

KfK 2866
September 1979

**Die Dosisbelastung der
Umgebungsbevölkerung durch
natürliches und aus einer
Uranuntersuchungsgrube
emittiertes Ra-226**

— Radioökologische Untersuchungen im
Feldberggebiet —

H. Schüttelkopf, H. Kiefer
Hauptabteilung Sicherheit

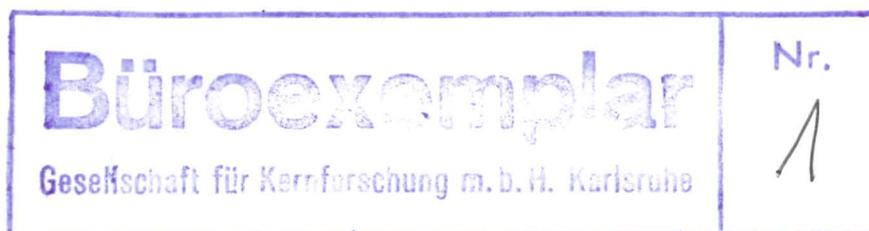
Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Hauptabteilung Sicherheit

KfK 2866

Die Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung durch
natürliches und aus einer Uranuntersuchungsgrube emittiertes Ra-226
- Radioökologische Untersuchungen im Feldberggebiet -

H. Schüttelkopf, H. Kiefer



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung:

Die Ra-226-Emissionen einer Uranuntersuchungsanlage wurden gemessen. Die Ra-226-Konzentrationen in der Umwelt und in Nahrungsmitteln des Südschwarzwalds wurden bestimmt. Die Dosisbelastung der Bevölkerung durch Ra-226 wurde berechnet. Transferfaktoren für die wichtigsten Transportprozesse des Radiums in der Biosphäre werden angegeben.

The dose exposure of the environmental population by natural and released Ra-226 from an uranium mine prospect - Radioecological researches in the region of Feldberg

Summary:

The Ra-226 releases of an uranium mine prospect were measured. The Ra-226 concentrations in the environment and in foods of the southern Black Forest were determined. The dose exposure of Ra-226 of the population was calculated. Transfer factors for the most important transport processes of radium in the biosphere are given.

ZUSAMMENFASSUNG

Die Umgebungskontamination mit ^{226}Ra durch die Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach

Die Kontamination der Umgebung durch ^{226}Ra -Emissionen aus der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach wurde vor, während und nach einer Abbauphase im Jahre 1978 untersucht. Die Umgebungsluft im Betriebsgelände war mit $0,48 \text{ fCi } ^{226}\text{Ra}/\text{m}^3$ kontaminiert. Die natürliche Kontamination des Krunkelbaches liegt bei $0,5 \text{ pCi } ^{226}\text{Ra}/\text{l}$. Aus dem dritten Sedimentierbecken werden 45 l Grubenwasser vermischt mit Oberflächenwasser pro Sekunde abgegeben. Dieses Wasser weist im Jahresdurchschnitt eine ^{226}Ra -Kontamination von $23 \text{ pCi}/\text{l}$ auf. Durch die Emission der Grubenwässer wird die Konzentration von ^{226}Ra im Krunkelbach auf $4 \text{ pCi}/\text{l}$ erhöht und nimmt durch Verdünnung nach 1000 m bachabwärts auf $2,1 \text{ pCi}/\text{l}$ wieder ab. Nach dem Zusammenfluß mit der Feldberger Alb war $1,1 \text{ pCi}/\text{l}$ gemessen worden. Sedimentproben aus dem Krunkelbach vor der Einleitung der Grubenwässer enthielten im Mittel $2,8 \text{ pCi } ^{226}\text{Ra}/\text{g}$; Sedimentproben unterhalb der Einleitung bis zur Einmündung der Menzenschwander Alb in die Bernauer Alb enthielten im Durchschnitt $3,7 \text{ pCi } ^{226}\text{Ra}/\text{g}$. Die Kontamination der Fische des Krunkelbaches liegt bei $60 \text{ pCi}/\text{kg}$ Fischfleisch und die der Fische der Menzenschwander Alb bei $5 \text{ pCi}/\text{kg}$. Die ^{226}Ra -Aktivität in Fischen ist zu je ein Drittel auf die Eingeweide, das Skelett und das Fleisch verteilt.

Die Luftkontamination durch ^{226}Ra im Betriebsgelände wird sehr wahrscheinlich durch aufgewirbelte Erde und nicht durch Emissionen aus der Untersuchungsanlage hervorgerufen. Die gemessene ^{226}Ra -Kontamination würde sich bis zum Betriebsgeländezaun noch weiter erniedrigen. Der gemessene Wert entspricht etwa $0,8 \%$ der nach der Strahlenschutzverordnung maximal zulässigen Jahresinhalation. Die ^{226}Ra -Kontamination der Umgebungsluft ist für die Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung bedeutungslos.

Das Wasser des Krunkelbaches der Menzenschwander Alb wird nicht als Trinkwasser benutzt. Das Trinkwasser stammt aus mehreren Quellen des Menzenschwander Tales und hat keinen Kontakt mit den Grubenwässern der Uranuntersuchungsanlage. Daher existiert keine Dosisbelastung der Bevölkerung durch

^{226}Ra -Emissionen der Uranuntersuchungsanlage über die Ingestion von Trinkwasser.

Überschwemmungen des Kulturlandes im Menzenschwander Tal können zur Kontamination des Grases und damit der lokal produzierten Milch führen. Eine solche Kontamination als Folge von Überschwemmungen durch das kontaminierte Bachwasser wäre aber nur möglich, wenn eine Anreicherung des ^{226}Ra im Boden erfolgen würde. Die Messungen der ^{226}Ra -Konzentrationen in Erdproben des Menzenschwander Tales zeigten, daß eher eine Ausschwemmung als eine Anreicherung im Boden erfolgt. Die Aufnahme von ^{226}Ra über das Trinkwasser der Rinder aus den beiden Bächen führt maximal zu einer Erhöhung von 2 % der ^{226}Ra -Tagesaufnahme, welche im wesentlichen bestimmt ist durch die ^{226}Ra -Konzentration von 60 pCi/kg Frischgras. Dies bedeutet, daß eine Milchkontamination durch den Betrieb der Uranuntersuchungsgrube zu keinem Zeitpunkt des Betriebes im Jahre 1978 erfolgt ist und auch in den folgenden Jahren nicht zu erwarten ist.

Durch die Kontamination des Wassers von Krunkelbach und Menzenschwander Alb durch ^{226}Ra aus der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach erfolgt eine Kontamination der in diesen Bächen lebenden Forellen. Insgesamt werden jährlich etwa 100 kg Forellen gefangen. Diese Forellen werden von etwa 100 Personen verzehrt. Mit der mittleren Verzehrtrate von 1 kg/Jahr und der mittleren Kontamination des Fischfleisches aus Krunkelbach und Menzenschwander Alb von 10,5 pCi/kg erhält man ca. 2 % der nach der Strahlenschutzverordnung maximal zulässigen jährlichen Aufnahme von ^{226}Ra durch Ingestion. Ein Anstieg der Kontamination der Fische bei langjährigem Betrieb der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach ist nicht zu erwarten, da die jährlich eingesetzten Fische abgefischt werden bzw. im Herbst in die Bernauer Alb abwandern. Die Kontamination der Fische durch andere Radionuklide der Uranreihen dürfte nur von untergeordneter Bedeutung neben der durch ^{226}Ra verursachten Dosisbelastung sein.

Da während der Abbauphase und der gleichzeitig erfolgten Einlagerung von Uranerz in der Grube höhere ^{226}Ra -Gehalte im Grubenwasser beobachtet wurden als in der Phase des Abtransportes, erscheint es sinnvoll, auf die Einlagerung zu verzichten und einen zügigen Abtransport des Erzes anzustreben.

III

Soll eine Umgebungsüberwachung im Menzenschwander Tal erfolgen, wird empfohlen, monatlich das Grubenwasser und jährlich einmal Fisch- und Sedimentproben aus dem Krunkelbach auf ^{226}Ra zu analysieren.

Die natürlichen ^{226}Ra -Konzentrationen im Menzenschwander Tal und der näheren Umgebung

Zur Erfassung der natürlichen ^{226}Ra -Konzentrationen wurde der Gehalt von Erd-, Gesteins- und Sedimentproben aus dem Menzenschwander Raum bestimmt. Die ^{226}Ra -Konzentrationen von Heu, Gras und Wildpflanzen wurden gemessen. Die ^{226}Ra -Konzentrationen von Quell- und Oberflächenwässern wurden im Menzenschwander Tal und in der näheren und weiteren Umgebung des Tales in einer großen Zahl von Proben bestimmt. Der höchste Wert lag bei 1549 pCi/l, der Mittelwert bei 0,3 pCi/l. In einer großen Zahl von Mischproben wurde ^{226}Ra gemessen; der Mittelwert lag bei 8,9 pCi/l. Praktisch alle im Menzenschwander Raum produzierten Nahrungsmittel wurden auf ^{226}Ra untersucht. Ihre ^{226}Ra -Gehalte sind ausnahmslos höher als die aus der Literatur entnommenen Vergleichswerte.

Die Transferfaktoren für Radium wurden für Fisch/Wasser, Wasser/Sedimente, Milch/Gras, Gras/Boden, Wildpflanzen/Boden und Nahrungsmittel/Boden gemessen. Es erfolgte ein Vergleich der im Südschwarzwald gemessenen Transferfaktoren für Radium mit denen der Berechnungsgrundlagen des Bundesministers des Innern.

Die Berechnung der Jahresingestion von natürlichem ^{226}Ra durch die Bevölkerung von Menzenschwand unter der Voraussetzung der quantitativen Deckung des mittleren Pro-Kopf-Verbrauchs der Bundesrepublik Deutschland durch lokal produzierte Nahrungsmittel führt zu 7,0 nCi/Jahr. Mit dem Pro-Kopf-Verbrauch der vorläufigen Berechnungsgrundlagen des BMI wurden 89 nCi/Jahr erhalten. 28 Bürger von Menzenschwand wurden im Bodycounter des KfK ausgemessen und alle ^{226}Ra -Bodyburden lagen unter der Nachweisgrenze von 7,5 nCi. Als Mittelwert des ^{226}Ra -Bodyburden ist ein Wert von 0,3 - 0,5 nCi zu erwarten. Daraus ergibt sich, daß nur ca. 4 % des Nahrungsmittelverbrauches in Menzenschwand durch lokal produzierte

Nahrungsmittel erfolgte. Da dieser Wert zu niedrig erscheint, kann nicht ausgeschlossen werden, daß der Ra-Transport aus dem Magen-Darm-Trakt in den Körper im benutzten Modell zu hoch angesetzt wird. Aus der gleichzeitig gemessenen ^{137}Cs -Bodyburden, die für die Menzenschwander Bevölkerung um den Faktor 26 höher liegt als für eine Karlsruher Vergleichsgruppe, darf geschlossen werden, daß in Menzenschwand etwa 3 mal mehr lokal produzierte Nahrungsmittel verbraucht werden als im Vergleichsraum Karlsruhe.

INHALT

1. Problemstellung
2. Die Kontamination der Umgebung durch ^{226}Ra -Emissionen aus der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach
 - 2.1 Die Kontamination der Umgebungsluft
 - 2.2 Die Kontamination des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb
 - 2.3 Die Kontamination der Forellen im Krunkelbach und in der Menzenschwander Alb
 - 2.4 Die Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung durch ^{226}Ra -Emissionen der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach
 - 2.5 Die maximal zulässigen Emissionen von ^{226}Ra und die Kontrolle der Emissionen
3. Die natürliche ^{226}Ra -Konzentration der Umgebung von Menzenschwand
 - 3.1 Die ^{226}Ra -Konzentration der Erde im Menzenschwander Tal
 - 3.2 Die ^{226}Ra -Konzentration von Gras, Heu und Wildpflanzen aus Menzenschwand
 - 3.3 Die ^{226}Ra -Konzentration verschiedener Oberflächenwässer und von deren Sedimenten aus der näheren und weiteren Umgebung von Menzenschwand
 - 3.4 Die ^{226}Ra -Konzentration der Milch in Menzenschwand und Umgebung
 - 3.5 Die ^{226}Ra -Konzentration von Nahrungsmitteln, welche in Menzenschwand und Umgebung produziert werden
 - 3.6 Vergleich der ^{226}Ra -Konzentrationen in Umweltproben aus Menzenschwand mit Literaturangaben
4. Die Transferfaktoren von Radium
 - 4.1 Der Ra-Transferfaktor Fisch/Wasser
 - 4.2 Der Ra-Transferfaktor Wasser/Sedimente
 - 4.3 Der Ra-Transferfaktor Milch/Gras
 - 4.4 Der Ra-Transferfaktor Gras/Boden und Wildpflanze/Boden
 - 4.5 Der Ra-Transferfaktor Nahrungsmittel/Boden

5. Die Dosisbelastung der Bevölkerung aus Menzenschwand und Umgebung durch die natürliche ^{226}Ra -Kontamination der Umwelt
 - 5.1 Die Jahresingestion von natürlichem ^{226}Ra mit Lebensmitteln aus Menzenschwand und Umgebung
 - 5.2 Die berechnete Jahresingestion von natürlichem ^{226}Ra mit dem Pro-Kopf-Verbrauch der "Berechnungsgrundlagen"
 - 5.3 Die Messung der Bodyburden von ^{226}Ra der Bürger von Menzenschwand
 - 5.4 Der Vergleich des ^{226}Ra - und des ^{137}Cs -Bodyburden
6. Anhang Analysenmethode
7. Literatur

1. PROBLEMSTELLUNG

Beim Schürfen und beim Abbau von Uranerz wird die Abluft mit staubförmigem Erz kontaminiert. Diese wird über das Abluftsystem der Grube freigesetzt. Das natürlich gelagerte oder durch Sprengungen aufgelockerte Erz wird durch das Grubenwasser berieselt und dabei gehen geringe Anteile des Erzes in Lösung und führen zur radioaktiven Kontamination dieser Grubenwässer. Da die Wässer aus der Grube abgepumpt und an die Umgebung abgegeben werden, kann durch ihren Aktivitätsgehalt, wie auch durch den Aktivitätsgehalt der Abluft, eine Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung hervorgerufen werden. Ob dies der Fall ist und welches Ausmaß eine solche Dosisbelastung erreicht, sollte in der Umgebung der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach untersucht werden.

Im Uranerz befinden sich die natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen des ^{238}U und des ^{235}U . Zu ihnen gehören 25 radioaktive Nuklide. Da die Untersuchung aller radioaktiven Nuklide zeit- und kostenaufwendig ist, sollte nur das wichtigste Radionuklid untersucht werden. Wegen des geringen Anteiles von ^{235}U im natürlichen Uran beträgt die Aktivität dieses Nuklides und seiner Folgeprodukte nur etwa 3,4 % der gesamten Aktivität des Erzes, wenn säkulares Gleichgewicht zwischen den Ausgangsnukliden ^{235}U und ^{238}U und deren Folgeprodukte angenommen wird. Von den Radionukliden der ^{238}U -Reihe ist ^{226}Ra mit Abstand das gefährlichste Radionuklid vom Standpunkt der Belastung der Umgebungsbevölkerung. Ein Ci ^{226}Ra ruft eine zehnmal größere Ingestionsdosis hervor als das nächste ungefährlichere Radionuklid ^{210}Pb . Die Untersuchung einer eventuell vorhandenen Umgebungsbelastung durch die Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach befaßte sich daher ausschließlich mit Freisetzung, Verteilung und Umgebungskonzentrationen von ^{226}Ra .

Da der Südschwarzwald ein Raum erhöhter natürlicher Strahlenintensität ist, ist zu erwarten, daß auch die natürlichen Radiumkonzentrationen in diesem Raum höher sein werden als an anderen Orten der Bundesrepublik. Um die durch das Auffahren der Versuchsgrube verursachte Umgebungs-kontaminationen mit der natürlichen Konzentration vergleichen zu können, sollten in Menzenschwand und seiner weiteren Umgebung eine große Zahl von Radium-

bestimmungen in Umgebungsmaterialien und lokal produzierten Nahrungsmitteln durchgeführt werden. Die Auswirkung des natürlichen, höheren Radiumgehaltes in der Umwelt auf den Radiumgehalt der Bevölkerung von Menzenschwand sollte bestimmt werden.

2. DIE KONTAMINATION DER UMGEBUNG DURCH ^{226}Ra -EMISSIONEN AUS DER URAN-UNTERSUCHUNGSGRUBE KRUNKELBACH

Die Abgabe von ^{226}Ra mit der Abluft der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach führt zur Kontamination der Umgebungsluft und kann über Inhalation zur Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung führen. Die Abgabe von ^{226}Ra mit dem Grubenwasser aus dem letzten Absetzbecken in den Krunkelbach führt zur Kontamination des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb. Dabei wird unter der Menzenschwander Alb der Zusammenfluß des Krunkelbaches und der Feldberger Alb verstanden. Eine Dosisbelastung der Bevölkerung durch ^{226}Ra kann erfolgen durch Ingestion von Wasser und Fischen und, wenn Überschwemmungen mit dem Bachwasser zur Kontamination von Weiden führen, durch die Aufnahme von Kuhmilch.

2.1 Die Kontamination der Umgebungsluft

40 m in Hauptwindrichtung vom Abwetterschacht der Uranuntersuchungsgrube wurde eine Luftprobenahme installiert. In Kopfhöhe wurden durch einen organischen 20 cm Ø-Filter 11000 bis 23000 m³ Umgebungsluft in je 2 Wochen gesaugt. Dies ist in der Kerntechnik übliche Benützung von Glasfaserfiltern war hier nicht möglich, da diese einige Prozent Ba enthalten und dieses die folgende Radiumanalyse stört. Das bestaubte organische Filter wird mit Ba-Träger versehen und verascht. Der Rückstand wird in Lösung gebracht. Zur eigentlichen Radiumanalyse wurde die Methode nach [1] verwendet; einige Modifikationen wurden entsprechend [2] vorgenommen. Die Beschreibung der Arbeitstechnik erfolgt im Anhang. Die radiochemische Reinigung von Ra besteht aus einer doppelten BaSO₄-Fällung und der jeweils nachfolgen-

den Gleichgewichtseinstellung Ra/Ba in Lösung und im BaSO₄. Das BaSO₄-Präparat wird nach einer Woche in einem low-level-Alpha Counter der Fa. Berthold, 7547 Wildbad, gemessen. Der Nulleffekt dieser Anlage beträgt 0,02 min⁻¹. Die Meßdauer betrug 100 min. Die Ausbeutenbestimmung erfolgte durch Wägung des BaSO₄.

Die Ergebnisse, die entsprechend unserer Probenahme zwischen dem 4.9.1978 und dem 12.12.1978 gewonnen wurden, sind in Tab. 1 angegeben.

| Probenahme 1978 von bis | | Probekolumen in m ³ | Luftkonzentration von ²²⁶ Ra in fCi/m ³ |
|------------------------------|--------|-----------------------------------|--|
| 04.09. | 19.09. | 23 400 | 0,40 |
| 19.09. | 03.10. | 20 280 | 0,29 |
| 03.10. | 16.10. | 20 280 | 0,30 |
| 16.10. | 02.11. | 20 100 | 0,084 |
| 16.11. | 06.12. | 20 960 | 1,2 |
| 06.12. | 12.12. | 11 000 | 0,16 |
| Mittelwert | | | 0,48 ± 0,16 |

Tab. 1: Luftkonzentrationen von ²²⁶Ra am Hauptbeaufschlagungspunkt der Abluftfahne der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach

2.2 Die Kontamination des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb

Um die natürliche ²²⁶Ra-Fracht des Krunkelbaches und den ²²⁶Ra-Ausstoß mit dem Grubenwasser zu erfassen, und um die Veränderung der ²²⁶Ra-Konzentration im Bachwasser bachabwärts verfolgen zu können, wurden automatisch arbeitende Wasserprobenahmegeräte 150 m vor der Einleitung des Grubenwassers, 150 m danach und 100 m vor dem Zusammenfluß mit der Feldberger Alb installiert. 100 m nach dem Zusammenfluß mit der Feldberger Alb wurde ein weiteres Gerät zur Probenahme an der Menzenschwander Alb

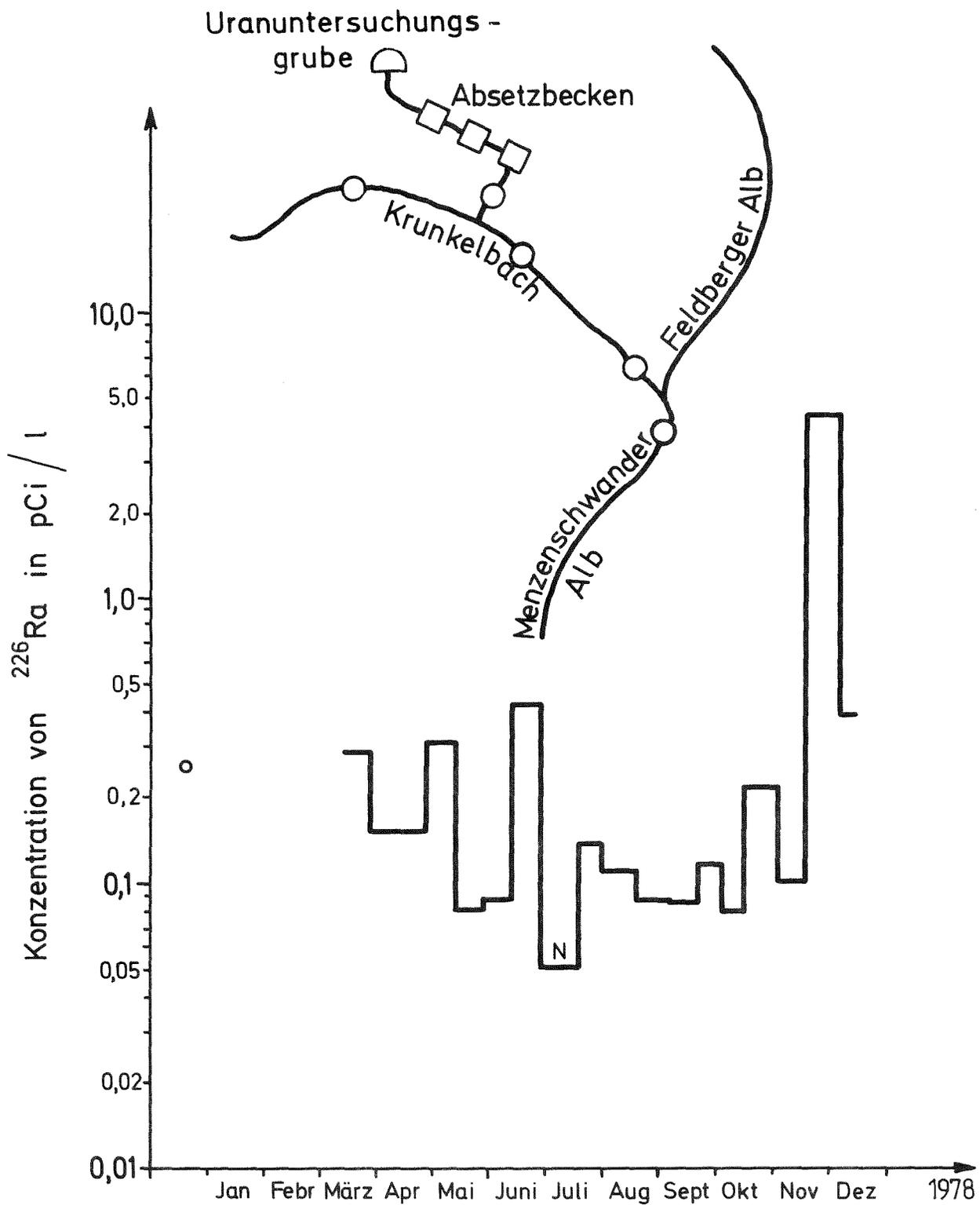


Abb.1: ^{226}Ra -Konzentrationen im Wasser des Krunkelbaches vor der Einleitung des Grubenwassers der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach und schematische Darstellung der Probenahme um die Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach.

○ - Einzelmeßwert. N - Nachweisgrenze.

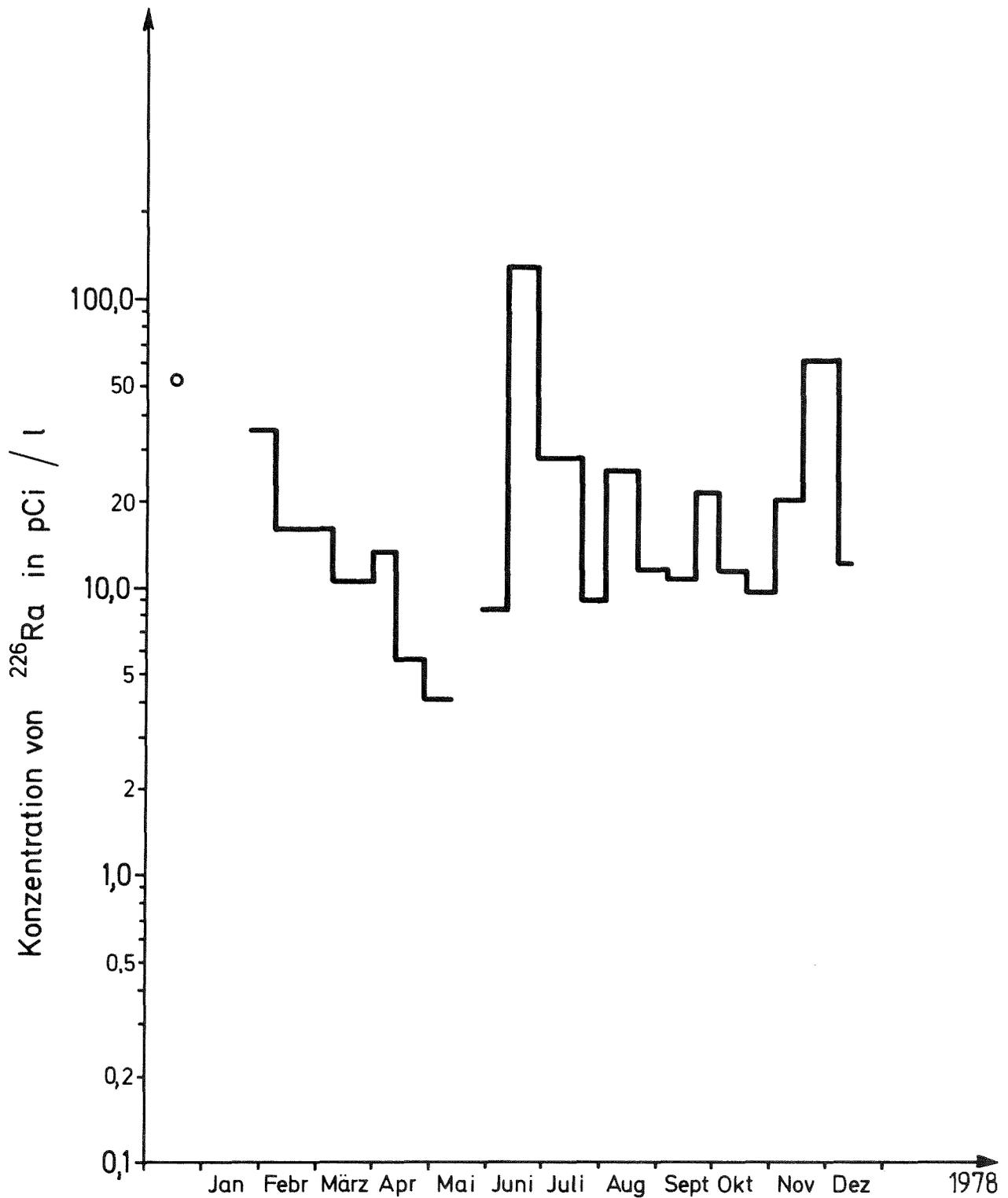


Abb. 2 : ^{226}Ra -Konzentrationen im aus dem dritten Sedimentierbecken in den Krunkelbach abgeleiteten Grubenwasser.
o - Einzelmeßwert.

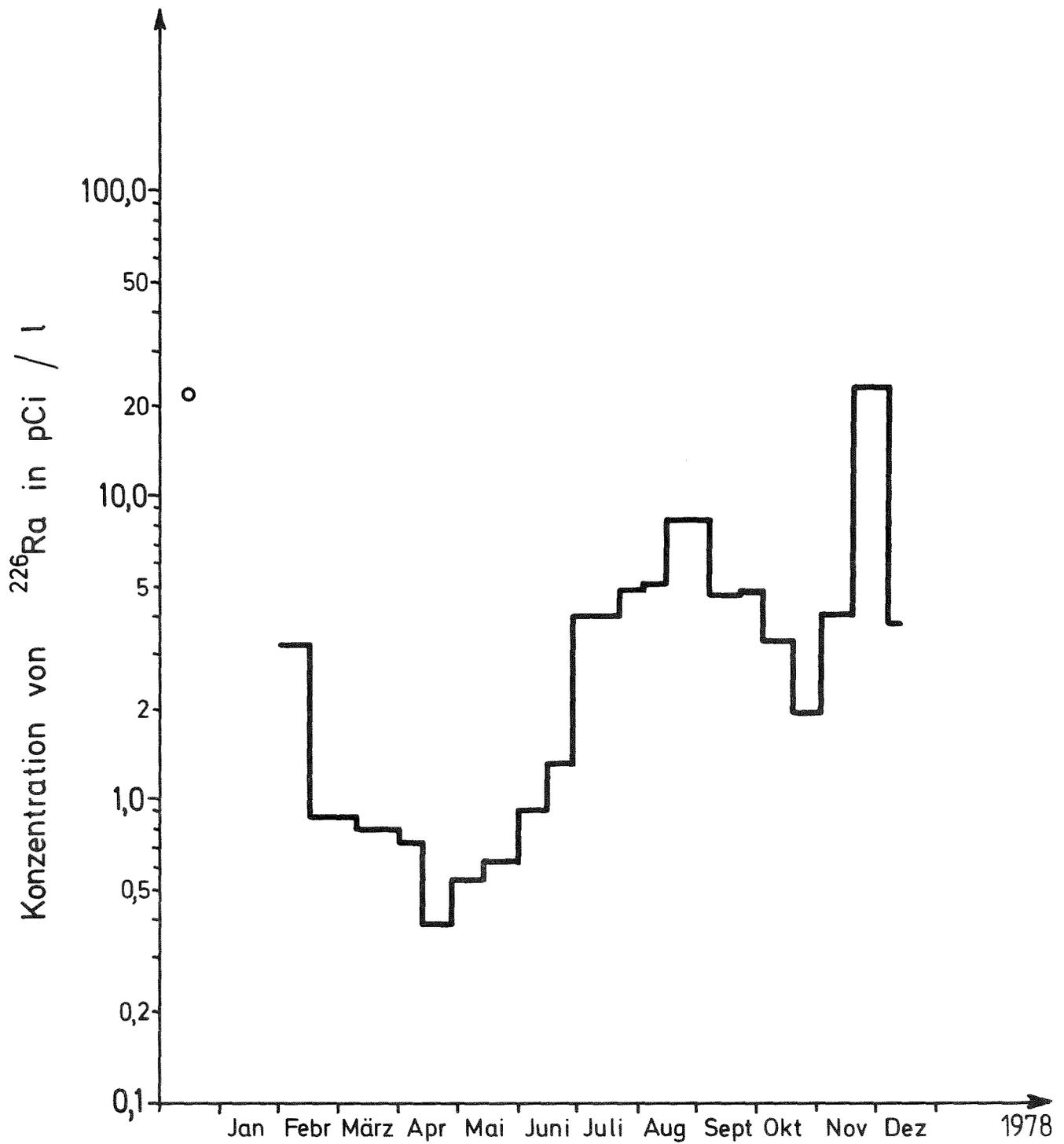


Abb. 3 : ^{226}Ra -Konzentrationen im Wasser des Krunkebaches 150 m nach Einleitung des Grubenwassers der Uranuntersuchungsgrube Krunkebach. \circ - Einzelmeßwert.

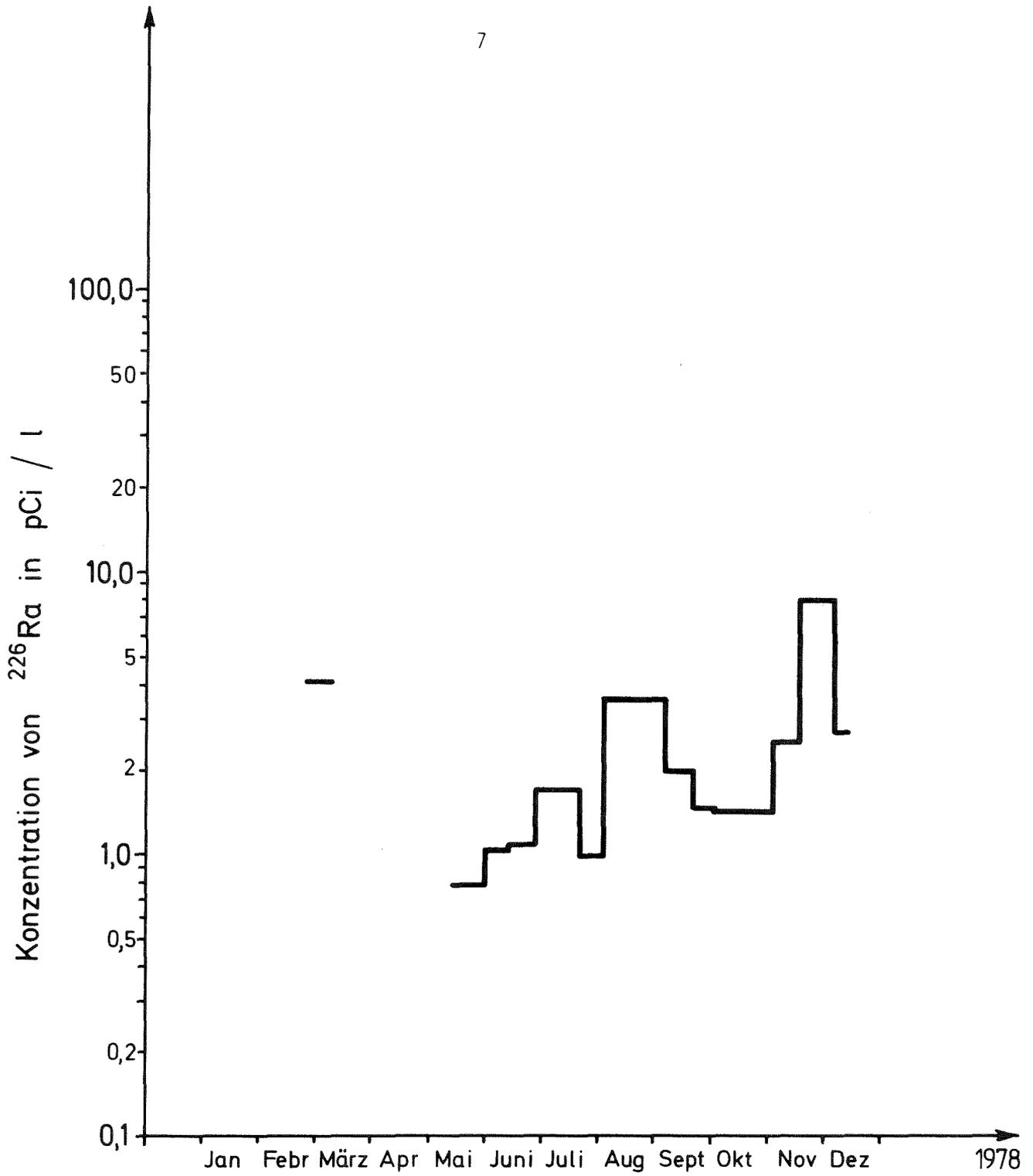


Abb. 4 : ^{226}Ra -Konzentrationen im Wasser des Krunkelbaches
100m vor dem Zusammenfluß mit der Feldberger Alb

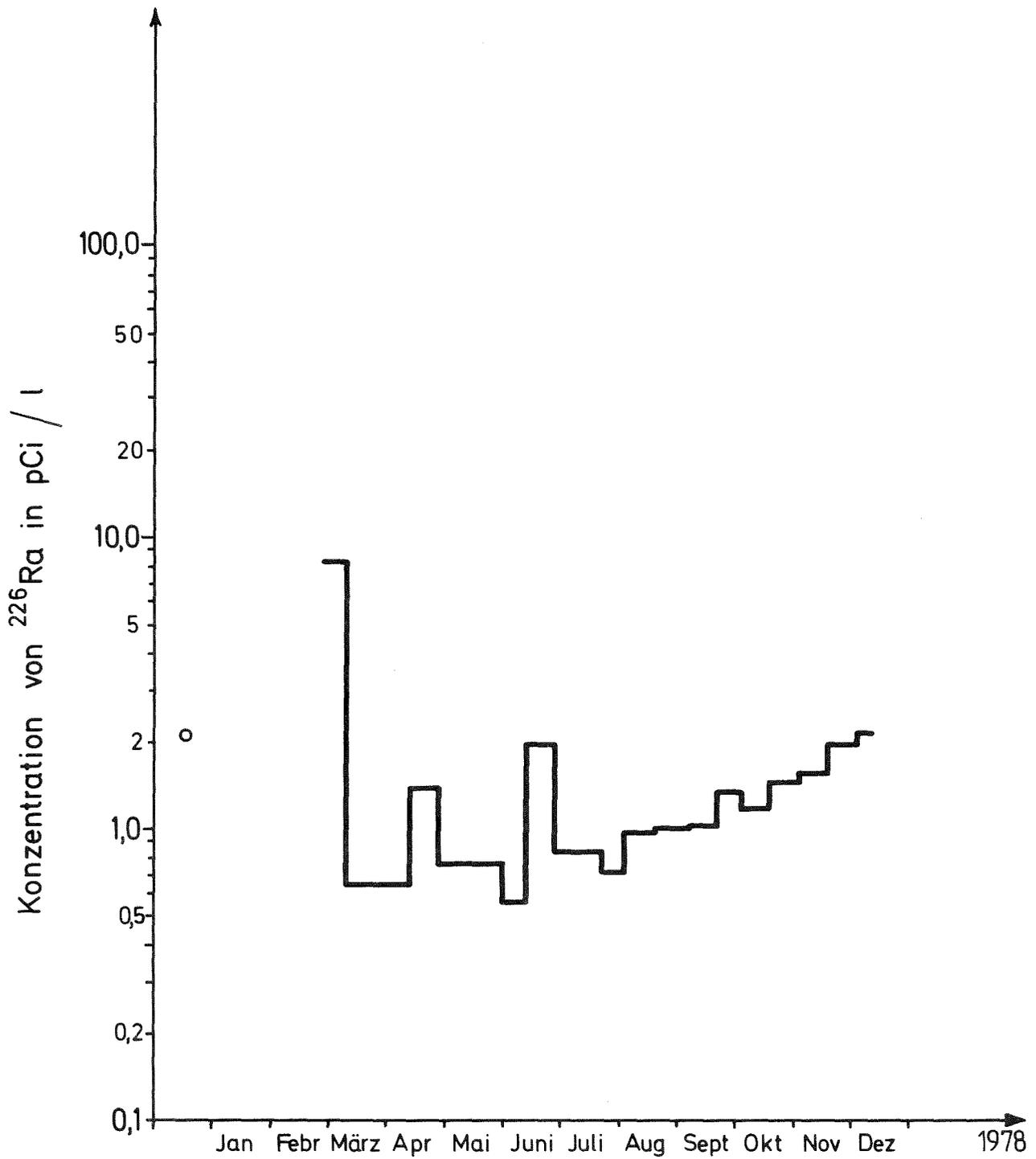


Abb. 5: ^{226}Ra -Konzentrationen im Wasser der Menzenschwander Alb 100m nach dem Zusammenfluß von Feldberger Alb und Krunkelbach. o-Einzelmeßwert.

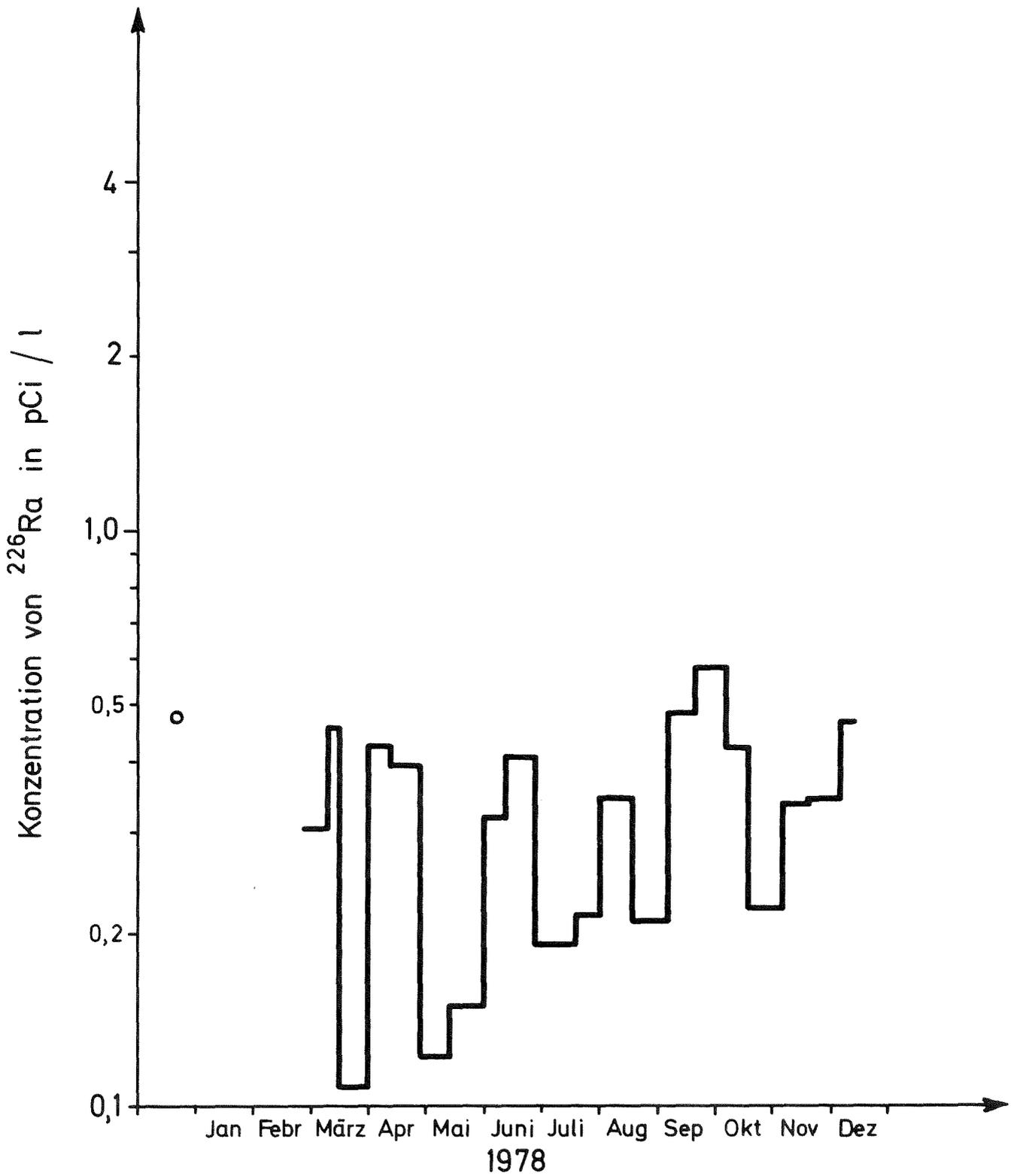


Abb. 6 : ^{226}Ra -Konzentrationen im Trinkwasser von Menzenschwand. o - Einzelmeßwert .

aufgestellt. Aus dem aus dem dritten Absetzbecken in den Krunkelbach eingeleiteten Grubenwasser wurden, ebenfalls mit einem automatischen Probenahmegerät, Wasserproben entnommen.

Die Probenahme erfolgt dabei in 90 einzelnen Fraktionen innerhalb von 14 Tagen in einem 10 l-Polyäthylenbehälter. Die einzelnen Fraktionen betragen 110 ml. Im Behälter befinden sich bereits vor Beginn der Probenahme 100 ml HNO_3 conc., um Absorptionsverluste an den Gefäßwänden zu vermeiden. Auf eine Filtration des Wassers vor der Analyse wurde verzichtet, da bei Inkorporation nicht ausgeschlossen werden kann, daß auch das in den Schwebstoffen enthaltene Ra aus dem Darm aufgenommen wird. Bei sehr tiefen Außentemperaturen sind die von uns verwendeten Probenahmegeräte störanfällig, und es wurden daher in der Zeit, in der die Umgebungstemperatur unter 0°C lag, vom Personal der Uranuntersuchungsgrube täglich an den angegebenen Probenahmestellen etwa 700 ml Wasser genommen und zu einer Mischprobe vereinigt. Die Trinkwasserversorgung von Menzenschwand erfolgt über gesonderte Brunnen, und um den Radiumgehalt in diesem von den Grubenwässern der Uranuntersuchungsgrube nicht berührten Trinkwasser messen zu können, wurden im Haushalt von Bauer A täglich 700 ml Trinkwasser entnommen und zu einer Mischprobe vereinigt.

Im allgemeinen wurden an den angegebenen sechs Stellen je ca. 10 l Wasser in 14 Tagen gesammelt. Die 10 l Wasser wurden mit einem sehr leistungsfähigen Umlaufverdampfer auf 200 ml konzentriert und diese 200 ml wie in 2.1 angegeben auf ^{226}Ra analysiert.

Die Ergebnisse der ^{226}Ra -Konzentrationen, welche 1978 an den sechs angegebenen Stellen gemessen wurden, sind in den Abbn. 1 bis 6 wiedergegeben. Die Minimal- und Maximalwerte und die Mittelwerte und deren Fehler werden in Tab. 2 angegeben.

Um die Jahresabgabe von ^{226}Ra aus der Uranuntersuchungsgrube berechnen zu können, war es notwendig, den Abwasserdurchsatz vom dritten Absetzbecken in den Krunkelbach zu messen. Dieses Abwasser wird über zwei Kunststoffrohre in den Krunkelbach eingeleitet. Die Messung erfolgte dadurch, daß an jedes der Rohre ein Schlauch angesetzt wurde und mit diesem wurde ein 200 l-

Faß gefüllt. Die Füllzeit wurde mit der Stoppuhr gemessen. Daraus wurde der Durchsatz in l/s berechnet. Die Durchsätze beider Rohre wurden addiert und die Ergebnisse der durchgeführten Messungen wurden in Tab. 3 wiedergegeben. Von den gemessenen 45 l/s stammen etwa 1/3 bis 1/2 aus der Grube; der Rest ist Oberflächenwasser aus der Umgebung der Absetzbecken. Mit dem mittleren Abwasserdurchsatz und der mittleren ^{226}Ra -Konzentration im Abwasser berechnet man eine Jahresemission von 32 mCi ^{226}Ra .

| Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l | | |
|---|---|---------|------------|
| | Minimum | Maximum | Mittelwert |
| Krunkelbach, 150 m vor Einleitung der Grubenwässer | 0,07 | 4,4 | 0,5±0,3 |
| Abwasser der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach | 4,1 | 128 | 23±6 |
| Krunkelbach, 150 m nach Einleitung des Abwassers | 0,39 | 23,1 | 4±1 |
| Krunkelbach, 100 m vor Zusammenfluß mit der Feldberger Alb | 0,8 | 8,2 | 2,1±0,6 |
| Menzenschwander Alb, 100 m nach Einmündung der Feldberger Alb | 0,59 | 8,3 | 1,1±0,1 |
| Trinkwasserversorgung Menzenschwand | 0,11 | 0,57 | 0,31±0,03 |

Tab. 2: Minimale, maximale und mittlere Konzentrationen von ^{226}Ra im Krunkelbach, im Abwasser der Uranuntersuchungsgrube, in der Menzenschwander Alb und im Trinkwasser von Menzenschwand

Um die Verdünnung des Abwassers im Krunkelbach und in der Menzenschwander Alb berechnen zu können, wurden im Krunkelbach und in der Feldberger Alb die Bachwasserdurchsätze gemessen. Die Messung erfolgte an Stellen mit flachem Untergrund; es wurden sechs Flußgeschwindigkeiten über die Breite mit der Stoppuhr gemessen. Insgesamt wurden je zehn Tiefenmessungen und zwei Breitenmessungen im Abstand von 3 m durchgeführt. Aus den so erhaltenen Mittelwerten wurde der Durchsatz in l/s berechnet. An einem Tag mit

mittlerem Wasserstand im Krunkelbach wurden 428 l/s bestimmt. An einem anderen Tag mit relativ niedrigem Wasserstand wurden im Krunkelbach 181 l/s und in der Feldberger Alb 241 l/s bestimmt. Aus den letzten beiden Werten konnte bestimmt werden, daß das Wasser des Krunkelbaches 0,43 Anteile des Wassers der Menzenschwander Alb ausmacht. Zusätzlich gilt, daß nach starken Regenfällen der Wasserdurchsatz kurzzeitig wesentlich höher ist als der unter Normalbedingungen gemessene. Im Zeitraum Dezember ist der Wasserdurchsatz des Krunkelbaches extrem niedrig.

| Messung 1978 am | Ausstoß in l/s |
|--------------------|-------------------|
| 16.08. | 45,0 |
| 05.09. | 35,0 |
| 20.09. | 37,5 |
| 03.10. | 48,5 |
| 16.10. | 48,8 |
| 04.11. | 45,0 |
| 16.11. | 55,2 |
| 05.12. | 48,5 |
| Mittelwert | 45 ± 2 |

Tab. 3: Ausstoß von Grubenwasser aus dem dritten Absetzbecken in den Krunkelbach

Da ein wesentlicher Anteil der ^{226}Ra -Abgabe der Untersuchungsgrube durch die Schwebstoffe im Abwasser bedingt ist, wurde die spezifische Aktivität der Sedimente an verschiedenen Stellen zwischen Untersuchungsgrube und Krunkelbach gemessen. Die verschiedenen Sedimentproben wurden getrocknet und ihre Gewichte lagen dann zwischen 0,2 und 0,8 kg Trockensubstanz. Ohne weitere Veränderung wurden die Proben in 200 ml Polyäthylendosen abgefüllt; diese Dosen wurden verschlossen und mit Alufolie dicht umwickelt. Nach etwa

drei Wochen Lagerzeit wurden die Proben am Ge(Li)-Detektor gemessen. Die Alufolie dient der Rückhaltung von spurenweise durch Polyäthylen freigesetzten Radon und die 3 Wochen Wartezeit sind notwendig, um den Folgeprodukten des ^{226}Ra Zeit zum Aufbau zu geben. Die damit erreichbare Nachweisgrenze betrug etwa $0,2 \text{ pCi } ^{226}\text{Ra/g}$ Trockensubstanz.

Im Pumpensumpf, der innerhalb der Untersuchungsgrube liegt, wurde in Sedimenten eine ^{226}Ra -Konzentration von 462 pCi/g gemessen. In den Ablagerungen zwischen der Uranuntersuchungsgrube und dem ersten Absetzbecken wurden 333 pCi/g gemessen. In den folgenden drei Absetzbecken wurden ab Juni 14-täglich Proben entnommen. Zwischen März und Juni wurden aber bereits einige Proben vom dritten Absetzbecken entnommen. Die Ergebnisse sind in Tab. 4 wiedergegeben. Die Aktivität der Sedimente sinkt im Mittel von 381 pCi/g im ersten Becken auf 293 pCi/g im dritten Becken. Um die aus dem dritten Absetzbecken im Mittel abgegebene ^{226}Ra -Aktivität durch aufgewirbelte Sedimente zu erklären, müßte das Abwasser im Mittel 80 mg Schwebstoffe/l enthalten.

Um zu überprüfen, ob ^{226}Ra -kontaminierte Sedimente eine Kontamination im Krunkelbach und in der Menzenschwander Alb hervorrufen, wurden Sedimentproben im Bereich von etwa 800 m vor der Untersuchungsgrube bis zur Einmündung der Menzenschwander Alb in die Bernauer Alb genommen. Die Proben wurden getrocknet, gemahlen und in 200 ml -Polyäthylendosen gefüllt. Diese Dosen wurden mit Alufolie umgeben und nach 2 bis 3 Wochen Lagerzeit wurde am Ge(Li)-Detektor γ -spektrometriert. Die Ergebnisse der ^{226}Ra -Bestimmungen sind in Tab. 5 wiedergegeben; die Position der Probenahme ist aus Abb. 7 zu entnehmen.

| Probenahme | ²²⁶ Ra-Konzentration in den Sedimenten der Absetzbecken in pCi/g Trockensubstanz | | |
|----------------|---|----------|----------|
| | Becken 1 | Becken 2 | Becken 3 |
| 1977: Dezember | | | 121 |
| 1978: 30.03. | | | 216 |
| 12.05. | | | 368 |
| 17.06. | | | 155 |
| 28.06. | 443 | 272 | 243 |
| 19.07. | 455 | 287 | 284 |
| 03.08. | 375 | 421 | 311 |
| 15.08. | 424 | 369 | 365 |
| 06.09. | 346 | 131 | 279 |
| 20.09. | 335 | 338 | 226 |
| 04.10. | 409 | 411 | 346 |
| 19.10. | 409 | 508 | 547 |
| 03.11. | 350 | 230 | 290 |
| 18.11. | 364 | 331 | 313 |
| 05.12. | 406 | 451 | 416 |
| 12.12. | 284 | 440 | 200 |
| Mittelwerte | 381 | 349 | 293 |

Tab. 4: ²²⁶Ra-Konzentrationen in den Sedimenten der Absetzbecken 1 - 3. Einleitung des Abwassers aus dem dritten Absetzbecken in den Krunkelbach

| Probe Nr. | Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/g Trockensubstanz |
|------------|--|--|
| 1 | vor der Untersuchungsgrube 800 m | 1,5 |
| 2 | 650 m | 1,2 |
| 3 | 500 m | 1,3 |
| 4 | 350 m | 1,3 |
| 5 | 200 m | 3,9 |
| 6 | direkt vor der Untersuchungsgrube | 7,7 |
| Mittelwert | | $2,8 \pm 1,0$ |
| 7 | direkt nach der Untersuchungsgrube | 9,5 |
| 8 | 250 m | 2,1 |
| 9 | 400 m | 3,6 |
| 10 | 550 m | 10,6 |
| 11 | 700 m | 1,7 |
| 12 | 850 m | 1,8 |
| 13 | 1 000 m | 3,6 |
| 14 | 50 m vor Zusammenfluß Feldberger Alb und Krunkelbach | 1,8 |
| 15 | 100 m nach Zusammenfluß Feldberger Alb und Krunkelbach | 2,9 |
| 16 | 250 m nach Zusammenfluß Feldberger Alb und Krunkelbach | 1,3 |
| 17 | Menzenschwander Alb vor Einmündung Bernauer Alb | 1,5 |
| Mittelwert | | $3,7 \pm 1,0$ |

Tab. 5: ^{226}Ra -Konzentrationen in den Sedimenten des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb

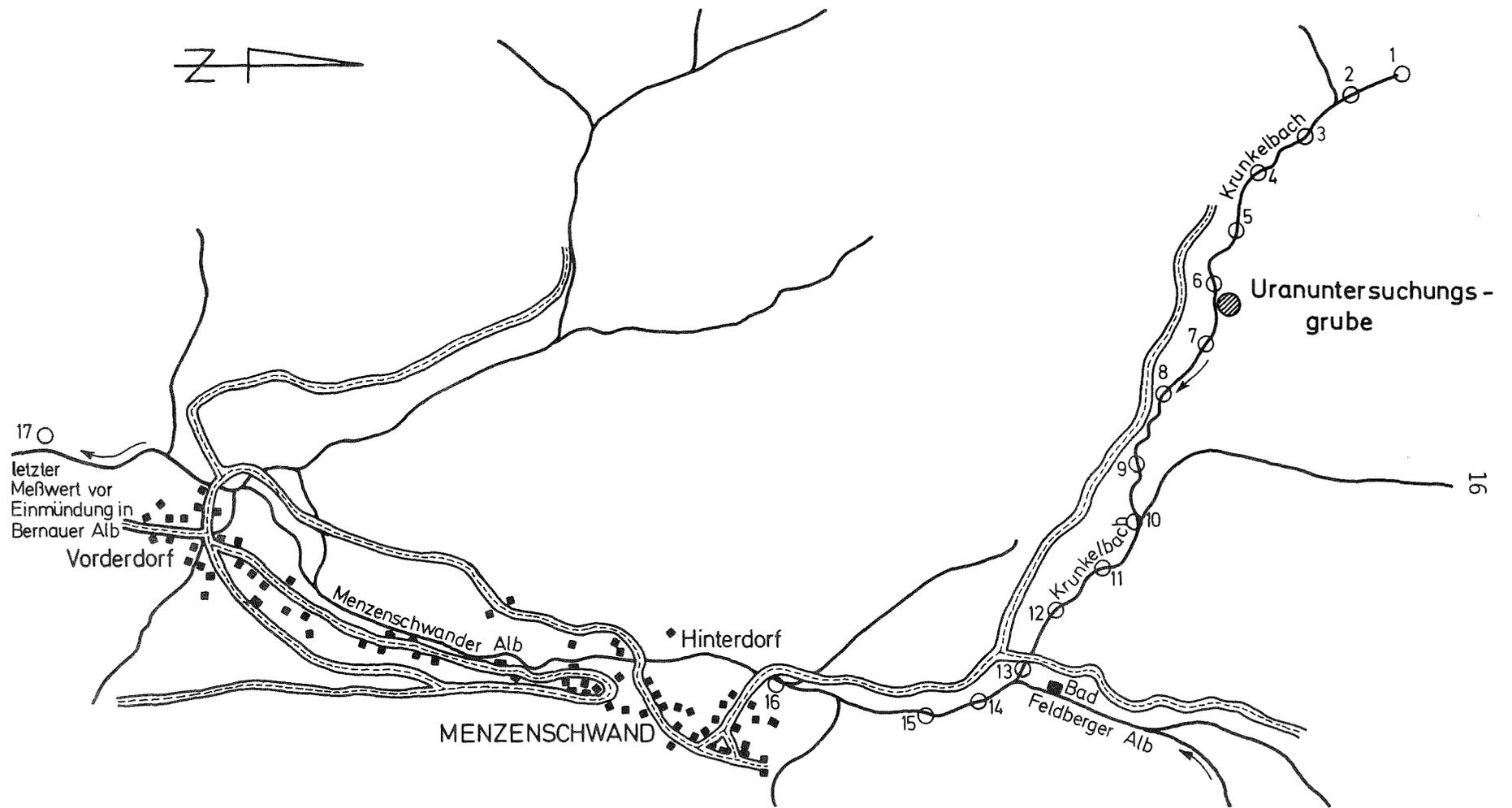


Abb. 7 : SEDIMENTPROBEN AUS DEM KRUNKELBACH UND DER MENZENSCHWANDER ALB.

2.3 Die Kontamination der Forellen im Krunkelbach und in der Menzenschwander Alb

Der Radiumgehalt des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb hat die Kontamination der in diesen Bächen lebenden Forellen zur Folge. Da für die Beurteilung der Dosisbelastung der Bevölkerung das Ausmaß der Kontamination der Forellen bekannt sein müßte, wurden Fische aus dem Krunkelbach, der Menzenschwander Alb und zum Vergleich von einer Fischzucht aus Grafenhausen untersucht. Die ersten zwei Proben wurden als Ganzes verarbeitet, während die folgenden sieben Proben in Eingeweide, Gräten, Kopf und Flossen sowie Fleisch und Haut zerlegt wurden. Der Probenahmeort und das Datum der Probenahme sowie die Gewichte der einzelnen Teile der Proben werden in Tab. 6 wiedergegeben.

| Probe Nr. | Probenahme | Gewicht der Proben in g | | | |
|-----------|-----------------------------------|-------------------------|-----------------------|---------------|----------------|
| | | Ein-geweide | Kopf, Gräten, Flossen | Haut, Fleisch | Gesamt-gewicht |
| 1 F | Krunkelbach 28.04.1978 | | | | 2 500 |
| 2 F | Menzenschwander Alb 30.04.1978 | | | | 2 500 |
| 3 F | Krunkelbach 17.06.1978 | 210 | 605 | 2 505 | 3 320 |
| 4 F | Grafenhausen-Seehof 20.07.1978 | 230 | 537 | 922 | 1 689 |
| 5 F | Krunkelbach 03.08.1978 | 60 | 280 | 320 | 660 |
| 6 F | Menzenschwander Alb 06.09.1978 | 140 | 622 | 970 | 1 732 |
| 7 F | Krunkelbach 21.09.1978 | 40 | 110 | 170 | 320 |
| 8 F | Krunkelbach 06.10.1978 | 70 | 175 | 270 | 515 |
| 9 F | Menzenschwander Alb 20.10.1978 | 120 | 509 | 858 | 1 487 |

Tab. 6: Forellen aus der Umgebung von Menzenschwand

Das Probenmaterial wurde bei 550 °C verascht und die kohlenstofffreie Asche in 20 ml-Glasgefäße gebracht. Diese waren mit Schliffdeckeln verschlossen. Nach einer Lagerzeit von 2 bis 3 Wochen in diesen Gefäßen wurden sie am Ge(Li)-Detektor γ -spektrometriert. Lag der ^{226}Ra -Gehalt der Proben unter der Nachweisgrenze von 0,6 pCi/g, wurden die Proben einer chemischen Analyse unterzogen, wie in 2.1 beschrieben worden ist. Die Ergebnisse der Messungen werden in Tab. 7 wiedergegeben.

| Probe Nr. | ^{226}Ra -Konzentration in fCi/g Frischgewicht | | | |
|------------|---|-----------------------|---------------|---------------|
| | Eingeweide | Gräten, Kopf, Flossen | Fleisch, Haut | Gesamtgewicht |
| 1 F | | | | 22 |
| 2 F | | | | $\leq 0,20$ |
| 3 F | 32 | 17 | 2,7 | 7,1 |
| 4 F* | 7,0 | 35 | 19 | 22 |
| 5 F | 660 | 116 | 211 | 211 |
| 6 F | 43 | 16 | 14 | 17 |
| 7 F | 131 | 3,9 | 37 | 38 |
| 8 F | 400 | 49 | 27 | 85 |
| 9 F | 138 | 25 | 1,4 | 20 |
| Mittelwert | 234 | 38 | 49 | 50 |

*4 F als Vergleichsprobe aus Grafenhausen-Seehof wurde bei der Mittelwertbildung nicht berücksichtigt

Tab. 7: ^{226}Ra -Konzentrationen in Forellen aus der Umgebung von Menzenschwand

2.4 Die Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung durch ^{226}Ra -Emissionen der Uranuntersuchungsgrube Krunkelebach

0,48 fCi $^{226}\text{Ra}/\text{m}^3$ Luft wurden in Hauptwindrichtung in der Nähe des Abweterschachts der Uranuntersuchungsgrube Krunkelebach gemessen. Die Meßstelle befindet sich im Betriebsgelände und, wenn man voraussetzt, daß die gemessene Radiumaktivität der Luft durch den Untersuchungsbetrieb verursacht worden ist, ist eine weitere nennenswerte Verdünnung bis zur Betriebsgrenze zu erwarten. Die Inhalation der oben angegebenen Luftkonzentration von ^{226}Ra würde mit einer Atemrate von $20 \text{ m}^3/\text{d}$ und der pessimistischen Annahme einer quantitativen Deposition in der Lunge zu einer Ablagerung von 3,5 pCi ^{226}Ra pro Jahr führen. Dieser Wert entspricht 0,82 % der nach der Strahlenschutzverordnung maximal zulässigen jährlichen ^{226}Ra -Ablagerung in der Lunge. Unabhängig davon, daß dieser Wert vernachlässigbar klein ist, gibt es berechtigte Zweifel daran, daß das gemessene Radium aus der Untersuchungsgrube emittiert wurde. Der Radiumgehalt der Luft resultiert im allgemeinen aus dem Radiumgehalt der aufgewirbelten Erde, und nimmt man als mittleren Radiumgehalt für das Menzenschwander Tal 2,9 pCi/g Erde an, erhält man zusammen mit der oben angegebenen mittleren Luftkonzentration einen Luftstaubgehalt von $155 \mu\text{g}$ Staub/ m^3 Luft. Dieser Wert ist für eine Industrieanlage mit Kraftfahrzeugverkehr als durchaus normal anzusehen. In jedem Fall ist der ^{226}Ra -Gehalt der Luft für die Umgebungsbelastung bedeutungslos.

Der Krunkelebach enthält im Jahresmittel 0,5 pCi $^{226}\text{Ra}/\text{l}$ Wasser. Die Einleitung des Abwassers der Uranuntersuchungsgrube führt zu einer Erhöhung der Wasserkontamination um den Faktor 8, nämlich auf etwa 4 pCi/l. Bevor der Krunkelebach mit der Feldberger Alb zusammenfließt, hat die Kontamination entsprechend der Wasserzunahme des Baches um den Faktor 2 abgenommen. Direkt nach dem Zusammenfluß mit der Feldberger Alb liegt der Radiumgehalt bei 1,1 pCi $^{226}\text{Ra}/\text{l}$. Dieser Wert entspricht sehr gut der Tatsache, daß an dieser Stelle das Wasser des Krunkelebaches nur 43 % des Gesamtwassers der Menzenschwander Alb ausmacht.

Die Trinkwasserversorgung der Bevölkerung von Menzenschwand erfolgt durch verschiedene Quellen der Umgebung und nicht durch den Krunkelbach oder die Feldberger Alb. Die Messung des ^{226}Ra -Gehaltes im Trinkwasser von Menzenschwand ergab im Jahresmittel 0,31 pCi/l. Der betriebsbedingte Verlauf der Radiumemission aus der Uranuntersuchungsgrube mit einem Minimum der Emission im April, einem Maximum im Juni/Juli und einem abermaligen Maximum im Dezember ist in der ^{226}Ra -Konzentration des Trinkwassers nicht erkennbar. Die Radiumkonzentration des Menzenschwander Trinkwassers ist daher natürlicher Herkunft. Eine Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung durch die Uranuntersuchungsgrube über das Trinkwasser existiert nicht.

Im Bereich der Menzenschwander Alb sind Überschwemmungen des Kulturlandes durch diese nicht auszuschließen. Das Kulturland besteht ausschließlich aus Weiden, die zur Haltung von Rindern verwendet werden. Eine Kontamination des Weidegrases durch Überschwemmungen erfolgt auf zwei grundsätzlich verschiedenen Wegen. Erstens, Weidegras kann direkt durch Wasser der Menzenschwander Alb kontaminiert werden und zweitens, die Überschwemmungswässer kontaminieren die Erde im Bereich der Graswurzeln und das dort angereicherte Radium wird in das Gras aufgenommen. Wie aus 3.2 hervorgeht, liegt der mittlere ^{226}Ra -Gehalt des Frischfutters von diesen Weiden bei 60 pCi/kg. Eine Kontamination des Grases durch versickerndes und dann eingetrocknetes Überschwemmungswasser mit einer Radiumkontamination im Bereich von maximal 1,1 pCi/l ist daher ohne jede Bedeutung für die Gesamtkontamination. Die Kontamination von Weidegras über die Wurzel setzt voraus, daß die oberste Erdschicht in der Lage ist, Radium aus Überschwemmungswässern anzureichern. Wäre dies der Fall bei der Erde im Menzenschwander Tal, müßte der natürliche Radiumgehalt von etwa 0,5 pCi/l im Krunkelbach und von 0,2 pCi/l in der Feldberger Alb (siehe 3.3) zu einer entsprechenden Anreicherung von Radium in der oberen Erdschicht bzw. zu einer Erhöhung des Radiumgehaltes der Erde in der Nähe der Menzenschwander Alb geführt haben. Der mittlere ^{226}Ra -Gehalt in den obersten 5 cm der Erde von Proben direkt an der Menzenschwander Alb betrug 2,3 pCi/g Trockensubstanz. Der Gehalt der anderen im Menzenschwander Tal genommenen Erdproben der obersten 5 cm lag bei 3,0 pCi/g. Aus diesen Daten ist zu schließen, daß sicher keine Anreicherung, eher noch eine Ausschwemmung des natürlichen vorhandenen ^{226}Ra durch die Überschwemmungen erfolgt ist. Daher erfolgt keine Konta-

mination der Weiden durch das Radium aus der Menzenschwander Alb und die im Menzenschwander Tal gemessene ^{226}Ra -Konzentration der Milch ist nicht verursacht durch die Emissionen aus der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach.

Der erhöhte ^{226}Ra -Gehalt im Wasser des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb führt zu einer Erhöhung des ^{226}Ra -Gehaltes der Forellen in den genannten Wässern. Insgesamt werden in beiden Gewässern pro Jahr etwa 800 Forellen gefangen; dies entspricht ca. 100 kg Forellen. Von diesen Forellen werden etwa 10 % im Krunkelbach gefangen. Die kritische Bevölkerungsgruppe besteht in Menzenschwand aus dem Teil der Bevölkerung und der Touristen, der diese Forellen verzehrt. Ein großer Teil der Touristen wird durch Forellen aus Zuchtanstalten der Umgebung versorgt. Nur an etwa 50 Touristen werden Forellen verkauft. Von der restlichen Bevölkerung dürften weitere 50 Zugang zu den Forellen des Krunkelbaches und der Menzenschwander Alb haben. Da die kritische Bevölkerungsgruppe aus etwa 100 Personen besteht und die jährlich produzierte Fischmenge ca. 100 kg beträgt, darf im Sinne der Verwendung realistischer Lebensgewohnheiten und des Verzichts auf extreme Konsumgewohnheiten von Einzelpersonen [3] angenommen werden, daß 1 kg Fisch pro Mitglied der kritischen Bevölkerungsgruppe und Jahr anzusetzen ist. Ergänzend soll festgestellt werden, daß durch Umfrage in einem Fall ein Jahreskonsum von 10 kg und in sieben Fällen ein Jahreskonsum zwischen 2 bis 5 kg in Erfahrung gebracht werden konnte. Der mittlere ^{226}Ra -Gehalt im Fischfleisch des Krunkelbaches lag bei 60 fCi/g Frischgewicht. Der mittlere ^{226}Ra -Gehalt im Fischfleisch aus der Menzenschwander Alb lag bei 5 fCi/g Frischgewicht. Unter Berücksichtigung der Fangmengen erhält man für das Menzenschwander Tal einen Mittelwert von 10,5 fCi/g Fischfleisch.

Mit dem oben angegebenen mittleren Jahreskonsum von 1 kg errechnet man eine Jahresinkorporation von 10,5 pCi ^{226}Ra für die Fischproduktion des Menzenschwander Tales und von 60 pCi ^{226}Ra für den Fall, daß ausschließlich Fisch des Krunkelbaches verzehrt wird. Die Strahlenschutzverordnung gibt für ^{226}Ra als Grenzwert der Jahresaktivitätszufuhr über Ingestion 580 pCi an. Die Jahresinkorporation von 10,5 pCi bzw. von 60 pCi ^{226}Ra , je nach dem, ob man die Gesamtfischproduktion des Menzenschwander Tales oder nur die Produktion des Krunkelbaches ins Auge faßt, stellen dann 1,8 % bzw. 10,3 % der maximal nach [4] zulässigen Jahresaktivitätszufuhr dar. Die Jahresknochendosis für 50 a Expositionszeit beträgt 3,2 und 18,5 mrem.

2.5 Die maximal zulässigen Emissionen von ^{226}Ra und die Kontrolle der Emissionen

Fisch ist der relevante Belastungspfad und 1 kg Fischeaufnahme/Jahr eine realistische Annahme für die kritische Bevölkerungsgruppe der Forellenesser in Menzenschwand; so liegt die Dosisbelastung, die an der ungünstigsten Einwirkungsstelle, nämlich des Bachsystems Krunkelbach und Menzenschwander Alb, verursacht wird, um den Faktor 37 unter der nach der Strahlenschutzverordnung [4] maximal erlaubten Dosisbelastung.

Die Kontamination der von uns untersuchten Forellen erfolgte während eines Jahres des Schürfbetriebes in der Uranuntersuchungsgrube Krunkelbach. Ein weiterer Anstieg der Kontamination der Forellen in den folgenden Jahren ist nicht zu befürchten, da grundsätzlich im Frühjahr Forellen aus Zuchtanstalten in den Bächen eingesetzt und im Laufe des Jahres abgefischt werden. Verbleibende Fische wandern im Winter in die tiefere Bernauer Alb ab. Daher erfolgt die Kontamination der Fische grundsätzlich nur über ein Jahr. Unabhängig davon ist zu erwarten, daß die Gleichgewichtseinstellung zwischen Radium im Wasser und Radium im Fischfleisch sehr rasch vor sich geht; ein längerer Kontakt der Fische mit dem kontaminierten Wasser dürfte vor allem zu einer Erhöhung des Radiumgehaltes der Gräten führen.

Obwohl ^{226}Ra das gefährlichste Radionuklid der Uranreihen ist, tragen U_{nat} , $^{230+234}\text{Th}$, ^{210}Pb , ^{210}Bi und ^{210}Po zur Dosisbelastung über den Fischpfad bei. Mit den in [3] angegebenen Dosisfaktoren in rem/Ci und den in [5] angegebenen Wasser/Fisch-Transferfaktoren kann man errechnen, daß, um die gleiche Dosis hervorzurufen, die durch ^{226}Ra hervorgerufen wird, die weniger radiotoxischen Radionuklide die folgenden Vielfachen der Radiumkonzentration im Wasser haben müssen:

| | |
|-------------------------|--------|
| U_{nat} | 2 400 |
| $^{230+234}\text{Th}$ | 2 300 |
| ^{210}Pb | 5 |
| ^{210}Bi | 23 000 |
| ^{210}Po | 15 |

Die Konzentrationen von U_{nat} , Th und Bi werden mit Sicherheit niemals erreicht. In einem im Wüstengraben entnommenen Quellwasser wurden die Verhältnisse $^{226}\text{Ra}/^{210}\text{Pb}$ und $^{226}\text{Ra}/^{210}\text{Po}$ bestimmt. Die Konzentration von ^{210}Pb blieb um den Faktor 12 und die Konzentration von ^{210}Po um den Faktor 260 unter der Konzentration, die notwendig ist, um eine gleiche Dosis hervorzurufen wie durch gelöstes ^{226}Ra . Daher ist durch die Beteiligung anderer im Wasser gelöster Radionuklide der Uranfamilien keine wesentliche Veränderung der Dosisbelastung der Umgebungsbevölkerung zu erwarten.

Bei mehrjährigem Betrieb sollte eine Überwachung des Abwassers quasikontinuierlich und unter Erfassung der ^{226}Ra -Konzentration und des Wasserausstoßes vorgesehen werden. Ebenso sollte jährlich eine Fisch- und Sedimentprobe aus dem Krunkeibach zur Analyse auf ^{226}Ra gelangen.

Sollte sich dabei ergeben, daß durch einen Langzeitbetrieb ein Anstieg des ^{226}Ra -Gehaltes im Krunkeibach erfolgt, können zur Reduzierung der Emission folgende Maßnahmen ergriffen werden: Wegen der hohen Kontamination der Sedimente in den Absetzbecken und da diese Sedimente mit großer Wahrscheinlichkeit den wesentlichen Anteil der Kontamination von Krunkeibach und Menzenschwander Alb ausmachen, sollten diese in regelmäßigen Abständen beseitigt werden. In den ersten drei Monaten von 1978 wurde in der Untersuchungsgrube gelagertes Uranerz abtransportiert. In der Zeit von März bis Juli gab es eine Abbauphase und entsprechende Einlagerung des gebrochenen Erzes. In den Monaten August bis Dezember erfolgte der Abtransport dieses gelagerten Erzes. Aus den Abb. 2, 3 und 4 ersieht man, daß mit der Menge des in der Untersuchungsgrube gelagerten Erzes die Kontaktzeit des Grubenwassers mit dem Erz erhöht wird und damit die Kontamination dieses Grubenwassers. Im Sinne der Reduzierung der Emission von ^{226}Ra wäre also ein zügiger Abtransport des Erzes aus der Uranerzuntersuchungsgrube und die Vermeidung unnötiger Lagerungen in der Untersuchungsgrube zu wünschen.

3. DIE NATÜRLICHE ^{226}Ra -KONZENTRATION DER UMGEBUNG VON MENZENSCHWAND

Die natürliche ^{226}Ra -Konzentration wurde in der Umgebung von Menzenschwand bestimmt, um einerseits einen Vergleich zu den durch die Uranuntersuchungsgrube verursachten Kontaminationen zu erhalten und andererseits, um die Dosisbelastung der Bevölkerung von Menzenschwand und Umgebung durch das natürlich vorkommende ^{226}Ra berechnen zu können. Die ^{226}Ra -Konzentrationen wurden bestimmt in Erd-, Gesteins- und Sedimentproben, in Gras- und Wildpflanzenproben, in einer großen Zahl von Oberflächenwässern und in Lebensmittelproben.

3.1 Die ^{226}Ra -Konzentration der Erde im Menzenschwander Tal

Die Kenntnis der ^{226}Ra -Konzentration der Erde ist notwendig, da diese ausschlaggebend ist für die Kontamination des Weidegrases und damit der Milch; der ^{226}Ra -Gehalt der Erde steht darüber hinaus in engem Zusammenhang mit dem ^{226}Ra -Gehalt aller lokal produzierten Nahrungsmittel. Die Kenntnis der ^{226}Ra -Konzentration der Erde ermöglicht außerdem die Berechnung der durch diese hervorgerufenen γ -Dosis. Da die Eindringtiefe der Wurzeln verschiedener Nutzpflanzen unterschiedlich ist, war es notwendig, eine Vertikalverteilung von ^{226}Ra im Boden zu messen.

Die Bodenprobenahme erfolgte im Menzenschwander Tal auf fünf Querprofilen, auf denen je 5 bis 7 Proben entnommen wurden. Das Vertikalprofil wurde in Proben bestimmt, die zwischen dem 2. und 3. Querprofil auf der rechten Seite der Menzenschwander Alb genommen wurden. Die Probenahme selbst erfolgte mit einem 20 cm langen und 10 cm \emptyset Stahlzylinder. Alle Proben wurden in zwei Teile geteilt; der eine Teil umfaßt die Erdschicht von 0 bis 5 cm und der andere Teil die von 5 bis 20 cm. Die Proben wurden gewogen, getrocknet, gesiebt, gemahlen und in 200 ml Polyäthylendosen abgefüllt. Die Dosen wurden mit Alufolie umwickelt und nach 2 bis 3 Wochen Lagerzeit am Ge(Li)-Detektor γ -spektrometriert. In wenigen Fällen wurde eine radiochemische Bestimmung durchgeführt.

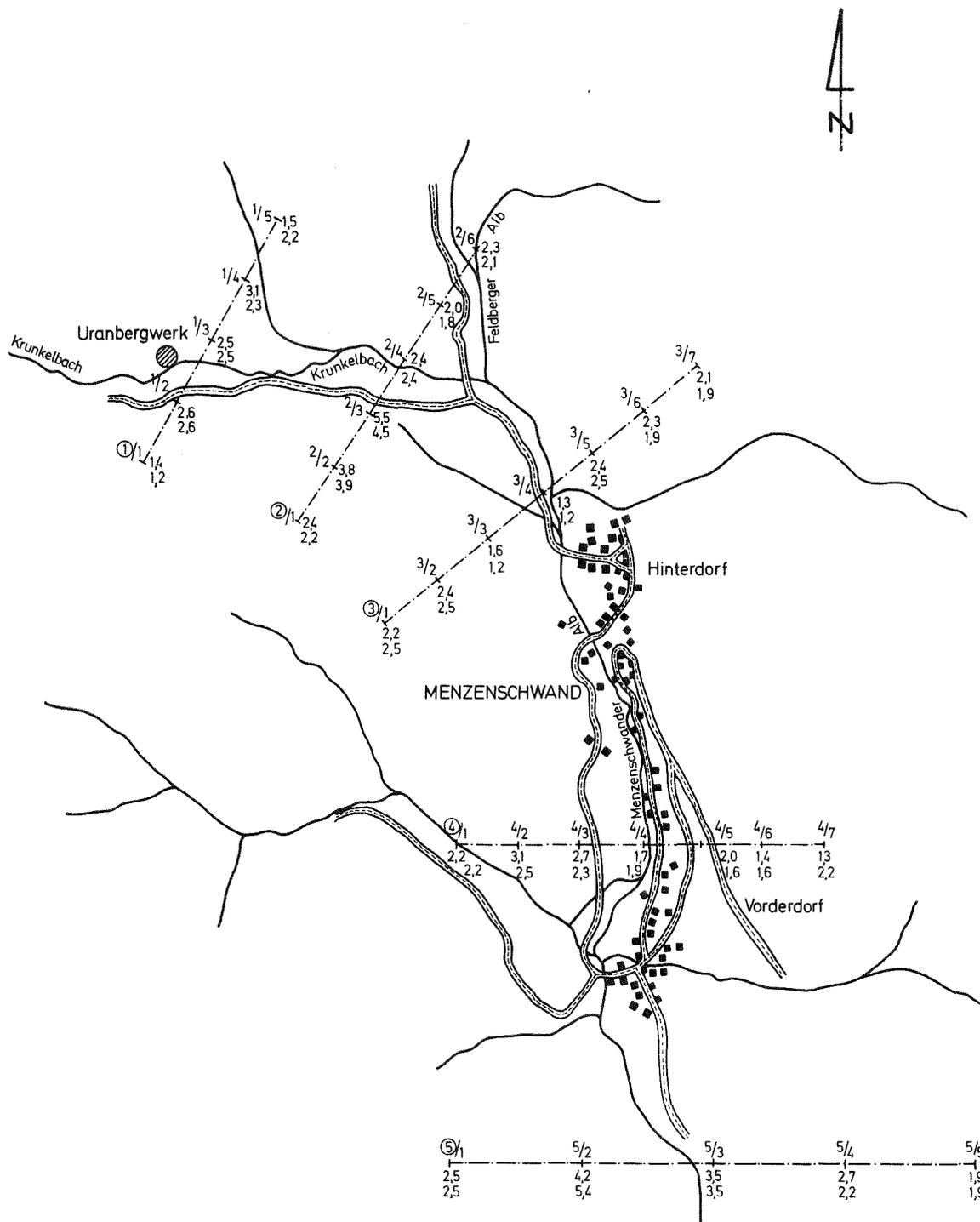


Abb. 8 : BODENPROBEN AUS DEM TAL DER MENZENSCHWANDER ALB UND DES KRUNKELBACHES.
 KONZENTRATION IN pCi ^{226}Ra /g TROCKEN. OBERER WERT: 0-5cm TIEFE. UNTERER WERT: 5-20cm TIEFE

Die Ergebnisse der ^{226}Ra -Bestimmung in Bodenproben aus dem Menzenschwander Tal wird getrennt nach der 0 bis 5 cm- und der 5 bis 20 cm-Schicht in der Abb. 8 wiedergegeben. Die ^{226}Ra -Konzentration liegt für 0 bis 5 cm bei 2,9 pCi/g. Für 5 bis 20 cm wurde ein Mittelwert von 2,4 pCi/g gefunden. Eine getrennte Auswertung nach ufernahen Erdproben und den verbleibenden Erdproben ergab für 0 bis 5 cm 2,3 bzw. 3,0 pCi/g und für 5 bis 20 cm 2,3 bzw. 2,4 pCi/g.

Die Ergebnisse des Vertikalprofils sind in Abb. 9 wiedergegeben. Die ^{226}Ra -Konzentration liegt bei $3,2 \pm 0,3$ pCi/g trocken. Da bei der Bildung von Erde aus Granit die Auswaschung des Urans und auch des Radiums aus den oberen Schichten erfolgt, ist es überraschend, daß der Radiumgehalt über die gesamte untersuchte Tiefe praktisch konstant ist. Eine Erklärung hierfür wäre, daß das Ra^{2+} -Ion sehr schnell transportiert wird, wie es in [6] angegeben wird.

Da die Erde im Menzenschwander Tal durch Verwitterung des lokalen Granits entstanden ist, war es von Interesse, den Radiumgehalt in Granitproben des Menzenschwander Tales zu messen. Die gesammelten Granitproben wurden wie Erdproben aufgearbeitet. Die Ergebnisse werden in Tab. 8 angegeben. Der Mittelwert des ^{226}Ra -Gehaltes liegt bei $3,6 \pm 1,0$ pCi/g und ist daher durchaus vergleichbar mit den im gleichen Raum gemessenen Erdproben.

3.2 Die ^{226}Ra -Kontamination von Gras, Heu und Wildpflanzen aus Menzenschwand

Die Kenntnis des ^{226}Ra -Gehaltes in Heu und Gras ist notwendige Voraussetzung für das Verständnis des Radiumtransfers vom Boden in das Weidegras und vom Gras bzw. Heu in die Milch. Die ^{226}Ra -Gehalte von Wildpflanzen wurden einerseits untersucht, um eine bessere Kenntnis der Radiumaufnahme verschiedener Pflanzen zu erlangen und andererseits, um Pflanzen zu suchen, welche Radium anreichern und daher als Bioindikatoren für Radium verwendet werden können. Gras- und Heuproben wurden von vier

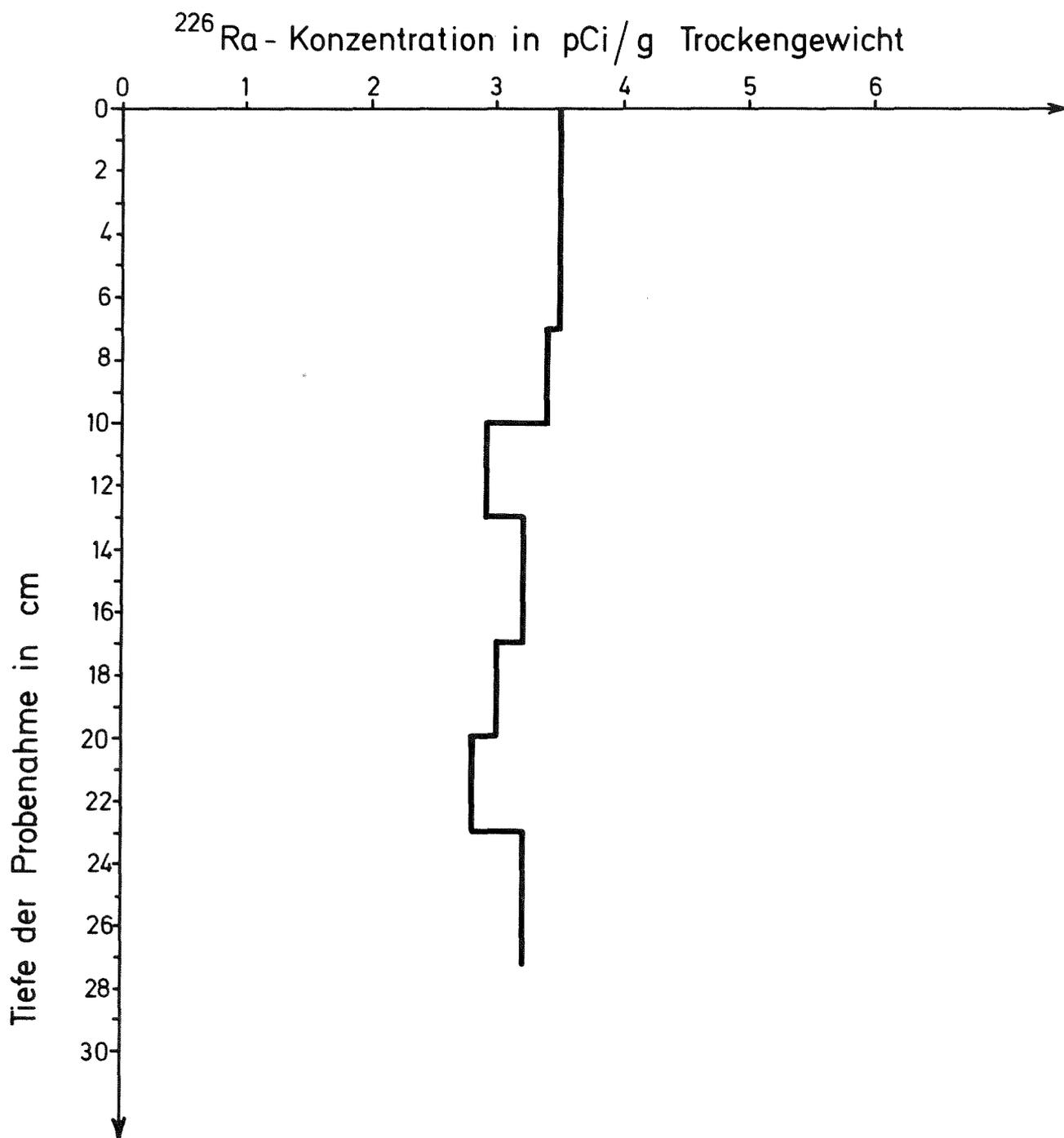


Abb. 9: ^{226}Ra - Konzentrationen in Bodenproben des Vertikalprofils von Menzenschwand zwischen 2. und 3. Querprofil auf der rechten Seite der Menzenschwander Alb entnommen

Bauern aus Menzenschwand untersucht. Bei den gleichen Bauern wurde außerdem der ^{226}Ra -Gehalt der Kuhmilch untersucht. Die Pflanzenproben wurden getrocknet, verascht und in 20 ml-Glasgefäße abgefüllt. Nach einer 2- bis 3-wöchigen Lagerzeit wurden diese Proben am Ge(Li)-Detektor gemessen.

| Probenahme 1978 | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/g Trockensubstanz |
|--|--|
| Ursprung Geschweihbach, Bärhalde 30.06. | $2,7 \pm 0,3$ |
| Bärhalde 30.06. | $2,6 \pm 0,1$ |
| Kammühlbächlein 30.06. | $2,2 \pm 0,2$ |
| Menzenschwander Alb, Wasserfälle 30.06. | $2,0 \pm 0,1$ |
| Oberer Großbach 30.06. | $3,8 \pm 0,2$ |
| Umgebung Uranuntersuchungsgrube 30.06. | $8,4 \pm 0,4$ |
| Mittelwert | $3,6 \pm 1,0$ |

Tab. 8: ^{226}Ra -Konzentrationen im Granit aus der Umgebung von Menzenschwand

Der ^{226}Ra -Gehalt im Trockengewicht und in der Asche von Heu und Gras wurde in elf Proben gemessen und wird in Tab. 9 angegeben. Der mittlere Gehalt liegt bei 0,3 bzw. 5,6 pCi ^{226}Ra /g. Die Herkunft und das Verhältnis von Trocken- zu Aschegewicht der Heu- und Grasproben wird in Tab. 10 angegeben. Da bei Gras im allgemeinen durch das Trocknen eine Reduktion um den Faktor 5 erfolgt, kann als Mittelwert des ^{226}Ra -Gehaltes des frischen Weidegrases 0,06 pCi/g berechnet werden.

| Probe Nr. | ²²⁶ Ra-Konzentration in pCi/g | |
|--------------|--|-----------|
| | trocken | Asche |
| 1 G | 0,1 | 2,8 |
| 2 G | 0,2 | 2,6 |
| 3 G | 0,3 | 5,8 |
| 4 G | 0,1 | 4,6 |
| 5 G | 0,3 | 5,5 |
| 6 G | 0,4 | 8,7 |
| 7 G | 0,5 | 9,2 |
| 8 G | 0,3 | 5,4 |
| 9 G | 0,3 | 5,8 |
| 10 G | 0,4 | 5,4 |
| 11 G | 0,3 | 5,9 |
| Mittelwert | 0,30 ± 0,04 | 5,6 ± 0,6 |

Tab. 9: ²²⁶Ra-Konzentrationen in Heu und Gras der Wiesen der Umgebung von Menzenschwand

Die ²²⁶Ra-Gehalt verschiedener Wildpflanzen werden in Tab. 11 wiedergegeben. In Tab. 12 sind ihre Herkunft und das Naß- und Trockengewicht/g Asche angegeben. Die ²²⁶Ra-Konzentrationen schwanken - bezogen auf das Trockengewicht - zwischen 0,1 und 0,8 pCi/g und - bezogen auf das Aschengewicht - zwischen 6,4 und 15,0 pCi/g. Dabei wurde eine Lupinenprobe nicht berücksichtigt, die aus unbekanntem Gründen einen extrem hohen Radiumgehalt aufwies.

| Probe Nr. | Probenahme | Probengewicht in g trocken/g Asche |
|------------|--------------------------|---------------------------------------|
| 1 G | Bauer A Dezember 1977 | 23,4 |
| 2 G | Bauer A 02.06.1978 | 14,3 |
| 3 G | Bauer A 16.06.1978 | 21,2 |
| 4 G | Bauer A 20.07.1978 | 20,8 |
| 5 G | Bauer B 20.07.1978 | 18,0 |
| 6 G | Bauer A 18.08.1978 | 19,9 |
| 7 G | Bauer A 20.09.1978 | 20,0 |
| 8 G | Bauer A 07.10.1978 | 21,1 |
| 9 G | Bauer A 17.10.1978 | 21,5 |
| 10 G | Bauer C 20.10.1978 | 14,5 |
| 11 G | Bauer D 20.10.1978 | 17,6 |
| Mittelwert | | 19,3 ± 0,9 |

Tab. 10: Heu- und Grasproben von den Wiesen der Umgebung von Menzenschwand

| Probe Nr. | Art der Probe | ²²⁶ Ra-Konzentration in pCi/g | |
|-----------|------------------------------|--|-------|
| | | trocken | Asche |
| 1 P | Huflattich 16.02.1978 | 0,7 | 6,4 |
| 2 P | Brunnenkresse 28.06.1978 | 1,9 | 15,2 |
| 3 P | Lupinen 1 30.06.1978 | 22,2 | 258 |
| 4 P* | Brunnenkresse 20.07.1978 | 4,6 | 9,9 |
| 5 P | Schachtelhalme 04.08.1978 | 1,5 | 11,1 |
| 6 P | Farn 30.09.1978 | 0,7 | 13,0 |
| 7 P | Lupinen 2 05.10.1978 | 0,7 | 11,5 |
| 8 P | Schafgarben 06.10.1978 | 2,3 | 13,7 |

*Die Probe enthielt bei ihrer Entnahme einen geringen Anteil an Erde, welche nicht entfernt wurde.

Tab. 11: ²²⁶Ra-Konzentrationen in Pflanzen aus der Umgebung von Menzenschwand

| Probe Nr. | Probenahme, Probenart | Probengewicht in g/g Asche | |
|-----------|---|----------------------------|----------------|
| | | Naßgewicht | Trockengewicht |
| 1 P | Umgebung Untersuchungsgrube Huflattich | 82,0 | 8,7 |
| 2 P | Wüstengraben, ob. Quelle Blasiwald/Schluchsee, Brunnenkresse | 77,9 | 7,9 |
| 3 P | Umgebung Untersuchungsgrube Lupinen 1 | 81,0 | 11,6 |
| 4 P | Wüstengraben, unt. Quelle Blasiwald/Schluchsee, Brunnenkresse | 31,0 | 2,2 |
| 5 P | Staumauer Schluchsee Schwarzach, Schachtelhalme | 33,2 | 7,5 |
| 6 P | Menzenschwander Kammbühlbächlein Vorderdorf, Farn | 105,1 | 19,7 |
| 7 P | Äule an der Serpentine, Lupinen 2 | 89,7 | 16,0 |
| 8 P | Äule an der Serpentine, Schafgarben | 42,0 | 6,0 |

Tab. 12: Probengewichte der Pflanzenproben aus der Umgebung von Menzenschwand

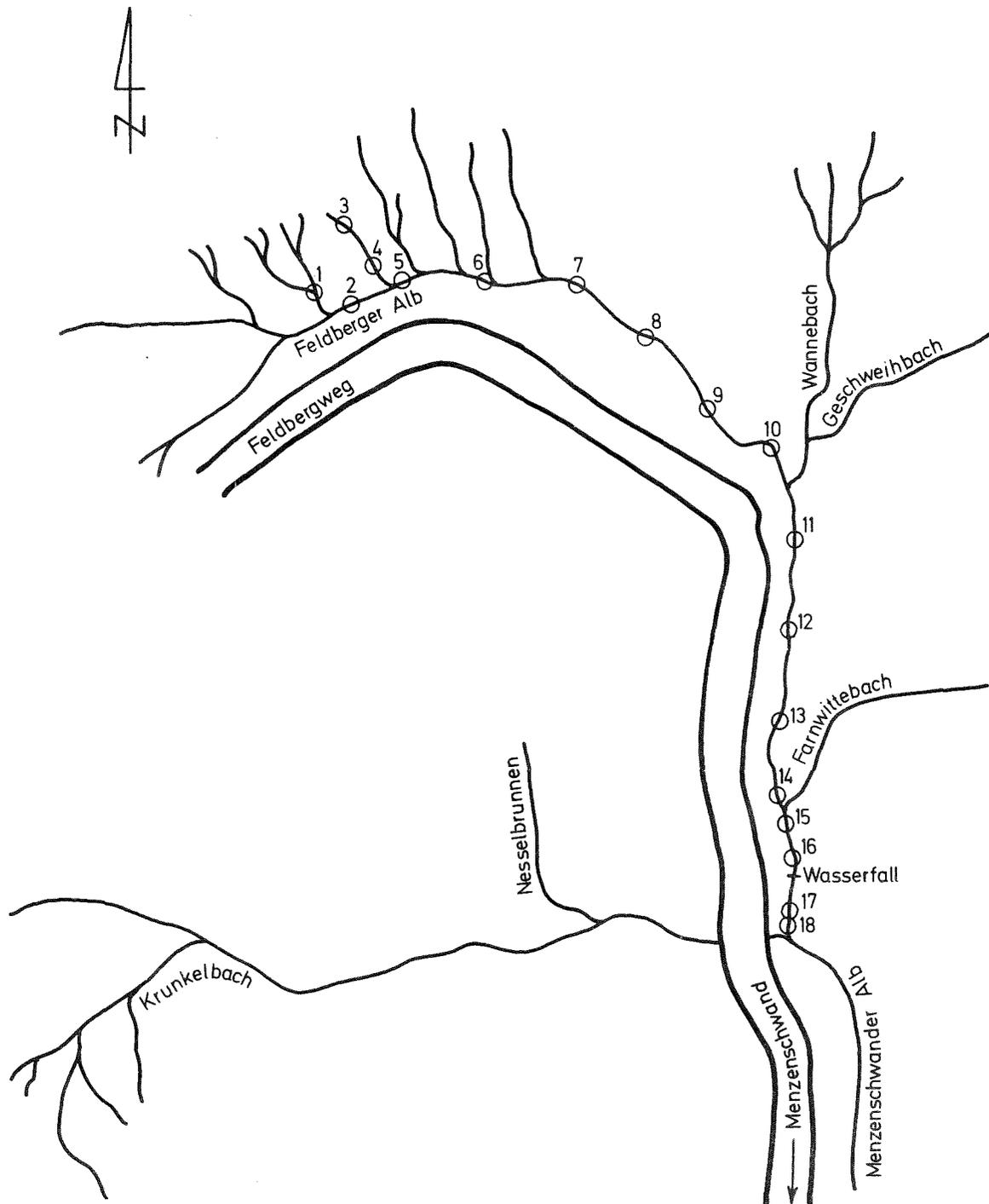
3.3 Die ^{226}Ra -Konzentration verschiedener Oberflächenwässer und von deren Sedimenten aus der näheren und weiteren Umgebung von Menzenschwand

Die hohe natürliche Untergrundstrahlung am Feldberg weist auf einen überdurchschnittlich hohen Uran- und damit ^{226}Ra -Gehalt des Feldberger Granits hin. Es ist daher zu erwarten, daß Wasser, das mit diesem Granit in Kontakt kommt, durch ^{226}Ra kontaminiert wird und daher Quellen, Brunnen und Bäche einen höheren ^{226}Ra -Gehalt aufweisen als an anderen Stellen der Bundesrepublik Deutschland. Da die Trinkwasserversorgung des Südschwarzwaldes durch diese Wasserquellen erfolgt, ist eine höhere Dosisbelastung der Bevölkerung durch ^{226}Ra im Trinkwasser in diesem Bereich der Bundesrepublik Deutschland zu erwarten. Daher wurde eine große Zahl von Oberflächenwässern auf ^{226}Ra untersucht.

Der erste Teil der Untersuchung befaßte sich mit dem ^{226}Ra -Gehalt von Bächen und Quellen des Menzenschwander Tales. Dann wurden Bäche, Quellen und Brunnen der weiteren Umgebung von Menzenschwand untersucht. Bei dieser im Sommer erfolgten Probenahme wurden eine Reihe höherer Konzentrationen von ^{226}Ra in verschiedenen Oberflächenwässern gemessen. An diesen Stellen und in der Umgebung dieser Stellen wurden im Herbst abermals Proben entnommen und diese auf ^{226}Ra untersucht. Eine über diese Untersuchung hinausgehende Studie wurde im Wüstengraben nördlich des Schluchsees durchgeführt. Hier wurden außer ^{226}Ra -Bestimmungen auch ^{222}Rn -Konzentrationen bestimmt; in einem Fall wurden auch U_{nat} , ^{210}Pb und ^{210}Po gemessen. Im Wüstengraben, aber auch an anderen Stellen, wurden parallel mit Wasserproben Sedimentproben entnommen und in diesen ^{226}Ra bestimmt.

Die Radiumbestimmung im Wasser und in den Sedimenten erfolgte wie oben beschrieben. Zur Radonmessung wurde 1 l entnommenes Wasser direkt am Ge(Li)-Detektor gemessen. Zur Bestimmung von U_{nat} , ^{210}Pb und ^{210}Po wurden gängige radiochemische Analysemethoden verwendet [12,13,14].

Die Ergebnisse der Untersuchungen sind in den folgenden Tabellen und Abbildungen wiedergegeben. Um den Beitrag der Feldberger Alb zum Radiumgehalt der Menzenschwander Alb bestimmen zu können, wurden - beginnend an den Quellen der Feldberger Alb bis zu ihrem Zusammenfluß mit dem Krunkel-



 KfK

Abb.10 : WASSERPROBEN AUS DER FELDBERGER ALB

bach - insgesamt 23 Wasserproben entnommen und auf ^{226}Ra analysiert. Der Mittelwert liegt bei 0,2 pCi/l und damit unter dem Wert von 0,5 pCi/l, den der Krunkelbach aufweist, bevor er durch die Grubenwässer des Uranuntersuchungsgrubezusätzlich kontaminiert wird. Da der Gehalt der Feldberger Alb an ^{226}Ra sehr gering ist, sorgt sie im wesentlichen für die Verdünnung beim Zusammenfluß von Feldberger Alb und Krunkelbach von im Mittel 2,1 auf 1,1 pCi/l. Die Positionen der Probenahmen und die Ergebnisse sind in Abb. 10 und Tab. 13 wiedergegeben.

Die ^{226}Ra -Konzentrationen, welche im Wasser der Bäche des Menzenschwander Tales gemessen wurden, sind in der Tab. 14 wiedergegeben. Die Positionen der Probenahmen werden in Abb. 11 angegeben. Der mittlere ^{226}Ra -Gehalt liegt bei $0,3 \pm 0,1$ pCi/l. Ein höherer Wert wurde nur an der ersten Quelle des Kriegsbaches beobachtet, dieser betrug 2,6 pCi/l. Die ^{226}Ra -Konzentrationen im Wasser der Bäche der weiteren Umgebung von Menzenschwand werden in Tab. 15 wiedergegeben. Die Orte der Probenahme sind in Abb. 12 angegeben. Ein großer Teil der Einzelproben entspricht den bisher gemessenen ^{226}Ra -Konzentrationen in Wasserproben des Südschwarzwaldes. Es wurden aber an 6 Positionen erhöhte Werte gefunden: im Wüstengraben, im Sonnenmattkopfbächle, in der Quelle der Langhaa, im Taubenmoosbächle, im Winkelbach und im Schwarzenbächle. Bei der wiederholten Probenahme im Herbst konnte in keinem Fall der hohe ^{226}Ra -Gehalt, der bei der Sommerprobenahme gemessen wurde, bestätigt werden. Es muß daher angenommen werden, daß eine längere Trockenphase und die damit verbundene längere Verweilzeit des Wassers im Boden zu einer nennenswerten Anreicherung des Wassers mit Radium geführt hat. Stichprobenartig wurden aus verschiedenen Bächen Sedimentproben entnommen. Der Mittelwert der ^{226}Ra -Konzentration in diesen Sedimenten liegt bei $1,1 \pm 0,1$ pCi/g trocken. Dieser Wert liegt deutlich unter den Werten, die im Menzenschwander Tal gemessen wurden. Die Ergebnisse sind in Tab. 16 wiedergegeben.

Die Ergebnisse der ^{226}Ra -Messungen in den Oberflächenwässern an den Stellen und in der Umgebung der Stellen, an denen höhere Radiumkonzentrationen im Sommer gemessen wurden, sind getrennt in den Abbn. 13, 14, 15 und 16 angegeben. Nachdem bei ersten Messungen im Wüstengraben extrem hohe ^{226}Ra -Konzentrationen gemessen wurden, wurden im August und im Oktober Messungen im

Wasser und in den Sedimenten des Wüstengrabens durchgeführt. Die Ergebnisse sind in den Tabn. 17 bis 20 und in den Abbn. 17 und 18 wiedergegeben. Der hohe ^{226}Ra -Gehalt im Wasser der Quelle 2 vom Juni ließ sich bereits einen Monat später nicht mehr bestätigen; er lag damals bei 38 pCi/l. Spätere Messungen ergaben ^{226}Ra -Konzentrationen im Bereich von 1 bis 3 pCi/l. Die in Tab. 17 und 18 wiedergegebenen Radiumkonzentrationen im Wasser des aus dem Wüstengraben fließenden Baches zeigen, daß die im Quellbereich gemessenen Konzentrationen überdurchschnittlich hoch sind. Durch die Erhöhung des Wasserdurchsatzes wird bachabwärts die Konzentration erniedrigt und liegt im Mittel etwa um den Faktor 2 über dem normalen ^{226}Ra -Gehalt der Bäche dieses Raumes. Auffallend sind die außergewöhnlich hohen ^{222}Rn -Gehalte der Quellen im Wüstengraben. Die Konzentrationen anderer Radionuklide der Uranfamilien sind verglichen damit relativ niedrig. Die in Abb. 18 wiedergegebenen ^{226}Ra -Konzentrationen der Sedimente aus den Bächen im Wüstengraben liegen mit $1,6 \pm 0,2$ pCi/g tr. durchaus im Bereich normaler Werte. In Tab. 20 sind alle Ergebnisse zusammengefaßt, bei denen ^{226}Ra -Konzentrationen $< 0,7$ pCi/l gemessen wurden. 0,7 pCi $^{226}\text{Ra}/\text{l}$ ist jener Wert, der nach der Strahlenschutzverordnung [4] bei ausschließlicher Belastung der Bevölkerung durch Trinkwasser maximal erlaubt ist.

Zusammenfassend darf gesagt werden, daß hohe ^{226}Ra -Gehalte in den Sommermonaten und im Dezember gemessen wurden. Außerdem sind im allgemeinen die ^{226}Ra -Gehalte des Wassers an der Quelle eines Baches höher als bei weiter bachabwärts gelegenen Probenahmestellen.

| Probe Nr. | Probenahme | ²²⁶ Ra-Konzentration in pCi/l |
|------------|------------|--|
| 1 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 2 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 3 FA | 18.10.1978 | 0,2 |
| 4 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 5 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 6 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 7 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 8 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 9 FA | 18.10.1978 | 0,3 |
| 10 FA | 18.10.1978 | 0,3 |
| 11 FA | 18.10.1978 | 0,1 |
| 12 FA | 19.10.1978 | 0,2 |
| 13 FA | 19.10.1978 | 0,2 |
| 14 FA | 19.10.1978 | 0,1 |
| 15 FA | 03.11.1978 | 0,2 |
| 16 FA | 17.11.1978 | 0,2 |
| | 06.12.1978 | 4,7 |
| | 12.12.1978 | 0,2 |
| 17 FA | 19.10.1978 | 0,2 |
| 18 FA | 03.11.1978 | 0,3 |
| | 17.11.1978 | 0,5 |
| | 06.12.1978 | 7,1 |
| | 12.12.1978 | 0,2 |
| Mittelwert | | 0,19 ± 0,02 |

Die Meßwerte vom 06.12.1978 wurden bei der Mittelwertbestimmung nicht berücksichtigt.

Tab. 13: ²²⁶Ra-Konzentrationen im Wasser der Feldberger Alb

| Probe Nr. | Probenahme 1978 | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|-----------|---|---|
| 1 W | Gschweihbach | 30.05. |
| | | 17.06. |
| 2 W | Farnwittebach | 30.05. |
| | | 16.06. |
| 3 W | Oberer Großbach | 15.06. |
| 4 W | Bachrainbächlein | 16.06. |
| 5 W | Großbach | 16.06. |
| 6 W | Kriegsbach, Herzogenhorn | 17.06. |
| 7 W | Krunkelbachhütte, Brunnen | 17.06. |
| 8 W | Schleifbach | 17.06. |
| 9 W | Kammbühlbächlein | 17.06. |
| 10 W | Rehbach | 17.06. |
| 11 W | Bächlein neben Ursprung von Geschweihbach, Bärhalde | 28.06. |
| 12 W | Oberer Großbach, Rinnsal daneben | 30.06. |
| 13 W | Oberer Großbach, Leingrubenwald | 30.06. |
| 14 W | Brunnen, 2. Spitzkehre Menzenschwand-Äule | 30.06. |
| 15 W | Brunnen bei Kammbühlbächlein, westl. Vorderdorf Menzenschwand | 30.06. |
| 16 W | Kammbühlbächlein, neben Weg, westl. Vorderdorf Menzenschwand | 30.06. |
| 17 W | Feldberger Alb, Quelle 1 | 03.08. |
| 18 W | Feldberger Alb, Quelle 2 | 04.08. |
| 19 W | Kriegsbach, Quelle 1 | 04.08. |
| 20 W | Kriegsbach, Quelle 2 | 04.08. |
| 21 W | Kriegsbach, Quelle 3 | 04.08. |
| 22 W | Großbach | 05.10. |

Tab. 14: ^{226}Ra -Konzentrationen in den Bächen von Menzenschwand

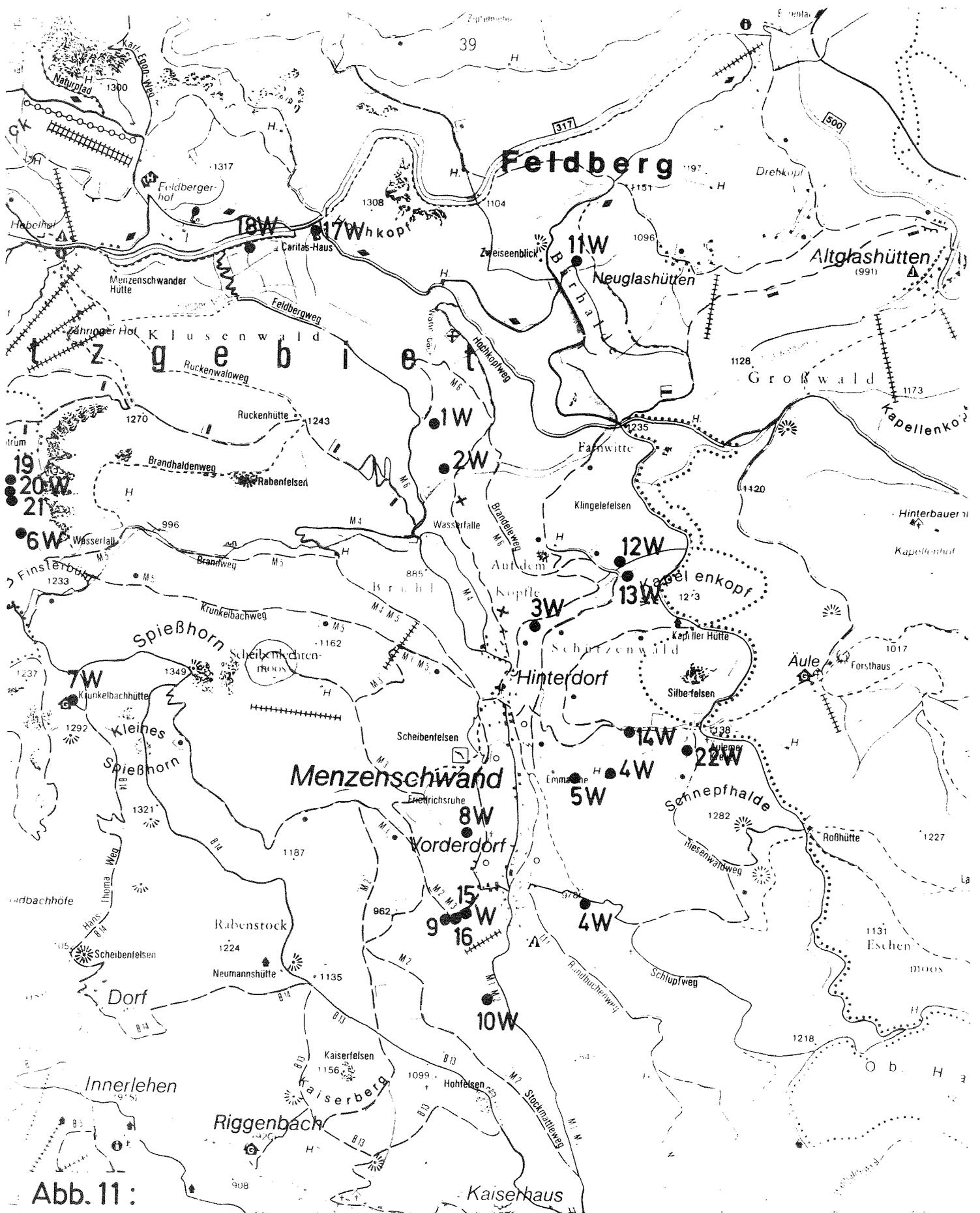
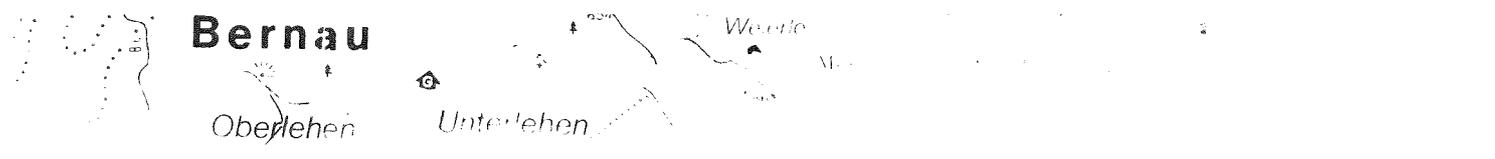


Abb. 11:

PROBENAHME IN DEN BÄCHEN DES MENZENSCHWANDER TALES



| Probe Nr. | Probenahme 1978 | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|-----------|--|---|
| 1 WU | Remplenbächle bei Brunnen-trögle 16.06. | 0,6 |
| 2 WU | Schwinbach bei Kohlhütten-kopf 16.06. | $\leq 0,04$ |
| 3 WU | Riggenbacherbächle, Orts-mitte Riggenbach 16.06. | $\leq 0,04$ |
| 4 WU | Bernauer Alb, Ortsmitte Bernau 16.06. | 0,3 |
| 5 WU | Schindelbächle 17.06. | $\leq 0,03$ |
| 6 WU | Franzenbächle 28.06. | 0,4 |
| 7 WU | Schelgenbach vor Ühlingen 28.06. | 0,1 |
| 8 WU | Ühlinger Brunnen 28.06. | 0,1 |
| 9 WU | Altes Sägewerk nördlich Ühlingen, Seitenbach zur Schlücht 28.06. | 0,2 |
| 10 WU | Schlücht bei Brücke zw. Birkendorf und Igelschlatt 28.06. | 0,3 |
| 11 WU | Mettma, südl. Mandach vor Zusammenfluß mit Langhaa 28.06. | 0,7 |
| 12 WU | Langhaa-Quelle 28.06. | 6,7 |
| 13 WU | Franzenbächle, Viehütten-moos 29.06. | $\leq 0,05$ |
| 14 WU | Franzenbächle bei Franzenmatt 29.06. | 0,2 |
| 15 WU | Winkelbach 29.06. | 1,5 |
| 16 WU | Schwarzenbächle 29.06. | 0,9 |
| 17 WU | Taubenmoosbächle 29.06. | 2,5 |
| 18 WU | Wüstengraben, Quelle 2 29.06. | 1 549 |
| 19 WU | Todtmoos, Sonnenmatt-kopfbächle, Quelle 29.06. | 453 |
| 20 WU | Sonnenmattkopfbächle, Mündung 29.06. | 0,1 |
| 21 WU | Bächlein oberhalb Alt-Glashütten 30.06. | 0,2 |
| 22 WU | Todtmoos, Sonnenmatt-kopfbächle, Quelle 18.08. | 0,1 |
| 23 WU | Grafenhausen-Birkendorf, Schlücht 04.10. | 1,3 |

Tab. 15: ^{226}Ra -Konzentrationen in den Bächen der Umgebung von Menzenschwand

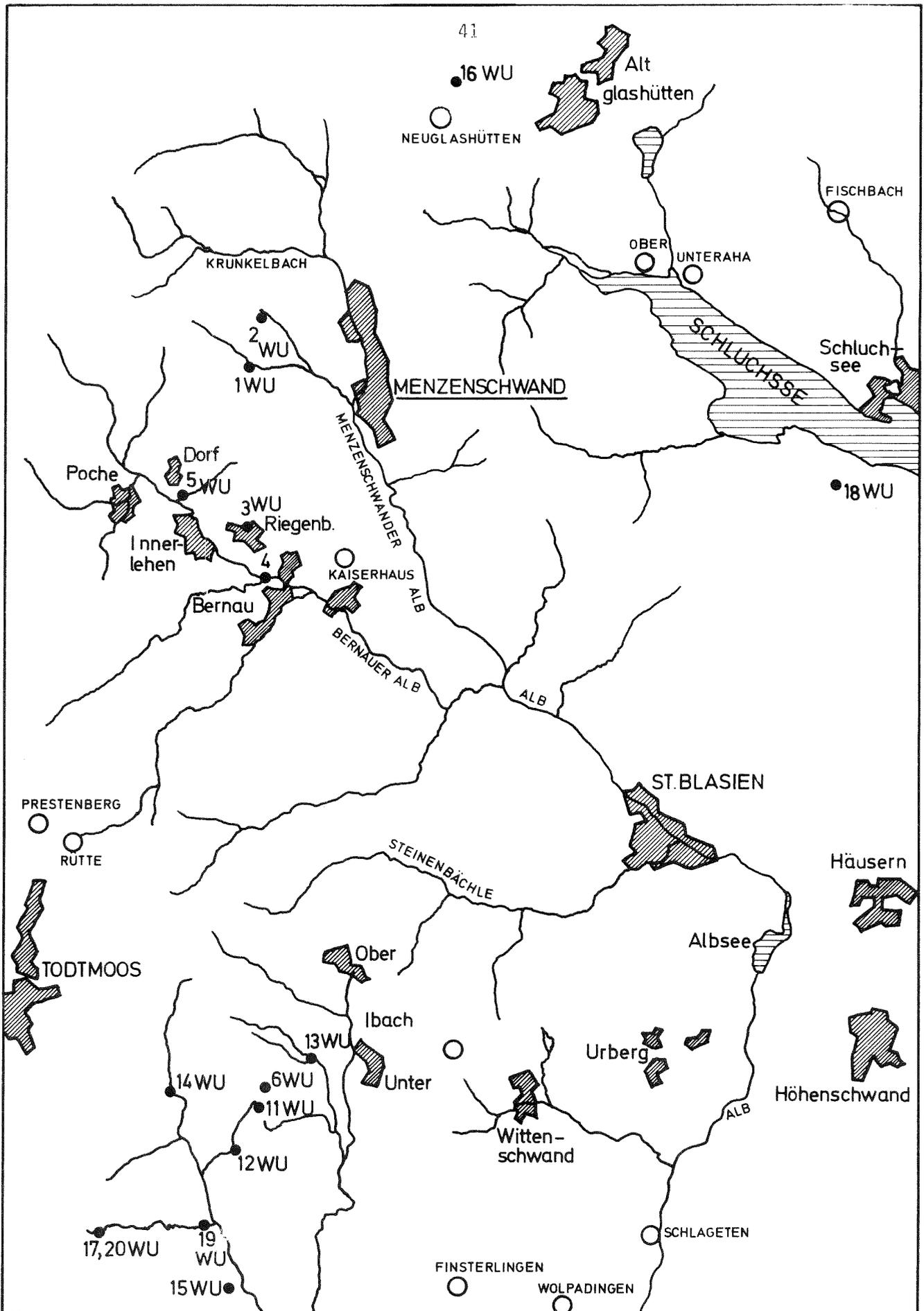


Abb.12: PROBENAHME IN DEN BÄCHEN DER UMGEBUNG VON MENZENSCHWAND

| Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/g Trockensubstanz |
|--|--|
| Rehbach Menzenschwand zwischen Vorder- und Hinterdorf 01.06.1978 | 1,6 |
| Kriegsbach 01.06.1978 | 1,2 |
| Bernauer Alb, Einmündung Menzen- schwander Alb, Kreuzung St. Blasien/ Bernau 01.06.1978 | 1,0 |
| Menzenschwander Farnwittebach 01.06.1978 | 1,8 |
| Geschweihbach bei Menzenschwand 02.06.1978 | 0,9 |
| Bernauer Alb in Bernau-Ost 01.06.1978 | 0,9 |
| Nebenbach Riggenbach zur Bernauer Alb in Schwenthiele 01.06.1978 | 1,1 |
| Schwarzenbächle bei Lindau 28.06.1978 | 0,7 |
| Schwarzenbächle an der Mündung 28.06.1978 | 0,9 |
| Mittelwert | 1,1 ± 0,1 |

Tab. 16: ^{226}Ra -Konzentrationen in den Sedimenten der Bäche in der Umge-
bung von Menzenschwand

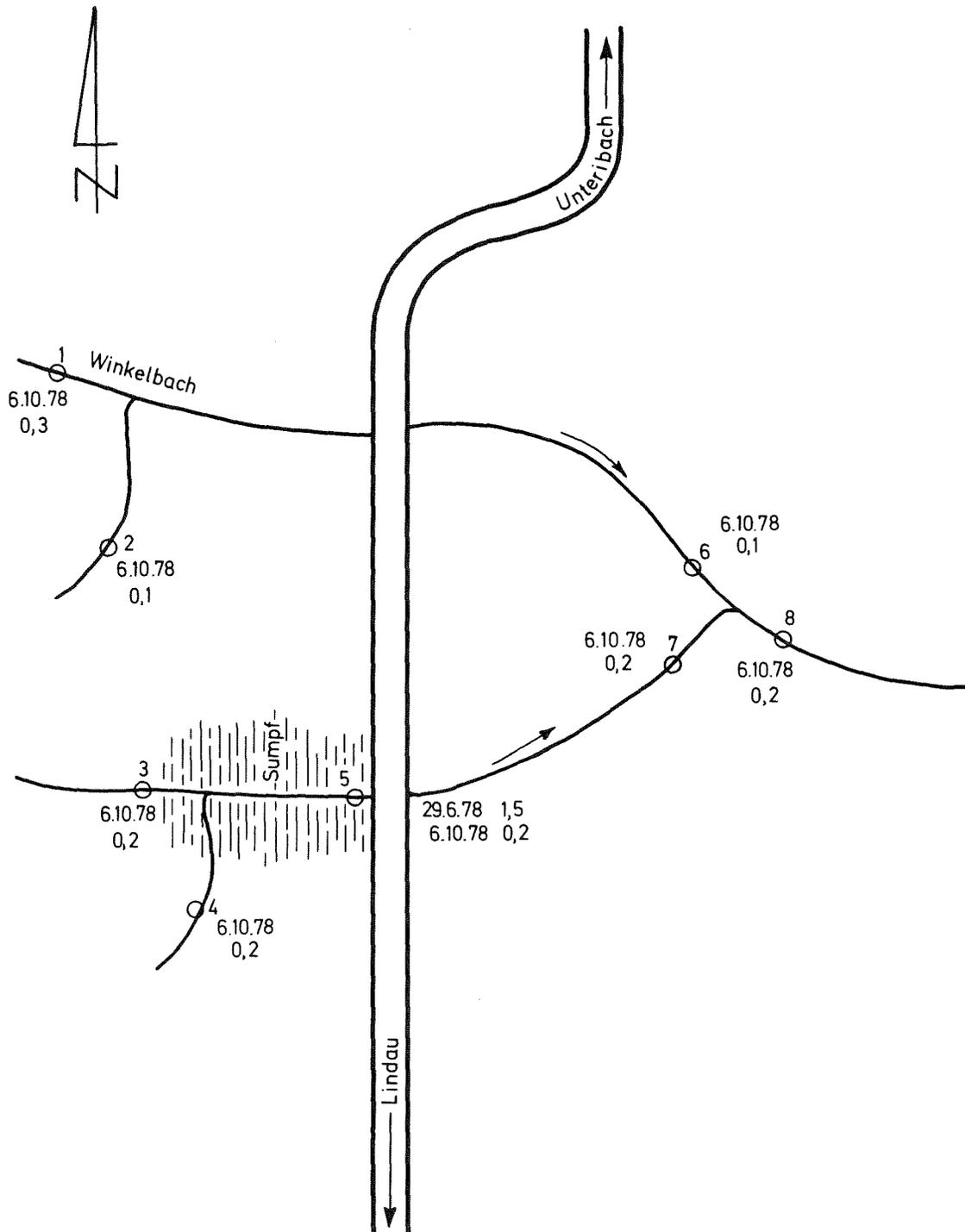
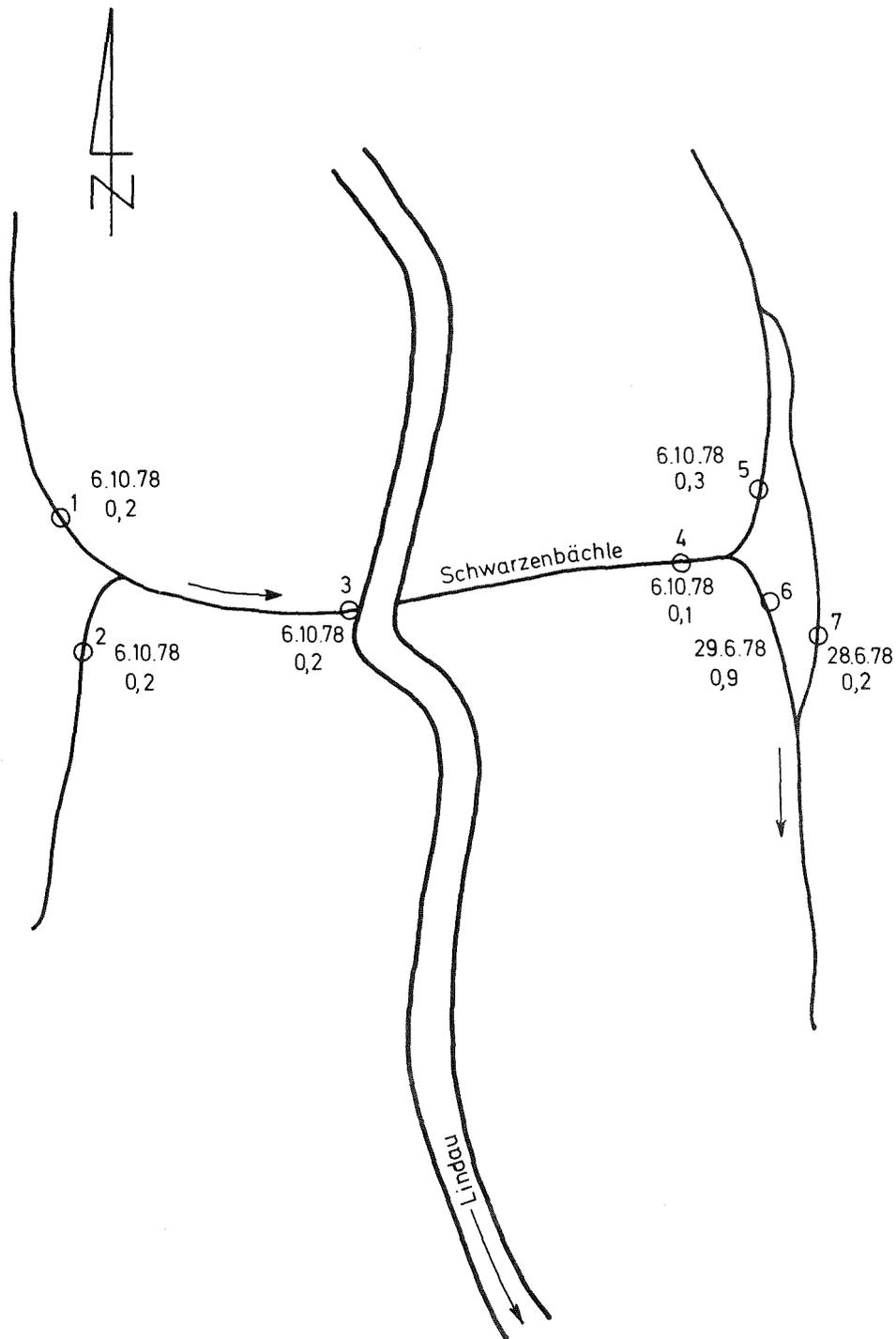
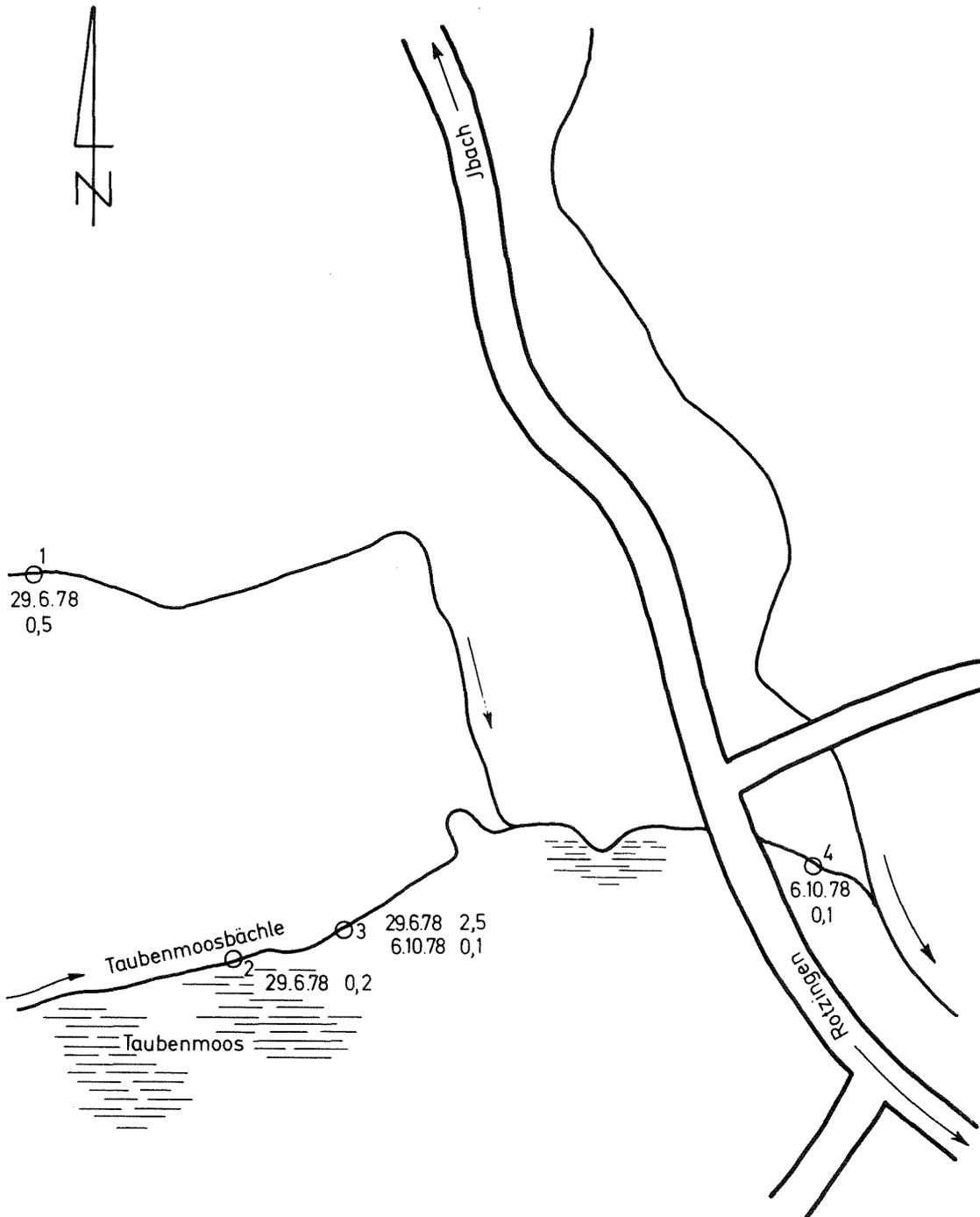


Abb. 13 : WASSERPROBEN AUS DEM WINKELBACH UND DESSEN NEBENFLÜSSEN. KONZENTRATIONEN IN $\text{pCi } ^{226}\text{Ra} / \text{l}$



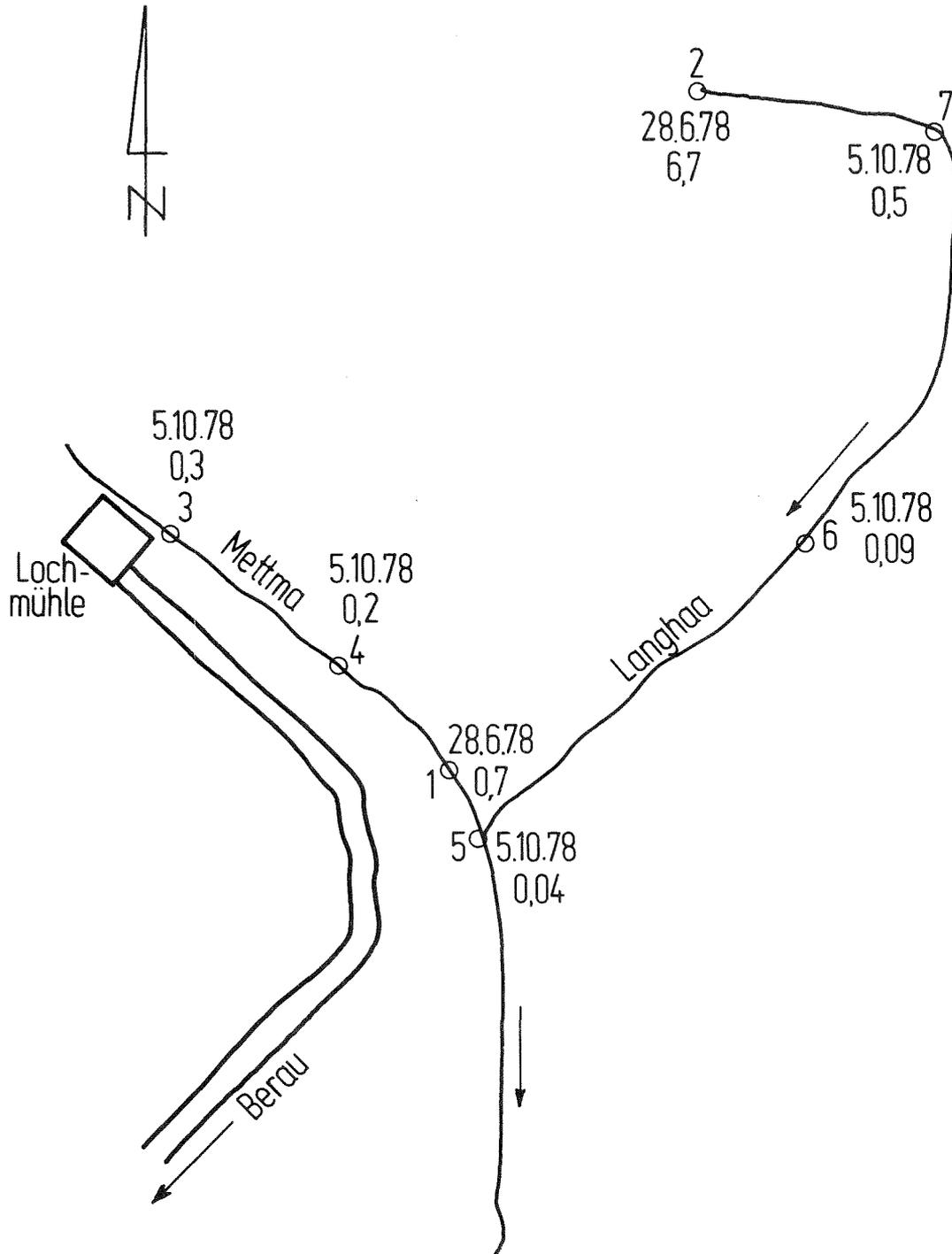
KfK

Abb.14: WASSERPROBEN AUS DEM SCHWARZENBÄCHLE UND DESSEN NEBENFLÜSSEN. KONZENTRATIONEN IN pCi ^{226}Ra / l



KIK

Abb.15 : WASSERPROBEN AUS DEM TAUBENMOOSBÄCHLE UND SEINEN NEBENFLÜSSEN. KONZENTRATIONEN IN pCi ²²⁶Ra/l



 KfK

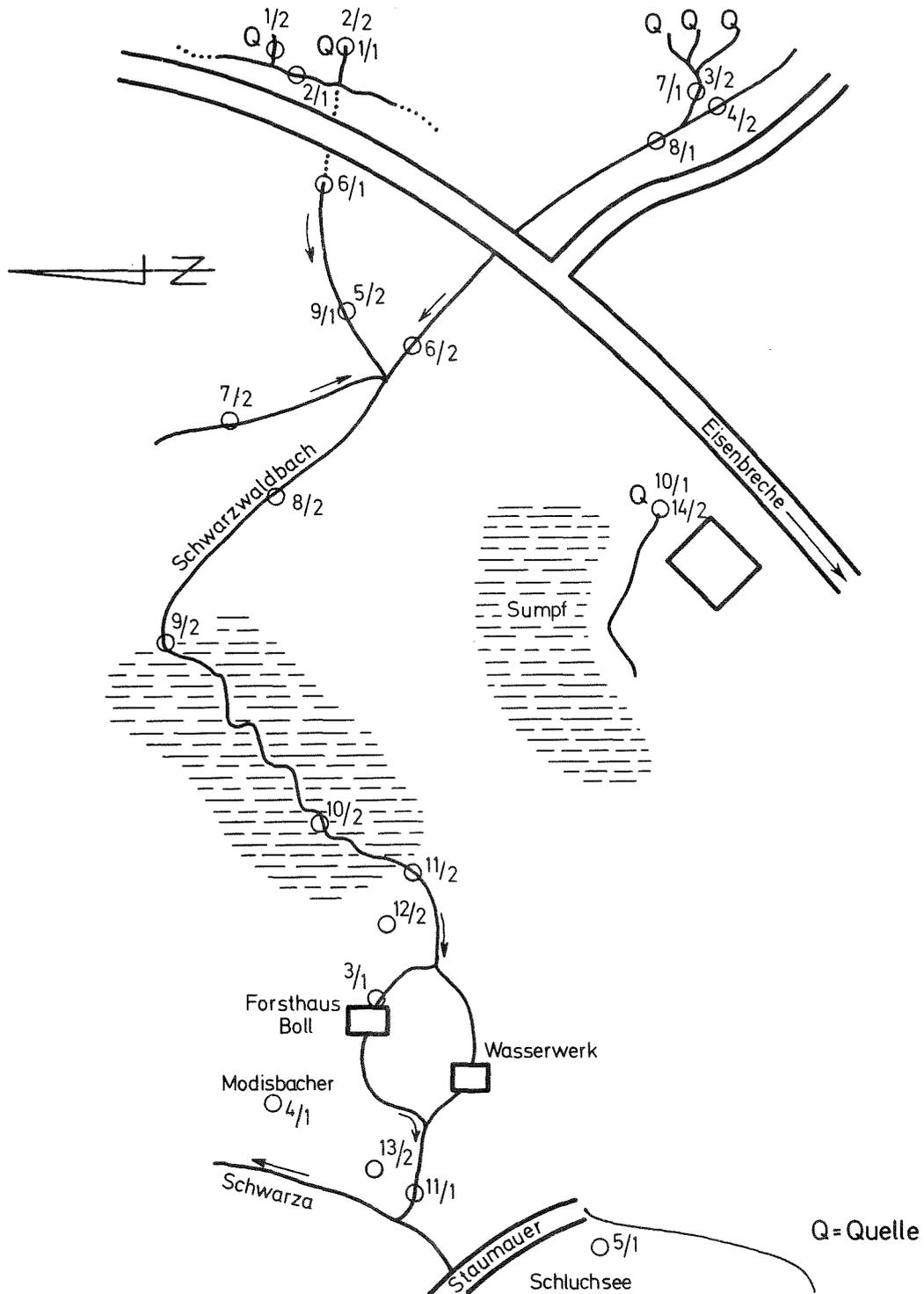
Abb.16. ²²⁶Ra-KONZENTRATIONEN IM WASSER DER METTMA
UND DER LANGHAA. KONZENTRATIONEN IN pCi ²²⁶Ra/l

| Probe Nr. | Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l | ^{222}Rn -Konzentration in nCi/l |
|-----------|------------|--|--|
| 1/1 Wg | 03.08.1978 | 0,9 | 5,5 |
| 2/1 Wg | 03.08.1978 | 2,3 | 7,4 |
| 3/1 Wg | 04.08.1978 | 0,4 | |
| 4/1 Wg | 04.08.1978 | 0,8 | |
| 5/1 Wg | 04.08.1978 | 0,1 | |
| 6/1 Wg | 05.08.1978 | 0,2 | 1,4 |
| 7/1 Wg | 05.08.1978 | 0,7 | |
| 8/1 Wg | 05.08.1978 | 0,5 | |
| 9/1 Wg | 05.08.1978 | 0,6 | |
| 10/1 Wg | 05.08.1978 | 0,3 | |
| 11/1 Wg | 05.08.1978 | 0,2 | |

Tab. 17: ^{226}Ra - und ^{222}Rn -Konzentrationen in Wasserproben aus dem Wüstengraben

| Probe Nr. | Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|-----------|------------|--|
| 1/2 Wg | 05.10.1978 | 3,4 |
| 2/2 Wg | 05.10.1978 | 2,3 |
| 3/2 Wg | 05.10.1978 | 1,2 |
| 4/2 Wg | 05.10.1978 | 0,5 |
| 5/2 Wg | 05.10.1978 | 0,6 |
| 6/2 Wg | 05.10.1978 | 0,3 |
| 7/2 Wg | 05.10.1978 | 0,6 |
| 8/2 Wg | 05.10.1978 | 0,6 |
| 9/2 Wg | 05.10.1978 | 0,6 |
| 10/2 Wg | 05.10.1978 | 0,7 |
| 11/2 Wg | 05.10.1978 | 0,8 |
| 12/2 Wg | 05.10.1978 | 0,3 |
| 13/2 Wg | 05.10.1978 | 0,3 |
| 14/2 Wg | 06.10.1978 | 0,6 |

Tab. 18: ^{226}Ra -Konzentrationen in Wasserproben aus dem Wüstengraben



**Abb.17: WASSERPROBEN AUS DEM WÜSTENGRABEN.
MESSWERTE SIEHE TABELLEN 17 UND 18.**

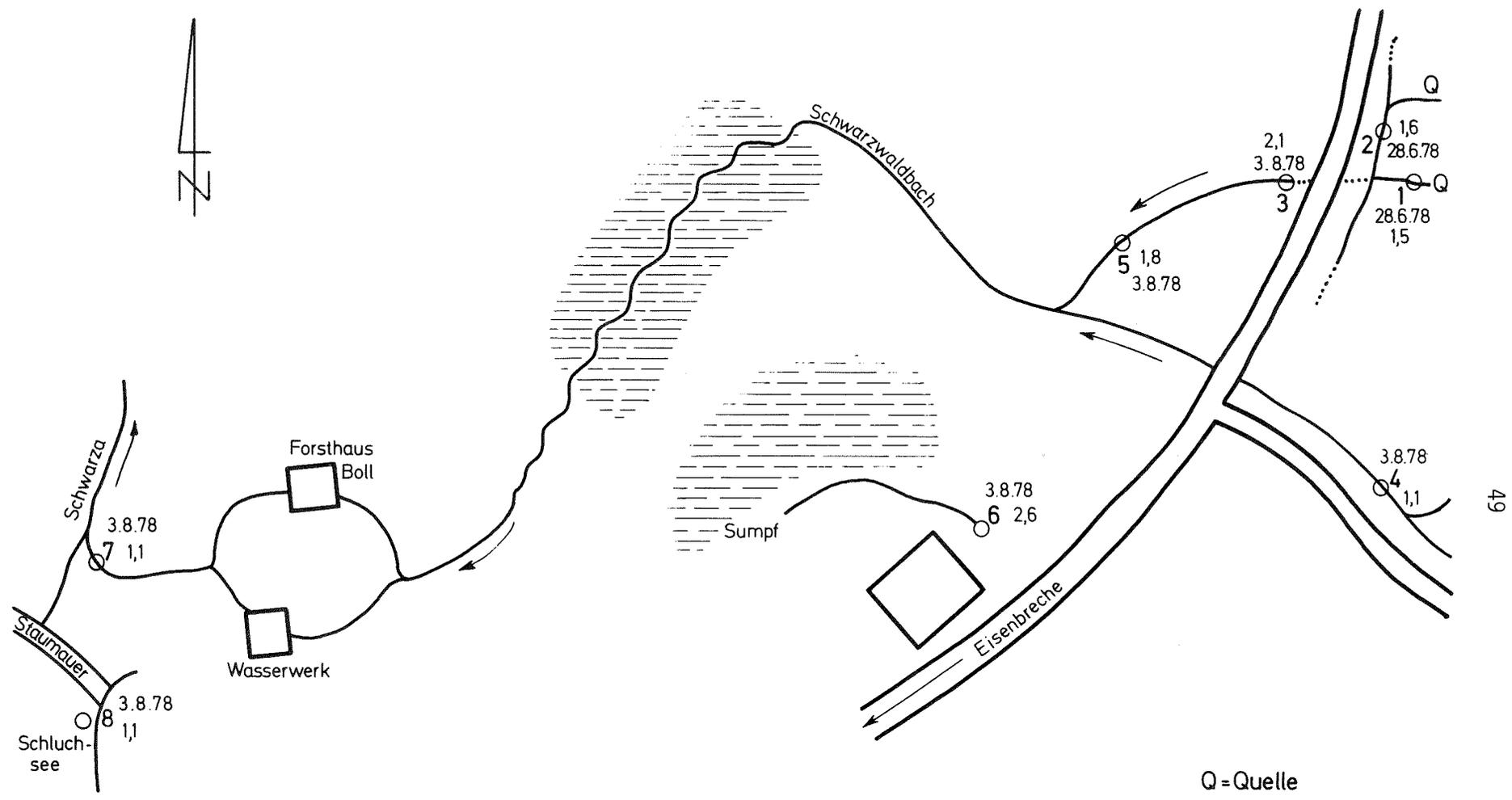


Abb. 18: ^{226}Ra -KONZENTRATIONEN IN SEDIMENTPROBEN AUS DEM WÜSTENGRABEN. KONZENTR. IN pCi ^{226}Ra / g

| Probenahme | | Nuklid | Aktivitätskonzentration in pCi/l |
|------------|------------|-------------------|-------------------------------------|
| Quelle 1 | 28.06.1978 | ^{226}Ra | 0,8 |
| | 18.08.1978 | ^{222}Rn | 17 600 |
| | 11.12.1978 | ^{226}Ra | 3,0 |
| | | ^{222}Rn | 20 300 |
| Quelle 2 | 29.06.1978 | ^{226}Ra | 1 549 |
| | 21.07.1978 | ^{226}Ra | 38 |
| | | ^{210}Pb | 15,7 |
| | | ^{222}Rn | 33 000 |
| | | ^{210}Po | 2,2 |
| | | ^{234}U | 1,4 |
| | | ^{238}U | 1,4 |
| | | ^{212}Pb | 1,7 |
| | 18.08.1978 | ^{222}Rn | 30 300 |
| | 11.12.1978 | ^{226}Ra | 1,2 |
| | | ^{222}Rn | 2 700 |

Tab. 19: Aktivitätskonzentrationen verschiedener Nuklide in den Quellen des Wüstengrabens

| Ort | Probenahme | Datum | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|--------------------------------------|------------|------------|--|
| Wüstengraben | | 29.06.1978 | 1 549 |
| | | 21.07.1978 | 38 |
| | | 03.08.1978 | 0,9 |
| | | 03.08.1978 | 2,3 |
| | | 05.10.1978 | 3,4 |
| | | 05.10.1978 | 2,3 |
| | | 05.10.1978 | 1,2 |
| | | 05.10.1978 | 0,8 |
| | | 11.12.1978 | 3,0 |
| | | 11.12.1978 | 1,2 |
| Langhaa | | 28.06.1978 | 6,7 |
| Sonnenmattkopfbächle | | 29.06.1978 | 453 |
| Taubenmoosbächle | | 29.06.1978 | 2,5 |
| Winkelbach | | 29.06.1978 | 1,5 |
| Schwarzenbächle | | 29.06.1978 | 0,9 |
| Modisbacher/Blasiwald | | 04.08.1978 | 0,8 |
| Grafenhausen, Birkenhof, Schlücht | | 04.10.1978 | 1,3 |
| Feldberger Alb | | 06.12.1978 | 4,7 |
| | | 06.12.1978 | 7,1 |

Tab. 20: ^{226}Ra -Konzentrationen in Wasserproben, die höher als 0,7 pCi/l sind

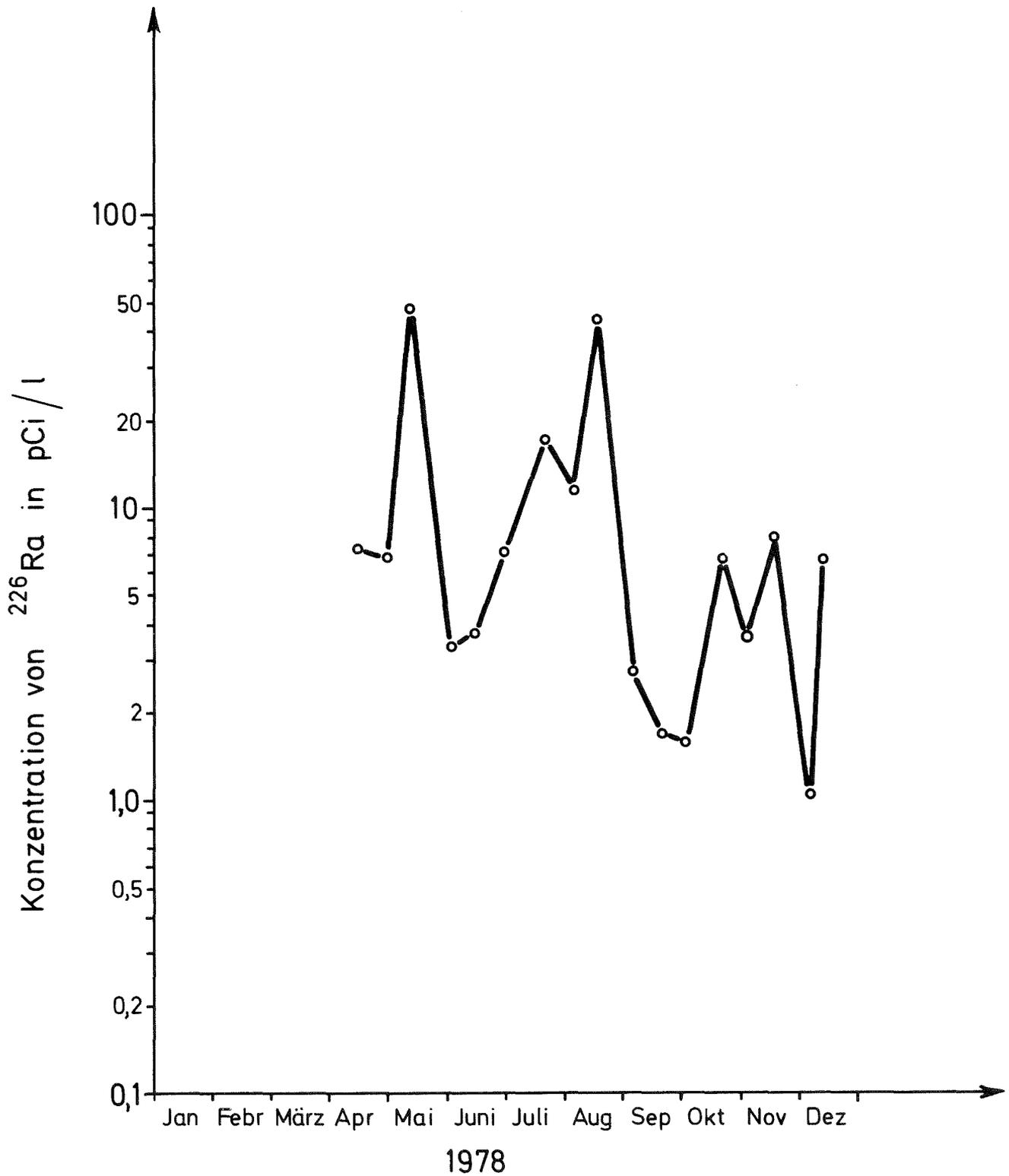


Abb.19 : ^{226}Ra -Konzentration in der Milch des Bauern A, Menzenschwand

3.4 Die ^{226}Ra -Konzentration der Milch in Menzenschwand und Umgebung

Die Milchwirtschaft ist in Menzenschwand die wesentlichste landwirtschaftliche Tätigkeit. Da Milch auch als Nahrungsmittel in ländlichen Gebieten eine bevorzugte Stellung einnimmt, war eine sorgfältige Untersuchung der ^{226}Ra -Kontamination der Milch notwendig. 14-täglich wurde von zwei Familien je eine Milchprobe analysiert und außerdem von mehreren anderen Bauern in Menzenschwand eine bis vier Milchproben im Spätsommer untersucht. Aus der Umgebung des Menzenschwander Tales wurden ebenfalls stichprobenartig Milchproben gesammelt und analysiert. Als Abschluß wurden Milchproben der wichtigsten Molkereien des Südschwarzwaldes und der Karlsruher Molkerei untersucht.

2 bis 5 l Frischmilch wurden eingedampft, verascht und die Asche in 20 ml-Glasgefäße verpackt. Nach 2 bis 3 Wochen Lagerzeit - zur Einstellung des Gleichgewichtes zwischen Radium und seinen Folgeprodukten - wurden die Proben am Ge(Li)-Detektor gemessen. Da ein wesentlicher Teil der gemessenen Proben unter der Nachweisgrenze des Ge(Li)-Detektors lag, mußte in vielen Fällen chemisch aufgearbeitet werden.

Die Ergebnisse der 14-täglich genommenen Proben werden in den Abbn. 19 und 20 und in den Tabn. 21 und 22 wiedergegeben. Die ^{226}Ra -Konzentration in der Milch der beiden Bauern sind relativ hoch, wenn man die in [7] angegebenen 31 pCi ^{226}Ra als Bodyburden der Normalbevölkerung vergleicht mit den fast 50 pCi/l der Milch von Bauer A. Der Konzentrationsverlauf in den Milchproben beider Bauern ist vergleichbar. Dies überrascht nicht, da die Bauern von Menzenschwand ihre Kühe auf gemeinsamen Weiden halten. Die Ursachen der Schwankungen der Milchkonzentrationen von ^{226}Ra über fast eine Größenordnung sind unbekannt. Der Mittelwert der Milchkontamination bei Bauer A liegt bei 11 pCi/l und der bei Bauer B bei 7 pCi/l. In der Tab. 23 sind die Ergebnisse weiterer Milchanalysen aus Menzenschwand angegeben. Der Mittelwert der hier angegebenen elf ^{226}Ra -Bestimmungen in Milch liegt bei 8 pCi/l. Mittelt man über die Ergebnisse aller Proben aus Menzenschwand, so erhält man 8,9 pCi ^{226}Ra /l Milch.

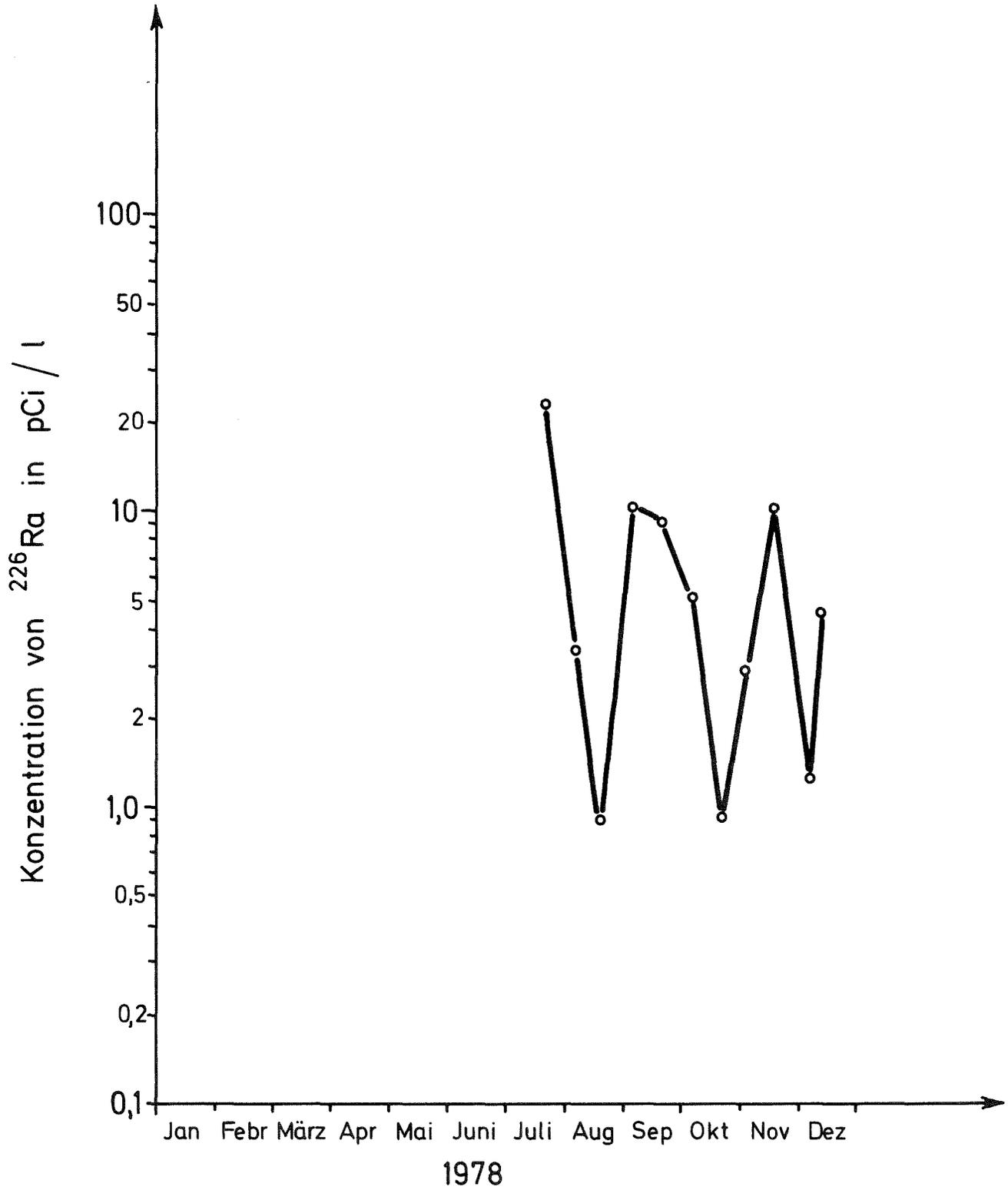


Abb.20: ^{226}Ra -Konzentration in der Milch des Bauern B,
Menzenschwand

| Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|------------|--|
| Dez. 1977 | 6,1 |
| 14.04.1978 | 7,3 |
| 30.04.1978 | 6,9 |
| 12.05.1978 | 47,9 |
| 03.06.1978 | 3,4 |
| 16.06.1978 | 3,7 |
| 01.07.1978 | 7,0 |
| 21.07.1978 | 17,3 |
| 05.08.1978 | 11,3 |
| 18.08.1978 | 42,6 |
| 07.09.1978 | 2,8 |
| 22.09.1978 | 1,6 |
| 04.10.1978 | 1,6 |
| 21.10.1978 | 6,6 |
| 04.11.1978 | 3,4 |
| 18.11.1978 | 8,0 |
| 06.12.1978 | 1,1 |
| 11.12.1978 | 6,9 |
| Mittelwert | $10,8 \pm 3,5$ |

Tab. 21: ^{226}Ra -Konzentration, gemessen in der Milch von Bauer A

| Probenahme | ²²⁶ Ra-Konzentration in pCi/l |
|------------|---|
| 21.07.1978 | 23,5 |
| 05.08.1978 | 3,4 |
| 18.08.1978 | 0,9 |
| 07.09.1978 | 10,2 |
| 22.09.1978 | 9,0 |
| 06.10.1978 | 5,1 |
| 21.10.1978 | 0,9 |
| 04.11.1978 | 2,9 |
| 18.11.1978 | 10,1 |
| 06.12.1978 | 1,4 |
| 11.12.1978 | 4,6 |
| Mittelwert | 6,5 ± 2,0 |

Tab. 22: ²²⁶Ra-Konzentrationen, gemessen in der Milch von Bauer B

In Tab. 24 sind die ²²⁶Ra-Gehalte in Milch aus der Umgebung von Menzenschwand angegeben. In zwei Fällen war der Radiumgehalt praktisch vernachlässigbar klein. In einer Probe aus Bernau und einer aus Äule lagen die Meßwerte bei 23 bzw. 32 pCi/l. In Tab. 25 sind die Ergebnisse der ²²⁶Ra-Gehalte in Molkereimilch angegeben. Auch hier haben Freiburg und Karlsruhe normal niedrige ²²⁶Ra-Konzentrationen, während die Ergebnisse von Karlsruhe/Südschwarzwald und Waldshut/Tiengen offensichtlich einen Einfluß des radiumreichen Granits des Südschwarzwaldes anzeigen.

| Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l | | | |
|------------|---|---------|---------|---------|
| | Bauer C | Bauer D | Bauer E | Bauer F |
| 20.07.1978 | 12,4 | 17,4 | | 1,5 |
| 18.08.1978 | | 4,3 | 0,80 | 24,0 |
| 07.09.1978 | 9,8 | 8,1 | | 5,3 |
| 21.10.1978 | 6,4 | 1,7 | | |
| Mittelwert | 9,5 | 7,9 | 0,80 | 10,2 |

Tab. 23: ^{226}Ra -Konzentration, gemessen in der Milch verschiedener Landwirte aus Menzenschwand

| Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|----------------------------------|---|
| Bauer J-Riggenbach 04.08.1978 | 0,33 |
| Bauer K-Häusern 04.08.1978 | 0,53 |
| Bauer L-Bernau Ost 04.08.1978 | 23,0 |
| Bauer M-Aule/Schluchsee | 32,0 |

Tab. 24: ^{226}Ra -Konzentration, gemessen in der Milch verschiedener Landwirte aus der Umgebung von Menzenschwand

| Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/l |
|--|--|
| Karlsruhe 05.08.1978 | 0,92 |
| Freiburg 05.08.1978 | 0,91 |
| Karlsruhe/Südschwarzwald 05.08.1978 | 3,5 |
| Waldshut/Tiengen 18.08.1978 | 5,7 |

Tab. 25: ^{226}Ra -Konzentrationen, gemessen in Milch verschiedener Molke-
reien

3.5 Die ^{226}Ra -Konzentration von Nahrungsmitteln, welche in Menzenschwand und Umgebung produziert werden

Um die Dosisbelastung der Menzenschwander Bevölkerung durch natürliches ^{226}Ra bestimmen zu können, war es notwendig, die Radiumgehalte in möglichst vielen Nahrungsmitteln des Südschwarzwaldes zu bestimmen. Die Produktion von Nahrungsmitteln ist in Menzenschwand von untergeordneter Bedeutung; daher war es nicht möglich, alle Nahrungsmittel, die zur Versorgung des Durchschnittsbürgers benötigt werden, in Menzenschwand selbst zu erhalten. Deshalb wurden in einzelnen Fällen Proben aus der näheren Umgebung des Menzenschwander Tals genommen.

Die Nahrungsmittel wurden im allgemeinen getrocknet, verascht und die Asche in ein 20 ml-Glasgefäß gebracht. Nach 2 bis 3 Wochen Lagerzeit zur Einstellung des Gleichgewichtes zwischen ^{226}Ra und seinen Folgeprodukten wurde am Ge(Li)-Detektor gemessen. In den meisten Fällen reichte die Nachweisgrenze des Ge(Li)-Detektors nicht aus; dann war eine radiochemische Analyse notwendig.

Die Ergebnisse der ^{226}Ra -Konzentrationen im Frisch- und im Aschegewicht und - soweit vorhanden - im Trockengewicht werden in Tab. 26 angegeben. In Tab. 27 sind Naßgewichte und Trockengewichte/g Asche angegeben. Unter Probenahme werden Personen angegeben, wenn die Probenahme in Menzenschwand erfolgte. Um später Transferfaktoren vom Boden zum pflanzlichen Nahrungsmittel berechnen zu können, wurden besonders bei Nahrungsmittelproben außerhalb des Menzenschwander Tals ^{226}Ra -Bestimmungen in den zugehörigen Bodenproben durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Messungen werden in Tab. 28 angegeben.

Mit den Ergebnissen in Tab. 26 zeigt sich, daß von den wichtigen Nahrungsmitteln der ^{226}Ra -Gehalt im Getreide relativ hoch ist und von den weniger wichtigen sind die relativ hohen Konzentrationen in Heidelbeeren, Leber und Eidotter zu nennen.

| Probe Nr. | Art der Probe | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/g | | |
|-----------|-----------------------------|---|---------|-------|
| | | frisch | trocken | Asche |
| 1 N | Kopfsalat 20.07.1978 | 0,17 | 2,34 | 5,6 |
| 2 N | Kohlrabi 04.08.1978 | 0,02 | - | 2,4 |
| 3 N | Heidelbeeren 03.08.1978 | 0,2 | - | 50,4 |
| 4 N/1 | Rind- Fleisch | 0,002 | - | 0,2 |
| 2 | Knochen | 0,04 | - | 2,5 |
| 3 | Nieren | 0,1 | - | 9,7 |
| 4 | Leber | 0,2 | - | 9,5 |
| 5 | Lunge | 0,01 | - | 1,5 |
| | 15.08.1978 | | | |
| 5 N/1 | Eier- Schalen | 0,3 | - | 0,5 |
| 2 | Eiweiß | 0,01 | - | 1,2 |
| 3 | Dotter | 0,3 | - | 9,3 |
| | 16.08.78 | | | |
| 6 N | Wirsingkraut 06.09.1978 | 0,009 | 0,11 | 1,1 |
| 7 N | grüne Bohnen 06.09.1978 | 0,005 | - | 2,0 |
| 8 N | Salat 06.09.1978 | 0,02 | 0,36 | 1,5 |
| 9 N | Salat 20.09.1978 | 0,15 | 1,13 | 3,7 |
| 10 N | Kartoffeln 20.09.1978 | 0,04 | - | 2,7 |
| 11 N | Weizen 06.09.1978 | 0,24 | 0,29 | 2,9 |
| 12 N | Gerste 06.09.1978 | 0,21 | 0,24 | 2,2 |
| 13 N | Hafer 05.10.1978 | 0,02 | 0,02 | 0,6 |
| 14 N | Kartoffeln 04.10.1978 | 0,03 | - | 2,2 |
| 15 N | Hirschfleisch 23.03.1979 | 0,24 | - | 4,4 |

Tab. 26: ^{226}Ra -Konzentrationen in Lebensmittelproben aus Menzenschwand und Umgebung

| Probe Nr. | Probenahme | Probengewicht in g/g Asche | |
|-----------|----------------------------------|----------------------------|-------------|
| | | Naßgewicht | Trockengew. |
| 1 N | Bauer A, Kopfsalat | 32,3 | 2,4 |
| 2 N | Todtmoos, Kohlrabi | 107,1 | - |
| 3 N | Untersuchungsgrube, Heidelbeeren | 331,0 | - |
| 4 N/1 | | 90,9 | - |
| 2 | Bauer G, Rind | 65,6 | - |
| 3 | | 80,0 | - |
| 4 | | 43,6 | - |
| 5 | | 133,3 | - |
| 5 N/1 | Bauer H, Eier | 1,8 | - |
| 2 | | 83,3 | - |
| 3 | | 34,0 | - |
| 6 N | Bauer C, Wirsingkraut | 116,7 | 10,0 |
| 7 N | Bauer C, grüne Bohnen | 375,0 | - |
| 8 N | Bauer C, Salat | 96,7 | 4,2 |
| 9 N | Bauer A, Salat | 24,9 | 3,3 |
| 10 N | Bauer C, Kartoffeln | 71,2 | - |
| 11 N | Grafenhausen, Weizen | 12,0 | 9,9 |
| 12 N | Grafenhausen, Gerste | 10,5 | 9,1 |
| 13 N | Grafenhausen, Hafer | 40,0 | 36,0 |
| 14 N | Bauer B, Kartoffeln | 66,7 | - |
| 15 N | Äule, Hirschfleisch | 18,1 | - |

Tab. 27: Probengewichte der Lebensmittelproben aus Menzenschwand und Umgebung

| Pflanzenart und Probenahme | ^{226}Ra -Konzentration in pCi/g trocken | | |
|---|---|----------|-----------|
| | Oberfläche | 0 - 5 cm | 5 - 20 cm |
| Bauer A, Kopfsalat 20.07.1978 | 2,8 | 2,8 | 2,7 |
| Todtmoos, Kohlrabi 04.08.1978 | | 1,3 | 1,7 |
| Untersuchungsgrube, Heidel- beeren, 20.09.1978 | 1,1 | | |
| Grafenhausen, Gerste 20.09.1978 | 1,2 | | |
| Grafenhausen, Weizen 20.09.1978 | 1,3 | | |
| Bauer C, Kartoffeln 20.09.1978 | 1,9 | | |
| Bauer A, Zwiebeln 21.09.1978 | 3,8 | | |
| Grafenhausen, Hafer 06.10.1978 | 1,2 | | |

Tab. 28: ^{226}Ra -Konzentrationen in der Wurzeleerde verschiedener pflanzlicher Nahrungsmittel in verschiedenen Bodentiefen

3.6 ^{226}Ra -Konzentrationen in Umweltproben aus Menzenschwand und Umgebung verglichen mit Literaturangaben

In [8] ist umfangreiches Informationsmaterial über die Verteilung von ^{226}Ra in der Umwelt gesammelt. Die dort angegebenen Werte werden in der Tab. 29 den wichtigsten in Menzenschwand und Umgebung gemessenen ^{226}Ra -Konzentrationen gegenübergestellt.

| Probenmaterial | ²²⁶ Ra-Konzentrationen in pCi/kg | |
|---|---|---|
| | Menzenschwand | [8] |
| Boden | 1 200 - 1 500 | 150 - 3 100 |
| Wasser: Fluß- und See- Grund- und Quell- Trink- | 0,03 - 2,5 0,1 - 1 549 0,11 - 0,57 | 0,002 - 62 0,001 - 237 800 0,005 - 50 |
| Nahrungsmittel: | | |
| Kartoffeln | 30 - 40 | 0,8 - 2,8 |
| Getreide, Mehl | 20 - 240 | 1,9 - 2,8 |
| Fleisch | 2 | 0,01 - 1,1 |
| Milch | 0,3 - 48 | 0,3 |
| Gemüse | 5 - 170 | 0,5 - 3,8 |
| Fisch | 1,4 - 211 | 5,1 |
| Eier | 80 | 3,1 - 6,1 |
| Innereien | 10 - 200 | 0,1 |

Tab. 29: ²²⁶Ra-Konzentrationen in Umweltproben aus Menzenschwand und Umgebung verglichen mit Literaturangaben [8]

4. DIE TRANSFERFAKTOREN VON RADIUM

Radioelemente verteilen sich zwischen der abiotischen Umwelt wie Erde und Wasser einerseits und den damit in Kontakt befindlichen Lebewesen, andererseits nach entsprechenden Gleichgewichten. Die Gleichgewichte werden beschrieben durch Transferfaktoren, dies sind in den meisten Fällen die Verhältnisse der Radioelementkonzentrationen im lebenden und im abiotischen Material. Solche Transferfaktoren hängen von einer großen Zahl von Parametern ab; im allgemeinen sind die detaillierten Abhängigkeiten aber nicht bekannt. Daher muß man sich mit einem mittleren Trans-

ferfaktor begnügen. Die Kenntnis von Transferfaktoren erlaubt es, bei bekannter Kontamination der Erde oder des Wassers die Kontamination von Lebewesen zu berechnen. Diese Transferfaktoren sind mit der oben genannten Einschränkung gültig über große Bereiche der Konzentrationen der Radioelemente.

Da für Radium nur einige Transferfaktoren gemessen wurden, erfolgte die Probenahme bei dem hier beschriebenen Forschungsprogramm im allgemeinen so, daß eine größtmögliche Zahl von Transferfaktoren aus den erhaltenen Einzelkonzentrationen berechenbar war.

4.1 Der Ra-Transferfaktor Fisch/Wasser

Die Kenntnis des Transferfaktors Fisch/Wasser erlaubt die Berechnung der Kontamination von Fischen, wenn die Kontamination von Wasser bekannt ist. Der Transferfaktor ist definiert als das Verhältnis der Ra-Konzentrationen von Fisch zu Wasser, angegeben jeweils in pCi/kg.

Da erwartet wurde, daß zwischen dem Transferfaktor Fisch/Wasser und Fischfleisch/Wasser ein nennenswerter Unterschied vorliegt, wurden die ^{226}Ra -Konzentrationen in Eingeweiden, Kopf, Gräten und Flossen und im Fischfleisch getrennt bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tab. 30 angegeben. Aus den erhaltenen Mittelwerten ergibt sich, daß auf die Eingeweide, das Knochenskelett und das Fleisch sich jeweils etwa ein Drittel des ^{226}Ra verteilt.

In Tab. 31 werden die Transferfaktoren Fisch/Wasser und Fischfleisch/Wasser angegeben. Sie wurden errechnet aus den in den Forellen des Krunkelbaches, der Menzenschwander Alb und der Fischzucht in Grafenhausen-Seehof gemessenen ^{226}Ra -Gehalten des Gesamtgewichtes und des Fischfleisches. Die Wasserkonzentrationen des ^{226}Ra wurden entnommen aus den Abbn. 3, 4 und 5 und der Angabe für die Schlucht in Tab. 15, WU 23. Da für den Krunkelbach knapp nach der Einleitung des Grubenwassers und knapp vor dem Zusammenfluß mit der Feld-

berger Alb ^{226}Ra -Konzentrationen vorliegen, wurden zur Berechnung die Mittelwerte dieser Konzentrationen verwendet. Der Transferfaktor Fisch/Wasser beträgt 28 ± 12 bezogen auf das Gesamtgewicht und 22 ± 14 bezogen auf das Fischfleisch. Überraschend ist die große Streuung der Ergebnisse bei den Transferfaktoren bezogen auf Fischfleisch von über zwei Größenordnungen.

| Probe Nr. | Anteil des ^{226}Ra in verschiedenen Körperteilen von Forellen in % | | |
|------------|--|-----------------------|------------|
| | Eingeweide | Kopf, Gräten, Flossen | Fleisch |
| 1 F | - | - | - |
| 2 F | - | - | - |
| 3 F | 28,3 | 43,1 | 28,5 |
| 4 F | 4,3 | 49,2 | 46,5 |
| 5 F | 28,4 | 23,2 | 48,4 |
| 6 F | 20,7 | 34,3 | 45,0 |
| 7 F | 43,8 | 3,6 | 52,6 |
| 8 F | 64,1 | 19,5 | 16,4 |
| 9 F | 54,4 | 41,6 | 4,0 |
| Mittelwert | 35 ± 8 | 31 ± 6 | 35 ± 7 |

Tab. 30: Verteilung von ^{226}Ra auf verschiedene Körperteile von Fischen

| Probenahme | Transferfaktoren für Forelle/Wasser | |
|-----------------------------------|-------------------------------------|----------------------------------|
| | in pCi/kg Forelle Fleisch | : pCi/kg Wasser Gesamtgewicht |
| Krunkelbach 28.04.1978 | - | 23 |
| Menzenschwander Alb 30.04.1978 | - | - |
| Krunkelbach 17.06.1978 | 3 | 7 |
| Grafenhausen-Seehof 20.07.1978 | 15 | 17 |
| Krunkelbach 03.08.1978 | 103 | 103 |
| Menzenschwander Alb 06.09.1978 | 14 | 17 |
| Krunkelbach 21.09.1978 | 11 | 11 |
| Krunkelbach 06.10.1978 | 9 | 27 |
| Menzenschwander Alb 20.10.1978 | 1 | 17 |

Tab. 31: Transferfaktoren Forelle/Wasser für ^{226}Ra im Krunkelbach, in der Menzenschwander Alb und in der Schlucht

4.2 Der Ra-Transferfaktor Wasser/Sedimente

Die Kenntnis des Transferfaktors Wasser/Sedimente erlaubt die Berechnung der mittleren Wasserkontamination bei bekannter Sedimentkontamination. Ein Gleichgewicht zwischen Wasser und Sediment stellt sich ein, wenn der Sedimentationsprozeß und der Resuspensionsprozeß gleiche Aktivitäten

transportiert. Der Transferfaktor ist definiert als Verhältnis der Ra-Konzentrationen in Wasser und Sedimenten, jeweils angegeben in pCi/kg.

Der Ra-Transferfaktor für Wasser/Sedimente wurde einerseits im dritten Absetzbecken gemessen und andererseits in den Menzenschwander Bächen und deren Sedimenten. Die Ergebnisse der 1. Messung werden in Tab. 32 wiedergegeben, die Ergebnisse der 2. Messung in Tab. 33. Die Ergebnisse, die im dritten Absetzbecken erhalten wurden, haben einen Mittelwert von $(11 \pm 4) \cdot 10^{-5}$. Die Ergebnisse, die in den Menzenschwander Bächen gemessen wurden, ergaben einen Mittelwert von $(26 \pm 6) \cdot 10^{-5}$. Der um den Faktor 2 höhere Wert in den Menzenschwander Bächen spricht dafür, daß die reine chemische Löslichkeit von ^{226}Ra in diesen Bächen neben dem Sedimentier- und Resuspensionsprozeß einen größeren Einfluß ausübt.

| Probenahme | | Transfer Wasser/Sedimente aus dem dritten Absetzbecken in pCi/kg Wasser : pCi/kg Sediment |
|--------------|------------|--|
| Sediment | Wasser | |
| 1977: Dez. | 1977: Dez. | $44 \cdot 10^{-5}$ |
| 1978: 30.03. | 30.03. | $16 \cdot 10^{-5}$ |
| 12.05. | 12.05. | $1 \cdot 10^{-5}$ |
| 17.06. | 13.06. | $5 \cdot 10^{-5}$ |
| 28.06. | 27.06. | $53 \cdot 10^{-5}$ |
| 19.07. | 20.07. | $1 \cdot 10^{-5}$ |
| 03.08. | 02.08. | $3 \cdot 10^{-5}$ |
| 15.08. | 18.08. | $7 \cdot 10^{-5}$ |
| 06.09. | 06.09. | $5 \cdot 10^{-5}$ |
| 20.09. | 20.09. | $5 \cdot 10^{-5}$ |
| 04.10. | 03.10. | $6 \cdot 10^{-5}$ |
| 19.10. | 17.10. | $2 \cdot 10^{-5}$ |
| 03.11. | 02.11. | $3 \cdot 10^{-5}$ |
| 18.11. | 18.11. | $7 \cdot 10^{-5}$ |
| 05.12. | 06.12. | $15 \cdot 10^{-5}$ |
| 12.12. | 12.12. | $7 \cdot 10^{-5}$ |
| Mittelwert | | $(11 \pm 4) \cdot 10^{-5}$ |

Tab. 32: Transferfaktoren Wasser/Sedimente für ^{226}Ra , gemessen im dritten Absetzbecken

| Probenahme | | Transfer Wasser/Sedimente aus den Menzschwander Bächen in pCi/kg Wasser : pCi/kg Sediment |
|---|------------|---|
| Sediment | Wasser | |
| Rehbach 01.06.1978 | 17.06.1978 | 2 ± 10^{-5} |
| Kriegsbach 01.06.1978 | 17.06.1978 | 4 ± 10^{-5} |
| Bernauer Alb 01.06.1978 | 16.06.1978 | 30 ± 10^{-5} |
| Farnwittebach 01.06.1978 | 30.05.1978 | 6 ± 10^{-5} |
| Geschweihbach 02.06.1978 | 30.05.1978 | 11 ± 10^{-5} |
| Bernauer Alb/ Bernau-Ost 01.06.1978 | 16.06.1978 | 33 ± 10^{-5} |
| Schwarzenbächle bei Lindau 28.06.1978 | 28.06.1978 | 29 ± 10^{-5} |
| Schwarzenbächle an der Mündung 28.06.1978 | 28.06.1978 | 22 ± 10^{-5} |
| Wüstengraben Quelle 1 28.06.1978 | 28.06.1978 | 53 ± 10^{-5} |
| Mittelwert | | $(26 \pm 6) \pm 10^{-5}$ |

Tab. 33: Transferfaktoren Wasser der Menzschwander Bäche/Sedimente dieser Bäche für Radium

4.3 Der Ra-Transferfaktor Milch/Gras

Die Kenntnis des Transferfaktors Milch/Gras erlaubt es bei bekannter Konzentration des Weidegrases, die Milchkonzentration zu berechnen. Der Transferfaktor Milch/Gras wird auf zwei verschiedene Arten definiert. Entweder wird das Verhältnis der ^{226}Ra -Konzentrationen der Milch und des Frischfutters angegeben oder es wird der Bruchteil des ^{226}Ra angegeben, der vom täglich aufgenommenen Radium in 1 l Milch wiedergefunden wird.

Zur Berechnung des ersten Transferfaktors wurden die in Tab. 19 angegebenen ^{226}Ra -Gehalte in Gras und Heu verwendet. Die Umrechnung von den dort angegebenen ^{226}Ra -Konzentrationen bezogen auf das Trockengewicht erfolgt unter Annahme von 80 % Trocknungsverlust der Frischsubstanz. Entsprechend dem Probenahmedatum von Gras und Heu wurden diese Konzentrationen mit Milchkonzentrationen von den gleichen Bauern verglichen. Zur Berechnung des zweiten angegebenen Faktors wurde von einer Tagesaufnahme der Rinder von 11 kg Trockensubstanz ausgegangen. Als Mittelwert des Transferfaktors Milch/Gras wurde $0,2 \pm 0,05$ bzw. $0,3 \pm 0,1$ % erhalten. Dies bedeutet, daß in 1 l Milch etwa 20 % des Radiums, welches in 1 kg frischem Weidegras enthalten ist, wiederzufinden sein wird bzw. etwa 0,3 % des täglich aufgenommenen ^{226}Ra /l Milch zu erwarten ist. Die Einzelergebnisse sind in Tab. 34 enthalten.

| Probe Nr. | Transferfaktoren | |
|--------------|-------------------------------------|--|
| | Milch/Gras pCi/l : pCi/kg frisch | zur Milch überführter Anteil der Tagesaufnahme in %/l |
| 1 G | 0,3 | 0,5 |
| 2 G | 0,1 | 0,2 |
| 3 G | 0,1 | 0,1 |
| 4 G | 0,4 | 0,7 |
| 5 G | 0,4 | 0,7 |
| 6 G | 0,5 | 0,9 |
| 7 G | 0,02 | 0,03 |
| 8 G | 0,03 | 0,1 |
| 9 G | 0,2 | 0,2 |
| 10 G | 0,1 | 0,2 |
| 11 G | 0,03 | 0,05 |
| Mittelwert | $0,2 \pm 0,05$ | $0,3 \pm 0,1$ |

Tab. 34: Transferfaktoren Milch/Gras für ^{226}Ra

4.4 Der Ra-Transferfaktor Gras/Boden und Wildpflanze/Boden

Die Kenntnis der Transferfaktoren Gras/Boden erlaubt es bei Kenntnis der Bodenkonzentration die Konzentration des Weidegrases zu berechnen. Die Transferfaktoren Wildpflanze/Boden wurden berechnet, um eventuell vorhandene Bioindikatoren im Raum Menzenschwand zu identifizieren. Beide Faktoren sind definiert als das Verhältnis der Radiumkonzentrationen von Frischgewicht der Pflanze zum Trockengewicht des Bodens.

Die Ergebnisse der Berechnung der Ra-Transferfaktoren Gras/Boden werden in Tab. 35 wiedergegeben. Für die Bodenkontamination wurde dabei der mittlere Wert von $2,86 \text{ pCi } ^{226}\text{Ra/g}$ trocken eingesetzt und die ^{226}Ra -Kontamina-

tionen von Gras und Heu aus Tab. 9 verwendet. Für den Trockenverlust wurden 80 % angesetzt. Der Mittelwert der Ergebnisse liegt bei $0,027 \pm 0,005$.

| Probe Nr. | ^{226}Ra -Transfer Gras/Boden in pCi/g Gras, frisch : pCi/g Boden, trocken |
|------------|--|
| 1 G | 0,08 |
| 2 G | 0,01 |
| 3 G | 0,02 |
| 4 G | 0,02 |
| 5 G | 0,02 |
| 6 G | 0,03 |
| 7 G | 0,03 |
| 8 G | 0,02 |
| 9 G | 0,02 |
| 10 G | 0,03 |
| 11 G | 0,02 |
| Mittelwert | $0,027 \pm 0,005$ |

Tab. 35: Transferfaktoren Gras/Boden für ^{226}Ra

Die Transferfaktoren für die Wildpflanzen sind in den Tabn. 36 und 37 dargestellt. In Tab. 36 wurden, wie oben angegeben, $2,86 \text{ pCi } ^{226}\text{Ra/g}$ trocken für die Bodenkontamination angesetzt, während in Tab. 37 parallel mit der Pflanzenprobenahme eine Erdprobenahme erfolgte. Aus den Ergebnissen ist zu erkennen, daß keine der Wildpflanzen nennenswert ^{226}Ra anreichert. Daher wurde kein Bioindikator für Radium im Raum des Südschwarzwaldes gefunden.

Aus dem in Tab. 35 angegebenen Ra-Transferfaktor Gras/Boden von $0,027 \pm 0,005$ und dem in Tab. 34 angegebenen Ra-Transferfaktor Milch/Gras von $0,20 \pm 0,05$ ist ein Ra-Transferfaktor Milch/Boden zu errechnen. Mit diesem Transferfaktor ist bei bekannter Bodenkonzentration mit Ra die örtliche Radiumkonzentration der Milch zu berechnen. Als Ergebnis des Produktes der zwei an-

| Probenahme | Transferfaktor in pCi ²²⁶ Ra/kg Pflanze, frisch:pCi ²²⁶ Ra/kg Boden, trocken* |
|------------------------------|--|
| Brunnenkresse 28.06.1978 | 0,112 |
| Brunnenkresse 20.07.1978 | 0,068 |
| Schachtelhalme 04.08.1978 | 0,117 |
| Huflattich 30.09.1978 | 0,028 |
| Farn 30.09.1978 | 0,043 |

*Es wurde eine mittlere Bodenkonzentration von 2,86 nCi ²²⁶Ra/kg trocken

Tab. 36: Transferfaktoren Wildpflanze/Erde

| Probenahme | Art der Probe | ²²⁶ Ra-Konzentration in pCi/g trocken | | Transferfaktor pCi/g Pflanze tr.: pCi/g Boden tr. |
|---|---------------|---|-------|---|
| | | Pflanze | Boden | |
| 50 m Umkreis vor der westl. Ausfahrt der Grube 30.06.1978 | Lupinen 1 | 3,2 | 5,1 | 0,63 |
| Äule an der Serpentine 05.10.1978 | Lupinen 2 | 0,1 | 1,8 | 0,06 |
| Äule an der Serpentine 05.10.1978 | Schafgarbe | 0,3 | 2,7 | 0,11 |

Tab. 37: Transferfaktoren Wildpflanze/Erde

gegebenen Faktoren erhält man für den Ra-Transferfaktor Milch/Boden $0,005 \pm 0,002$. Dies bedeutet, daß 0,5 % des im kg trockenen Bodens enthaltenen Radiums in 1 l Milch zu erwarten sind. Anders ausgedrückt: in 1 l Milch befindet sich jene Radiumaktivität, die in 5 g Boden vorhanden ist.

4.5 Der Ra-Transferfaktor Nahrungsmittel/Boden

Die Kenntnis der Transferfaktoren Nahrungsmittel/Boden erlaubt die Berechnung der ^{226}Ra -Konzentration verschiedener Nahrungsmittel, wenn die Bodenkonzentration bekannt ist. Diese Aussage gilt dann, wenn zur Ernährung der Haustiere, die Fleisch, Milch und Eier produzieren, ausschließlich lokal gewonnene Futtermittel verwendet werden. Der Ra-Transferfaktor Nahrungsmittel/Boden ist definiert als das Verhältnis der Ra-Konzentrationen im Nahrungsmittel und im Boden. Dabei wird auf 1 kg Frischgewicht bei den Nahrungsmitteln und auf 1 kg Trockengewicht beim Boden bezogen.

Die Ergebnisse der in Menzenschwand gemessenen Ra-Transferfaktoren Nahrungsmittel/Boden sind in Tab. 38 angegeben. Die Transferfaktoren wurden errechnet aus den in Tab. 26 angegebenen ^{226}Ra -Kontaminationen und der mittleren Bodenkontamination des Menzenschwander Tales von 2,86 pCi ^{226}Ra /g Trockengewicht. Ein nennenswerter Teil der pflanzlichen Nahrungsmittel wurde gleichzeitig mit einer Bodenprobe genommen. Die Berechnung der Ra-Transferfaktoren erfolgte in diesen Fällen mit den jeweils gemessenen Ra-Kontaminationen der Bodenproben.

| Nahrungsmittel | Transferfaktor in pCi ²²⁶ Ra/kg Nahrungsmittel : pCi ²²⁶ Ra/kg Boden frisch trocken |
|---|---|
| Blattgemüse: - Kopfsalat - Kopfsalat - Kopfsalat - Wirsingkraut - grüne Bohnen | 0,06 0,07* 0,07* 0,003* 0,002* |
| Wurzelgemüse: - Kohlrabi - Kartoffeln - Kartoffeln | 0,02 0,02 0,01 |
| Getreide: - Weizen - Gerste - Hafer | 0,2 0,2 0,02 |
| Fleisch: - Rindfleisch - Rinderknochen - Rindernieren - Rinderleber - Rinderzunge - Hirschfleisch | 0,001* 0,01* 0,04* 0,07* 0,003 * 0,08 |
| Sonstiges: - Heidelbeeren - Eidotter - Eiweiß | 0,2 0,1* 0,003* |

*Bei den mit *bezeichneten Proben wurde eine mittlere Bodenkontamination von 2,86 pCi ²²⁶Ra/g trocken angesetzt.

Tab. 38: Transferfaktor Nahrungsmittel/Boden für ²²⁶Ra

5. DIE DOSISBELASTUNG DER BEVÖLKERUNG AUS MENZENSCHWAND UND UMGEBUNG
DURCH DIE NATÜRLICHE ^{226}Ra -KONZENTRATION DER UMWELT

5.1 Die Jahresingestion von natürlichem ^{226}Ra mit Lebensmitteln aus
Menzenschwand und Umgebung

Mit Ausnahme von Pilzen wurden praktisch alle Lebensmittel im Menzenschwander Raum auf ^{226}Ra untersucht. Die ^{226}Ra -Konzentrationen und der Pro-Kopf-Verbrauch dieser Lebensmittel, entnommen aus dem Ernährungsbericht 1976 [9], sind in Tab. 39 angegeben. Aus diesen Daten wurde die Jahresingestion berechnet und in Tab. 40 angegeben.

| Nahrungsmittel Bezeichnung | aus Menzenschwand Konzentration in pCi/kg frisch | Nahrungsmittelverbrauch entspr. [9] | |
|-------------------------------|--|---|------|
| | | Bezeichnung | kg/a |
| Trinkwasser | 0,31 | siehe Text | 557 |
| Milch | 8,9 | Trinkmilch, Buttermilch | 70,5 |
| Forellen | 10,5 | frische und tiefgefrorene Süßwasserfisch | 0,3 |
| Kartoffeln | 35 | Kartoffeln | 68,5 |
| Weizen | 240 | Weizenmehl | 11,7 |
| Rindfleisch | 2 | Rindfleisch, Kalbfleisch | 10,3 |
| Leber, Niere | 150 | Innereien | 2,7 |
| Eier (Dotter = 25 %) | 83 | Eier | 0,25 |
| Salat | 113 | grüner Salat | 3,1 |
| Kohlrabi, Wirsing | 15 | sonstiger Kohl | 4,3 |
| Heidelbeeren | 200 | sonstige Beerenfrüchte | 0,4 |
| Hirschfleisch | 243 | Wild | 0,4 |

Tab. 39: ^{226}Ra -Konzentration der Lebensmittel, welche in Menzenschwand und Umgebung gewonnen werden und der mittlere Pro-Kopf-Verbrauch dieser Nahrungsmittel entsprechend [9]

| Nahrungsmittel | Jahresaufnahme in pCi $^{226}\text{Ra}/\text{a}$ |
|----------------------|--|
| Weizen | 2 810 |
| Kartoffeln | 2 400 |
| Milch | 630 |
| Leber, Niere | 405 |
| Salat | 350 |
| Trinkwasser | 170 |
| Hirschfleisch | 97 |
| Heidelbeeren | 80 |
| Kohlrabi und Wirsing | 65 |
| Eier | 21 |
| Rindfleisch | 21 |
| Hafer | 18 |
| Forellen | 3 |
| S u m m e | 7 070 |

Tab. 40: Maximal mögliche Jahresaufnahme von ^{226}Ra durch die Bevölkerung von Menzenschwand

Für Trinkwasser wurden 880 l/a angesetzt [3]; von diesem Wert wurde der Jahresverbrauch an Mineralwasser, Milch, alkoholischen und nichtalkoholischen Getränken subtrahiert. Wegen der geringen Mengen an Lebensmitteln, die im Menzenschwander Raum produziert werden, ist der aus dem Ernährungsbericht 1976 entnommene Pro-Kopf-Verbrauch zu hoch. Dies gilt ganz besonders für Rindfleisch, Innereien, Weizen, Eier, Salat und Gemüse.

Aus Tab. 40 geht hervor, daß unter Berücksichtigung der oben genannten Einschränkungen mit einer Jahresingestion von 7,0 nCi ^{226}Ra in Menzenschwand zu rechnen ist. Dies ist wesentlich mehr als die jährliche ^{226}Ra -Ingestion von 2,0 nCi ^{226}Ra , welche in ICRP 2 [10] als Jahresingestion angegeben wird. Berücksichtigt man, daß ein Anteil von 0,3 des aufgenomme-

nen Radiums vom Magen-Darm-Trakt ins Blut gebracht wird und daß für den Gesamtkörper ^{226}Ra eine effektive Halbwertszeit von 900 d hat [10], dann errechnet man als body burden nach einigen Jahren des Aufenthaltes in diesem Bereich 7,4 nCi ^{226}Ra . Obwohl die Strahlenschutzverordnung [4] nicht zuständig ist für natürliche Strahlenbelastung, soll zum Vergleich angegeben werden, daß nach ihr nur 580 pCi ^{226}Ra /Jahr durch Ingestion aufgenommen werden dürfen. Die Jahresingestion von 7,0 nCi ^{226}Ra ist also 12mal mehr, als in der Strahlenschutzverordnung für Ingestion vorgesehen ist.

5.2 Die berechnete Jahresingestion von natürlichem ^{226}Ra mit dem Pro-Kopf-Verbrauch der "Berechnungsgrundlagen"

Mit dem in [3, 11] angenommenen Jahreskonsum an Lebensmitteln und den in Menzenschwand gemessenen ^{226}Ra -Konzentrationen in diesen Lebensmitteln wurde die Jahresingestion von ^{226}Ra berechnet. Die Ergebnisse sind in Tab. 41 wiedergegeben. Danach ist mit einer Jahresingestion von 89,3 nCi ^{226}Ra zu rechnen, welche entsprechend den obigen Überlegungen 95,5 nCi ^{226}Ra als body burden verursacht. Dieser Wert ist 13mal so groß wie der

| Nahrungsmittel | Nahrungsaufnahme in kg/a | ^{226}Ra -Aufnahme in pCi/a |
|----------------|-----------------------------|---|
| Trinkwasser | 880 | 270 |
| Fisch | 39 | 410 |
| Milch | 330 | 2 940 |
| Fleisch | 150 | 300 |
| Getreide | 288 | 69 120 |
| Kartoffeln | 261 | 9 140 |
| Blattgemüse | 63 | 7 120 |

Tab. 41: Jahresaufnahme von ^{226}Ra mit den gemessenen ^{226}Ra -Konzentrationen und den nach [3, 11] zu verwendenden Nahrungsmittelmengen

entsprechend dem Pro-Kopf-Verbrauch des Ernährungsberichtes 1976 berechneten Wert. Die Jahresingestion liegt um den Faktor 154 über dem von der Strahlenschutzverordnung maximal zulässigen Ingestionswert.

Geht man von den 32 mCi ^{226}Ra als Jahresemission aus und berechnet die Jahresingestion der Bevölkerung entsprechend den "Berechnungsgrundlagen", erhält man einen niedrigeren Wert für die Jahresingestion von ^{226}Ra . Er liegt nur um den Faktor 5 über dem in Kapitel 5.1 errechneten Wert. Der Grund dafür ist zu suchen in der nennenswerten Abweichung zwischen dem in den "Berechnungsgrundlagen" empfohlenen Transferfaktor Boden/Pflanze und den gemessenen Werten im Raum Menzenschwand. Die in den "Berechnungsgrundlagen" empfohlenen Faktoren und die in Menzenschwand gemessenen sind in Tab. 42 gegenübergestellt.

| Transfer in d/l kg | Transferfaktoren | |
|-----------------------|--------------------------|----------------------|
| | gemessen | empfohlen in [3, 11] |
| Milch | $3,0 \cdot 10^{-3}$ | $8,0 \cdot 10^{-3}$ |
| Fleisch | $(0,1-8) \cdot 10^{-2}$ | $3,4 \cdot 10^{-2}$ |
| Pflanze/Boden | | |
| Gras | $27 \cdot 10^{-3}$ | $1,4 \cdot 10^{-3}$ |
| Getreide | $(20-200) \cdot 10^{-3}$ | |
| Blattgemüse | $(3-70) \cdot 10^{-3}$ | |
| Kartoffeln | $(10-20) \cdot 10^{-3}$ | |
| Fisch/Wasser | 22 | 100 (für Ba) |

Tab. 42: Vergleich der in Menzenschwand und Umgebung gemessenen Transferfaktoren mit den in den "Berechnungsgrundlagen" empfohlenen

5.3 Die Messung der Bodyburden von ^{226}Ra der Bürger von Menzenschwand

Um die auf der Basis des Ernährungsberichtes von 1976 berechnete Bodyburden mit Meßwerten zu vergleichen, wurden 28 Bürger aus Menzenschwand in einem Bodycounter mit einem Ge(Li)-Detektor γ -spektrometriert.

Bei der Auswahl der Mitglieder der Bevölkerung wurde Wert darauf gelegt, daß eine ununterbrochene Aufenthaltszeit von mindestens 15 Jahren in Menzenschwand gegeben war, daß ältere Leute bevorzugt wurden und daß der größte Teil der zu Messenden mit Landwirtschaft, Fischfang oder Jagd zu tun hat. Die Messung erfolgte 50 Minuten im Bodycounter der KfK; bei der Auswertung wurden die Gammalinien des ^{214}Bi , ^{214}Pb und ^{226}Ra unter Berücksichtigung einer Exhalationsrate [15] des Radons von 66 % herangezogen. Die so erreichte Nachweisgrenze lag bei 7,5 nCi.

Alle 28 Meßwerte lagen unter dieser Nachweisgrenze. Betrachtet man die 28 Meßwerte als zu einer Stichprobe gehörig, dann kann aus den Meßwerten und unter Berücksichtigung der entsprechend der Zählstatistik bestimmten Standardabweichungen ein Mittelwert und dessen Fehler für die ^{226}Ra -Bodyburden der ganzen Gruppe berechnet werden. Der so bestimmte Wert lag bei $0,3 \pm 0,7$ nCi ^{226}Ra . Obwohl - wie aus einer Befragung der Gemessenen hervorging - teilweise extreme Ernährungsgewohnheiten vorlagen, z.B. bis zu 400 l Milch pro Jahr, konnte in keinem Fall eine ^{226}Ra -Bodyburden größer 7,5 nCi gemessen werden.

5.4 Der Vergleich der ^{226}Ra - und der ^{137}Cs -Bodyburden

Obwohl die oben angegebene ^{226}Ra -Bodyburden von 0,3 nCi nicht signifikant gemessen wurde, weist folgende Überlegung auf die ungefähre Richtigkeit des Wertes hin. Nach [7] liegt in nicht kontaminierten Bereichen die ^{226}Ra -Bodyburden bei ca. 31 pCi. Nach Tabelle 45 und Tabelle 46 ist der ^{226}Ra -Gehalt der obersten Bodenschicht in Menzenschwand etwa 16 mal größer als in Karlsruhe. Die Bodenkontamination mit ^{226}Ra in Karlsruhe darf als durch-

schnittlich bezeichnet werden. Da für die ^{226}Ra -Bodyburden die ^{226}Ra -Kontamination von Milch, Fleisch und pflanzlichen Nahrungsmitteln verantwortlich und andererseits die Kontamination dieser Nahrungsmittel proportional dem ^{226}Ra -Gehalt der obersten Bodenschicht ist, ist in Menzenschwand auch der 16-fache Werte der durchschnittlichen ^{226}Ra -Bodyburden zu erwarten. Dieser würde mit dem Wert aus [7] 0,5 nCi betragen. Dieser Wert stimmt in etwa überein mit den oben angegebenen 0,3 nCi.

Um den genauen ^{226}Ra -Gehalt der Bevölkerung in Menzenschwand und Umgebung in Abhängigkeit von deren Alter bestimmen zu können, wird zur Zeit in Zusammenarbeit mit mehreren Zahnärzten ein Probenahmeprogramm von Zähnen durchgeführt. Aus der ^{226}Ra -Bestimmung und Ca-Bestimmung in diesen Zähnen erwarten die Verfasser, die Bodyburden von ^{226}Ra in der Bevölkerung von Menzenschwand und Umgebung mit hoher Genauigkeit bestimmen zu können. Der Abschluß dieser Arbeiten ist Ende 1979 zu erwarten.

Der Unterschied zwischen den oben angegebenen 0,3 nCi und den in Tab. 40 angegebenen 7,0 nCi als ^{226}Ra -Bodyburden ist nur verständlich, wenn man annimmt, daß in Menzenschwand nur ein Teil der Nahrung lokal produziert wird. Aus den beiden Zahlen ergibt sich, daß etwa 4 bis 5 % der von der untersuchten Gruppe aufgenommenen Nahrungsmittel aus Menzenschwand stammen können. Da dieser Wert zu niedrig erscheint, kann nicht ausgeschlossen werden, daß er Ra-Transport aus dem Magen-Darm-Trakt in den Körper im benutzten Modell zu hoch angesetzt wird.

Gleichzeitig während der Messung des ^{226}Ra im Bodycounter der KfK wurde das vom Kernwaffen-Fallout stammende ^{137}Cs gemessen. Die ungewöhnlich hohen ^{137}Cs -Bodyburden der untersuchten Personen sind in Tabelle 43 angegeben. In Tabelle 44 wurde der Mittelwert aus Menzenschwand mit einem Karlsruher Mittelwert verglichen. Wegen der zur Zeit geringen Luftkontamination durch Radionuklide des Kernwaffen-Fallouts und der hohen in den 60-er Jahren aufgebaute Bodenkontamination ist auch bei ^{137}Cs die Bodenkontamination im wesentlichen verantwortlich für die Bodyburden. Aus Tabelle 45 und 46 geht hervor, daß die Kontamination der obersten Bodenschicht mit ^{137}Cs in Menzenschwand etwa 9 mal so hoch ist wie in Karlsruhe. Dementsprechend würde man eine 9-fache Bodyburden in Menzenschwand erwarten. Die Tatsache, daß die ^{137}Cs -Bodyburden in Menzenschwand 26 mal so hoch ist wie in Karlsruhe, bedeutet, daß in Menzenschwand etwa 3 mal soviel lokale

Nahrungsmittel verwendet werden wie im Karlsruher Durchschnitt. Dies würde aber unter Berücksichtigung der oben genannten 4 % für Karlsruhe und sicher auch andere Bereiche der Bundesrepublik eine Verwendung von etwa 1,3 % lokal produzierter Nahrungsmittel bedeuten. Die Verwendung des Jahreskonsums entsprechend dem Ernährungsbericht 1976 bei Dosisberechnungen kann daher in ländlichen Gebieten und in noch höherem Maße in städtischen Gebieten zu einer Fehleinschätzung der realen Belastung führen.

| Personen Geschlecht | Körperaktivität in nCi ^{137}Cs | Personen Geschlecht | Körperaktivität in nCi ^{137}Cs |
|------------------------|---|------------------------|---|
| Männlich | | 15 | 6,69 |
| 1 | 0,78 | 16 | 5,75 |
| 2 | 11,80 | 17 | 7,78 |
| 3 | 3,44 | Weiblich | |
| 4 | 3,28 | 18 | 1,92 |
| 5 | 4,58 | 19 | 4,96 |
| 6 | 21,16 | 20 | 17,26 |
| 7 | 4,95 | 21 | 0,34 |
| 8 | 3,34 | 22 | 5,33 |
| 9 | 3,48 | 23 | 1,57 |
| 10 | 0,78 | 24 | 3,09 |
| 11 | 7,65 | 25 | 0,83 |
| 12 | 0,36 | 26 | 1,87 |
| 13 | 10,29 | 27 | 3,28 |
| 14 | 0,98 | 28 | 14,12 |

Tab. 43: Die ^{137}Cs -Bodyburden von 28 Bürgern von Menzenschwand

| Wohnort | Zahl der gemessenen Personen | Mittelwert der Körperaktivität in nCi ^{137}Cs |
|---------------|------------------------------|---|
| Menzenschwand | 28 | 5,5 |
| Karlsruhe | 7 | 0,21 |

Tab. 44: Mittlere ^{137}Cs -Aktivität in der Bevölkerung von Menzenschwand und Karlsruhe

| Proben-Nr. | Konzentration in pCi/g trocken | |
|------------|--------------------------------|-------------------|
| | ^{226}Ra | ^{137}Cs |
| 1 | 0,17 | 0,12 |
| 2 | 0,25 | 0,55 |
| 3 | 0,14 | 0,49 |
| 4 | 0,18 | 0,21 |
| 5 | 0,16 | 0,27 |
| Mittelwert | 0,18 | 0,33 |

Tab. 45: ^{226}Ra - und ^{137}Cs -Konzentrationen in Bodenproben aus der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe (Probenahme 0-5 cm Tiefe)

| Proben-Nr. | Konzentration in pCi/g trocken | |
|------------|--------------------------------|-------------------|
| | ^{226}Ra | ^{137}Cs |
| 1 | 2,4 | 2,6 |
| 2 | 3,8 | 3,8 |
| 3 | 2,4 | 3,2 |
| 4 | 2,7 | 2,8 |
| Mittelwert | 2,8 | 3,1 |

Tab. 46: ^{226}Ra - und ^{137}Cs -Konzentrationen in Bodenproben an dem Menzenschwander Tal (Probenahme 0-5 cm Tiefe)

6. ANHANG - Probenaufbereitung und Analysenmethode für ^{226}Ra

Pflanzen, Nahrungsmittel:

- 1) Die Proben werden getrocknet, mit Salpetersäure befeuchtet und bei 800°C über Nacht im Muffelofen verascht. Die Asche soll frei von Kohlenstoffresten, also ganz weiß, sein. Für die Analyse werden 10 g fein zermörserte Asche verwendet.
- 2) Die Asche wird in 50 ml 3 M HNO_3 gelöst, 25 mg Ba^{2+} als Träger zugesetzt und 5 min zentrifugiert. Mit 100 ml 1 M HNO_3 wird nachgespült. Die Lösungen werden in einem Becherglas gesammelt und mit H_2O dest. auf 1 l aufgefüllt.
- 3) 5 ml 1 M Zitronensäure werden zugegeben, die Lösung zum Kochen gebracht und langsam 50 ml 3 M H_2SO_4 und 200 mg Pb-Träger zugesetzt.
- 4) Die Probe wird erhitzt und der Niederschlag über Nacht absitzen lassen.
- 5) Die überstehende Lösung wird vorsichtig dekantiert, der Rest zentrifugiert.

Wasser:

- 1) 10 l Wasser auf 200 ml eindampfen.
- 2) 10 ml HNO_3 conc. und 25 mg Ba^{2+} -Träger zugeben, 30 bis 60 min kochen; abkühlen lassen.

- 3) Mit NH_3 25 %ig den pH 7-7,5 einstellen
- 4) Folgende Chemikalien der Reihenfolge nach zugeben:
 - 1 ml 3 N Zitronensäure
 - 0,5 ml NH_3 25 %ig
 - 40 mg Pb-Träger
- 5) Zum Sieden erhitzen; 5 bis 10 Tr. Methylorange zugeben; mit H_2SO_4 conc. den pH 1,5 einstellen, die Probe mindestens 1 h sehr warm halten und über Nacht abkühlen lassen.
- 6) Den Niederschlag zentrifugieren und waschen mit 3x10 ml HNO_3 conc. und 1x20 ml H_2O dest.

Analysenmethode:

- 1) Folgende Chemikalien der Reihenfolge nach dem Niederschlag zusetzen:
 - 1,46 g AeDTA
 - 10 ml 6 M NH_3
 - 40 ml H_2O dest.,im Wasserbad kochen, bis der Niederschlag völlig gelöst ist.
- 2) 10 bis 15 min erhitzen und zu heißer Lösung tropfenweise 100 %ige Essigsäure zugeben, bis der pH-Wert 4,5-4 erreicht ist. Die Uhrzeit der Fällung notieren, Niederschlag über Nacht absitzen lassen.
- 3) Der Niederschlag wird über ein mit Äthanol und Aceton vorbereitetes 5,5 cm Ø Blaubandfilter filtriert. Es wird mit 20 ml H_2O , 20 ml Äthanol und 20 ml Aceton nachgespült und 20 min bei 100 °C getrocknet. Nach 10 min Abkühlen im Exsikkator wird das Gewicht des BaSO_4 bestimmt.
- 4) Es erfolgt eine 100 min-Messung nach 7 Tagen in einem Low-level- α -Meßplatz.

7. LITERATUR

- [1] N.I. Sax, M. Beigel, J.C. Daly and J.J. Gabay, U.S. At. Energy. Comm. Rpt., ANL-6637, p. 59 (October 1961)
- [2] Pao-Shan Weng, Health Physics, Pergamon Press 1977, Vol. 32 (June) pp. 565-567
- [3] Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Strahlenexposition durch Emission radioaktiver Stoffe mit der Abluft, Empfehlung der Strahlenschutzkommission, Der Bundesminister für Inneres, 1977
- [4] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung vom 20.10.76 (Bundesgesetzblatt S. 2905-2999))
- [5] USNRC Regulatory Guide 1.109. Calculation of Annual Doses to Man from Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR Part 50. Appendix I, IRS 14/76, Übersetzungen kerntechnischer Regeln, Herausgeber: Institut für Reaktorsicherheit der Technischen Überwachungsverein e.V.
- [6] P. Clajus, "Zur Radioökologie des Radiums - Literaturbericht", Report SAAS-183 (August 1975)
- [7] Report of the Task Group on Reference Man, International Commission on Radiological Protection, Publication 23, Pergamon Press, Oxford 1975, p. 312
- [8] K. Aurand et al., "Die natürliche Strahlenexposition des Menschen", Georg Thieme-Verlag, Stuttgart, 1974
- [9] Ernährungsbericht 1976, Deutsche Gesellschaft für Ernährung e.V., Frankfurt am Main, 1976
- [10] Report of Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation, International Commission on Radiological Protection, ICRP Publ. 2, Pergamon Press, London, 1959

- [11] Allgemeine Berechnungsgrundlagen für die Bestimmung der Exposition durch radioaktive Einleitungen in Oberflächenwässer, I. Fließgewässer, Redaktionskommittee des Fachausschusses "Belastungspfad Abwasser" bei der SSK, 1976
- [12] M. Pinta, "Modern Methods for Trace Element Analysis" Ann Arbor Science Publishers Inc. P.O. Box 1425, Ann Arbor, Mich. 4 106, Seite 21
- [13] W.W. Flynn, The Determination of Low Level of Polonium-210 in Environmental Materials, Anal.Chim.Acta, 43 (1968) 221-227
- [13] A. Cover, Direct Radiochemical Determination of Lead-210, Anal.Chem. 37, 1659 (1965)
- [15] H. Kiefer, R. Maushart, Strahlenschutzmeßtechnik, Verlag G. Braun Karlsruhe, 1964
- [16] H. Doerfel, ^{226}Ra -Erhebungsmessungen, KfK 2775, Jahresbericht 1978 der Abteilung Sicherheit (April 1979), S. 174

Die Probenahme und Probenvorbereitung erfolgte mit großer Umsicht und Sorgfalt durch Herrn Bailer. Radiochemische Analysen wurden von Frau I. Schlager und Fräulein B. Blum durchgeführt. Herr Dipl-Phys. Fessler war verantwortlich für die γ -spektrometrische Bestimmung von ^{226}Ra . Die Bodycounter-Messungen leitete Herr Dipl-Phys. H.R. Doerfel. Die Hilfsbereitschaft der Menzenschwander Bevölkerung machte die rasche und vollständige Durchführung des Forschungsvorhabens möglich.

Die Verfasser danken allen, die zum Gelingen des Forschungsprogrammes beigetragen haben.