²⁸ Ra mBq/l	7	-	-	-	-	-	-	63	17	-	-	-	-
U mBq/l	24	-	-	29	-	27	11	15	21	-	-	-	-
Trockenrückstand (mg/l)		202	-	186	-	195	189	249	236	-	-	-	-
Summe Anionen (meq/l)		3.23	-	2.46	-	3.01	2.59	3.18	3.31	-	-	-	-
Summe Kationen (meq/l)		3.05	-	3.14	-	3.27	3.11	3.45	3.28	-	-	-	-
Ionenbilanz (%)		-2.9	-	12.4	-	4.1	9.0	4.1	-0.4	-	-	-	-
Temperatur (°C)	7.5	7.5	7.3	7.4	7.5	7.3	7.3	7.4	7.2	7.4	7.3	7.4	7.4
Sauerstoff (%)		-	-	25	25	9	10	2.2	2	4	5	1	2
Sauerstoff (mg/l)		-	-	2.5	2.5	0.9	1	0.23	0.2	0.4	0.5	0.1	0.2
Schüttung (l/min)		-	-	42	42	41	40	42	37	39	37	38.5	37
pH (im Feld)		-	-	6.2	6.7	-	-	-	-	6.2	5.9	-	5.8
Leitfähigkeit im Feld (25° - m S/cm)		349	350	345	346	-	350	351	347	345	354	352	355
Redoxpotential (mV)		-	-	-	-	-	-	-	-	-	99	109	-

01.07.2003 03,20	3680	857.4	13.9	90.5
01.07.2003 04,20	4096	857.0	13.9	90.5
01.07.2003 05,20	4384	856.8	13.8	92.0
01.07.2003 06,20	5568	856.2	13.7	94.0

OTMAR DEFLOREN

PERSÖNLICHE ANGABEN

Geburtsdatum: 17. August 1967
Bürgerort: Disentis
Zivilstand: verheiratet mit Claudia, geb. Martinet
Kinder: Remo, Nadine, Selina

AUSBILDUNG

1974 - 1980 Primarschule Chur
1980 - 1987 Kantonsschule Chur (Matura Typus B)
1987 - 1992 Biologiestudium mit Diplomabschluss Universität Zürich
1995 - 1996 Ausbildung zum eidg. Lebensmittelinspektor mit
Diplomabschluss
1997 Ergänzungsprüfung in Hydrogeologie für das eidg.
Lebensmittelchemikerdiplom
1997 - 2000 Nachdiplomstudium zum eidg. Lebensmittelchemiker mit
Diplomabschluss
2001 - 2004 Dissertation am Centre d'Hydrogéologie der Universität
Neuchâtel

BERUFLICHER WERDEGAN G

1992 Lehrauftrag in Biologie an der Kantonsschule Chur
1993 - 1995 Lebensmitteltechnologe in der Fleischtrocknerei
Churwalden AG
1995 - 1998 Lebensmittelinspektor beim Kantonalen Labor und
Lebensmittelkontrolle Graubünden
1998 - 2000 Leiter Analytik II beim Kantonalen Labor und
Lebensmittelkontrolle Graubünden
seit 2000 Kantonschemiker (Amtsvorsteher) beim Kantonalen Labor
und Lebensmittelkontrolle Graubünden

HOBBIES

Familie, Jagd, Eishockey, Fussball