



**Bestandsaufnahme zur Klärung
erhöhter Uran-Gehalte
im Grund- und Trinkwasser
in Mecklenburg-Vorpommern**

Stand: 05.04.2012

Bearbeitung:

Böttcher, Dr. Gerd (LUNG); Dau, Anne-Katrin (SM); Ehrentreich, Birgit (LU); Hennings, Ute (LUNG); Kape, Dr. Hans-Eberhard (LMS – LFB); Kühne, Dr. Jürgen (LUNG); Lemke, Gabriele (LUNG); Pröhl, Katrin (LU); Puchert, Dr. Wilfried (LAGuS); Reuther, Dr. Christine (LU); Schwerdtfeger, Dr. Beate (LUNG); Stein, Dr. Kathrin (LUNG); Voigt, Burkhard (LK NVP); BDEW Landesgruppe Norddeutschland und DVGW-Landesgruppe Nord; Wasser- und Abwasserzweckverband Friedland; Wasser und Abwasser GmbH – Boddenland

Titelfotos: LUNG

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung.....	10
1.1 Veranlassung.....	10
1.2 Grundlagen zu Uran.....	11
1.2.1 Einführung.....	11
1.2.2 Gesundheitliche Risiken.....	11
2 Monitoringergebnisse der Uran-Gehalte in verschiedenen Umweltmedien und Lebensmitteln in M-V	12
2.1 Roh- und Reinwasser aus Wasserversorgungsanlagen und Kleinanlagen.....	12
2.2 Grundwasser.....	13
2.3 Fließ- und Küstengewässer.....	16
2.4 Seesedimente.....	18
2.4.1 Seesedimente (ICP-MS).....	18
2.4.2 Radioaktivitätsmonitoring an Seesedimenten.....	18
2.5 Bodenuntersuchungen.....	20
2.5.1 Rammkernsondierungen.....	20
2.5.2 Bodendauerbeobachtungsflächen (BDF).....	21
2.5.3 Radioaktivitätsmonitoring an Böden.....	22
2.6 Lebensmittel.....	23
3 Erfassung, Analyse und Bewertung möglicher Einflüsse auf die Uran-Gehalte im Grundwasser	25
3.1 Technische Versuche.....	25
3.1.1 Technischer Versuch zur Uranminderung am Standort Semlow-Palmzin.....	25
3.1.2 Messstellentechnische Einflüsse und Fördermengen.....	26
3.1.2.1 Messstelle Waren-Feisneck.....	26
3.1.2.2 Messstelle Schlemmin.....	28
3.2 Hypothesen zur Herkunft des Urans.....	29
3.2.1 Auswertung der geologischen und geografischen Situation.....	29
3.2.1.1 Räumliche Verteilung.....	30
3.2.1.2 Tiefenabhängigkeit.....	30
3.2.1.3 Geologischer Schichtaufbau an belasteten Standorten.....	31
3.2.1.4 Einzugsgebiete der belasteten Messstellen.....	32
3.2.1.5 Sedimentuntersuchung an der Messstelle Schlemmin.....	33
3.2.2 Auswertung der hydrochemischen Befunde.....	34
3.2.2.1 Statistische Auswertungen.....	35
3.2.2.2 Redoxspannung, pH-Wert und Sauerstoffgehalt.....	39
3.2.2.3 Grundwassertypisierung.....	41
3.2.2.4 Uran-Isotopenanalysen.....	43

3.2.3	Uran als Direkteintrag aus der Landwirtschaft	44
3.2.3.1	Uran in Düngemitteln und Klärschlämmen	44
3.2.3.2	Radioaktivitätsuntersuchungen an Düngemitteln.....	46
3.2.3.3	Berechnungen	48
4	Maßnahmenvorschläge.....	50
4.1	Bereich Landesmessnetz	50
4.2	Bereich Wasserversorgungsanlagen	50
4.3	Bereich Düngemittel	51
4.4	Bereich Radioaktivitätsmessstelle	51
5	Zusammenfassendes Fazit.....	53
6	Literaturverzeichnis	55
7	Anlagen	57

Abbildungsverzeichnis

- Abbildung 1: Übersichtskarte M-V mit im Zeitraum 1995 bis 2010 gemessenen Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] im Reinwasser der öffentlichen Trinkwasserversorgung. Dargestellt sind die an den jeweiligen Wasserwerksstandorten aufgetretenen Höchstwerte (Quelle: LAGuS). 12
- Abbildung 2: Übersichtskarte M-V der im Zeitraum 2009 bis 2010 gemessenen Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] im Rein- bzw. Trinkwasser aus Kleinanlagen (Einzelwasserversorgungsanlagen) (Quelle: LAGuS). 13
- Abbildung 3: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] im Grundwasser der Grundwassermessstellen und im Rohwasser von Wasserwerksbrunnen. Dargestellt sind die im Zeitraum 1995 bis 2010 aufgetretenen Höchstwerte der jeweiligen Probenahmestellen (Quelle: LUNG). 14
- [Abbildung 4: Zeitlicher Verlauf von Wasserständen [m unter Rohroberkante], Sulfat-Gehalten [mg/l] und Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] in der Grundwassermessstelle Georgenthal (Quelle: LUNG) 16
- Abbildung 5: Maximale Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in den Fließ- und Küstengewässern in M-V und Entnahmestellen für Schwebstoffproben (Quelle: LUNG) 17
- Abbildung 6: Jahresgang der Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in der Tollense bei Demmin (Quelle: LUNG) 17
- Abbildung 7: Übersichtskarte M-V mit den Uran-Gehalten [mg/kg TM] der Jahre 2007-2008 in Sedimenten der Binnenseen (Quelle: LUNG) 18
- Abbildung 8: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [mg/kg TM] aus Radioaktivitätsmessungen in Sedimenten der Binnenseen (Quelle: LUNG) 19
- Abbildung 9: Uran-Gehalte [mg/kg TM] aus Radioaktivitätsmessungen am Sediment des Schweriner Sees (Quelle: LUNG). 19
- Abbildung 10: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [mg/kg TM] der Böden, beprobt aus Rammkernsondierungen (Quelle: LUNG). 21
- Abbildung 11: Uran-Gehalte [mg/kg TM] der BDF-Fläche „Hohen Wangelin“ in Abhängigkeit von der Tiefe [m unter Gelände] (Quelle: LUNG). 22
- Abbildung 12: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [mg/kg TM] der im Rahmen der Radioaktivitätsüberwachung untersuchten Böden (Quelle: LUNG). 23
- Abbildung 13: Zeitliche Entwicklung der Uran-Gehalte aus Radioaktivitätsmessungen in Böden (Quelle: LUNG). 24
- Abbildung 14: Verlaufsdarstellung der Fördermengen [m^3 pro Monat] und der Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] während des technischen Versuchs im Wasserwerk Semlow-Palmzin. (Quelle: Wasser und Abwasser GmbH „Boddenland“). 26
- Abbildung 15: Verteilung der Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] im Grundwasser während der Dauerbeprobung an der Messstelle Waren-Feisneck in Abhängigkeit von der abgepumpten Wassermenge [l] (Quelle: LUNG). 27
- Abbildung 16: Eisen-Gehalte [mg/l] im Grundwasser an der Messstelle Waren-Feisneck in Abhängigkeit von der abgepumpten Wassermenge [l] (Quelle: LUNG). 27

Abbildung 17:	Korrelationen der Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] mit denen von Bor, Mangan und Eisen [mg/l] im Grundwasser während der Dauerbeprobung an der Messstelle Waren-Feisneck (Quelle: LUNG).....	28
Abbildung 18:	Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in der Messstelle im Schlemminer Holz in Abhängigkeit von der abgepumpten Wassermenge [m^3] (Quelle: LUNG)	29
Abbildung 19:	Vier Hypothesen zur Herkunft der erhöhten Uran-Gehalte im Grundwasser (Quelle: LUNG)	29
Abbildung 20:	Eisrandlagen und Lage der Grundwassermessstellen (Landesmessnetz und Wasserversorger) mit auffälligen Uran-Gehalten (Quelle: LUNG)	30
Abbildung 21:	Verteilung der seit 2007 gemessenen Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes in Abhängigkeit von der Entnahmetiefe [m unter Gelände] (Quelle: LUNG)	31
Abbildung 22:	Gegenüberstellung der Bohrprofile derjenigen Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes, die erhöhte Uran-Gehalte aufweisen (Die blauen Balken markieren den Ruhewasserspiegel.) (Quelle: LUNG)	32
Abbildung 23:	Lage der vermutlichen Grundwassereinzugsgebiete an den sechs Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes mit erhöhten Uran-Gehalten (Quelle: LUNG)	33
Abbildung 24:	Verteilung der Tonfraktion [Gew.%] und der Uran- und CaCO_3 -Gehalte [mg/kg TM] in der Bohrung Palmzin in Abhängigkeit von der Tiefe [m unter Gelände] (Quelle: LUNG)	34
Abbildung 25:	Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] im Grundwasser der Jahre 2007-2009 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG).....	35
Abbildung 26:	Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in Fließgewässern der Jahre 2007-2008 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG).....	36
Abbildung 27:	Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in Küstengewässern der Jahre 2006-2009 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG).....	36
Abbildung 28:	Uran-Gehalte [mg/kg TM] in Schwebstoffen aus Fließgewässern der Jahre 2006-2009 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)	38
Abbildung 29:	Uran-Gehalte [mg/kg TM] in Sedimenten aus Standgewässern der Jahre 2007-2008 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)	38
Abbildung 30:	Uran-Gehalte [mg/kg TM] in See-Sedimenten und in Schwebstoffen aus Fließgewässern (Quelle: LUNG)	39
Abbildung 31:	Verteilung der Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes in Abhängigkeit vom physikochemischen Milieu (Quelle: LUNG).....	40
Abbildung 32:	PIPER-Diagramm der Grundwässer in den sechs Grundwassermessstellen, die erhöhte Uran-Gehalte aufweisen (Quelle: LUNG).....	41
Abbildung 33:	Verteilung der gemessenen Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] im Grundwasser der Landesmessstellen in Abhängigkeit vom Härtequotienten (Quelle: LUNG)	42
Abbildung 34:	Zeitreihe der Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] im Grundwasser der Landesmessstelle Mankmoos im Zeitraum April 2009 bis April 2010 (Quelle: LUNG).....	42

Abbildung 35: Uran-Gehalte [mg/kg TM] in Klärschlämmen (organische NP-Dünger) und Mineraldüngemitteln in MV (Quelle: LMS-LFB)..... 45

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Statistische Angaben zu den Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] in Grundwassermessstellen im Zeitraum 2007 bis 2010 (Quelle: LUNG)	14
Tabelle 2:	Grundwassermessstellen in M-V mit den im Beobachtungszeitraum 2007 bis 2010 gemessenen Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] über $5 \mu\text{g/l}$ (*: mit steigendem Trend) (Quelle: LUNG)	15
Tabelle 3:	Uran [Bq/kg TM bzw. mg/kg TM] in Böden aus M-V (Quelle: LUNG).....	22
Tabelle 4:	Zusammenstellung der statistischen Kenngrößen zur Uran-Konzentration in Fließ- und Küstengewässern sowie im Grundwasser (Quelle: LUNG).....	37
Tabelle 5:	Angaben zu den Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] und zu den mittleren Isotopenverhältnissen $A_{\text{U-234}}/A_{\text{U-238}}$ in Grund- und Trinkwässern in M-V im Beobachtungszeitraum 1994 bis 2011, ermittelt anhand der Radioaktivitätsanalysen der Messprogramme des BfS (19) und des Landes M-V.....	43
Tabelle 6:	Uran [Bq/kg TM bzw. mg/kg] in Düngemitteln und deren Zusammensetzung (Quelle: LUNG).....	46
Tabelle 7:	Uran [Bq/kg TM bzw. mg/kg] und Isotopenverhältnisse $A_{\text{U-234}}/A_{\text{U-238}}$ in phosphathaltigen Mineraldüngern (Quelle: LUNG).....	47
Tabelle 8:	Berechnung der möglichen jährlichen Erhöhung des Uran-Gehaltes im Boden durch Düngung unter Berücksichtigung verschiedener Ausgangskonzentrationen von Uran im Boden bzw. Düngemittel (Quelle: LMS-LFB)	48

Anlagenverzeichnis

Anlage 1	Grundlagen: Uran-Zerfallsreihen und Alpha-Zerfall	58
Anlage 2	Methodik des LUNG zur Radioaktivitätsbestimmung der Mineraldüngemittel	61

Verwendete Abkürzungen

BBodSchG	Bundes-Bodenschutzgesetz
BDEW	Bundesverband der Energie- und Wasserwirtschaft e.V.
BDF	Bodendauerbeobachtungsflächen
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
Bq	Becquerel
DAP	(Diammoniumphosphat)-Düngemittel
DIN	Deutsches Institut für Normung
DVK	Düngemittelverkehrskontrolle
DVWK/DWA	Deutscher Verband für Wasserwirtschaft und Kulturbau e.V.; jetzt Deutsche Vereinigung für Wasserwirtschaft, Abwasser und Abfall e.V.
FM	Feuchtmasse
Gew.%	Gewichts-Prozent
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICP-MS	Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma
KVK	Klärschlammverkehrskontrolle
KS	Klärschlamm
LAGuS	Landesamt für Gesundheit und Soziales
LALLF	Landesamt für Landwirtschaft, Lebensmittelsicherheit und Fischerei
LFB	Zuständige Stelle für Landwirtschaftliches Fachrecht und Beratung der LMS
LMS	Landwirtschaftsberatung Mecklenburg-Vorpommern / Schleswig-Holstein GmbH
LU	Ministerium für Landwirtschaft, Umwelt und Verbraucherschutz
LUNG	Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie
Max	Maximumwert
Min	Minimumwert
Mittel	Mittelwert
M-V	Mecklenburg-Vorpommern
NP	(Stickstoff, Phosphor)-Düngemittel
NPK	(Stickstoff, Phosphor, Kalium)-Düngemittel
OP	Oberpegel
PK	(Phosphor, Kalium)-Düngemittel
PKMg	(Phosphor, Kalium, Magnesium)-Düngemittel
PKS	(Phosphor, Kalium, Schwefel)-Düngemittel
RV	Ringversuch
SE	Südost
SM	Ministerium für Arbeit, Gleichstellung und Soziales
Sp.	Spektrometrie
StALU MS	Staatliches Amt für Landwirtschaft und Umwelt Mecklenburgische Seenplatte
Sv	Sievert
TM	Trockenmasse
TrinkwV	Trinkwasserverordnung
TSP	(Triple-Superphosphat)-Düngemittel
TU	Technische Universität
UBA	Umweltbundesamt
UP	Unterpegel

1 EINLEITUNG

1.1 Veranlassung

Ausgehend von ersten erhöhten Uran-Befunden im Trinkwasser wurden seit 2004 in Mecklenburg-Vorpommern (M-V) weitergehende Untersuchungen an Grund- und Trinkwässern¹ sowie weiteren Umweltmedien vorgenommen. Hintergrund ist die bekannte toxische Wirkung des Schwermetalls Uran, wobei die radiologische Toxizität des Urans für das Trinkwasser in M-V im Vergleich zur chemischen Toxizität in diesem Zusammenhang von nachrangiger Bedeutung ist.

Da die Erstbefunde in den Grund- und Trinkwässern teilweise bestätigt wurden, galt es, im nächsten Schritt die möglichen Ursachen zu diskutieren und einzugrenzen. Aus diesem Grund wurde die Arbeitsgruppe „Uran im Grund- und Trinkwasser“ gebildet, die aus Vertretern betroffener Wasserversorger, des Bundesverbandes der Energie- und Wasserwirtschaft e.V. (BDEW) – Landesgruppe Norddeutschland sowie des Deutschen Vereins des Gas- und Wasserfaches e.V. (DVGW) – Landesgruppe Nord, des Landkreises Nordvorpommern (jetzt Landkreis Vorpommern-Rügen), des Landesamtes für Umwelt, Naturschutz und Geologie (LUNG), des Landesamtes für Gesundheit und Soziales (LAGuS), der zuständigen Stelle für landwirtschaftliches Fachrecht und Beratung der Landwirtschaftsberatung (LMS-LFB), des Ministeriums für Arbeit, Gleichstellung und Soziales (SM) sowie des Ministeriums für Landwirtschaft, Umwelt und Verbraucherschutz (LU) besteht. Vorrangig sollten Hinweise erarbeitet werden, die es den Wasserversorgern ermöglichen, eine Uranbelastung frühzeitig zu erkennen oder ganz zu vermeiden. Der denkbare Einfluss der Landwirtschaft auf Beschaffenheitsveränderungen im Grundwasser stand ebenfalls im Fokus der Überlegungen.

Die im Rahmen dieser Arbeitsgruppe erarbeiteten Einzelberichte zur Klärung der aktuellen Belastungssituation in den Umweltmedien in M-V auf der einen Seite (Kapitel 2) und der möglichen Ursachen/Einflussfaktoren auf der anderen Seite (Kapitel 3) sind in dem vorliegenden Bericht zusammengestellt. Es werden Maßnahmen für die weitere Erkundung des Sachverhalts vorgeschlagen (Kapitel 4). Diese Zusammenstellung greift auf die derzeit in M-V verfügbaren Daten zurück und stellt den momentanen Kenntnisstand dar. Hierbei ist zu beachten, dass die in diesem Bericht verwendeten und dargestellten Daten für die verschiedenen Umweltmedien in M-V unterschiedliche Stände bzw. Erfassungszeiträume aufweisen können. Während insbesondere die radiologischen Untersuchungen in regelmäßigen Abständen und seit fast zwei Jahrzehnten durchgeführt werden, wurden andere laufende Monitoringprogramme erst 2007 um die Messgröße Uran ergänzt.

¹ Im vorliegenden Bericht werden die „Grund- und Trinkwässer“ wie folgt unterschieden:

„Grundwasser“: aus einer Grundwassermessstelle außerhalb einer Wasserfassung stammendes Grundwasser

„Rohwasser“: nicht aufbereitetes Wasser direkt aus dem Förderbrunnen eines Wasserwerks

„Reinwasser“: in der Regel aufbereitetes Wasser direkt vom Wasserwerksausgang

„Trinkwasser“ (gem. § 3 Nr. 1 a TrinkwV): alles Wasser, im ursprünglichen Zustand oder nach Aufbereitung, das zum Trinken, zum Kochen, zur Zubereitung von Speisen und Getränken oder insbesondere zu den folgenden anderen häuslichen Zwecken bestimmt ist:

- Körperpflege und -reinigung,
- Reinigung von Gegenständen, die bestimmungsgemäß mit Lebensmitteln in Berührung kommen,
- Reinigung von Gegenständen, die bestimmungsgemäß nicht nur vorübergehend mit dem menschlichen Körper in Kontakt kommen.

Dies gilt ungeachtet der Herkunft des Wassers, seines Aggregatzustandes und ungeachtet dessen, ob es für die Bereitstellung auf Leitungswegen, in Tankfahrzeugen, in Flaschen oder anderen Behältnissen bestimmt ist.

1.2 Grundlagen zu Uran

1.2.1 Einführung

Uran gehört zu den natürlichen Radionukliden. Es ist ein vergleichsweise häufig vorkommendes Schwermetall und in der Erdkruste mit ca. 2,4 mg/kg (1) stärker vertreten als Cadmium, Zinn, Quecksilber oder Selen. In der aquatischen Umwelt ist Uran ubiquitär verbreitet. Es wird in Flüssen, Meer- und Grundwässern gefunden.

Bisher wurde angenommen, dass in der norddeutschen Tiefebene nicht mit Uran in höheren Konzentrationen zu rechnen sei. Die Befundsituation im Grundwasser von M-V zeigt jedoch ähnliche Werte wie in südlichen Bundesländern, z. B. Bayern. Im Bericht des Landes Bayern (2) werden durchschnittliche Uranwerte von 2,2 µg/l genannt. Das Wertespektrum liegt dabei im Bereich zwischen < 0,1 µg/l und 75 µg/l. Der bisher höchste gemessene Wert in M-V beträgt 74,9 µg/l (s. Kapitel 3.1.1). In Bayern befinden sich die Brunnen häufig in Festgesteinen, in denen auch Uran-Lagerstätten bekannt sind, während in M-V ausschließlich aus Lockergesteinsformationen gefördert wird.

1.2.2 Gesundheitliche Risiken

Aus gesundheitlicher Sicht ist Uran nicht unbedenklich. Uranverbindungen können sowohl die Nieren als auch die Leber schädigen und innere Blutungen verursachen. Die löslichen Uranyl-Verbindungen und Chloride weisen dabei die höchste Toxizität auf (3). Schon aus diesem Grunde ist es geboten, dem Körper so wenig Uran wie möglich zuzuführen.

Als Bewertungsmaßstab für erhöhte Uran-Gehalte im Grund- und Trinkwasser wird in diesem Bericht der gemäß Trinkwasserverordnung (TrinkwV) ab 1. November 2011 geltende Uran-Grenzwert von 10 µg/l verwendet (4). Dieser Wert basiert auf einem bereits 2004 veröffentlichten Leitwert des Umweltbundesamtes (UBA). Er zählt laut Begründung (5) als aktuell weltweit niedrigster Wert und soll allen Bevölkerungsgruppen, einschließlich Säuglingen (für Säuglinge existiert ein Höchstwert für Mineralwässer von 2 µg/l (6)), lebenslang gesundheitliche Sicherheit vor möglichen Schädigungen durch Uran im Trinkwasser bieten. Er gilt als wissenschaftlich (toxikologisch) begründet und bezieht sich auf die Chemotoxizität von Uran.

Die Aufnahme von Uran mit dem Trinkwasser und mit Lebensmitteln kann potentiell auch durch radioaktive Wirkungen zu einer Strahlenexposition führen, doch bei einem Verbrauch von jährlich 350 l (anzunehmende Verzehrrate gemäß (7)) uranhaltigem Trinkwasser mit 10 µg/l (entspricht U-238 = 0,124 Bq/l) ergibt sich unter Berücksichtigung von U-234, U-235 und U-238 mit den Dosisfaktoren für Erwachsene gemäß (8) eine jährliche Strahlendosis von 0,004 mSv. Für Säuglinge ergeben sich bei 170 l/a maximal 0,014 mSv. Beide Werte sind jedoch, verglichen mit dem Grenzwert aus der Strahlenschutzverordnung für die Bevölkerung von 1 mSv und verglichen mit der gesamten mittleren jährlichen Strahlenexposition aus natürlichen Quellen von ca. 2,1 mSv, vernachlässigbar klein. Somit brauchen in diesem Zusammenhang radiologische Konsequenzen nicht weiter betrachtet zu werden.

2 MONITORINGERGEBNISSE DER URAN-GEHALTE IN VERSCHIEDENEN UMWELTMEDIEN UND LEBENSMITTELN IN M-V

2.1 Roh- und Reinwasser aus Wasserversorgungsanlagen und Kleinanlagen

Wasserwerke

Nach Durchführung orientierender Messungen in M-V im Jahr 2003, deren Ergebnisse teilweise oberhalb von 2 µg/l (alter UBA-Leitwert) lagen, erfolgten in Zusammenarbeit mit den Gesundheitsämtern seit 2004 weitere Uran-Messungen. Es wurden u. a. Proben direkt vom Wasserwerksausgang (Reinwasser), an ausgewählten Standorten und direkt von den Förderbrunnen (Rohwasser) untersucht. Dabei zeigte sich, dass die eingesetzten Aufbereitungsverfahren zu keiner Uran-Reduktion im Reinwasser führen.

Die Untersuchungen ergaben, dass der größte Teil der 476 untersuchten Wasserwerke in M-V Uran-Werte unter der Bestimmungsgrenze (Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma, kurz: ICP-MS) von 0,5 µg/l aufweisen. Im Reinwasser von 80 Wasserwerken wurden Werte zwischen 0,5 und 5,0 µg/l, in 12 Wasserwerken Werte zwischen 5 und 10 µg/l und in 6 Wasserwerken Werte über 10 µg/l nachgewiesen. Der Maximalwert der Uran-Konzentration lag bei 26,4 µg/l.

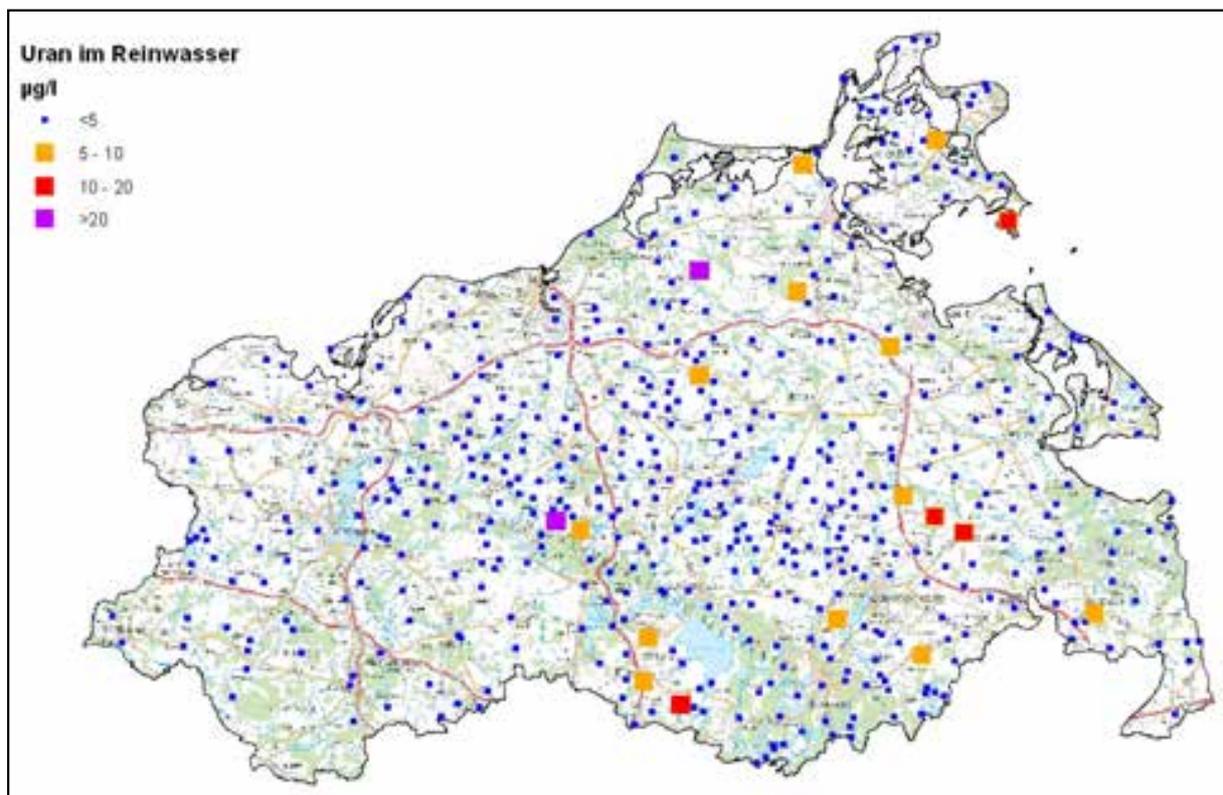


Abbildung 1: Übersichtskarte M-V mit im Zeitraum 1995 bis 2010 gemessenen Uran-Gehalten [µg/l] im Reinwasser der öffentlichen Trinkwasserversorgung. Dargestellt sind die an den jeweiligen Wasserwerksstandorten aufgetretenen Höchstwerte (Quelle: LAGuS).

Als belastet nach dem Leitwert des UBA 2005 gelten Wasserwerksstandorte, die im Reinwasser 10 µg/l Uran überschreiten. Hierzu zählen u. a. die Standorte Friedland (Landkreis Mecklenburger Seenplatte), Reimershagen (Landkreis Rostock) und Semlow-Palmzin (Landkreis Vorpommern-Rügen).

Aufgrund der an den belasteten Standorten eingeleiteten umfangreichen technischen Maßnahmen zur Uranminderung, halten derzeit alle Wasserwerke in M-V den Leitwert von

10 µg/l ein. Zu diesen Maßnahmen gehörten z. B. Brunnenstilllegungen oder die Mischung des belasteten mit Uran-armem Rohwasser, um Reinwasser unter dem Grenzwert abgeben zu können.

Kleinanlagen

Ebenfalls wurde durch die Gesundheitsämter das Rohwasser von Einzelwasserversorgungsanlagen (sogenannte Kleinanlagen) auf Uran-Gehalte untersucht. In den Jahren 2009 und 2010 konnte in 207 der 330 untersuchten Kleinanlagen kein Uran, in 95 ein Uran-Gehalt zwischen 0,5 und 5 µg/l und in 20 ein Uran-Gehalt zwischen 5 und 10 µg/l nachgewiesen werden (Abbildung 2). Bei 8 Kleinanlagen wurde Uran in Konzentrationen oberhalb von 10 µg/l bis maximal 26,9 µg/l festgestellt.

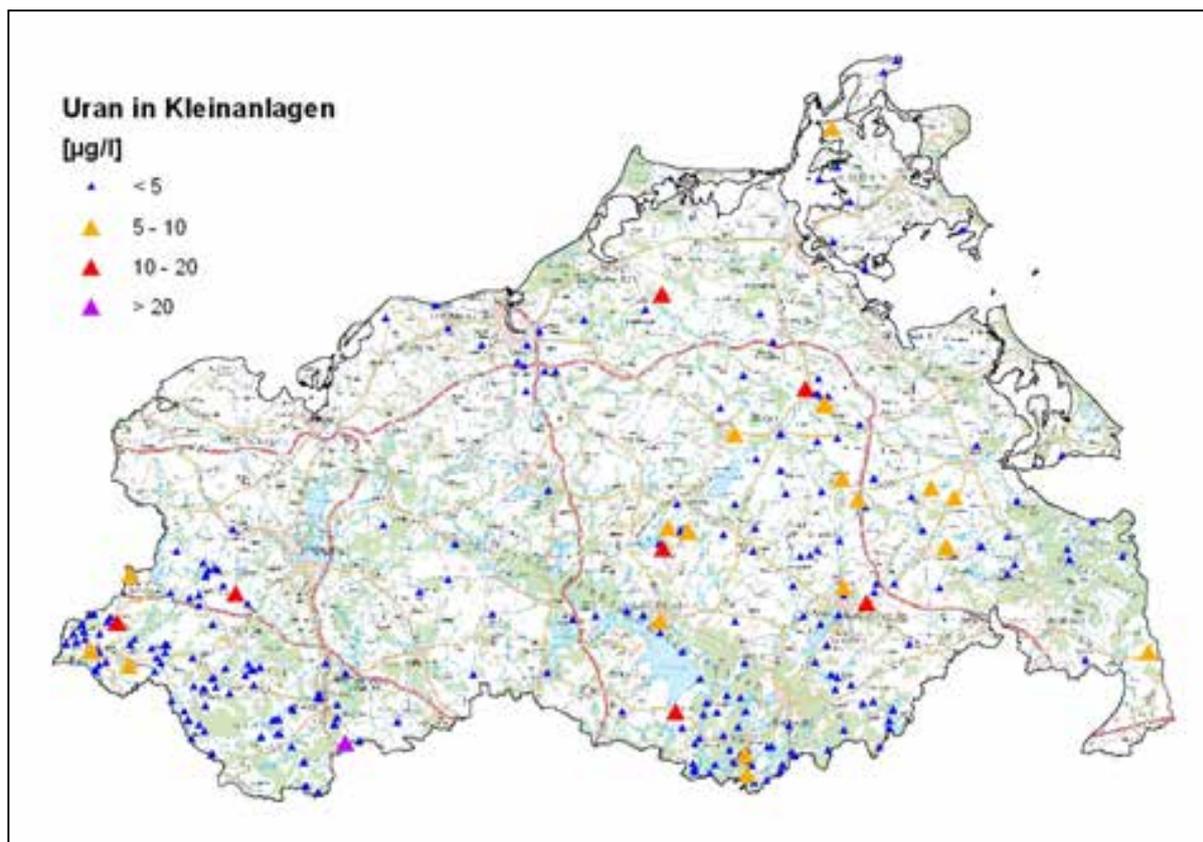


Abbildung 2: Übersichtskarte M-V der im Zeitraum 2009 bis 2010 gemessenen Uran-Gehalte [µg/l] im Rein- bzw. Trinkwasser aus Kleinanlagen (Einzelwasserversorgungsanlagen) (Quelle: LAGuS).
(Räumlich eng zusammenliegende Anlagen in der gleichen Kategorie können nicht einzeln dargestellt werden.)

2.2 Grundwasser

Seit 2007 werden an den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes im Rahmen der Monitoringprogramme nach Wasserrahmenrichtlinie (WRRL) (9) auch Uran-Gehalte ermittelt. Das Messnetz wird einmal im Jahr (Überblicksmessnetz) bzw. zweimal im Jahr (Operatives Messnetz) beprobt. Das Messnetz umfasst derzeit 226 Messstellen unterschiedlicher Tiefe. Die Tabelle 1 zeigt die Anzahl der Proben und die Verteilung der Uran-Gehalte auf die einzelnen Konzentrationsstufen. Durch den Ausbau des Messnetzes in den letzten Jahren ist die Anzahl der Messstellen leicht gestiegen.

Tabelle 1: Statistische Angaben zu den Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] in Grundwassermessstellen im Zeitraum 2007 bis 2010 (Quelle: LUNG)

Jahr		2007	2008	2009	2010
Anzahl Proben		200	207	211	226
Uran- Gehalt	unter 5 $\mu\text{g/l}$	192	195	198	213
	5 bis 10 $\mu\text{g/l}$	4	7	7	7
	über 10 $\mu\text{g/l}$	3	5	6	6

Die räumliche Verteilung der bisher gemessenen Maximalwerte im Grundwasser ist in Abbildung 3 dargestellt. Auffällig ist die Häufung erhöhter Messwerte entlang einer Linie am Nordrand der Mecklenburgischen Seenplatte, die der Eisrandlage der jüngsten Vergletscherung entspricht. Ein Zusammenhang mit der Geologie wird vermutet und in Kap. 3.2.1.1 näher untersucht.

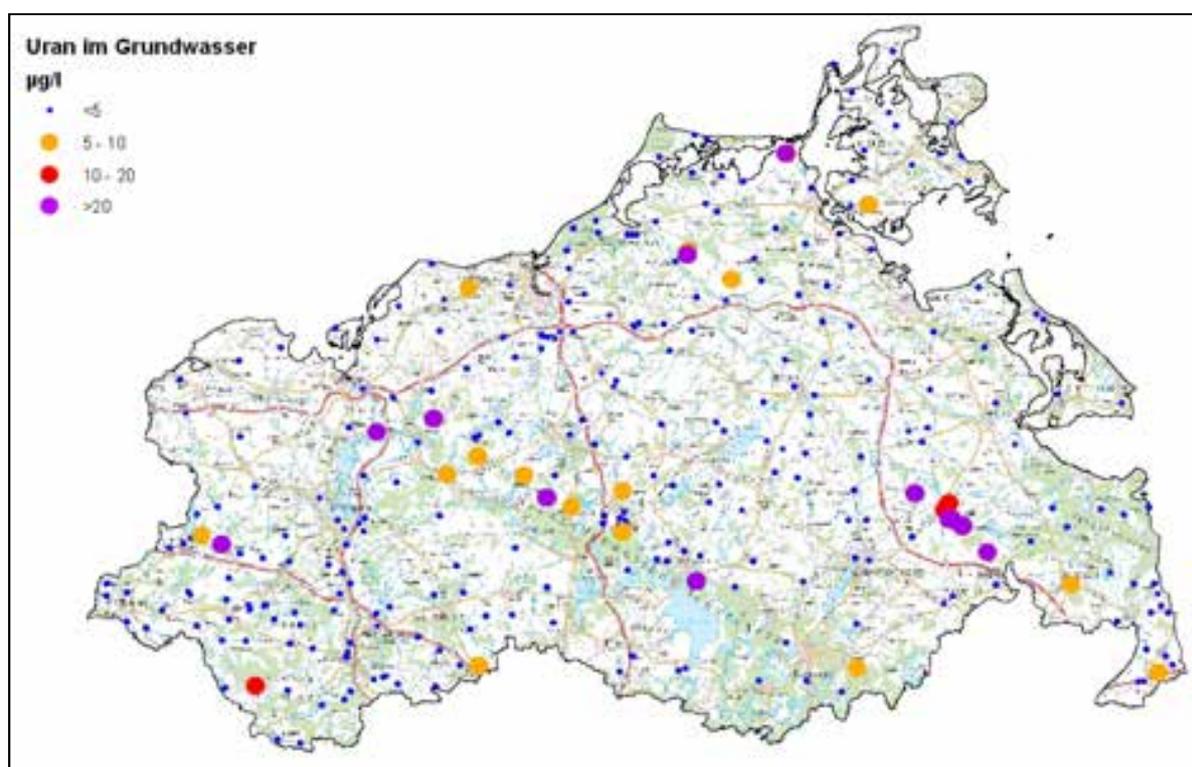


Abbildung 3: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] im Grundwasser der Grundwassermessstellen und im Rohwasser von Wasserwerksbrunnen. Dargestellt sind die im Zeitraum 1995 bis 2010 aufgetretenen Höchstwerte der jeweiligen Probenahmestellen (Quelle: LUNG).

Die Messstellen mit den höchsten Gehalten sind in der Tabelle 2 verzeichnet. Mit roter Schriftfarbe sind die Messstellen mit einzelnen Uran-Gehalten $> 10 \mu\text{g/l}$ versehen. Der höchste Uran-Wert im Beobachtungszeitraum wurde mit $33,8 \mu\text{g/l}$ an der Messstelle Waren-Feisneck gemessen.

Da die Messstelle Georgenthal bisher als einzige Grundwassermessstelle einen stark steigenden Trend zeigt, soll sie im Folgenden näher beschrieben werden.

Die Messstelle ist von 13,3 m bis 20,0 m unter Gelände unterhalb einer 10 m mächtigen Geschiebemergelschicht in einer Grobkieslage verfiltert. Der Grundwasserstand wird seit 1969 beobachtet und zeigt bis Mitte 2004 den üblichen, in der Tendenz leicht fallenden Jahresgang (Abbildung 4). Seit diesem Zeitpunkt wurde bis ca. Mitte 2006 aus einem dicht benachbarten Brunnen Grundwasser zur Versorgung der umliegenden Dörfer und zur landwirtschaftlichen Beregnung entnommen. Die entnommenen Mengen sind nicht bekannt. Die dadurch erzeugte Absenkung in der Messstelle betrug ca. 10 m. Ab 2006 wurden die Brunnen nur noch im Rahmen des bäuerlichen Hofbetriebes genutzt. In der Folge stiegen die Wasserstände wieder an, haben ihr ursprüngliches Niveau jedoch noch nicht wieder erreicht. Gleichzeitig mit dem Wiederanstieg erhöhten sich die Sulfat-Gehalte und die Uran-Gehalte stiegen von 2,6 auf 32,9 µg/l im Jahre 2010. Möglicherweise wird Uran in der ungesättigten Bodenzone mobilisiert und beim Wiederanstieg des Wasserstandes ausgespült.

Tabelle 2: Grundwassermessstellen in M-V mit den im Beobachtungszeitraum 2007 bis 2010 gemessenen Uran-Gehalten [µg/l] über 5 µg/l (*: mit steigendem Trend) (Quelle: LUNG)

Messstellenbezeichnung	Analysenanzahl	Konzentrationsspanne [µg/l]
Waren-Feisneck OP	5	25,5 – 33,8
Karft OP	2	21,6 – 23,7
Kleekamp, SE Kleekamp 2	2	19,5 – 24,3
Mankmoos, SE Mankmoos	5	15,9 – 20,2
Tewswos Brunnen	3	12,2 – 16,0
Friedland Bauersheim OP	5	9,2 – 12,8
Georgenthal	3	2,6 – 32,8*
Drechow	2	8,9 – 9,4
Bantin	2	4,3 – 7,8
Suckow	5	3,8 – 7,3
Hohen Wangelin P7	3	5,3 – 7,1
Sternberg	2	5,8 – 7,0
Nadrensee OP	5	0,2 – 6,3
Poseritz UP	5	0,0 – 5,6
Brodhagen	2	3,7 – 5,5
Langhagen (alt), SE	3	4,6 – 5,3
Pasewalk Ost	4	4,3 – 5,1
Steinmühle	3	2,9 – 5,1

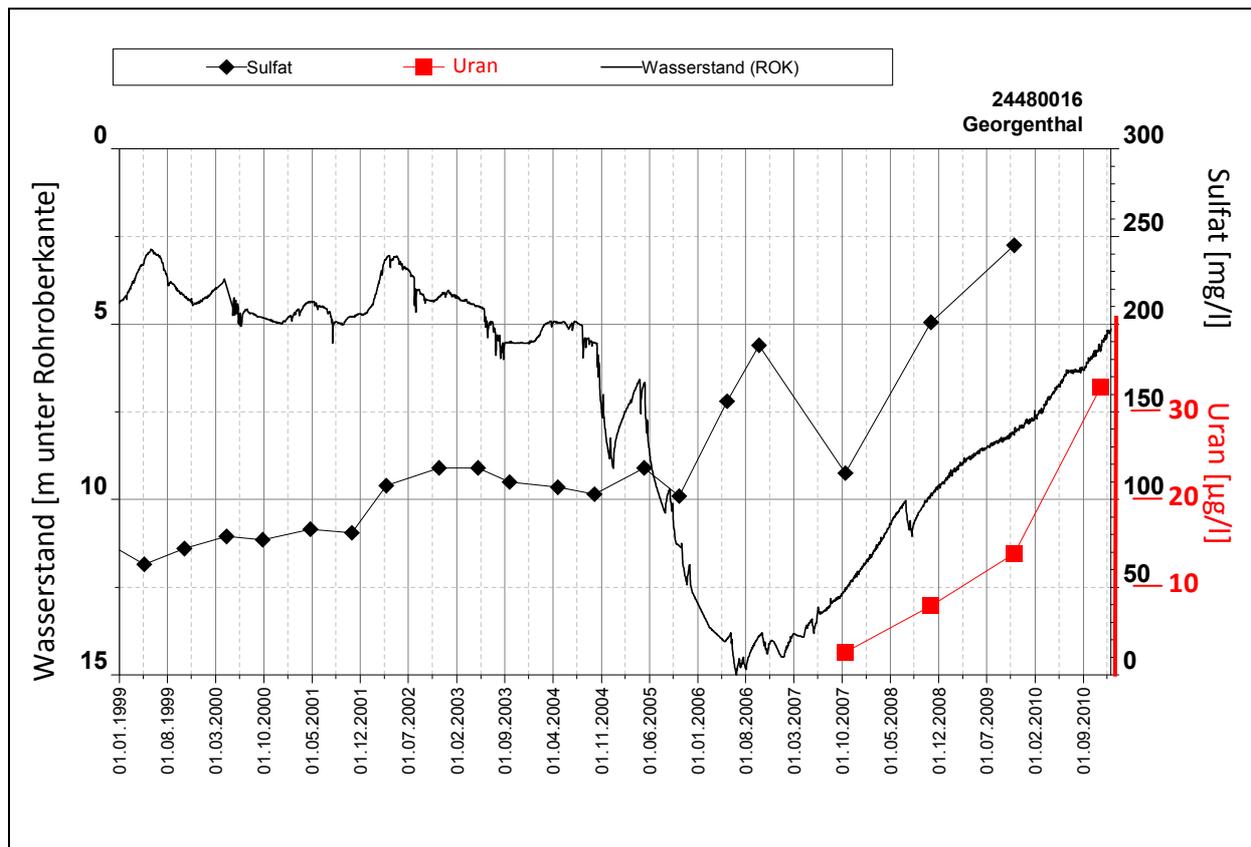


Abbildung 4: Zeitlicher Verlauf von Wasserständen [m unter Rohroberkante], Sulfat-Gehalten [mg/l] und Uran-Gehalten [µg/l] in der Grundwassermessstelle Georgenthal (Quelle: LUNG)

2.3 Fließ- und Küstengewässer

Seit 2007 werden die Uran-Gehalte in ausgewählten Fließgewässern in M-V gemessen. Die Fließgewässer im Norddeutschen Lockersediment werden zum größten Teil aus Bodensickerwasser wie auch das Grundwasser gespeist. Allerdings sind die Sickerstrecken oft kürzer und eher horizontal ausgerichtet. Auch ist lokal mit einem erhöhten Anteil an Direktabfluss zu rechnen. Fließgewässer stehen an vielen Orten im Lande in hydraulischem Kontakt zum Grundwasser. Dieser Kontakt bedeutet in der Regel, dass Grundwasser in das Fließgewässer eintritt. Der umgekehrte Fall ist bisher nicht in größerem Umfang beobachtet worden.

Im Zeitraum 2007-2010 wurden 71 Probenahmestellen an Fließgewässern bis zu 12-mal im Jahr beprobt. Der größte Teil der Proben ergab Uran-Gehalte unter 2 µg/l; der bisher höchste Uran-Wert mit 14,6 µg/l wurde 2009 in einem Bach im Südostteil des Landes gemessen (Abbildung 5).

Im Vergleich zu den Grundwässern liegen die Uran-Gehalte in den Fließgewässern in einem engeren Konzentrationsbereich. Hier spielen möglicherweise die Redoxverhältnisse und Sauerstoff-Gehalte eine zentrale Rolle, da Fließgewässer generell reich an Sauerstoff sind, während in Grundwässern in Abhängigkeit von Alter, Tiefe und Geologie auch Wasser ohne Sauerstoff und mit negativen Redoxpotential-Werten gefunden wird.

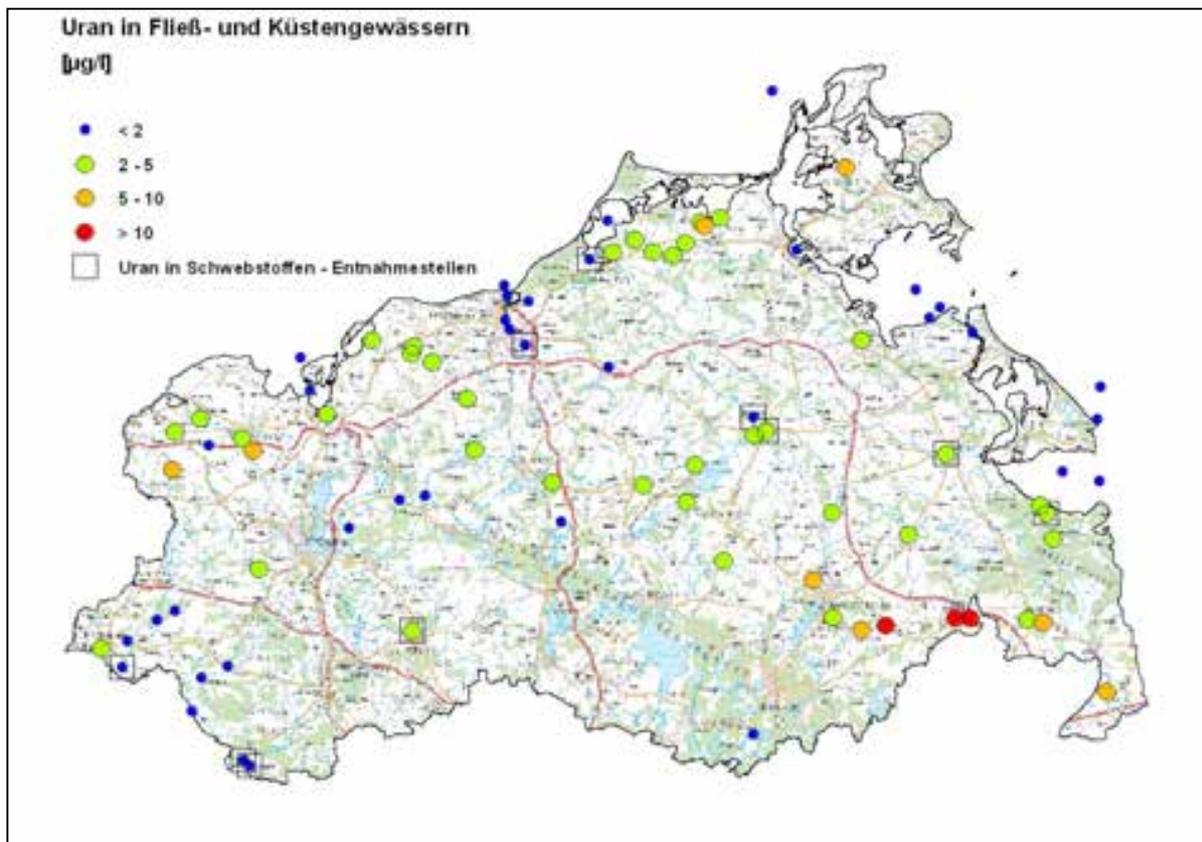
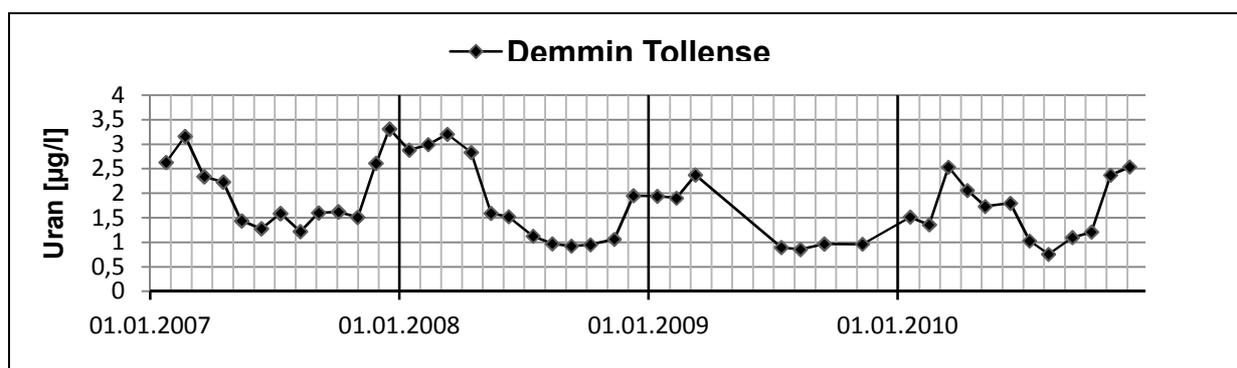


Abbildung 5: Maximale Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in den Fließ- und Küstengewässern in M-V und Entnahmestellen für Schwebstoffproben (Quelle: LUNG)

In zahlreichen Fließgewässern zeigen die Zeitreihen der Uran-Gehalte einen mehr oder weniger auffälligen Jahrgang (Abbildung 6), der mit dem erhöhten winterlichen Abfluss korrespondiert. Welche hydrochemischen Prozesse zu den erhöhten Winterkonzentrationen beitragen, muss noch diskutiert werden. Es ist mittels Literaturrecherche bzw. Untersuchung des Pflanzenbewuchses zu prüfen, ob die niedrigeren Werte in der Wachstumsperiode mit Uranentzug durch Pflanzen zu erklären sind.



2.4 Seesedimente

Seesedimente stehen ebenfalls nicht in direktem Zusammenhang mit dem Grundwasser, obwohl bei tiefer eingeschnittenen Seen mit einem meist nicht quantifizierbaren Grundwasserkontakt gerechnet werden muss. Die Auswertung der Untersuchungsergebnisse kann aber einen Beitrag zur regionalen Belastungsanalyse liefern.

2.4.1 Seesedimente (ICP-MS)

Seit 2007 werden im LUNG auch Sedimente der Binnenseen im Rahmen des Seenprojektes mittels Massenspektrometrie mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-MS) auf Uran untersucht, so dass zuverlässige Uran-Analysen in niedrigen Konzentrationen vorliegen. Die räumliche Lage der Probenahmestellen 2007-2008 ist in Abbildung 7 dargestellt.

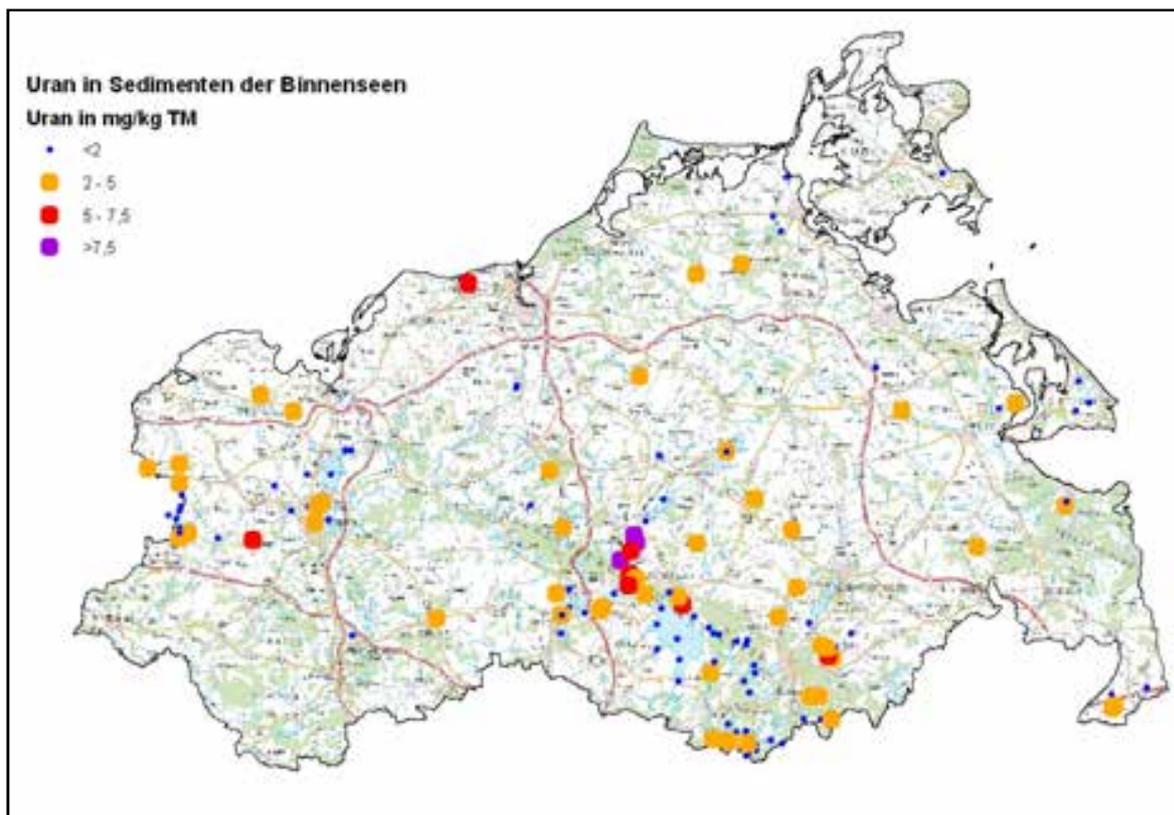


Abbildung 7: Übersichtskarte M-V mit den Uran-Gehalten [mg/kg TM] der Jahre 2007-2008 in Sedimenten der Binnenseen (Quelle: LUNG)

Eine auffällige regionale Häufung der erhöhten Urankonzentrationen in den analysierten Seesedimenten (11 von 17 Proben oberhalb des 90%-Perzentils) befindet sich im Gebiet nordwestlich Waren/Müritz (Eisrandlage, quartäres Endmoränengebiet). Einer dieser Seen ist der Feisnecksee; er liegt unmittelbar neben der Grundwassermessstelle des Landesmessnetzes mit den derzeit höchsten Urankonzentrationen im Grundwasser (Waren/Feisneck). Zusammenhänge und Ursachen dieser regionalen Häufung sind bislang noch unbekannt.

2.4.2 Radioaktivitätsmonitoring an Seesedimenten

Die seit 1993 im Rahmen der landesweiten Radioaktivitätsüberwachung erhobenen Daten zu Uran-Gehalten in Seesedimenten an 16 Probenahmestellen weisen im Durchschnitt einen deutlich niedrigeren Konzentrationsbereich auf als die mittels ICP-MS ermittelten Daten. Die

Ursache ist vermutlich darin zu suchen, dass bei der Radioaktivitätsmessung Sediment am Rande der Seen entnommen wird, während die Sedimentproben für das Gewässermonitoring in der Regel aus der tiefsten Stelle des jeweiligen Seeteils stammen. Der höchste gemessene Wert beträgt 2,35 mg/kg Uran. Parallelmessungen an gleichen Standorten wie im Seenprojekt fanden bisher nicht statt. Die räumliche Verteilung der Uran-Gehalte in den Seesedimenten ist in Abbildung 8 dargestellt.

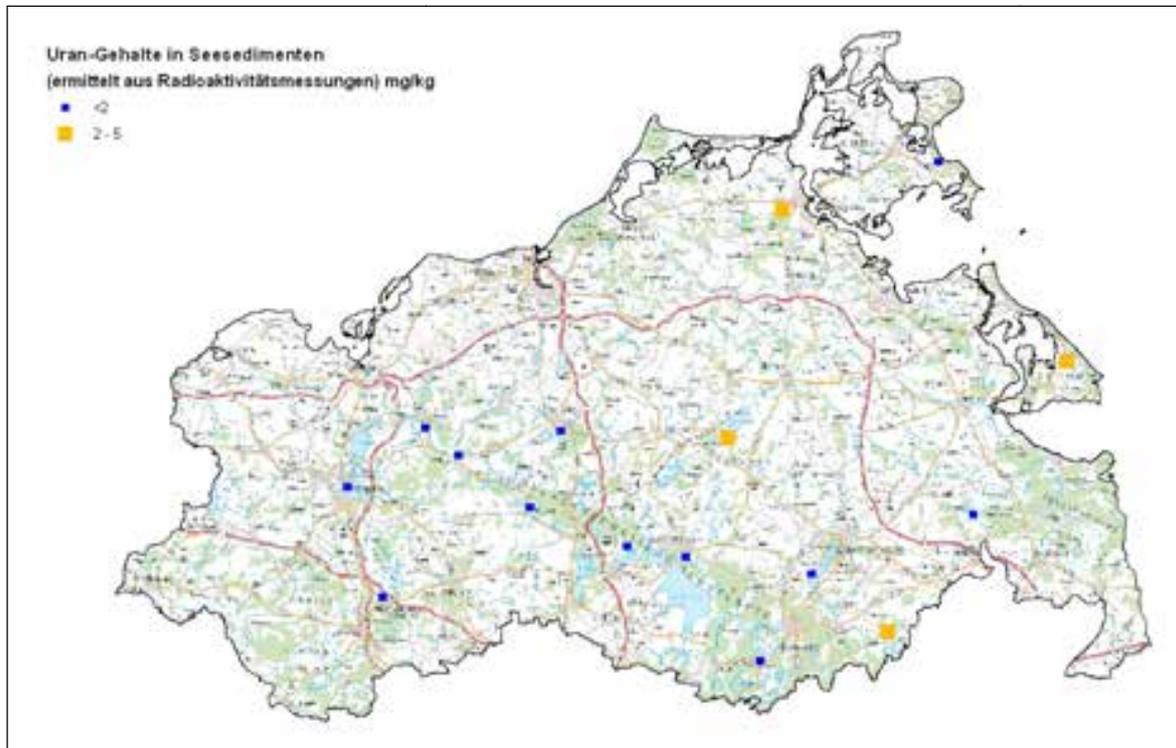


Abbildung 8: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [mg/kg TM] aus Radioaktivitätsmessungen in Sedimenten der Binnenseen (Quelle: LUNG)

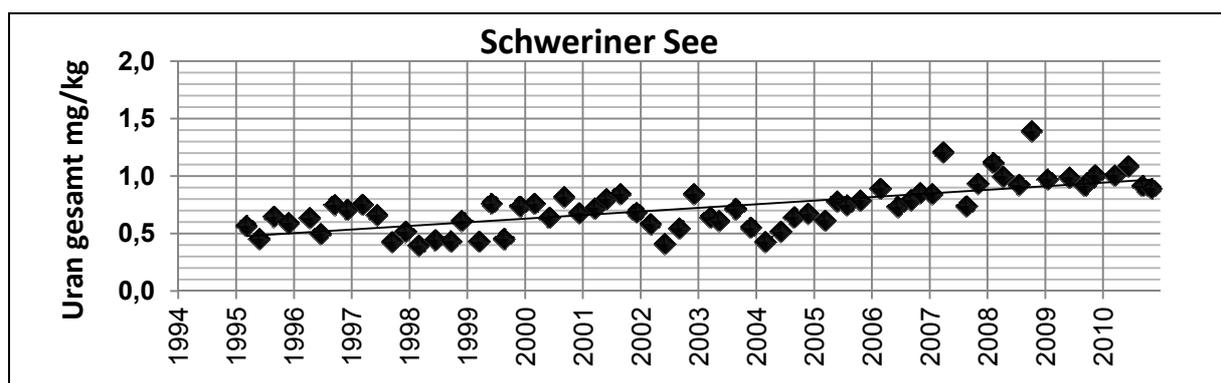


Abbildung 9: Uran-Gehalte [mg/kg TM] aus Radioaktivitätsmessungen am Sediment des Schweriner Sees (Quelle: LUNG)

Durch Fließgewässer wird Uran in die Binnenseen eingetragen und dort unter reduzierenden Bedingungen angereichert. Interessant ist in diesem Zusammenhang die Beobachtung, dass die Uran-Gehalte der Seesedimente in der Mehrzahl der 16 Seen leicht steigende Tendenz aufweisen. Als Beispiel sind in Abbildung 9 die gemessenen Konzentrationen an der

Sediment-Probenahmestelle des Schweriner Sees dargestellt. Als einziger der 16 Seen zeigt der Woblitzsee eine fallende Tendenz.

2.5 Bodenuntersuchungen

Im Sinne des Bundes-Bodenschutzgesetz (BBodSchG) (10) ist Boden die obere Schicht der Erdkruste, soweit sie Träger der im BBodSchG genannten Bodenfunktionen ist, einschließlich der flüssigen Bestandteile (Bodenlösung) und der gasförmigen Bestandteile (Bodenluft), ohne Grundwasser und Gewässerbetten. Im vorliegenden Bericht wird der Boden mit einer Schichtmächtigkeit von 2 m definiert. In dieser Zone finden die hauptsächlichsten Verwitterungsvorgänge statt. Das darunter anstehende, unverwitterte Substrat wird Sediment genannt.

Als Ackerboden oder Ackerkrume werden die obersten 30 cm des Bodens auf landwirtschaftlich bewirtschafteten Flächen definiert.

2.5.1 Rammkernsondierungen

In den letzten Jahren wurden vom LUNG landesweit Bodenproben mit Hilfe von Rammkernsondierungen gewonnen, um für verschiedene Parameter, u. a. Uran, die Hintergrundwerte zu ermitteln. Die Probenahmen erfolgten unabhängig von der jeweiligen Landnutzung auf Standorten, die als repräsentativ für die verschiedenen Bodeneinheiten angesehen wurden. Die Rammkernsondierungen waren durchweg 2 m tief. Die Beprobung erfolgte horizontweise, soweit die Horizontmächtigkeit die Entnahme einer genügenden Materialmenge zuließ. Die Analyse der Bodenproben wurde 2011 für einen Großteil des Landes abgeschlossen. Die Analytik für den Bereich des Messtischblattes Stralsund steht noch aus; sie ist besonders von Interesse, weil sich in diesem Gebiet das Wasserwerk Semlow-Palmzin befindet (siehe Kap. 2.1 und 3.1.1).

Es liegen insgesamt 1.785 mit ICP-MS gemessene Uran-Werte an 383 Probenahmestellen vor. Bei den Werten handelt es sich um Rohdaten, die bisher nicht statistisch abgesichert sind. Die räumliche Verteilung der maximalen Uran-Gehalte in den Böden ist in Abbildung 10 dargestellt.

Die Klassengrenzen sind so gewählt, dass die Vergleichbarkeit mit Literaturangaben oder anderen Angaben aus dem vorliegenden Bericht gegeben ist.

Der vorläufige Median der Uran-Gehalte der Böden liegt bei 0,38 mg/kg TM (Mittelwert nicht Ausreißer bereinigt: 0,45 mg/kg TM). Nur 1,4 % dieser Proben weisen höhere Gehalte auf, als die im Bodenbericht des Landes (11) angegebenen 1,6 mg/kg TM. Diese vereinzelt, erhöhten bis stark erhöhten Werte müssen als Sonderfälle gelten, die von besonderen Boden- und Nutzungsbedingungen abhängen können.

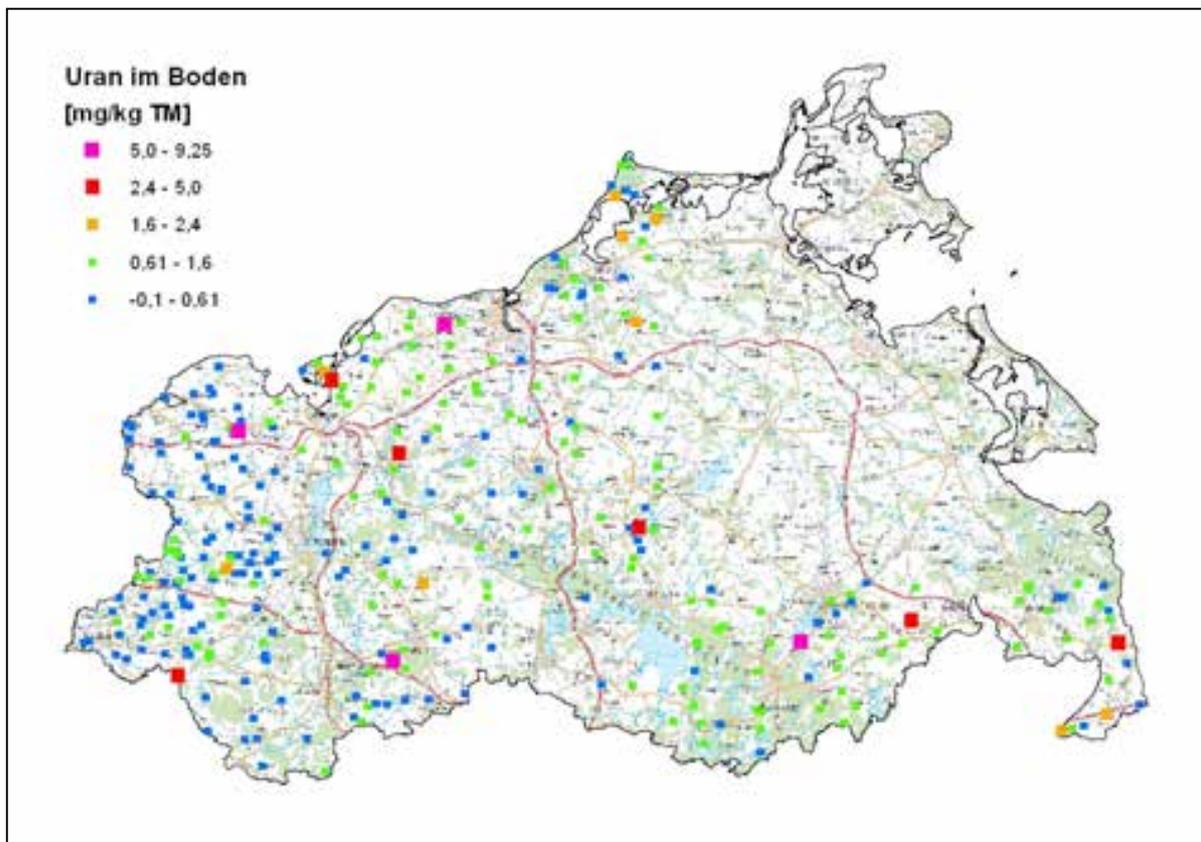


Abbildung 10: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [mg/kg TM] der Böden, beprobt aus Rammkernsondierungen (Quelle: LUNG)

2.5.2 Bodendauerbeobachtungsflächen (BDF)

Die im Rahmen der Bodendauerbeobachtung des LUNG vorgenommenen chemischen Untersuchungen von Bodenproben enthalten umfangreiche Spurenmetallanalysen, die jedoch zur Auswertung von Uran nicht genutzt werden können, da sie bisher mit einer für Uran relativ unempfindlichen Methode (Röntgenfluoreszenzanalyse mit 5 mg/kg Uran als Nachweisgrenze) durchgeführt wurden. Mit der wesentlich empfindlicheren Methode (ICP-MS mit 0,005 mg/kg Uran als Nachweisgrenze) konnte bisher nur ein Standort mit der Ortsbezeichnung „BDF Hohen Wangelin“ auf Uran analysiert werden (22 Proben).

Die gefundenen Konzentrationen sind - bezogen auf die überregionalen, in der Literatur (12) berichteten Werte - mit durchschnittlich 0,73 mg/kg TM Uran niedrig, unauffällig und zeigen keinen Trend mit zunehmender Tiefe. Der zum Vergleich in Abbildung 11 eingetragene geochemische Background von Sandstein liegt mit 0,45 mg/kg Uran (12) sogar noch etwas tiefer. Da die Proben der BDF-Fläche aber Sand-Kies-Gemische mit Kiesgehalten bis 37 % sind, kann der spezielle Sandsteinwert nur einen ersten Anhaltspunkt liefern. Der Durchschnittsgehalt der oberen kontinentalen Erdkruste liegt mit 2,5 mg/kg Uran (12) deutlich höher.

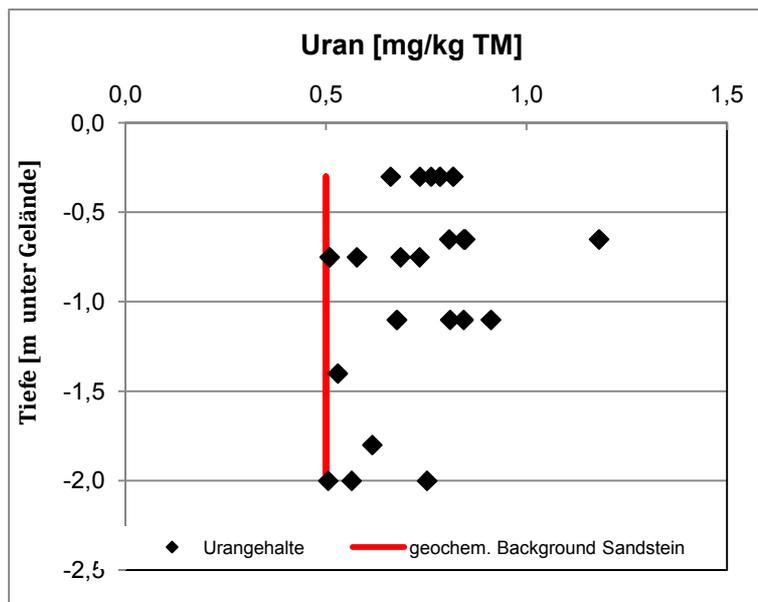


Abbildung 11: Uran-Gehalte [mg/kg TM] der BDF-Fläche „Hohen Wangelin“ in Abhängigkeit von der Tiefe [m unter Gelände] (Quelle: LUNG)

Eine nähere Auswertung dieser und anderer Uran-Gehalte in Bodenproben kann erst zu einem späteren Zeitpunkt erfolgen, nachdem die Analytik auf eine breitere Basis gestellt wurde. Es ist geplant, langfristig an vorhandenen Bodenproben im LUNG zusätzlich 50-80 Proben jährlich auf Uran zu analysieren.

2.5.3 Radioaktivitätsmonitoring an Böden

Seit vielen Jahren werden vom LUNG im Rahmen des landesweiten Radioaktivitätsmonitorings Bodenproben von Acker- und Weidestandorten untersucht, bei denen es sich durchweg um bewirtschaftete Böden handelt. Der Gehalt von natürlichen Radionukliden, inklusive Uran im Boden in M-V, wurde bereits 2002 im Bodenbericht des Landes M-V (11) beschrieben. Aktualisierte Daten des Radioaktivitätsmonitorings bestätigen diesen Wertebereich (Tabelle 3):

Tabelle 3: Uran [Bq/kg TM bzw. mg/kg TM] in Böden aus M-V (Quelle: LUNG)

Quelle der Bodendaten	U-238 [Bq/kg TM]			U _{Gesamt} [mg/kg TM]		
	Min	Max	Mittel	Min	Max	Mittel
Bodenbericht (11)	1,9	110	20,5	0,15	8,9	1,65
Aktuelle Daten ¹	1,9	73,9	18,7	0,15	5,96	1,51

1 LUNG: Messprogramme nach Strahlenschutzvorsorgegesetz

Die räumliche Lage der Probenahmepunkte in den Böden in M-V, ermittelt im Rahmen der Radioaktivitätsüberwachung, ist in der Abbildung 12 dargestellt.

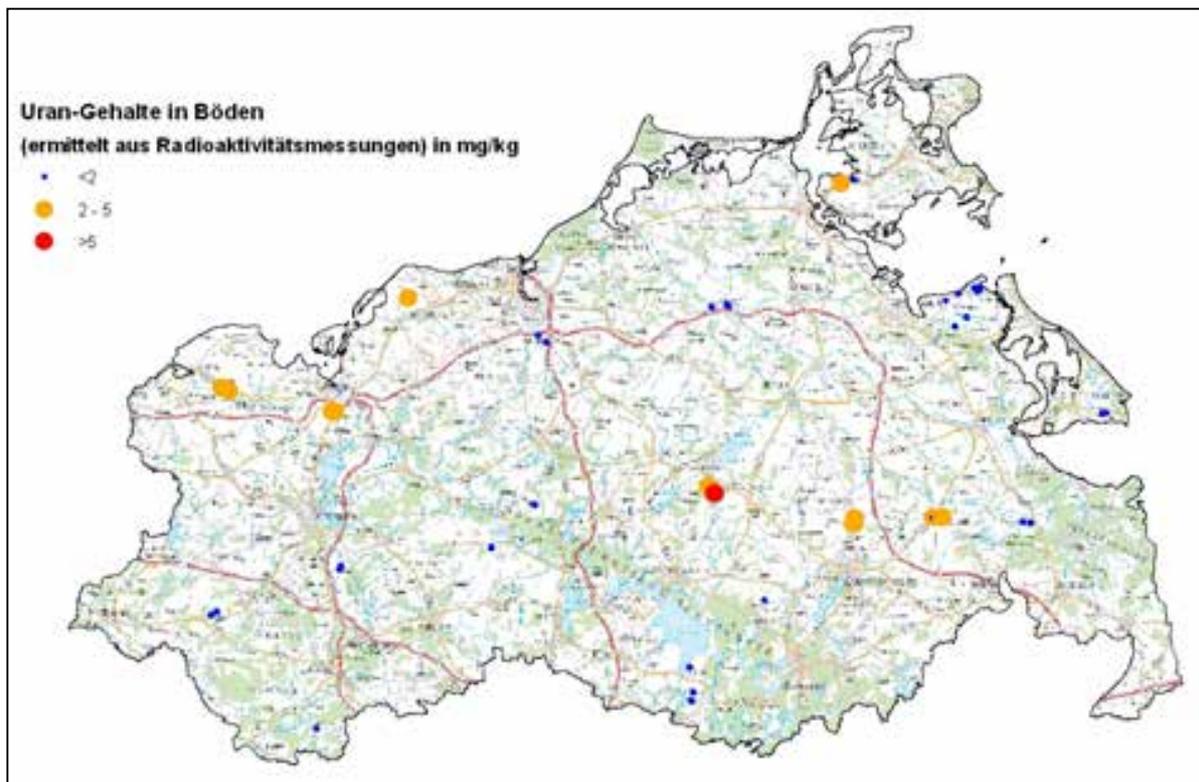


Abbildung 12: Übersichtskarte M-V mit Uran-Gehalten [mg/kg TM] der im Rahmen der Radioaktivitätsüberwachung untersuchten Böden (Quelle: LUNG)

Insgesamt zeigen die Uran-Gehalte in den Böden ein sehr heterogenes Bild. Neben Messreihen mit gleichbleibenden Uran-Gehalten gibt es sowohl Standorte mit steigenden Uran-Gehalten als auch solche mit fallender Tendenz und Standorte mit stark schwankenden Gehalten. Eine Auswahl der Ergebnisse zeigt Abbildung 13.

2.6 Lebensmittel

Im Rahmen der amtlichen Probenahme und -untersuchung werden jährlich insbesondere auch **Mineralwässer** stichprobenartig durch das Landesamt für Landwirtschaft, Lebensmittelsicherheit und Fischerei Mecklenburg-Vorpommern (LALLF) auf ihre Uran-Gehalte untersucht. Im Zeitraum von 2008 bis 2011 (Stand: 31.03.2011) wurden in keiner der 80 untersuchten Mineralwasserproben aus Mecklenburg-Vorpommern auffällige Uran-Gehalte nachgewiesen. Die Werte lagen deutlich unterhalb der Bestimmungsgrenze der in Verbindung mit der Bestimmung von Mengenelementen angewandten Methode (ICP-MS; Bestimmungsgrenze 0,36 $\mu\text{g/l}$). Darüber hinaus wurden 12 **Bierproben** aus Brauereien in M-V, einschließlich Brauhäusern, untersucht sowie weitere Proben wie lose Wässer aus Automaten. Auch hier wurde in keiner der Proben Uran nachgewiesen.

Untersuchungen von **Futtermitteln** auf Uran sind im „Rahmenplan über die Kontrollaktivitäten für den Sektor Futtermittel für die Jahre 2007 bis 2011“ (Stand 28.04.2010), bedingt durch die bestehende Rechtslage, nicht vorgesehen. Untersuchungsergebnisse zu Uran in Futtermitteln liegen nicht vor.

Radioaktive Untersuchungen von Futtermitteln erfolgen im Rahmen des Strahlenschutzvorsorgegesetzes im Routinebetrieb und zusätzlich bei einem Ereignisfall nach der EURATOM-VO (EG) Nr.3954/87, also nur "bei einem Ereignis mit nicht unerheblichen

radiologischen Auswirkungen, das zu einer erheblichen radioaktiven Kontamination von Futtermitteln führen kann oder geführt hat (Ereignisfall)". Und dann werden auch nur bestimmte Radionuklide (Cs 134, Cs 137) untersucht. Auch in diesen Fällen ist die Untersuchung auf Uran-Isotope nicht vorgesehen.

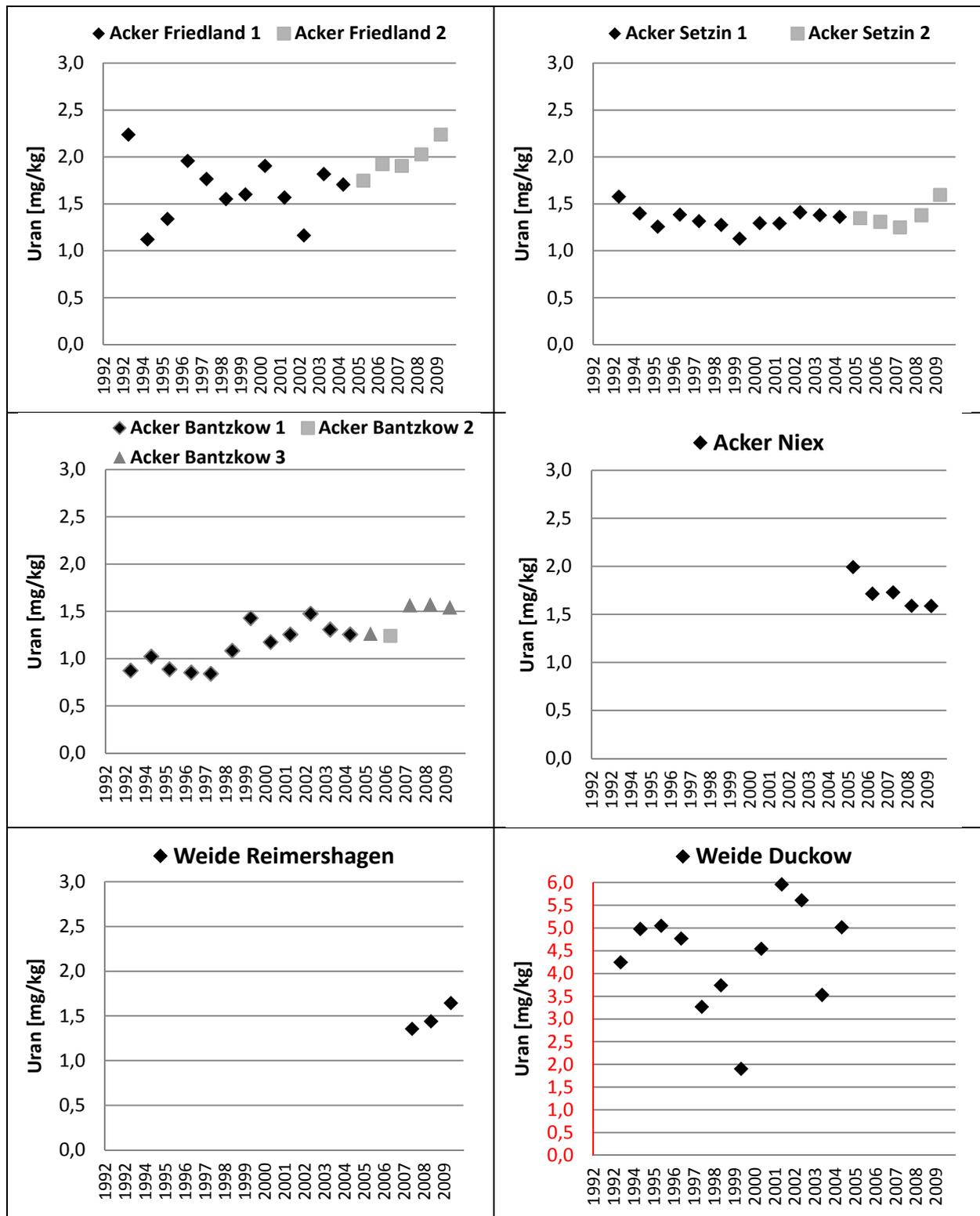


Abbildung 13: Zeitliche Entwicklung der Uran-Gehalte aus Radioaktivitätsmessungen in Böden (Quelle: LUNG)

3 ERFASSUNG, ANALYSE UND BEWERTUNG MÖGLICHER EINFLÜSSE AUF DIE URAN-GEHALTE IM GRUNDWASSER

In diesem Kapitel sind alle bisher durchgeführten Aktivitäten und Überlegungen der Arbeitsgruppe hinsichtlich der Ursachenfindung zusammengestellt. Ausgehend von dem Verdacht, dass das Bauwerk Brunnen/Messstelle selbst zur Erhöhung der Uran-Gehalte beiträgt, wurden technische Versuche durchgeführt, zudem Hypothesen zur Herkunft des Urans aufgestellt und durch Testreihen unterlegt. Schwerpunkt war die Klärung der Frage, ob die in den verschiedenen Umweltmedien gemessenen Uran-Gehalte ausschließlich natürlich sind oder durch die Landwirtschaft verstärkt werden. Zum Thema Direkteintrag durch Landwirtschaft wurden Uran-Bestimmungen an Düngemitteln und Abschätzungen zur Uran-Anreicherung im Boden und Sediment durchgeführt.

3.1 Technische Versuche

Als erster Schritt zur Erklärung der erhöhten Uran-Gehalte wurden Überlegungen angestellt, ob technische Einflüsse wie Brunnenausbau und Förderregime eine wesentliche Rolle spielen können. In der Literatur (13) wird darauf hingewiesen, dass insbesondere bei älteren Brunnen im Bereich der Filterlage erhöhte Radioaktivität festgestellt werden kann. Auch wurde möglichen Einflüssen der Messstellen/Brunnen selbst auf die gemessenen Uran-Gehalte nachgegangen.

3.1.1 Technischer Versuch zur Uranminderung am Standort Semlow-Palmzin

Durch die Wasser und Abwasser GmbH „Boddenland“ wurden technische Versuche an einzelnen Brunnen-Standorten durchgeführt mit dem Ziel, die Verhaltensweise der Einzelbrunnen zu untersuchen und durch veränderte Fahrweise der Brunnen die Uranbelastung zu vermindern.

Konkret in der Wasserfassung Semlow-Palmzin der Wasser- und Abwasser GmbH Boddenland wurden am 06.08.2008 erstmalig Wasseranalysen (Roh- und Reinwasser) auf Uran untersucht und erhöhte Werte festgestellt. Daraufhin wurden wöchentliche Analysen auf Uran aus dem Rohwasser der beiden Einzelbrunnen (Brunnen 1 und 2) sowie dem Reinwasser (Werksausgang bzw. Netzproben) vorgenommen. Die Uran-Gehalte blieben erhöht und erreichten beim Brunnen 1 bei der Beprobung am 27.08.2008 einen Wert von 61,2 µg/l Uran. Daraufhin wurde der Brunnen 1 stillgelegt und nur der Brunnen 2 zur Trinkwasseraufbereitung weiterbetrieben.

Am 18.11.2008 wurde eine erneute Analyse auf Uran durchgeführt. Dabei wies der Brunnen 1 eine Urankonzentration von 74,9 µg/l auf. Daraufhin wurde mit dem Gesundheitsamt des damaligen Landkreises Nordvorpommern, Außenstelle Ribnitz, eine zeitlich eng gestaffelte Untersuchungsreihe vorgenommen. Zunächst wurde am 08.12.2008 ein eintägiger Pumpversuch durchgeführt und mehrfach Proben während des Pumpversuches entnommen und auf Uran untersucht. Danach wurde der Brunnen 1 bis zum 12.12.2008 täglich abgepumpt und jeweils Probenahmen durchgeführt. Das Abpumpwasser wurde in einen Vorfluter abgeschlagen und gelangte nicht zur Aufbereitung. Der Brunnen 2 wurde parallel beprobt. Dieser Brunnen stellte ab 27.08.2008 allein die Versorgung des Wasserwerkes Semlow-Palmzin sicher. Vom 12.12.2008 bis 29.12.2008 wurden in mehrtägigen Abständen weitere Wasserproben aus beiden Förderbrunnen entnommen und auf Uran untersucht. Dabei wies der Brunnen 2 durchweg Uran-Gehalte zwischen 25-28 µg/l auf. Die Uran-Gehalte im Brunnen 1 nahmen bei täglichem Abpumpen von 60 µg/l am

08.12.2008 auf 31 µg/l am 29.12.2008 kontinuierlich ab (Abbildung 14). Dennoch wurde festgelegt, den Brunnen 1 nicht mehr ans Netz zu nehmen.

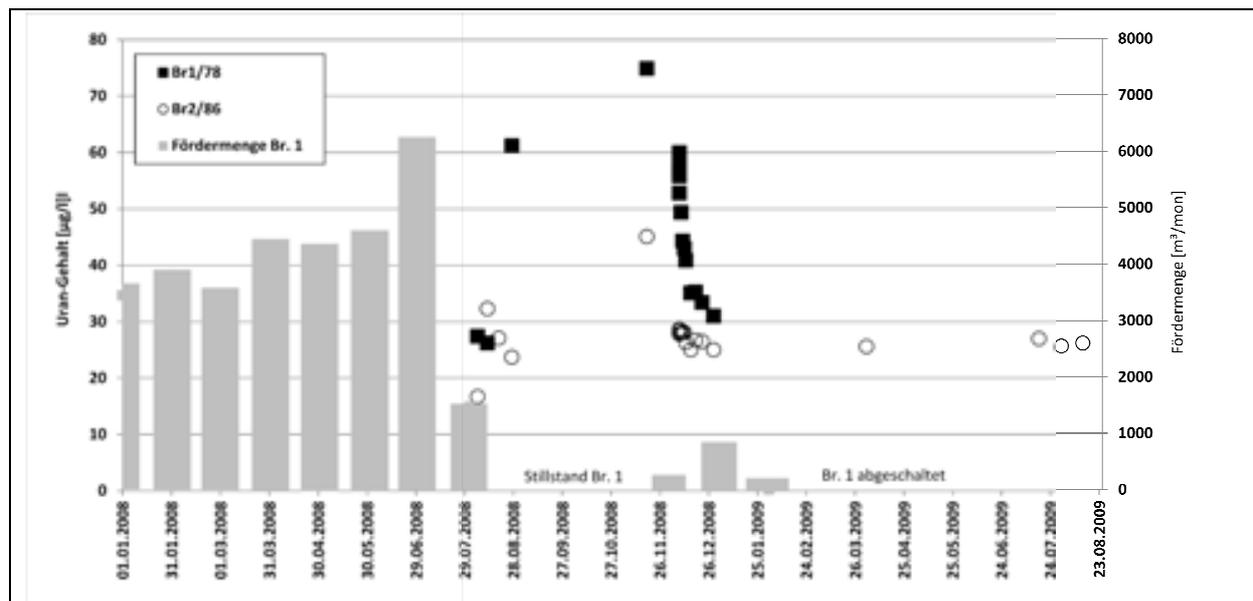


Abbildung 14: Verlaufsdiagramm der Fördermengen [m³ pro Monat] und der Uran-Gehalte [µg/l] während des technischen Versuchs im Wasserwerk Semlow-Palmzin. (Quelle: Wasser und Abwasser GmbH „Boddenland“).

Im Januar-April 2009 wurden mehrfach Uran-Gehalte im Reinwasser (Werksausgang und im Netz ‚Kita‘) überprüft. Dabei wurden stets Werte zwischen 25-27 µg/l gemessen. Am 07.09.2009 wurde die zwischenzeitlich errichtete Trinkwasserleitung von Tribohm zum Wasserwerk Semlow-Palmzin angeschlossen. Von diesem Zeitpunkt an wurde Mischwasser in das Netz Semlow geleitet. Seit der Mischwasserversorgung des Versorgungsgebietes Semlow wurde der Werksausgang mehrfach auf Uran untersucht und stets nur Konzentrationen zwischen 4,9 und 6,6 µg/l gemessen.

In Auswertung dieser Untersuchung sollte geprüft werden, ob bei Förderbrunnen, die sich im jahrelangen Dauerbetrieb befinden, Stillstandsphasen eine vorübergehende Erhöhung der Uran-Werte verursachen können.

3.1.2 Messteilentechnische Einflüsse und Fördermengen

3.1.2.1 Messstelle Waren-Feisneck

Viele, vor allem ältere Messstellen zeigen mit der Zeit im Filterbereich Veränderungen, z. B. Verschlammungen oder Verockerungen, die sogar zum Verschluss der Filter führen können.

Um zu überprüfen, ob es sich bei den erhöhten Uran-Gehalten um reale Gehalte des Grundwassers handelt oder ob sie durch den Einfluss des technischen Bauwerks Grundwassermessstelle verändert wurden (z. B. durch Änderung der Redoxverhältnisse im Nahbereich des Filters und dadurch folgender Ausfällungen (13)), wurde am 07.07.2010 eine Dauerbeprobung an der Messstelle Waren-Feisneck durchgeführt. Diese Messstelle zeichnet sich durch die kontinuierlich höchsten Uran-Gehalte aus. Bei der Dauerbeprobung wurden aus insgesamt 20.000 gefördertem Litern Wasser über ca. 12 Stunden 17 Proben gewonnen

und auf Uran analysiert. Die Uran-Gehalte befinden sich in einer engen Spanne von 27,4 bis 28,8 µg/l (Abbildung 15).

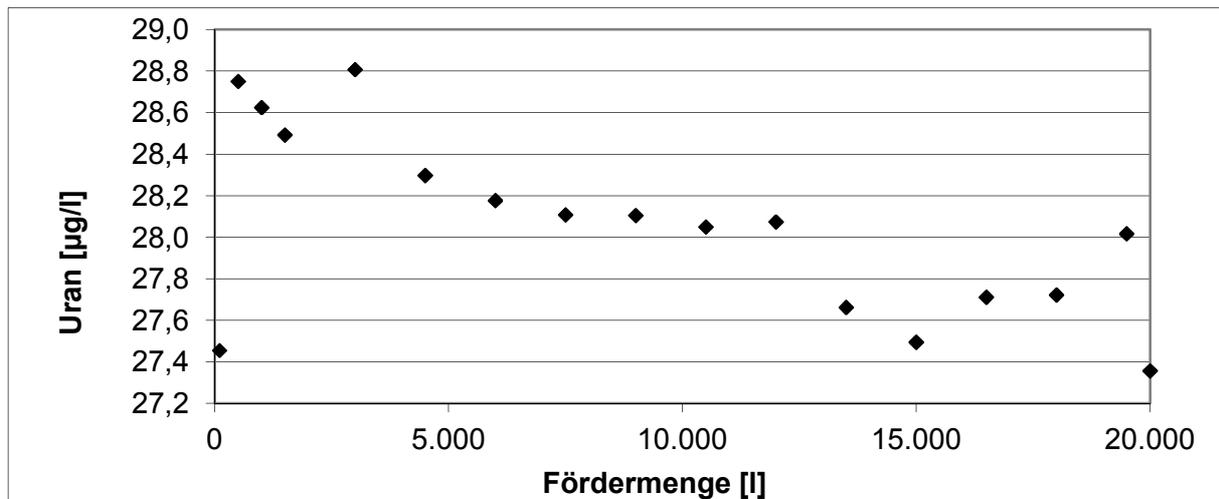


Abbildung 15: Verteilung der Uran-Gehalte [µg/l] im Grundwasser während der Dauerbeprobung an der Messstelle Waren-Feisneck in Abhängigkeit von der abgepumpten Wassermenge [l] (Quelle: LUNG)

Die erste, nach 100 l Fördervolumen bewusst zu früh genommene Probe zeigt einen etwas niedrigeren Uran-Gehalt. Die zweite Probe entspricht den Standard-Probenahmebedingungen des Messstellenpasses (dreifacher Rohrvolumenaustausch, konstante Feldparameter). Diese Probe zeigt einen höheren Uran-Gehalt; danach setzt ein leicht fallender, statistisch eindeutiger Trend ein ($R^2=0,81$). Auch bei den übrigen Parametern finden sich zum Teil deutliche Trends. Vor allem Eisen (Abbildung 16) und Mangan als redoxsensitive Elemente zeigen ebenfalls abnehmende Gehalte mit zunehmender Fördermenge, so dass sich positive Korrelationen zwischen Uran und Eisen ($R^2=0,73$) und Uran und Mangan ($R^2=0,78$) ergeben (Abbildung 17). Daher ist zu vermuten, dass sich durch die Messstelle ein, wenn auch geringer, erhöhender Einfluss (z. B. durch Zufuhr von Luftsauerstoff) auf die Uran-Gehalte des geförderten Grundwassers einstellt.

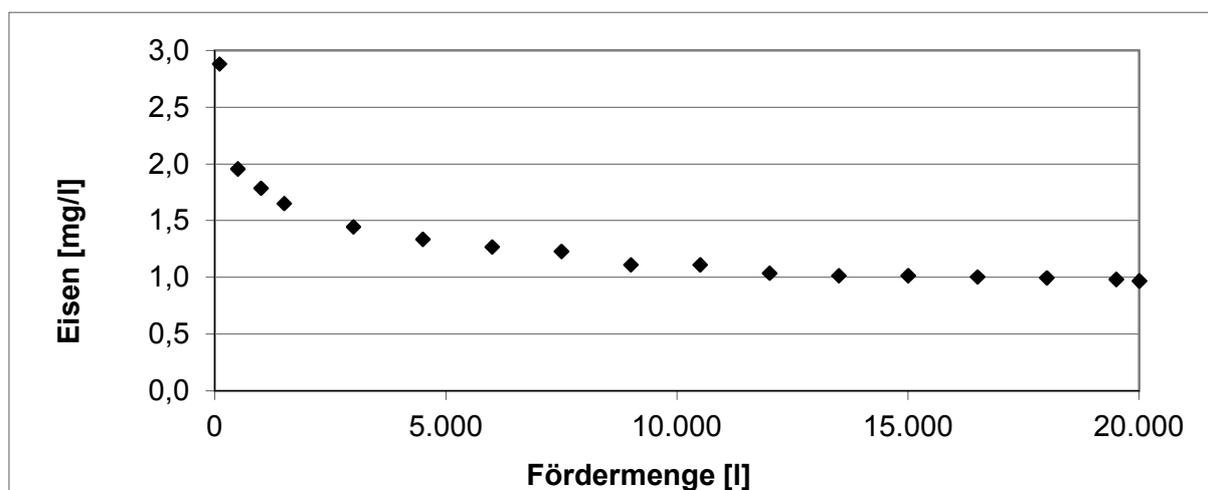


Abbildung 16: Eisen-Gehalte [mg/l] im Grundwasser an der Messstelle Waren-Feisneck in Abhängigkeit von der abgepumpten Wassermenge [l] (Quelle: LUNG)

Ein landwirtschaftlicher Einfluss ist an dieser Messstelle nicht erkennbar, da keine Stickstoff- und Phosphorverbindungen im Grundwasser nachgewiesen werden konnten. Auch die für Mineraldünger typischen Parameter Sulfat, Kalium und Magnesium weisen keine Korrelation mit Uran auf. Insgesamt sind nur wenige Komponenten (Abbildung 17) mit Uran positiv korreliert: Bor ($r^2=0,83$), Mangan ($r^2=0,78$) und Eisen ($r^2=0,73$).

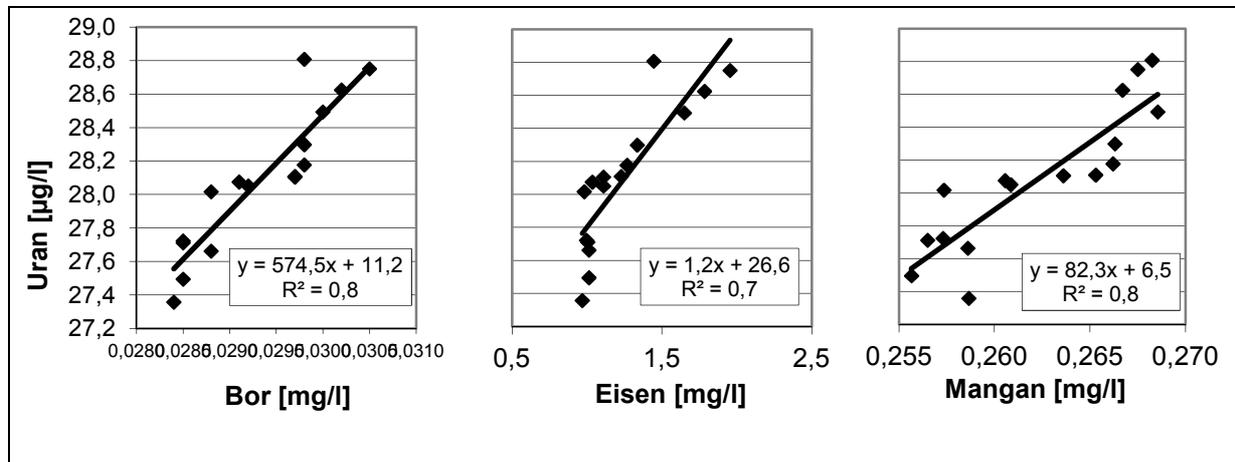


Abbildung 17: Korrelationen der Uran-Gehalte [µg/l] mit denen von Bor, Mangan und Eisen [mg/l] im Grundwasser während der Dauerbeprobung an der Messstelle Waren-Feisneck (Quelle: LUNG)

Hingegen zeigt sich ein indirekter Einfluss des technischen Bauwerks, dessen Ursache möglicherweise darin liegt, dass durch das offene Pegelrohr atmosphärischer Sauerstoff in das Grundwasser gelangt und sich diffusiv im Nahbereich des Filters ausbreitet. Dadurch können sich die Redoxverhältnisse und auch die Konzentration redoxsensitiver Stoffe ändern.

3.1.2.2 Messstelle Schlemmin

Zur Klärung der Belastung im Wasserwerk Semlow-Palmzin wurde eine Grundwassermessstelle im Bereich der Wasserscheide eingerichtet. Nach Ende der Bohrarbeiten und Errichtung der Messstelle im Schlemminer Holz wurde ein Kurzpumpversuch durchgeführt, um die Charakteristik des Pegels für weitere Beprobungen festzustellen. Während dieses Pumpversuchs wurden 8 Grundwasser-Proben genommen und diese auf 39 hauptsächlich anorganische Parameter analysiert. Der Uran-Gehalt des Grundwassers ist mit 0,05 bis 0,09 µg/l unauffällig niedrig (Abbildung 18). Interessant ist dennoch eine Tendenz zu weiter abnehmenden Gehalten bei zunehmender Fördermenge, ähnlich wie bei der oben beschriebenen Dauerbeprobung in Waren/Feisneck. Auch hier existieren einige deutliche Korrelationen z. B. mit Mangan ($r^2=0,91$), Nickel ($r^2=0,97$), Kobalt ($r^2=0,96$), Barium ($r^2=0,93$) und Sulfat ($r^2=0,83$).

Nur kurze Zeit nach Bohrung und Ausbau besteht noch eine große Wahrscheinlichkeit, dass der Haupteinfluss erhöhter Uran-Gehalte durch die Bautätigkeit kommt. Dies ist ersichtlich am Nickel- und Kobalt-Trend in den Messwerten, da diese Elemente oft zur Stahlhärtung einlegiert werden und als Abrieb während der Bohrarbeiten im Bohrloch verbleiben können.

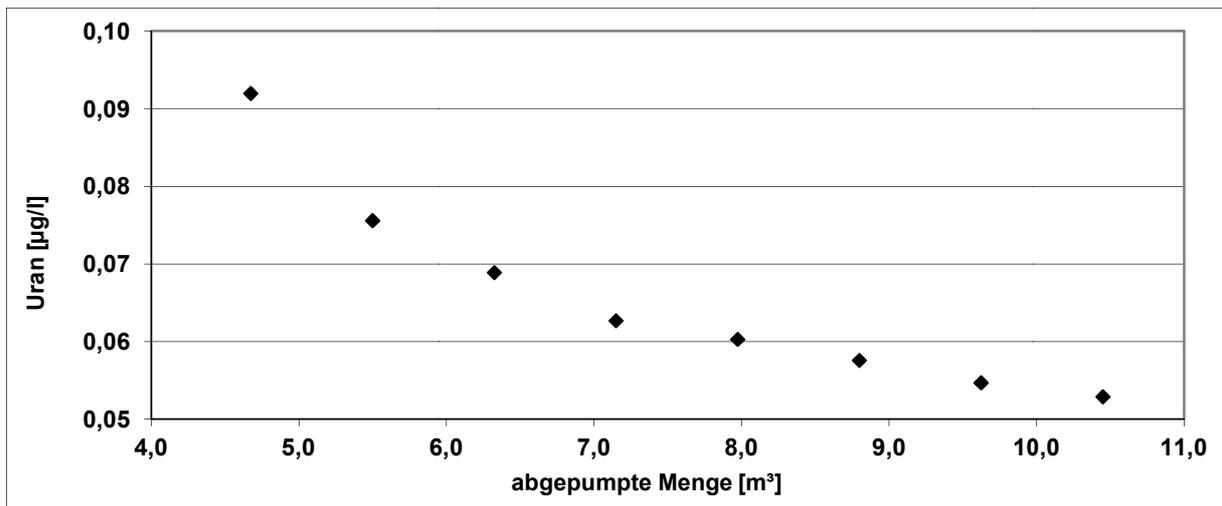


Abbildung 18: Uran-Gehalte [µg/l] in der Messstelle im Schlemminer Holz in Abhängigkeit von der abgepumpten Wassermenge [m³] (Quelle: LUNG)

Die Genauigkeit der Bestimmung des Uran-Gehaltes im Grundwasser kann durch Einflüsse aus dem Bauwerk Messstelle/Brunnen selbst, aber auch durch die Abpumpdauer und –menge beeinflusst sein. Inwieweit die strikte Einhaltung von Vorgaben aus allgemein anerkannten Regeln der Technik (z. B DVWK/DWA, DIN) bei der Grundwasserprobenahme (z.B. hinsichtlich des 3-fachen Rohrvolumenaustausches vor der Probenahme) dazu führen kann, dass die Uran-Gehalte zu hoch ausfallen, sollte weiter geklärt werden.

3.2 Hypothesen zur Herkunft des Urans

Zur Herkunft des Urans wurden in der Arbeitsgruppe vier Hypothesen diskutiert (Abbildung 19), die mit Hilfe von Auswertungen bestehender Daten und Sonderuntersuchungen überprüft werden sollten:

1. Das Uran stammt aus Tiefenwasser – geogener Prozess.
2. Das Uran wird aus dem anstehenden Sediment durch Sauerstoff gelöst, wobei es sich bei dem Sauerstoff um im Sickerwasser gelösten Luftsauerstoff handelt – geogener Prozess.
3. Das Uran wird aus dem anstehenden Sediment durch (Luft-)Sauerstoff unter Beteiligung weiterer Oxidantien oder Komplexbildner gelöst – anthropogen induzierter Prozess, indirekter Einfluss der Landwirtschaft.
4. Uran wird aus Phosphordünger direkt eingetragen – anthropogener Prozess.

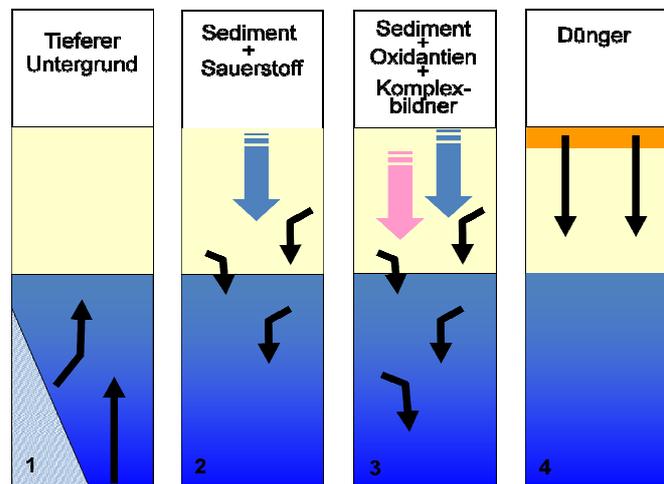


Abbildung 19: Vier Hypothesen zur Herkunft der erhöhten Uran-Gehalte im Grundwasser (Quelle: LUNG)

3.2.1 Auswertung der geologischen und geografischen Situation

Ziel dieser Auswertungen war es zu überprüfen, ob der Aufbau des geologischen Untergrundes Hinweise liefert zur Deutung der Herkunft des Urans. Die Uran-Gehalte wurden in Bezie-

hung gesetzt zur räumlichen Verbreitung, zur Tiefenlage, zum Schichtaufbau und der Landnutzung.

3.2.1.1 Räumliche Verteilung

Einer der ersten Hinweise auf eine Beziehung zwischen geologischem Aufbau und erhöhten Uran-Gehalten im Grundwasser war die auffallende Häufung der Befundpunkte entlang der Randlagen der letzten Vereisung.

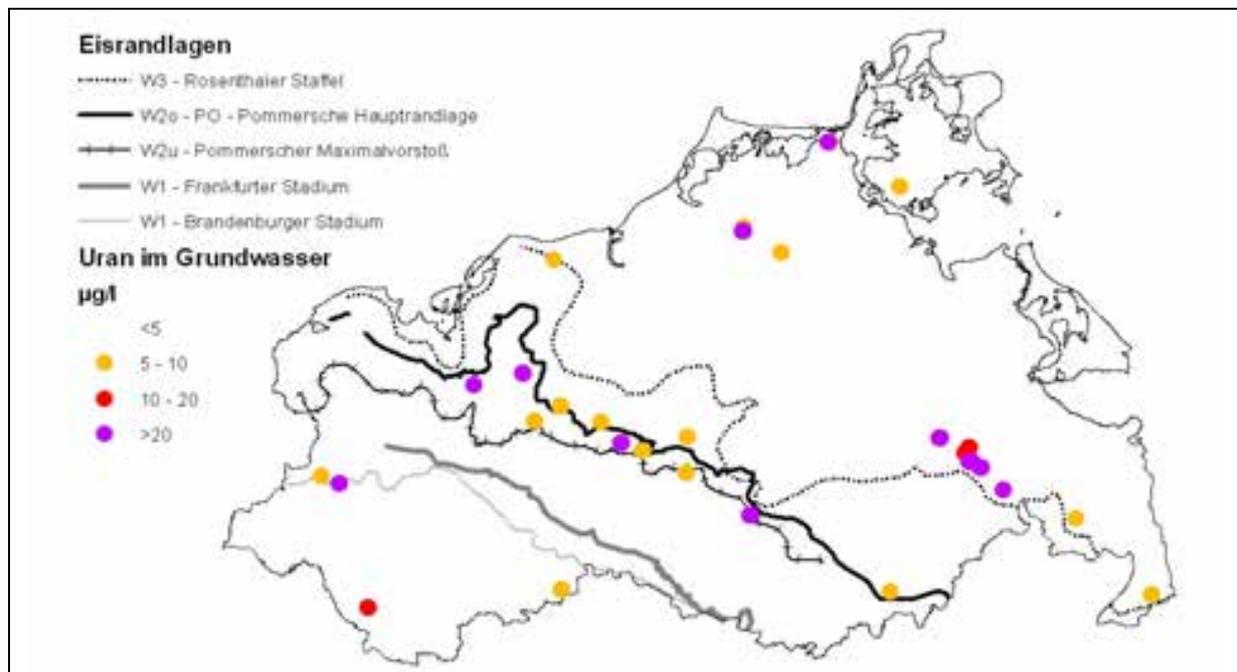


Abbildung 20: Eisrandlagen und Lage der Grundwassermessstellen (Landesmessnetz und Wasserversorger) mit auffälligen Uran-Gehalten (Quelle: LUNG)

Eine Begründung hierfür ließ sich aber bisher nicht finden. Die Sedimente der Eisrandlage unterscheiden sich von denen im Vor- und Hinterland lediglich durch ihre Schichtlagerungsstruktur, nicht aber durch ihre Zusammensetzung. Zwischen den Befundpunkten Palmzin und Beseritz-Friedland-Pasewalk deutet sich ebenfalls ein linienförmiges Element an; eine geologische Struktur ist aber nicht bekannt.

3.2.1.2 Tiefenabhängigkeit

Die Abbildung 21 zeigt, dass sich erhöhte Befunde im Grundwasser ausschließlich im oberflächennahen Bereich finden. Auffällig ist die Häufung der Befunde über 10 µg/l, die aus einem schmalen Tiefenbereich von 13 bis 23 m Filteroberkante gefördert wurden. Im Tiefenbereich unter 60 m liegen die Werte durchweg unter 1 µg/l, teilweise unter der Nachweisgrenze. Für das mögliche Auftreten von Uran in bisher nicht beprobten größeren Tiefen gibt es derzeit keine Hinweise.

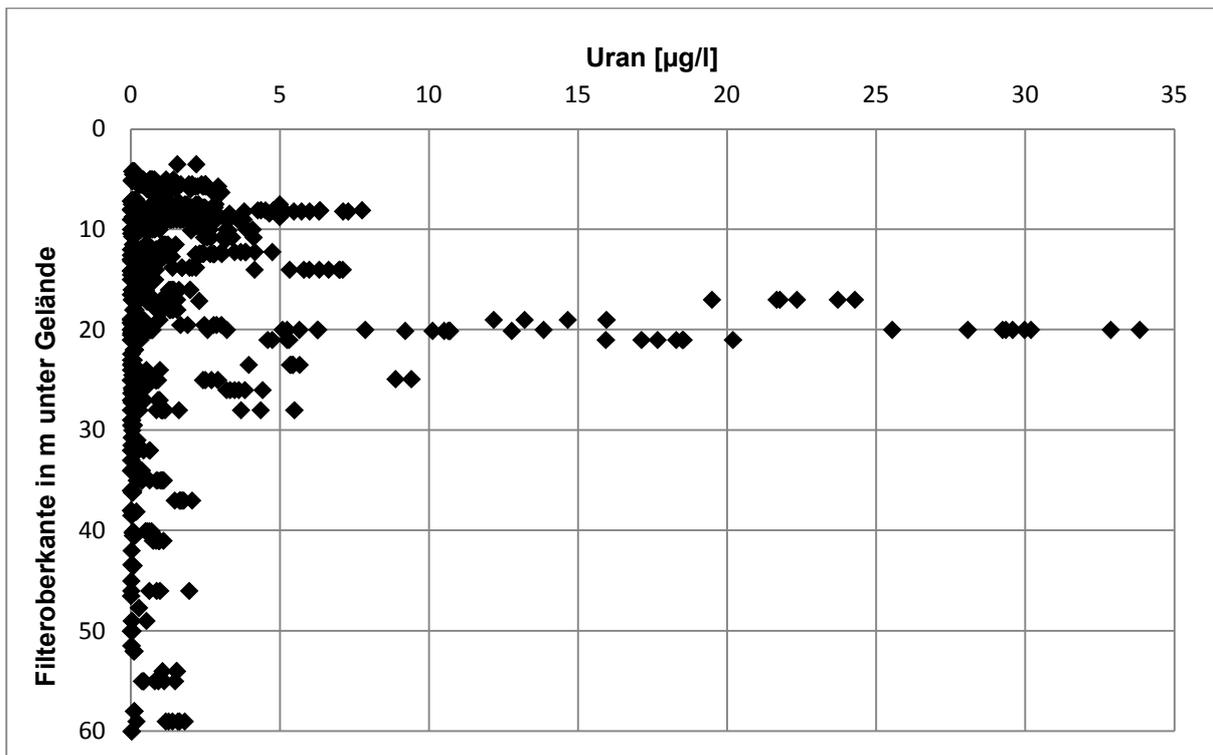


Abbildung 21: Verteilung der seit 2007 gemessenen Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes in Abhängigkeit von der Entnahmetiefe [m unter Gelände] (Quelle: LUNG)

Die in diesem Kapitel aufgezeigte Abhängigkeit der erhöhten Uran-Gehalte von der Tiefenlage lässt den Schluss zu, dass ein aktiver Aufstieg uranhaltiger Wässer aus größeren Tiefenlagen in M-V nicht anzunehmen ist (Hypothese 1).

3.2.1.3 Geologischer Schichtaufbau an belasteten Standorten

Betrachtet man die Bohrprofile (Abbildung 22) der sechs am meisten belasteten Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes, so zeigen sich weder im geologischen Aufbau noch in der Lage des Grundwasserspiegels Gemeinsamkeiten. In den Messstellen Tewswos und Friedland wird der belastete Grundwasserleiter von mehr oder weniger mächtigem Geschiebemergel überdeckt; in den übrigen Messstellen liegt der Grundwasserspiegel frei oder unter geringfügiger Bedeckung (z. B. mit Torfmudde in Waren-Feisneck). Die Sickerstrecke von der Geländeoberfläche bis zur gesättigten Zone kann sehr kurz (Friedland, Waren-Feisneck), aber auch sehr lang sein (Mankmoos).

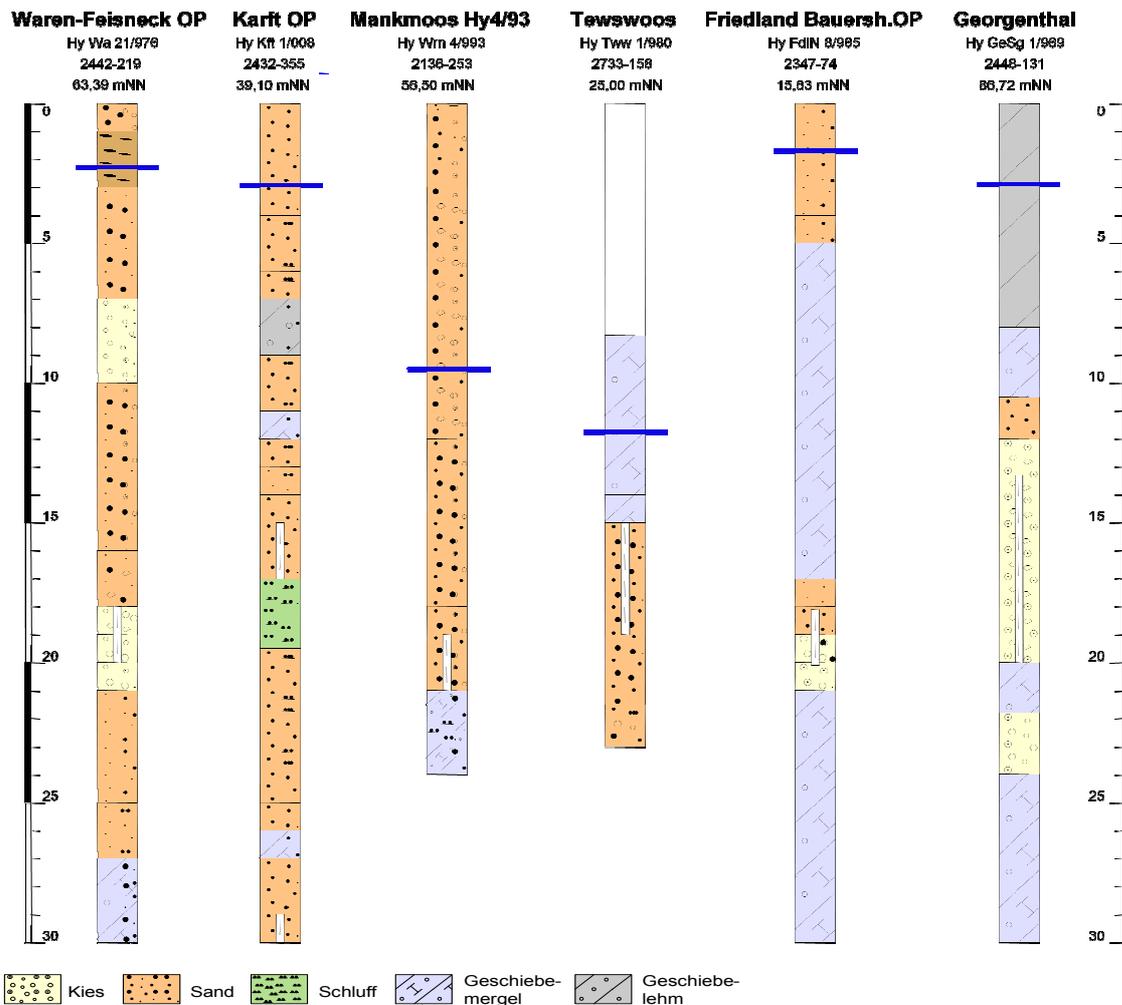


Abbildung 22: Gegenüberstellung der Bohrprofile derjenigen Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes, die erhöhte Uran-Gehalte aufweisen (Die blauen Balken markieren den Ruhewasserspiegel.) (Quelle: LUNG)

Der Schichtaufbau direkt an der Messstelle liefert keine Hinweise auf Gemeinsamkeiten. Vermutlich spielt der geologische Aufbau des Einzugsgebietes, aus dem die Messstellen angeströmt werden, die größere Rolle.

3.2.1.4 Einzugsgebiete der belasteten Messstellen

Zur Analyse der Landnutzung wurde den sechs Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes mit den höchsten Uran-Gehalten ein hypothetisches Einzugsgebiet von 200 m Breite und ca. 1.000 m Länge zugeordnet (Abbildung 23). Allerdings konnte die Zustromrichtung (blaue Pfeile) zur Messstelle nicht in allen Fällen eindeutig bestimmt werden. Bei der Landnutzung innerhalb dieser Einzugsgebiete zeigen sich keine großen Unterschiede. Die Nutzung ist vorwiegend landwirtschaftlich mit geringeren Anteilen Wald oder Siedlung

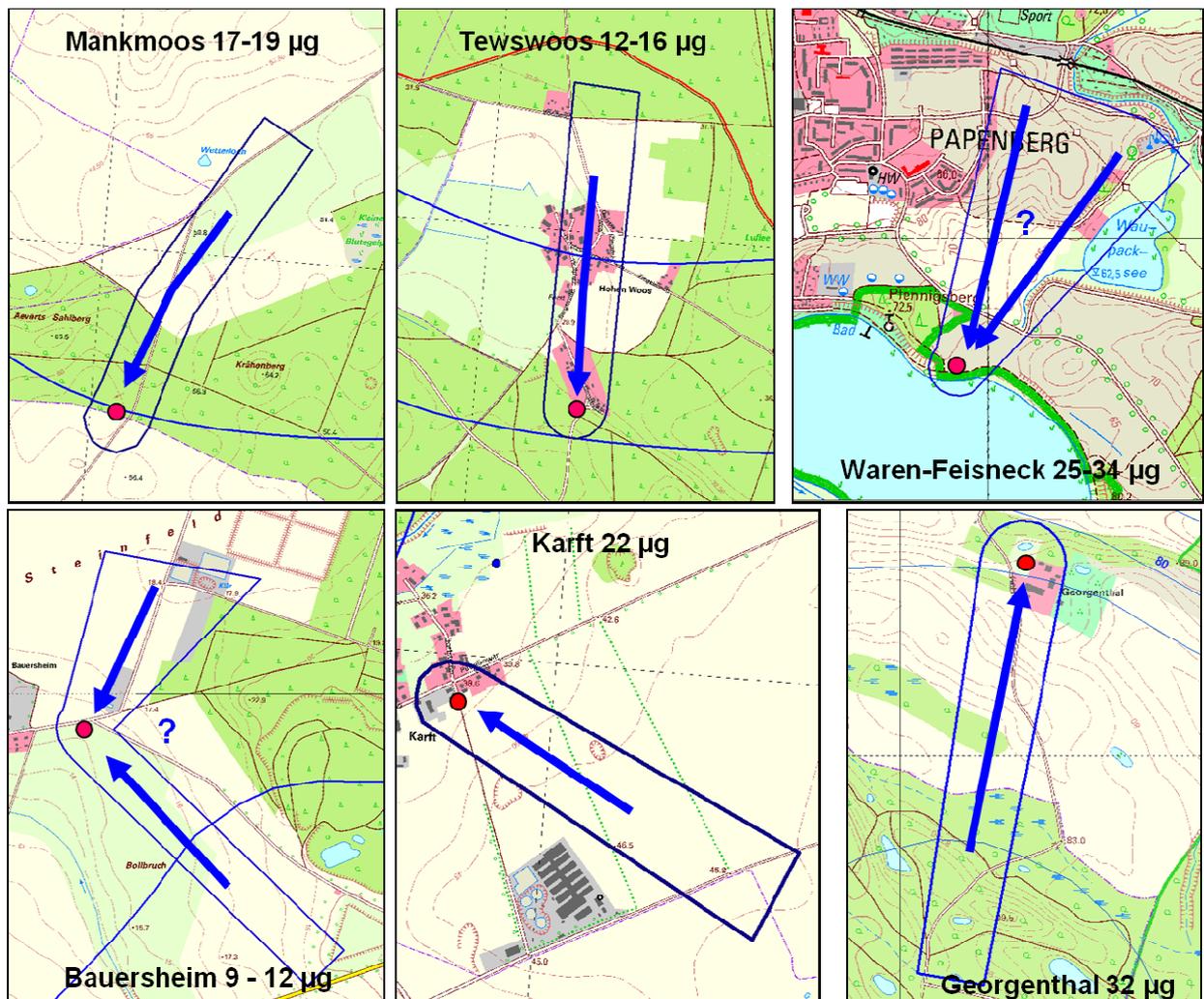


Abbildung 23: Lage der vermutlichen Grundwassereinzugsgebiete an den sechs Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes mit erhöhten Uran-Gehalten (Quelle: LUNG)

Aus der forstlichen Standortkartierung lässt sich der Hydromorphiegrad ableiten. Danach sind alle sechs Einzugsgebiete als anhydromorph oder wenig hydromorph eingestuft, d. h. die Standorte sind vorwiegend trocken und gut geeignet, Niederschläge aufzunehmen (Neubildungsgebiete). Diese Merkmale sind nicht eindeutig, denn sie treffen zwar für alle Einzugsgebiete der belasteten Standorte zu; aber nicht in allen Messstellen des Landesmessnetzes mit den gleichen Merkmalen wurden erhöhte Uran-Gehalte festgestellt.

3.2.1.5 Sedimentuntersuchung an der Messstelle Schlemmin

Über den Aufbau und die geochemische Zusammensetzung der im Lande vorkommenden Geschiebemergel, die die Grundwasserleiter überdecken, ist sehr wenig bekannt. Generell waren tiefere geologische Schichten, durch die Grundwasser strömt, bisher nur selten Gegenstand von Spurenmetall-Untersuchungen.

Zur näheren Erkundung des Grundwasserleiters wurde daraufhin im Anstrom der Wasserfassung Palmzin, bei der erhöhte Uran-Gehalte festgestellt wurden, in ca. 2 km Entfernung die neue Messstelle Schlemmin eingerichtet. Beim Bohren wurden hochwertige Bohrkern gewonnen, an denen umfangreiche anorganische Analysen vorgenommen wurden. So wurden 35 Sedimentproben aus 0 bis 25 m Tiefe gezogen und 2009 auf Uran und weitere charakterisierende Parameter untersucht.

Die Uran-Gesamtgehalte bewegen sich zwischen 0,2 und 1,6 mg/kg im Sediment mit einem mittleren Gehalt von 0,6 mg/kg. Diese Werte liegen im Bereich der geogenen Grundgehalte von Gesteinen (z. B. Sandsteine 0,45 mg/kg Uran, Kalksteine 2,2 mg/kg Uran, tonige Gesteine 3,2 mg/kg Uran (12)). Auch für die weiteren gemessenen Parameter wurden keine auffälligen Befunde festgestellt.

Die Substrate sind gut voneinander unterscheidbar (Abbildung 24): Die bindigen Sedimente der Bohrung bis in max. 10 m Tiefe (Geschiebemergel mit durchschnittlich 15 % Tonfraktion) haben einen Uran-Gehalt von im Mittel 1,0 mg/kg, und - bis auf die obersten natürlich entkalkten Proben - einen hohen Kalkgehalt von durchschnittlich 20 %. Die Sande im unteren Bereich, in denen die Bohrung verfiltert wurde, haben knapp 3 % Tonfraktion, nur noch ca. 6 % Kalk und auch nur 0,5 mg/kg Uran.

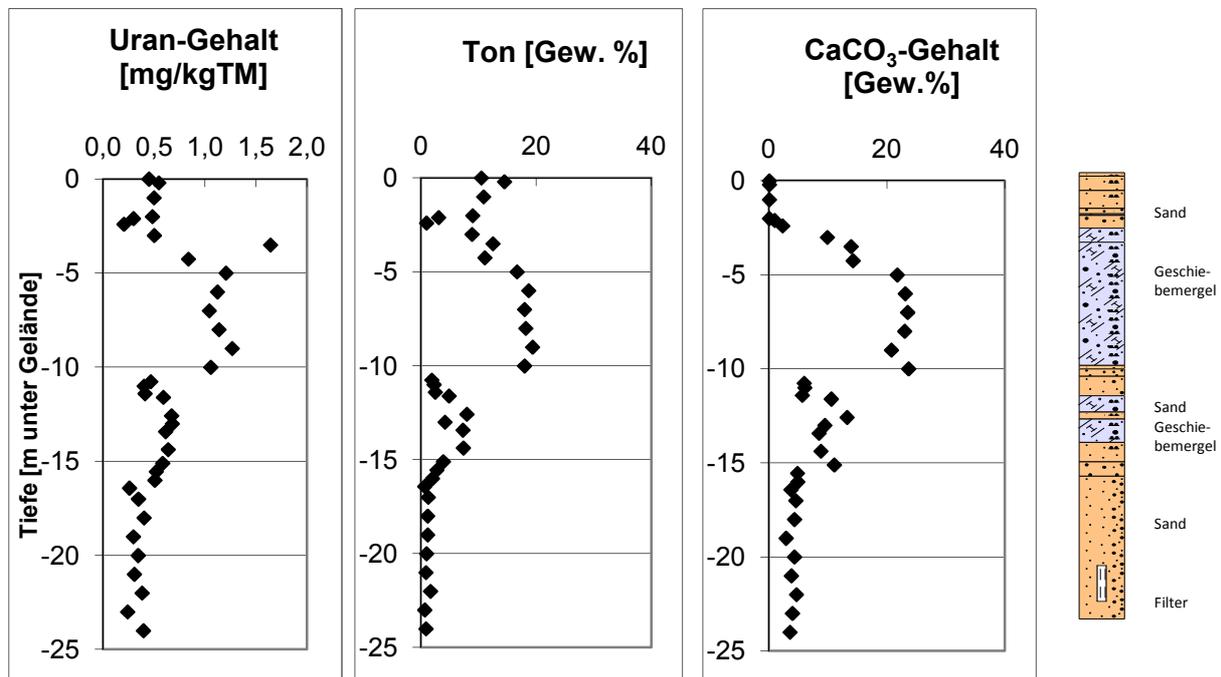


Abbildung 24: Verteilung der Tonfraktion [Gew. %] und der Uran- und CaCO₃-Gehalte [mg/kg TM] in der Bohrung Palmzin in Abhängigkeit von der Tiefe [m unter Gelände] (Quelle: LUNG)

Versuche, die vereinzelt auftretenden hohen Uran-Gehalte im Grundwasser auf geologische Anomalien oder regionale Eigenarten im geologischen Aufbau M-Vs zurückzuführen, sind bisher nicht erfolgreich gewesen. Zur Untermauerung dieser Hypothese fehlen Untersuchungen zur Geochemie der in M-V anstehenden Lockersedimente. Von besonderem Interesse ist hierbei die Zusammensetzung der Tonfraktion der Geschiebemergel, die durch Aufnahme von tertiären, vermutlich stärker uranhaltigen Tonen lokale Anreicherungen zeigen könnten.

3.2.2 Auswertung der hydrochemischen Befunde

Im Folgenden werden erste Ansätze beschrieben, anhand statistischer Auswertungen der chemischen Analysen die Bildungsbedingungen von gelöstem Uran näher zu untersuchen.

3.2.2.1 Statistische Auswertungen

Mittels statistischer Größen sollen die Grundeigenschaften der auf Uran analysierten Umweltmedien beschrieben werden. Da chemische Gehalte hierin meist nicht normalverteilt sind, wird an Stelle des Mittelwerts der Median (= 50%-Perzentil: Wert, bei dem 50 % aller Proben geringer und 50 % höher konzentriert sind) angewendet. Zusätzlich wird das 90%-Perzentil (= Wert, bei dem 90 % aller Proben geringer konzentriert sind) als Vergleich berechnet und die jeweiligen maximalen und minimalen Werte berücksichtigt.

Grundwasser

Für die Jahre 2007 bis 2009 liegen insgesamt 855 Einzelwerte für Uran aus Grundwasser vor, deren Gehalte in Abbildung 25 dargestellt sind.

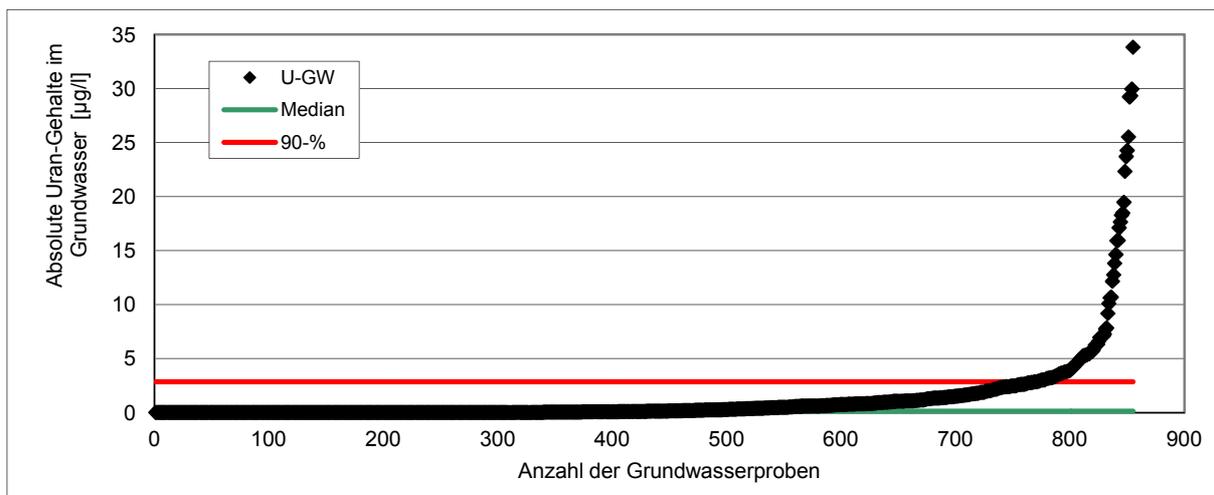


Abbildung 25: Uran-Gehalte [µg/l] im Grundwasser der Jahre 2007-2009 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)

Der Median aller gemessenen Uran-Gehalte beträgt 0,14 µg/l. Das 90%-Perzentil liegt bei 2,9 µg/l Uran; d. h. 10 % aller Analysen weisen höhere Uran-Gehalte auf.

Fließgewässer

Aus den Jahren 2007 und 2008 liegen insgesamt 590 Einzelwerte vor. Die in den Fließgewässern gemessenen Uran-Gehalte sind in Abbildung 26 dargestellt. Der Maximalwert beträgt 6,7 µg/l Uran, der Median 1,2 µg/l Uran; das 90%-Perzentil ergibt 2,7 µg/l Uran.

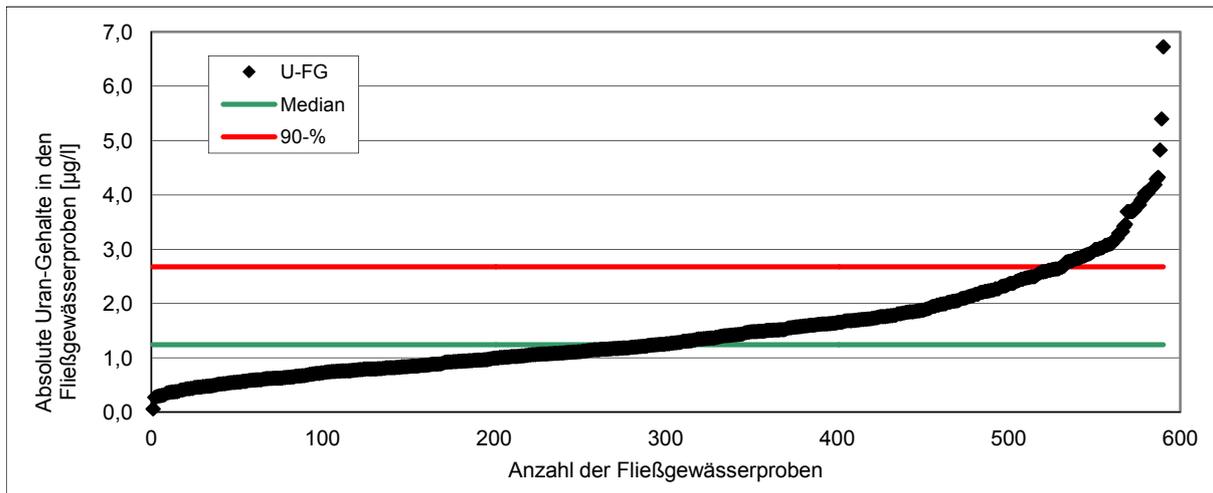


Abbildung 26: Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in Fließgewässern der Jahre 2007-2008 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)

Küstengewässer

An 24 Messstellen der küstennahen Ostsee und der Boddengewässer wurden in den Jahren 2006-2009 insgesamt 305 Proben auf ihren Uran-Gehalt analysiert. Die in den Küstengewässern gemessenen Uran-Gehalte sind in Abbildung 27 dargestellt. Die Uran-Konzentrationen liegen in einem deutlich niedrigeren Konzentrationsbereich als in den Fließgewässern, die zum großen Teil auch direkt oder indirekt in die Ostsee fließen. Der Median liegt bei $0,9 \mu\text{g/l}$ Uran, das 90%-Perzentil bei $1,7 \mu\text{g/l}$ Uran. Der Maximalwert beträgt nur $2,5 \mu\text{g/l}$ Uran.

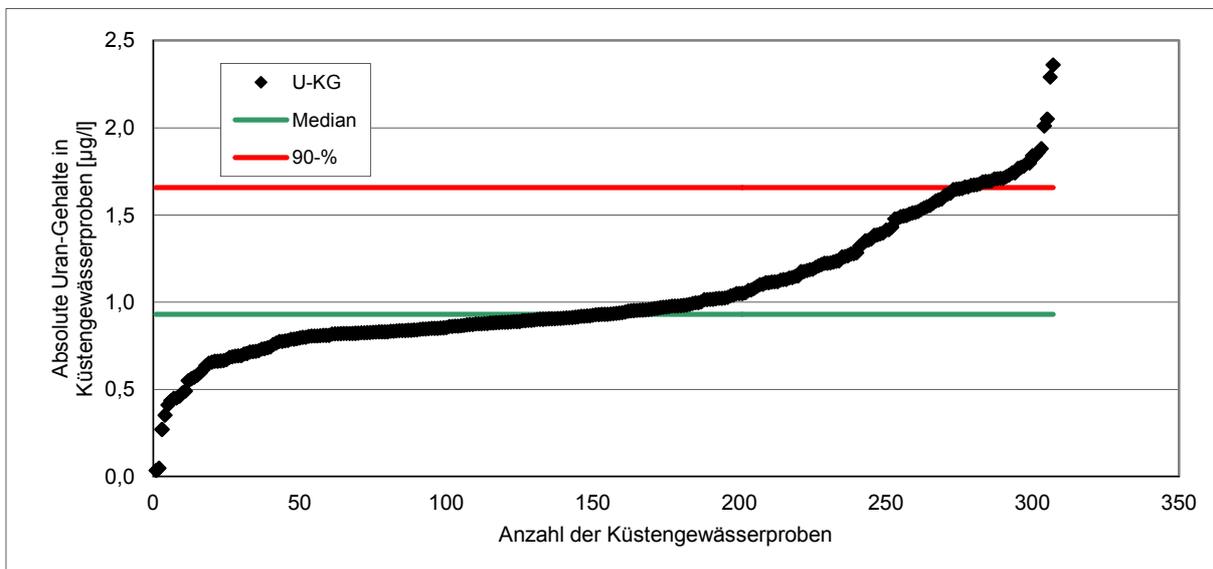


Abbildung 27: Uran-Gehalte [$\mu\text{g/l}$] in Küstengewässern der Jahre 2006-2009 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)

Vergleichende Gegenüberstellung der Gewässer

Anhand der Gegenüberstellung der statistischen Kenngrößen Median, 90%-Perzentil und Maximum (Tabelle 4) lässt sich zusammenfassend feststellen, dass die analysierten wässrigen Umweltmedien Grundwasser sowie Fließ- und Küstengewässer deutliche Unterschiede sowohl im durchschnittlichen Gehalt als auch im Verteilungsmuster aufweisen.

In den Küstengewässern ist der Median mit 0,9 µg/l Uran am niedrigsten. Am 90%-Perzentil mit 1,7 µg/l Uran und am Maximalwert mit 2,5 µg/l Uran erkennt man eine nur sehr geringe Spannweite der Konzentrationen. Hier zeigt sich, dass durch das vergleichsweise große Reservoir Ostsee eventuelle höhere Einzelwerte nivelliert werden. Die Fließgewässer zeigen ein ähnliches Bild bei leicht erhöhten Konzentrationen und leicht erhöhten Spannbreiten. Für die höheren Spannbreiten sind sowohl regionale als auch jahreszeitliche Schwankungen (Abbildung 6) verantwortlich.

Tabelle 4: Zusammenstellung der statistischen Kenngrößen zur Uran-Konzentration in Fließ- und Küstengewässern sowie im Grundwasser (Quelle: LUNG)

Statistische Kenngrößen	Einheit	Fließgewässer	Küstengewässer	Grundwasser
Median	µg/l	1,2	0,93	0,14
90%-Perzentil	µg/l	2,7	1,66	2,9
Maximum	µg/l	6,7	2,4	33,8
Minimum	µg/l	0,06	0,03	<0,008
Faktor Median-> 90%-Perzentil	-	2,1	1,8	20
Faktor Median-> max	-	5,4	2,5	238

Deutlich anders ist das Bild in den Grundwässern. Sehr viele sehr niedrige Analysenwerte führen zu einem ebenfalls sehr niedrigen Median von 0,14 µg/l Uran. Dennoch zeigt das 90%-Perzentil mit 2,9 µg/l den höchsten Wert der betrachteten Gewässer. Der Maximalwert zeigt mit rund 34 µg/l eine weitere starke Erhöhung.

Die auf den Median bezogenen (Anreicherungs-)Faktoren bekräftigen dieses Bild. Während in Küsten- und Fließgewässern die maximale Erhöhung gegenüber dem Median weit unter dem Faktor 10 liegt, ist die Erhöhung im Grundwasser mit > 200 deutlich stärker. Dies deutet auf Anreicherungsprozesse für Uran im Grundwasser hin, die sich erheblich von denen der Oberflächenwässer unterscheiden.

Schwebstoffe aus Fließgewässern

Komplett analysiert wurden die Jahre 2006-2009 mit 244 Proben aus 10 Messstellen in Mündungsnähe größerer Flüsse in M-V (Abbildung 5). Die Uran-Gehalte liegen generell in einem recht engen Konzentrationsbereich zwischen 0,2 und 3,1 mg/kg TM. Die für die jeweiligen Probenahmestellen typischen Mittelwerte liegen zwischen 0,6 und 1,6 mg/kg TM. Am höchsten mit durchschnittlich 1,6 mg/kg ist die Elbe. Hier wurde auch der Maximalwert von 3,1 mg/kg gefunden. Es zeigt sich, dass – ähnlich wie bei den Küstengewässern – ein lokaler Einfluss im Unterstrombereich nicht sichtbar ist, da bereits eine Nivellierung und Homogenisierung durch die zahlreichen Zuflüsse erfolgen.

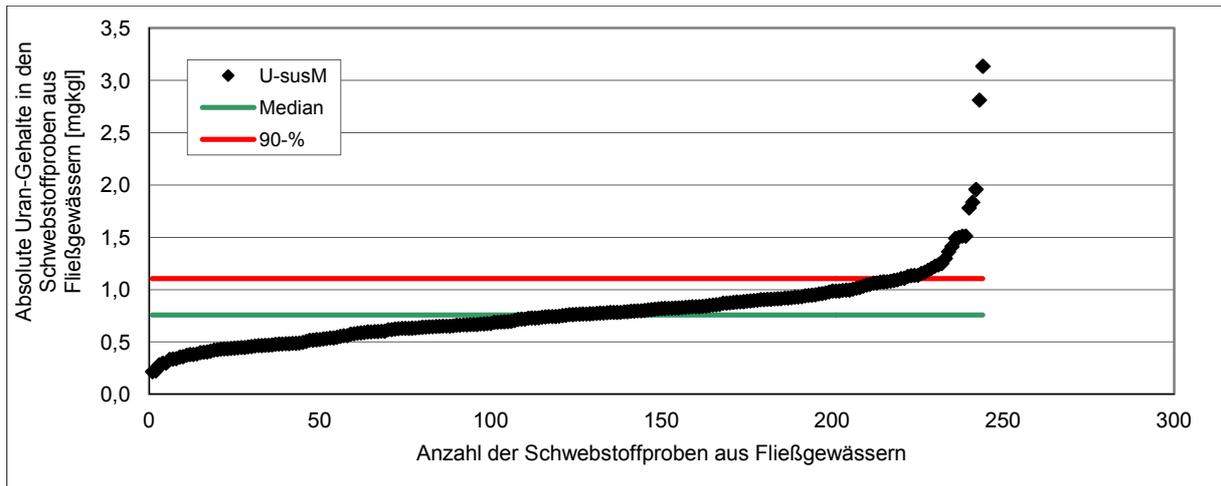


Abbildung 28: Uran-Gehalte [mg/kg TM] in Schwebstoffen aus Fließgewässern der Jahre 2006-2009 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)

Seesedimente

Der Median der untersuchten Seesedimente liegt bei 1,6 mg/kg Uran, das 90%-Perzentil bei 4,7 mg/kg Uran. Der Maximalwert beträgt 10,7 mg/kg Uran (Abbildung 29).

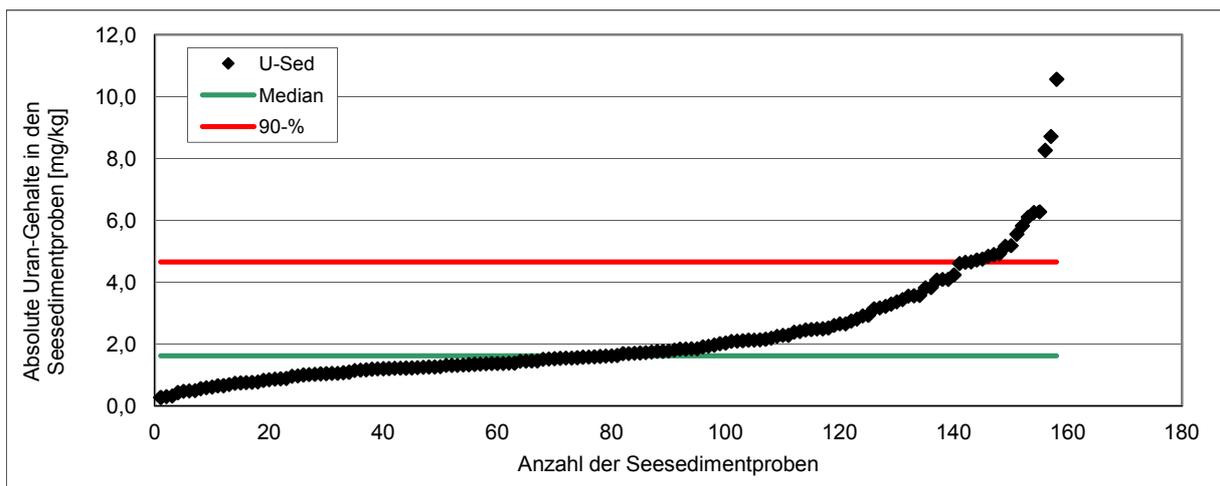


Abbildung 29: Uran-Gehalte [mg/kg TM] in Sedimenten aus Standgewässern der Jahre 2007-2008 (aufsteigend sortiert) (Quelle: LUNG)

Auffallend hierbei ist, dass die Seesedimente höhere und deutlich stärker variierende Uran-Gehalte aufweisen als die Schwebstoffe (Abbildung 30).

Damit liegt der Median der Uran-Gehalte in Seesedimenten mehr als 100 % über dem der Schwebstoffe aus Fließgewässern, das 90%-Perzentil und der Maximalwert sind sogar um das Vierfache höher. Auch erkennt man eine sehr viel größere Heterogenität, die im Gegensatz zu den Schwebstoffen vermutlich lokale Einflüsse im unmittelbaren Einzugsbereich und Schwankungen im Sedimentationsbereich des jeweiligen Standgewässers abbildet.

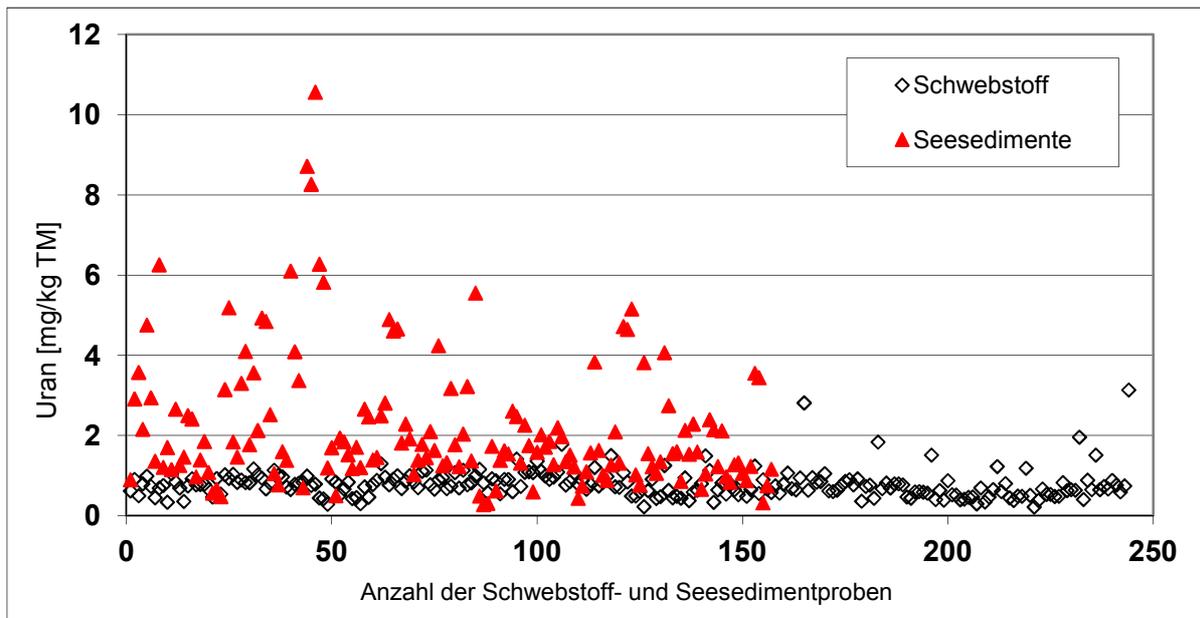


Abbildung 30: Uran-Gehalte [mg/kg TM] in See-Sedimenten und in Schwebstoffen aus Fließgewässern (Quelle: LUNG)

3.2.2.2 Redoxspannung, pH-Wert und Sauerstoffgehalt

Eine weitere Häufung erhöhter Uran-Gehalte in den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes zeigt sich bei der Redoxspannung im Bereich zwischen 90 und 230 mV, bei Sauerstoffgehalten unterhalb 1,5 mg/l und pH-Werten zwischen 7 und 8. Erhöhte Uran-Gehalte sind demzufolge an ein bestimmtes physikochemisches Milieu gekoppelt (Abbildung 31).

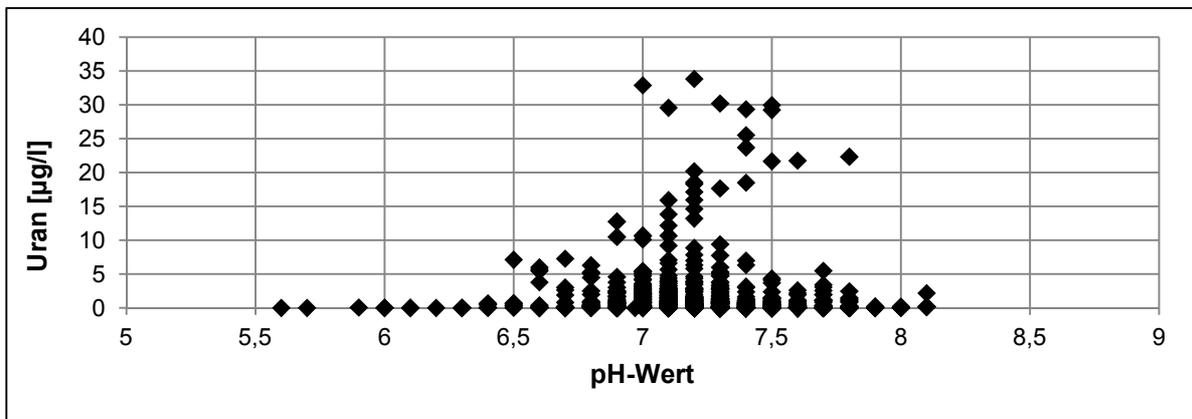
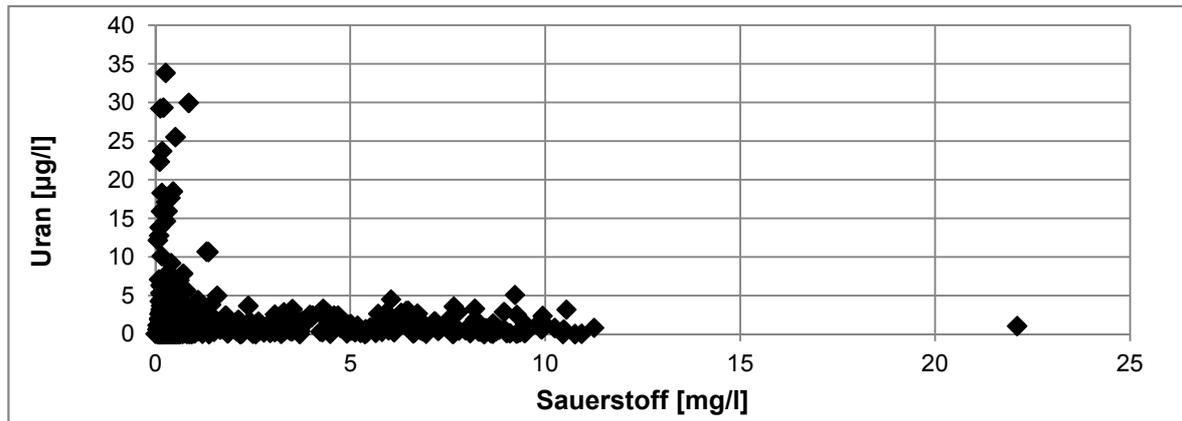
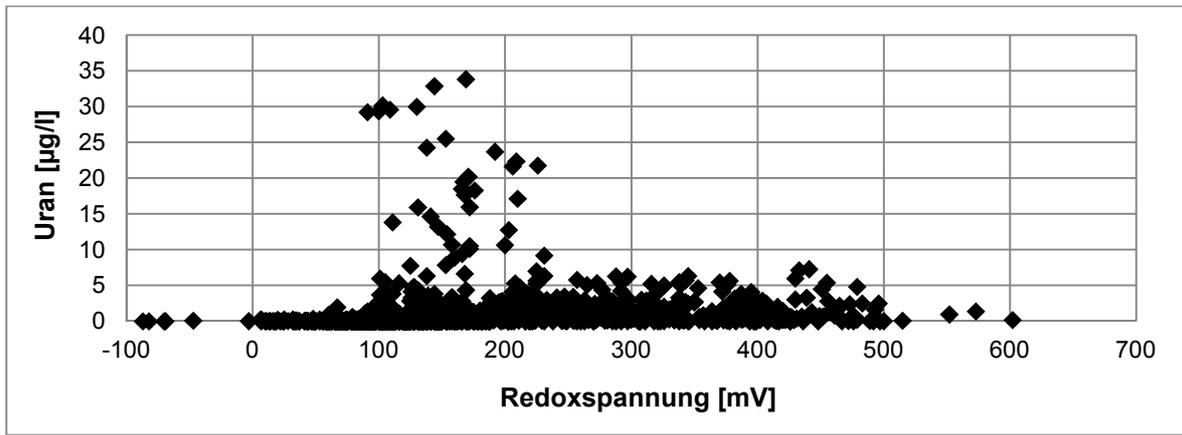


Abbildung 31: Verteilung der Uran-Gehalte [µg/l] in den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes in Abhängigkeit vom physikochemischen Milieu (Quelle: LUNG)

3.2.2.3 Grundwassertypisierung

Zur Beurteilung der hydrochemischen Zusammensetzung der Grundwässer, die an den sechs Grundwassermessstellen mit erhöhten Uran-Gehalten entnommen wurden, wurde das PIPER-Diagramm (14) benutzt (Abbildung 32). Bei dieser Methode werden zur Untersuchung der Ionen oder Ionengruppen als Funktion der Gesamtkonzentration die Äquivalenzprocente der Kationen bzw. Anionen ausgewertet. In der zentralen Raute werden Kationen- und Anionengruppen dargestellt, in den seitlichen Dreiecksdiagrammen die Kationen und Anionen jeweils gesondert. Zur Interpretation wurde die Auswertung nach (15) herangezogen, die sich in M-V seit langem bewährt hat.

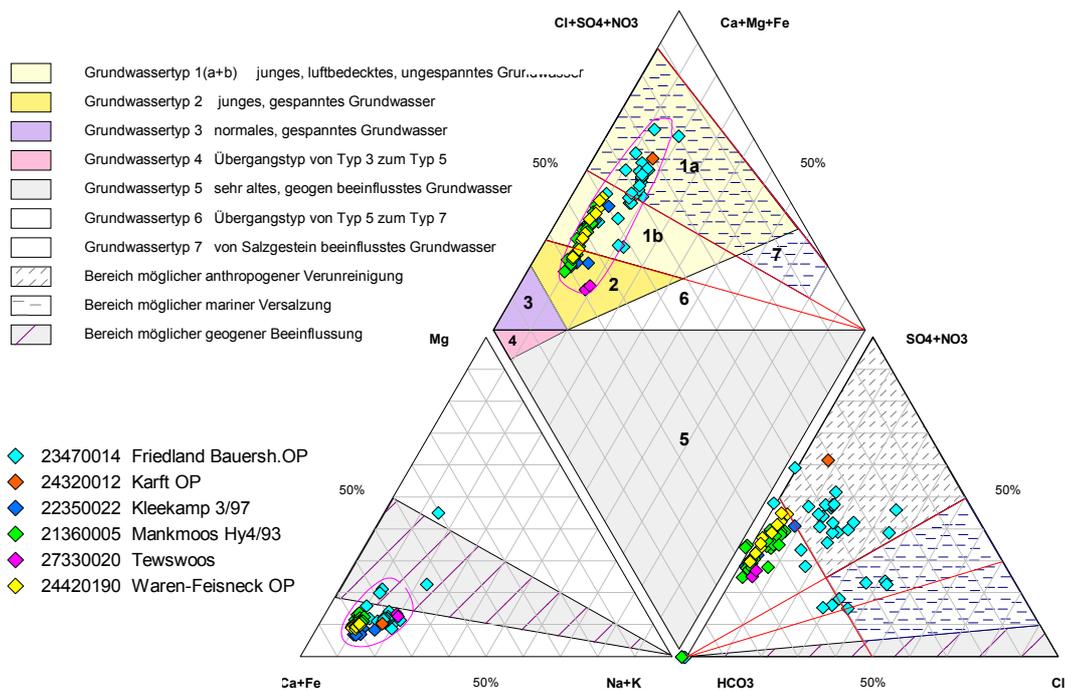


Abbildung 32: PIPER-Diagramm der Grundwässer in den sechs Grundwassermessstellen, die erhöhte Uran-Gehalte aufweisen (Quelle: LUNG)

Es zeigt sich, dass die belasteten Messstellen alle ausschließlich den hydrochemischen Typen 1-2 angehören. Bei den analysierten Grundwässern handelt es sich demnach um junges luftbedecktes oder junges gespanntes Grundwasser. Dieses Wasser weist einen hohen Neubildungsanteil auf, kann also durch diffuse Stoffeinträge von der Oberfläche beeinflusst sein. Bei diesen Einträgen kann es sich neben Schadstoffen auch um Stoffe handeln, die im Boden und Grundwasserleiter Umwandlungsprozesse (z. B. Lösung, Sorption, Ionenaustausch) auslösen können (Hypothese 3, Kap. 3.2).

Eine andere Möglichkeit zur Unterscheidung von jungen und alten Tiefenwässern bildet die Auswertung des Härtequotienten (Karbonathärte/Nichtkarbonathärte). Werte zwischen Null und 2,8 zeigen an, dass das Wasser jung und luftbedeckt ist und der Neubildung unterliegt. Trägt man alle bisher vorliegenden Uran-Werte oberhalb der Nachweisgrenze aus den Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes gegen den Härtequotienten auf, so zeigt auch hier die Lage der erhöhten Uran-Werte den luftbedeckten Grundwassertyp an (Abbildung 33).

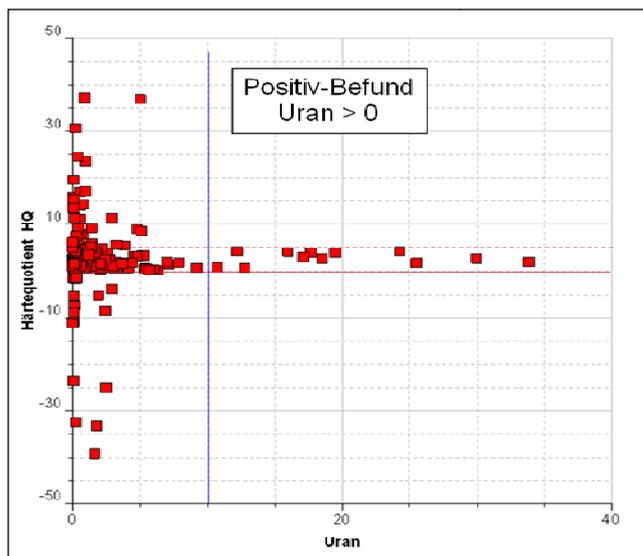


Abbildung 33: Verteilung der gemessenen Uran-Gehalte [µg/l] im Grundwasser der Landesmessstellen in Abhängigkeit vom Härtequotienten (Quelle: LUNG)

Folgt man dem Gedanken, dass die Neubildung, die vorwiegend im Winter stattfindet, in Zusammenhang mit den Uranbelastungen stehen muss, so stellt sich die Frage, ob im Grundwasser analog zu den Fließgewässern auch eine jahreszeitliche Abhängigkeit der Uran-Konzentrationen beobachtet werden kann.

Die Messstelle Mankmoos wurde daher als eine der stark Uran-belasteten Landesmessstellen in Ergänzung zur routinemäßigen Probenahme im Grundwassermonitoring von April 2009 bis April 2010 monatlich beprobt. Die gemessenen Uran-Gehalte dieser 13 Proben zeigen sich wie erwartet mit 15,9 bis 21,3 µg/l deutlich erhöht aber nicht sehr stark schwankend (Abbildung 34). Da die Messstelle nicht zum Grundwasserstandsmessnetz gehört, ist ein Abgleich mit mindestens wöchentlich gemessenen Wasserständen nicht möglich.

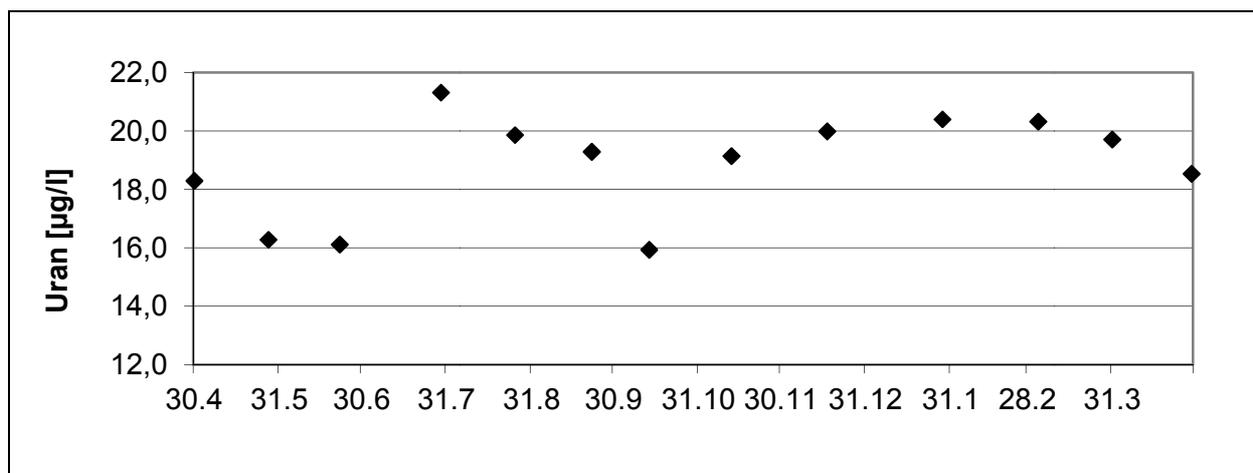


Abbildung 34: Zeitreihe der Uran-Gehalte [µg/l] im Grundwasser der Landesmessstelle Mankmoos im Zeitraum April 2009 bis April 2010 (Quelle: LUNG)

Da eine der Haupthypothesen für die Erhöhung der Uran-Gehalte sich auf den landwirtschaftlichen Einfluss durch mineralische Phosphordüngemittel bezieht (Hypothese 4, Kapitel 3.2), wurden an den Proben dieser Messstelle gezielt landwirtschaftliche Indikatorparameter mit dem Uranverlauf verglichen. Es zeigen sich schwache Korrelationen mit der Konzentration an ortho-Phosphat und der Leitfähigkeit, wobei die Phosphat-Gehalte auf einem sehr niedrigen Niveau liegen ($\text{PO}_4 = 0,009$ bis $0,035$ mg/l). Korrelationen mit Sulfat, Nitrat, Kalium, Magnesium und Ammonium fehlen. Ein signifikanter landwirtschaftlicher Einfluss auf die Uran-Gehalte lässt sich aus diesen wenigen Untersuchungsergebnissen für Mankmoos nicht ableiten.

Es gibt einen deutlichen Hinweis darauf, dass ein Zusammenhang zwischen erhöhten Uran-Gehalten und der Grundwasserneubildung, bei der frisches Niederschlagswasser in den Untergrund sickert, besteht. Dies wird auch durch die Befunde in den Fließgewässern bestätigt, die im Winterhalbjahr bei erhöhtem Abfluss eine erhöhte Auswaschung der Bodenzone bewirken und damit die Uran-Konzentrationen steigen lassen.

3.2.2.4 Uran-Isotopenanalysen

Über radiometrische Analysen der enthaltenen Uranisotope können zusätzliche Informationen zu den möglichen Quellen des Urans gewonnen werden. Es ist seit langem bekannt, dass das Gleichgewicht zwischen den Isotopen U-234 und U-238 in Grundwässern zugunsten U-234 verschoben ist. Bereits 1984 hat Gellermann (16) vorgeschlagen, das Aktivitäts-Isotopenverhältnis $A_{\text{U-234}}/A_{\text{U-238}}$ als Indikator zur Identifizierung genetisch gleicher oder zur Unterscheidung genetisch verschiedener Grundwässer zu verwenden. Ein Aktivitätsverhältnis der Isotope U-234/U-238 > 1 kann also als ein Indikator für geogene Quellen angesehen werden. Die Abweichung des Aktivitäts-Isotopenverhältnisses zugunsten U-234 in Grundwässern hat verschiedene Ursachen. In der Anlage 1 wird der wichtigste physikalische Prozess, der diese Isotopenverschiebung verursacht, zusammenfassend erläutert. Allerdings gibt es derzeit noch keine geschlossene Theorie, mit der die Isotopenverschiebung in Abhängigkeit verschiedener Parameter quantitativ beschrieben und damit erklärt werden kann (17). In Grundwässern Deutschlands wurde eine starke Schwankung des Verhältnisses $A_{\text{U-234}}/A_{\text{U-238}}$ von ca. 0,85 bis 12,6 mit einem Median von 1,66 beschrieben (18).

Im Folgenden wird eine Übersicht über die Verhältnisse in M-V vorgestellt.

Tabelle 5: Angaben zu den Uran-Gehalten [$\mu\text{g/l}$] und zu den mittleren Isotopenverhältnissen $A_{\text{U-234}}/A_{\text{U-238}}$ in Grund- und Trinkwässern in M-V im Beobachtungszeitraum 1994 bis 2011, ermittelt anhand der Radioaktivitätsanalysen der Messprogramme des BfS (19) und des Landes M-V

Medium	Ort	Min [$\mu\text{g/l}$]	Max [$\mu\text{g/l}$]	Mittel [$\mu\text{g/l}$]	Mittel/Max $A_{\text{U-234}}/A_{\text{U-238}}$
Grundwasser	M-V _{gesamt} ohne Friedland	$\leq 0,1$	10	-	1,16/2,0
Trinkwasser	M-V _{gesamt} ohne Friedland	$\leq 0,1$	0,86	-	
Grundwasser	Friedland/Lübbersdorf ab 2002	11,00	33	19,6	1,12/1,18
Grundwasser	Semlow-Palmzin ab 2011	47,3	47,3	47,3	1,03/1,03

Die aus der Radioaktivitätsanalytik des Bundes (19) und des Landes M-V stammenden Uran-Werte für Trink- und Grundwässer weisen einen Median-Wert von $0,3 \mu\text{g/l}$ auf und liegen damit etwa doppelt so hoch wie die chemisch bestimmten Uran-Gehalte. Die Ursache für diese Unterschiede liegt überwiegend darin, dass bei den jeweiligen Programmen nicht die gleichen Standorte gemessen wurden. Andererseits bestätigen diese Daten sowohl die im

Regelfall niedrigen Uran-Gehalte als auch die erhöhten Uranwerte in einzelnen Wasserversorgungsanlagen in M-V.

Die in diesem Projekt in M-V errechneten Aktivitäts-Isotopenverhältnisse A_{U-234}/A_{U-238} in den Grundwässern liegen im Mittel bei ca. 1,16 und maximal bei ca. 2,0 (Tabelle 5) und damit unterhalb der in anderen Gegenden Deutschlands errechneten Werte von im Mittel ca. 2,0 bzw. maximal 12,6 (18). Bei zwei höher belasteten Brunnen in M-V (Semlow-Palmzin und Mankmoos) wurden - im Gegensatz zu anderen wie z. B. Friedland mit 1,12 - mit Verhältnissen von 1,03 bzw. 1,02 nur geringe Verschiebungen des Gleichgewichts gefunden. Bei drei Proben aus der Dauerbeprobung in Waren-Feisneck wurden Aktivitäts-Isotopenverhältnisse A_{U-234}/A_{U-238} zwischen 1,08 und 1,13 und damit in dem Bereich, der üblicherweise in Grundwässern gemessen wird, ermittelt. Damit zeigt sich auch bei höher belasteten Brunnen hinsichtlich dieser Größe kein einheitliches Verhalten.

Wie bereits beschrieben, gibt es derzeit noch keine wissenschaftlich begründete Erklärung für die starken Schwankungen im Aktivitäts-Isotopenverhältnis im Grundwasser insgesamt und damit auch für die deutlich geringeren Werte im Aktivitäts-Isotopenverhältnis A_{U-234}/A_{U-238} für M-V im Vergleich mit anderen Bundesländern. Ein Unterschied besteht darin, dass sich in anderen Bundesländern, wie z. B. Bayern (2), die stärker belasteten Brunnen in Festgesteinen befinden, während in M-V die Brunnen sich grundsätzlich in Lockergesteinen befinden und damit die Verschiebung des Aktivitäts-Isotopenverhältnisses geringer ausfällt. Möglicherweise ist das auch eine Ursache dafür, dass in M-V trotz geringer Uran-Gehalte im Festgestein erhöhte Werte in den Grundwässern auftreten. Lockergesteine haben eine wesentlich höhere spezifische Oberfläche als Festgesteine. So erscheint es plausibel, wenn daraus anteilig durch das überdeckende oder durchströmende Grundwasser mehr Uran-Verbindungen gelöst werden als aus Festgesteinen (s. Anlage 1). Allerdings handelt es sich hierbei nur um eine Hypothese, die in der Zukunft der wissenschaftlichen Überprüfung bedarf.

Aufgrund der gemessenen Aktivitäts-Isotopenverhältnisse $A_{U-234}/A_{U-238} > 1$ ist auch in M-V ein derzeit nicht quantifizierbarer Anteil des Urans im Rohwasser bzw. Reinwasser geogenen Quellen zuzuordnen. Insbesondere für die Brunnen, bei denen dieses Verhältnis mit 1,02-1,03 nur wenig von 1 abweicht, können aber auch andere Quellen einen signifikanten Beitrag liefern.

3.2.3 Uran als Direkteintrag aus der Landwirtschaft

Hinsichtlich der vierten Hypothese ist bekannt, dass mineralische Düngemittel abhängig von der Herkunft des Rohphosphates sehr hohe Uran-Konzentrationen von mehr als 360 mg/kg enthalten können (20), (21). Zur Überprüfung der Hypothese eines Direkteintrags aus Düngemitteln wurden umfangreiche Überlegungen angestellt. Hierbei stand die Untersuchung der Düngemittel an erster Stelle. Danach folgten Berechnungen zur Abschätzung der Frachten im Boden und der möglichen Konzentrationserhöhungen durch Sickerwassereintrag im Grundwasser.

3.2.3.1 Uran in Düngemitteln und Klärschlämmen

Im Rahmen der Düngemittel- und Klärschlammverkehrskontrolle des Landes M-V (DVK/KVK) wurden durch die LMS-LFB verschiedene Düngemittel, die typischerweise in M-V eingesetzt werden, hinsichtlich ihres Gehaltes an Uran untersucht. Grundlage dieser Untersuchung war

halte der beprobten Klärschlämme sehr niedrig aus. Wirtschaftsdünger und Klärschlämme weisen einen um den Faktor 10 bis 100 niedrigeren Uran-Gehalt auf als P-haltige Mineraldünger (21).

Unter Beachtung der Aufbringungsmenge und -rhythmen und der Uran-Gehalte der einzelnen Düngemittel (Phosphordünger: 100 bis 300 kg/ha/a bei jährlicher Ausbringung; Klärschlamm: 25 t/ha/a FM, Ausbringung alle drei Jahre; Wirtschaftsdünger: 30 t/ha/a FM, Ausbringung alle 5 Jahre) ist davon auszugehen, dass mit mineralischer P-Düngung höhere Uran-Frachten eingetragen werden als mit Wirtschaftsdüngern und Klärschlämmen.

3.2.3.2 Radioaktivitätsuntersuchungen an Düngemitteln

Zur weiteren Klärung des Einflusses von phosphathaltigen Mineraldüngern auf den Uran-Gehalt in Grund- und Trinkwässern wurde ein spezielles Radioaktivitätsuntersuchungsprogramm an ausgewählten, für M-V typischen Mineraldüngern durch das LUNG mittels physikalischer und radiochemischer Methoden durchgeführt. Die dabei angewandte Methodik ist in der Anlage 2 beschrieben. Die Mineraldünger wurden durch die LMS-LFB zur Verfügung gestellt.

Bisherige Aussagen zum Aktivitätsverhältnis der Uran-Isotope A_{U-234}/A_{U-238} (Anlage 1) in Mineraldüngern weisen auf ein Verhältnis nahe 1:1 hin. Diese Aussage kann noch nicht mit ausreichend Literaturstellen belegt werden. Da Mineraldünger aus natürlichem Rohstoff (Mineralien) gewonnen werden, sind beim unvollständigen Lösungsvorgang durch z. B. Regen theoretisch die gleichen Prozesse denkbar, die im Grundwasser zu der Verschiebung des Aktivitätsverhältnisses zugunsten des Isotops U-234 führen, auch wenn im Ausgangsmaterial (im Dünger selber) das Gleichgewicht insgesamt nicht gestört ist.

In dem Messprogramm des LUNG wurden die Isotopenverhältnisse, die im Dünger und in wässrigen Lösungen aus Dünger vorliegen, mit möglichst hoher Genauigkeit bestimmt. Die Vorgehensweise bei diesem Messprogramm ist in Anlage 2 beschrieben. Es kamen hierbei 12 verschiedene Proben, davon 11 Düngemittel und ein Nebenprodukt aus der Düngemittelproduktion zur Analyse, wobei nicht bei allen das komplette Analyseprogramm durchgeführt wurde. Eine Übersicht über die untersuchten Düngemittel und den gemessenen Uran-Gehalt enthält Tabelle 6.

Tabelle 6: Uran [Bq/kg TM bzw. mg/kg] in Düngemitteln und deren Zusammensetzung (Quelle: LUNG)

lfd. Nr.	Name	Typ	Anteil P ₂ O ₅ [%]	U-238 [Bq/kg TM]	U _{Gesamt} [mg/kg]	Bemerkungen
1	TSP 45	P	45	624	50,3	
2	PK Dünger mit S 12+24	PKS	12,3	618	49,8	
3	NP Dünger 12+52	NP	52	26,5	2,1	
4	PK 11+22 (+4+6)	NPK	11	568	45,8	
5	NPK 16/16/16	NPK	16	17,2	1,4	
6	NPK 5/10/25(+7)	NPK	10	129	10,4	
7	NPK 17/6/11 (13)	NPK	6	27,1	2,2	
8	DAP	NP	46	11,3	0,9	
9	P40	P	40	2330	187,8	Doppelanalyse
10	PK+Mg+S	PKMG		126	10,2	
11	Phosphogypsum (CaSO ₄ , +P)	-		120	9,7	IAEA RV
12	Mineraldünger NPK	NPK		244	19,7	Baumarkt

Die gemessenen Isotopenverhältnisse sind zusammenfassend in der Tabelle 7 enthalten.

Tabelle 7: Uran [Bq/kg TM bzw. mg/kg] und Isotopenverhältnisse A_{U-234}/A_{U-238} in phosphathaltigen Mineräldüngern (Quelle: LUNG)

Methode	U _{Gesamt} [mg/kg TM]	U-238 [Bq/kg TM]	A _{U-234} /A _{U-238}		
			Mittel [/]	Min [/]	Max [/]
1. α -Spektrometrie: feste Phase	0,9-188	5,9-2330	1,0	0,75*	1,06*
2. α -Spektrometrie: flüssige Phase***	0,004-3,7	0,05-46	0,99	0,97	1,05*
3. γ -Spektrometrie: feste Phase	2,4 – 185	<21-2300	0,75**	-	-

* Einzelwert mit etwas höherer Messunsicherheit und niedrigem Uran-Gehalt

** Einzelwert, U-234- γ -spektrometrisch nur mit höherer Messunsicherheit auswertbar

*** Bezugseinheit Bq/l bzw. mg/l

Die in den phosphathaltigen Düngemitteln gefundenen Uran-Werte bestätigen erneut den großen Streubereich der Uran-Gehalte von 0,9 bis fast 200 mg/kg (Tabelle 6). Die Löslichkeit des Urans in der wässrigen Phase unter den beschriebenen statischen Bedingungen (Anlage 2) lag meist bei ca. 20 % bis 30 %, betrug im Einzelfall minimal 5 % und maximal mehr als 50 %.

Das Aktivitäts-Verhältnis der Uran-Isotope A_{U-234}/A_{U-238} liegt sowohl in den Düngemitteln selbst als auch in gelöster Form in der flüssigen Phase erwartungsgemäß nahe bei 1,0 (Tabelle 7). Dieser Wert ist insbesondere bei den Düngemitteln mit hohem Uran-Gehalt statistisch signifikant (Anlage 2). Bei den Abweichungen nach unten und nach oben handelt es sich jeweils um Einzelwerte mit höherer Messunsicherheit von Düngern mit niedrigen Uran-Gehalten, die deshalb als Uran-Quelle für das Grundwasser von untergeordneter Bedeutung sind.

Die in Grundwässern gemessenen großen Verschiebungen des A_{U-234}/A_{U-238} -Verhältnisses konnten in den untersuchten Düngemitteln und deren wässrigen Lösungen nicht gefunden werden. Dies deutet auf geogen bedingte Anteile des gelösten Uran in den belasteten Grundwässern, in denen das A_{U-234}/A_{U-238} -Verhältnis deutlich über 1 liegt, wie z. B. Friedland, hin. In diesen Fällen stammt ein derzeit nicht quantifizierbarer Anteil aus geogenen Quellen. Bei anderen Grundwässern mit $A_{U-234}/A_{U-238} \approx 1$ (z. B. aus der Landesgrundwassermessstelle in Mankmoos mit 1,02 (s. Kapitel 3.2.2.4) und aus dem Wasserwerksbrunnen Palmzin mit 1,03 (s. Tabelle 5)) liefert dieser Parameter auch keinen eindeutigen Hinweis auf die Quelle für erhöhte Uran-Werte, deutet aber auf Dünger-bedingte Anteile hin.

Als weiteres Isotopenverhältnis wurde das von A_{U-238}/A_{U-235} untersucht. Dies beträgt bei den untersuchten Düngemitteln im Mittel 21,4 (Einzelwerte 12,8 bis 34,4) und stimmt damit innerhalb der Messunsicherheit mit dem natürlichen Verhältnis von 21,7 (siehe Anlage 1) überein. Es kann daher keinen Beitrag zum Finden der Quelle von Uran im Grund- und Trinkwasser liefern.

3.2.3.3 Berechnungen

Im Weiteren soll überschlägig überprüft werden, welcher Zusatzeintrag von Uran durch die Düngung in den Boden und in die darunter liegende Sedimentschicht erfolgt.

Abschätzung des Uraneintrags durch Düngemittel

Im Folgenden werden zwei von unterschiedlichen Annahmen ausgehende Hochrechnungen zur Uran-Bilanz des Bodens im Zusammenhang mit der Düngung vorgestellt:

A) LMS-LFB: Uranbilanz in der für die Landwirtschaft wichtigen Bodenschicht von 30 cm:

In der Annahme, dass die Böden in M-V Uran-Gehalte von 3 bis 5 mg/kg (Tabelle 8) aufweisen und bei einer Ackerkrumenmächtigkeit von 30 cm die Ackerkrumenmenge mit einer Dichte von 1,5 ca. 4.500.000 kg/ha beträgt, kann von einer Uran-Menge von ca. 13.000 bis 23.000 g/ha Uran ausgegangen werden.

Unterstellt man eine Phosphordüngung in Höhe von 50 kg/ha P_2O_5 (= ca. 300 kg/ha/a Düngemittel), so würden bei ungünstigen Bodenbedingungen (Krumenmächtigkeit nur ca. 20 cm mit mineralischen Phosphordüngern (angenommen 18 % P_2O_5) und 15 bzw. 150 mg Uran/kg Düngemittel) dem Boden 4,5 bzw. s. o. 45 g/(ha*a) Uran zugeführt.

Damit würde sich die Konzentration im Boden um 1 bis 13 $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{a})$ im Boden erhöhen.

Tabelle 8: Berechnung der möglichen jährlichen Erhöhung des Uran-Gehaltes im Boden durch Düngung unter Berücksichtigung verschiedener Ausgangskonzentrationen von Uran im Boden bzw. Düngemittel (Quelle: LMS-LFB)

Parameter	Einheit	Berechnungen unter Berücksichtigung verschiedener Ausgangskonzentrationen von Uran im Boden bzw. Düngemittel					
		3	3	3	5	5	5
Uran im Boden vor Düngung	mg/kg	3	3	3	5	5	5
Ackerkrumenmenge (0-30 cm)	kg/ha	4.500.000	4.500.000	4.500.000	4.500.000	4.500.000	4.500.000
Uran in Ackerkrumenmenge vor Düngung	mg/ha	13.500.000	13.500.000	13.500.000	22.500.000	22.500.000	22.500.000
Uran im Düngemittel	mg/kg	15	150	200	15	150	200
Uran durch 300 kg Dünger	mg/ha	4.500	45.000	60.000	4.500	45.000	60.000
Uran in Ackerkrumenmenge nach Düngung (0-30 cm)	mg/ha	13.504.500	13.545.000	13.560.000	22.504.500	22.545.000	22.560.000
Uran im Boden nach Düngung	mg/kg	3,001	3,01	3,013	5,001	5,01	5,013
Jährliche Erhöhung um	mg/kg	0,001	0,01	0,013	0,001	0,01	0,013
	$\mu\text{g}/\text{kg}$	1	10	13,33	1	10	13,33

B) LUNG: Uranbilanz in einer Sedimentsäule von 20 m.

Zur Abschätzung, welche Uran-Menge natürlichen Ursprungs sich je m^2 in einer Substratsäule von 20 m Mächtigkeit, also in einem Volumen von $20 \text{ m}^3 = 20.000 \text{ dm}^3$ befindet, wird ein mittlerer Uran-Gehalt von $1,6 \text{ mg/kg}$ angesetzt. Diese Mächtigkeit wurde gewählt, weil die höchsten Uran-Gehalte im Grundwasser in dieser Tiefenlage angetroffen wurden (s. Abbildung 21). Der Einfachheit halber wird die Bodendichte auf 1 kg/dm^3 gesetzt, so dass sich eine flächenbezogene Masse von $2,0 \cdot 10^4 \text{ kg}$ ergibt. Daraus errechnet sich dann folgende auf die Fläche bezogene natürliche Uran-Masse:

$$U_{\text{Gesamt}} = 1,6 \text{ mg/kg} \cdot 2 \cdot 10^4 \text{ kg} = 3,2 \cdot 10^4 \text{ mg} = 32 \text{ g}$$

Das heißt: Eine Substratsäule mit einer Grundfläche von einem Quadratmeter und einer Mächtigkeit von 20 m enthält im Mittel 32 g Uran.

Nach den aktuellen Analysen des LUNG liegen die Uran-Gehalte der untersuchten Düngemittel (Tabelle 6) bei ca. 1 bis 200 mg/kg. Aus den Angaben der LMS-LFB wurde die Düngemittelpraxis in M-V für die Jahre 2001-2008 entnommen. Daraus lässt sich ein Wert von ca. 50 kg $\text{P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ für die Düngung auf dem Ackerland ableiten, der auch mit den Angaben von (23) übereinstimmt. Im Folgenden wird eine Düngung von im Mittel mit 50 kg $\text{P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ und Jahr mit dem maximalen gemessenen Uran-Wert von rund 200 mg/kg angenommen. Unter Beachtung des Anteils des P_2O_5 in dem Beispieldünger mit der höchsten gemessenen Urankonzentration (Tabelle 6) bedeutet dies eine Aufbringungsmenge des Düngemittels von 125 kg/ha und Jahr, um eine Düngung mit 50 kg $\text{P}_2\text{O}_5/\text{ha}$ und Jahr zu erreichen. Dabei ist zu beachten, dass der mittlere gemessene Uran-Gehalt mit 33 mg/kg darunter liegt. Mit den oben genannten Annahmen ergibt sich folgender auf ein Jahr bezogener Uran-Eintrag (U_{Eintrag}) in den Boden:

$$U_{\text{Eintrag}} = 125 \text{ kg/ha} \cdot 200 \text{ mg/kg} = 25 \text{ g/ha} = 0,0025 \text{ g/m}^2$$

In der Literatur werden Uran-Mengen von 7 bis 23 g/ha und Jahr angegeben (24).

Es ergeben sich auf den Quadratmeter folgende Uranbilanzen:

Jahresbilanz:	0,0025 g	durch Düngung	gegenüber	32 g	in	20 m
		Sedimentschicht		Uran		
10 Jahresbilanz:	0,025 g	durch Düngung	gegenüber	32 g	in	20 m
		Sedimentschicht		Uran		

Diese Zahlen lassen bei erster Betrachtung vermuten, dass die Düngung für die Uranbelastung der Grundwässer eine untergeordnete Rolle spielt. Bei dieser Überlegung bleibt jedoch die Fragestellung, in welcher Form das Uran in der Sedimentschicht und im Dünger vorliegt (immobil bzw. mobil), unberücksichtigt. Liegt Uran im Dünger überwiegend in löslicher Spezies vor und wird durch Regen oder Beregnung in tiefere Sedimentschichten bis hin zum Grundwasser ausgewaschen, kann es für die Grundwasserbelastung durchaus relevant sein. Zusätzlich ist zu bedenken, dass Uran, allerdings nur in sehr geringen Mengen, auch von den Pflanzen aufgenommen und somit dem Boden entzogen wird.

4 MAßNAHMENVORSCHLÄGE

Durch den Bericht wird deutlich, dass es weiteren, vielfältigen Untersuchungsbedarf gibt. Im Folgenden sind erste Vorschläge der Arbeitsgruppe aufgeführt.

4.1 *Bereich Landesmessnetz*

Ansprechpartner: LUNG

Die derzeitige räumliche Verteilung der Grundwassermessstellen lässt keine plausible Erklärung der Herkunft des Urans zu. Eine zielgerichtete Verdichtung des Messnetzes ist erforderlich. Als erste Maßnahme wurde 2011 die Beprobung von ca. 20 Messstellen, die bislang ausschließlich zur Überwachung der Grundwassermenge dienten, vorgenommen. Die Ergebnisse werden zum Jahresende erwartet.

Da sich die Uran-Befunde im Bereich der südöstlichen Landesgrenze häufen, ist Januar 2011 eine Zusammenarbeit mit dem Land Brandenburg hinsichtlich des Umweltmonitorings initiiert worden.

Einen Hinweis über die Passage von Uran aus dem Dünger in das Grundwasser könnten Untersuchungen von Uran in Drainage-Wässern in Verbindung mit Informationen zum Düngeverhalten auf den gedrainten Flächen liefern.

Desweiteren sind Sedimentuntersuchungen zur Ermittlung geogener Hintergrundwerte für Uran in repräsentativen Gebieten erforderlich, um diese mit entsprechenden Daten aus Gebieten mit Uran belastetem Grundwasser zu vergleichen.

Das jeweilige Untersuchungsprogramm ist in 2012 zu entwickeln. Erste konkrete Maßnahmen zu Sedimentuntersuchungen hinsichtlich Urans in einem Gebiet mit belastetem Grundwasser (Kernbohrung Friedland) sollen 2012 umgesetzt werden.

Außerdem müssen die Bodenuntersuchungen für Uran im Bereich des Messtischblattes Stralsund fortgeführt werden, um weitere Aufklärung zu dem betroffenen Wasserwerk Semlow-Palmzin zu erhalten, das sich in diesem Gebiet befindet.

Für 2012 ist eine Zusammenarbeit mit der TU Clausthal, Institut für Endlagerforschung, geplant, in der die dort vorhandenen Modellierungswerkzeuge an den belasteten Grundwassermessstellen eingesetzt werden sollen, um möglicherweise detaillierte Aussagen zu den Prozessabläufen herzuleiten.

4.2 *Bereich Wasserversorgungsanlagen*

Ansprechpartner: SM, LAGuS bzw. Wasserversorger

Als belastet gelten Standorte, die im Reinwasser 10 µg/l Uran überschreiten. Hierzu zählen die Fassungsstandorte:

Friedland

Reimershagen

Semlow-Palmzin

Melz

Gager

Auch wenn an den drei erstgenannten Standorten umfangreiche technische Versuche durchgeführt wurden, um die Uran-Belastung durch veränderte Fahrweise oder Stilllegung einzelner Brunnen zu mindern, sollten im Vergleich zu diesen unbelastete Referenz-Standorte ausgewählt werden, um sie hinsichtlich der landwirtschaftlichen Praxis näher untersuchen zu können.

Am Fassungsstandort Lüzbin sollten unterschiedliche Fahrweisen untersucht werden, um Abhängigkeiten der Uran-Konzentration von Förderdauer bzw. -menge erkennen zu können.

Am Standort des ehemaligen Düngemittellagers in Palmzin werden kurzfristig Bodenproben entnommen und analysiert (vor allem Uran, Phosphor, Kupfer, Cadmium). Hierzu wird ein Konzept durch die LMS-LFB vorgelegt.

Zur näheren Einstufung der Wasserwerke in hydrochemische Typen sollten die Komplettanalysen des Reinwassers oder vorzugsweise des Rohwassers durchgeführt werden.

Bei Brunnenbohrungen in auffälligen Gebieten wären Kernbohrungen wünschenswert, bei denen weitere Bodenproben aus tieferen Schichten gewonnen und analysiert werden können.

Bei auffälligen Wasserfassungen sollten die Nutzungshistorie, die mittel- und langfristige Nutzung und Betriebsdaten dokumentiert werden.

4.3 Bereich Düngemittel

Ansprechpartner: LMS-LFB

Die bisherigen Ergebnisse der Untersuchungen, deren Auswertungen und erste Bilanzierungen des LUNG zeigen, dass der Anteil des Urans, das potentiell aus Düngemitteln verlagert werden kann, für die lokal erhöhten Uran-Gehalte im Grundwasser keine große Bedeutung hat. Gleichwohl sind die konkreten Mechanismen, die zu einer verstärkten Aufnahme des natürlich vorhandenen Urans ins Grundwasser führen, noch immer nicht bekannt. Deshalb sollte bei weiteren Untersuchungen zur Erforschung der Bodenchemie ein möglicher mittelbarer Zusammenhang mit der Düngung/mit dem Düngemittelleinsatz beachtet werden.

Die Kenntnislücken bzgl. der Uran-Gehalte in weiteren Düngemitteln (insbesondere Kalkdünger) sollten geschlossen werden. Hierzu läuft derzeit die Beprobung und Analytik (u. a. auf Uran) von typischen in M-V eingesetzten Kalkdüngern.

4.4 Bereich Radioaktivitätsmessstelle

Ansprechpartner: LUNG

Es gibt starke Schwankungen im Isotopenverhältnis A_{U-234}/A_{U-238} im Grundwasser in Abhängigkeit vom Standort bzw. von der geografischen Lage. Die Ursachen dafür sind derzeit nicht genau bekannt und sollten weiter untersucht werden. Auch aus der bisher bekannten Literatur konnten dazu noch keine Hinweise gefunden werden. Daraus ergeben sich die folgenden Ansatzpunkte für weitere Untersuchungen:

- Durchführung weiterer Literaturrecherchen, Recherchen/Untersuchungen zu den Ursachen starker Schwankungen im Isotopenverhältnis A_{U-234}/A_{U-238}
- Durchführung von α -spektrometrischen Untersuchungen an weiteren Standorten mit Bestimmung der Isotopenverhältnisse von Uran
- Ein Standort mit erhöhten Uran-Gehalten im Grundwasser ist Friedland. In der Region gibt es Tonlagerstätten, die im Vergleich mit anderen Gebieten in M-V um den Faktor 2 bis 4 höhere Uran-Werte haben. Um herauszufinden, ob dies ein Einflussfaktor für die erhöhten Uran-Gehalte in diesem Gebiet ist, bieten sich Untersuchungen zur Löslichkeit des Urans aus dem Ton und zum Isotopenverhältnis A_{U-234}/A_{U-238} in der wässrigen Phase an.

5 ZUSAMMENFASSENDES FAZIT

Die vorliegenden chemischen Messdaten zu Uran in Trinkwässern in M-V wiesen in Einzelfällen Uran-Gehalte über 10 µg/l auf und lagen damit über dem seit 1. November 2011 geltenden Grenzwert der Verordnung über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch (Trinkwasserverordnung - TrinkwV). Dieser Wert dient im vorliegenden Bericht als Beurteilungsmaßstab für erhöhte Uran-Gehalte im Grund- und Trinkwasser. Bereits mit Bekanntwerden der Belastungen wurden bei den betreffenden Wasserversorgungsanlagen Maßnahmen wie Brunnenstilllegung oder Mischung mit Uran-armem Rohwasser vorgenommen, so dass dort der Grenzwert von 10 µg/l eingehalten wird.

Neben den Untersuchungen zum Grundwasser wurden auch Uran-Werte von Fließgewässern, Seesedimenten, Küstengewässern, Böden und des Radioaktivitätsmonitorings des LUNG sowie von verschiedenen Düngemitteln in die Betrachtung einbezogen. Außerdem wurden an einigen besonders auffälligen Standorten Sonderuntersuchungen durchgeführt, deren bisherigen Ergebnisse ebenfalls hier dokumentiert sind.

Im Folgenden Text erfolgt eine knappe Wiedergabe der Inhalte dieses Zwischenberichtes der Arbeitsgruppe.

In Grundwässern einzelner Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes M-V wurden erhöhte Uran-Konzentrationen mit Einzelwerten von bis zu 33,8 µg/l festgestellt (Kapitel 2.2). Diese auffälligen Uran-Gehalte treten allerdings nur bei bestimmten Bedingungen auf (Filtertiefe zwischen 13 und 21 m unter Gelände; wenig gelöster Sauerstoff; enger Bereich des Redoxpotentials). In den Fließgewässerproben wurden Uran-Konzentrationen bis auf Ausnahmen unterhalb von 10 µg/l (Kapitel 2.3) ermittelt. Die untersuchten Seesedimente (Kapitel 2.4) zeigen teilweise erhöhte Gehalte bis 10,6 mg/kg und zwar vermehrt in bestimmten Regionen wie Krakow – Waren. Im Isotopenverhältnis U-234 zu U-238 ist die Verschiebung zugunsten U-234 ($> 1,12$ bis zu 2) ein wichtiges Indiz für geogenes Uran. Im Grundwasser der Landesmessstelle Mankmoos und im Rohwasser des Wasserwerkbrunnens Palmzin ist die Verschiebung des Isotopenverhältnisses A_{U-234}/A_{U-238} zum Uran-234 dagegen gering. Die durchgeführten Radioaktivitätsuntersuchungen zur Ermittlung der Aktivitätsverhältnisse der Uran-Isotope lieferten kein eindeutiges Ergebnis für die Quellen der Uran-Belastung des Grundwassers.

Die sechs am meisten betroffenen Grundwassermessstellen des Landesmessnetzes wurden hinsichtlich möglicher Einflussfaktoren näher betrachtet (Kapitel 3.2.1). Zum gegenwärtigen Zeitpunkt lässt sich die Vermutung, dass die erhöhten Uran-Gehalte in M-V mit geologischen Strukturen wie Eisrandlagen, älteren/jüngeren Grundmoränen etc. korrelieren, nicht belegen. Gemeinsam ist den belasteten Proben, dass es sich um junges luftbedecktes oder junges gespanntes Grundwasser handelt. Dieses Wasser weist einen hohen Neubildungsanteil auf, kann also durch Stoffeinträge von der Oberfläche beeinflusst sein. Derartiges Grundwasser tritt jedoch auch in anderen Landesteilen ohne erhöhte Uran-Befunde auf, so dass weitere Einflüsse identifiziert werden müssen.

Die Analyse der Landnutzung hat zu keinem signifikanten Ergebnis in dem Sinne geführt, dass erhöhte Uran-Gehalte an eine landwirtschaftliche Nutzung im Einzugsgebiet gebunden seien.

In zwei weiteren Sonderuntersuchungen - Dauerbeprobung der Grundwassermessstelle in Waren-Feisneck und Pumpstest im Schlemminer Holz (Kapitel 3.1.2) - konnte ein Einfluss des technischen Bauwerks auf den Uran-Gehalt nachgewiesen werden.

Zur weiteren Abklärung möglicher Einflussfaktoren wurden Boden-, Düngemittel- und Klärschlammproben auf Uran sowohl chemisch als auch radiologisch analysiert (Kapitel 3.2.3). Die der Radioaktivitätsmessstelle des Landes M-V vorliegenden Boden-Daten zu Uran ergeben im Mittel 1,65 mg/kg TM (Kapitel 2.5.3). Chemische Untersuchungen an unterschiedlichen Bodenproben zeigen geringere Werte. Die bei der Bohrung eines Brunnens im Schlemminer Holz gewonnenen Sedimentproben weisen Uran-Gehalte zwischen 0,2 und 1,6 mg/kg auf. Diese Werte liegen im Bereich der geogenen Grundgehalte von Uran in Gesteinen (Kapitel 3.2.1.5).

In den Düngemittelproben fanden sich die höchsten Uran-Gehalte in den mineralischen Phosphordüngemitteln (bis 216 mg Uran/kg TM). Im Vergleich dazu fielen die Uran-Gehalte der beprobten Klärschlämme aus M-V wesentlich niedriger aus (1,4 bis 4,13 mg/kg TM) (Kapitel 3.2.3.1).

Außerdem wurden Bilanzierungen zum zusätzlichen Uran-Eintrag durch Düngemittel im Vergleich zum Uran-Gehalt des Bodens unter Berücksichtigung der üblichen Düngepraxis vorgenommen (Kapitel 3.2.3.3). Diese Bilanzierungen sprechen eher gegen Düngemittel als wesentliche Quelle, lassen aber die unterschiedliche Löslichkeit von Uran in gewachsenen Böden und in Düngemitteln unberücksichtigt.

Somit gibt es derzeit hinsichtlich der Hypothese, dass das Uran im Grund- und Trinkwasser aus Phosphordünger stammt (Hypothese 4, Kapitel 3.2) keine belastbaren Erkenntnisse.

Da in Tiefen unterhalb 30 m kein Uran im Grundwasser gefunden wurde, kann ausgeschlossen werden, dass das gefundene Uran aus Tiefenwässern stammt (Hypothese 1, Kapitel 3.2). Ein weiterer Grund für ein Ausscheiden der Hypothese 1 „Uran aus Tiefenwasser“ als Ursache ist, dass nur Grundwasser betroffen ist, das einen hohen Neubildungsanteil aufweist (Kapitel 3.2.2.3).

Das in den untersuchten Grund- bzw. Trinkwässern enthaltene Uran kann natürlichen Ursprungs, d. h. geogen, sein (Hypothesen 2 bis 3, Kapitel 3.2). Die konkreten Mechanismen, die zu einer verstärkten Aufnahme des Urans ins Grundwasser führen, sind allerdings bislang weitgehend unerforscht.

Im Kapitel 4 unter dem Titel „Maßnahmenvorschläge“ wird der weitere Untersuchungsbedarf erläutert und konkrete Vorschläge unterbreitet. In Abstimmung mit den zuständigen Ministerien LU und SM müssen die Maßnahmen festgelegt werden, die prioritär umgesetzt werden sollen. Entsprechende Haushaltsmittel sind bereitzustellen. Die Arbeitsgruppe wird auch weiterhin mit dem Thema „Uran im Grundwasser“ befasst sein. Die Ursachensuche wird dabei im Vordergrund stehen.

6 LITERATURVERZEICHNIS

1. **Merian, E, [Hrsg.]**. *Metals and Their Compounds in the Environment: Occurrence, Analysis and Biological Relevance*. Weinheim, New York, Basel, Cambridge : VCH, 1991.
2. **Bayerisches Landesamt für Gesundheit und Lebensmittelsicherheit, Bayerisches Landesamt für Umwelt**. Untersuchungen zum Vorkommen von Uran im Grund- und Trinkwasser in Bayern. 2007.
3. **Falbe, J. und Regitz, M., [Hrsg.]**. *Römpp Chemie Lexikon*. Stuttgart, New York : Georg Thieme Verlag, 1999, 10. Auflage. Bd. 6.
4. Trinkwasserverordnung in der Fassung der Bekanntmachung vom 28. November 2011 (BGBl. I S. 2370), die durch Artikel 2 Absatz 19 des Gesetzes vom 22. Dezember 2011 (BGBl. I S. 3044) geändert worden ist.
5. Erste Verordnung zur Änderung der Trinkwasserverordnung. Bundesrat Drucksache 530/10.
6. Verordnung über natürliches Mineralwasser, Quellwasser und Tafelwasser (Mineral- und Tafelwasser-Verordnung) vom 1. August 1984 (BGBl. S.1036), die zuletzt durch Artikel 1 der Verordnung vom 1. Dezember 2006 (BGBl. I S. 2762) geändert worden ist.
7. *Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) vom 20. Juli 2001* (BGBl. I S. 1714; 2002 I S. 1459), die durch Artikel 1 der Verordnung vom 4. Oktober 2011 (BGBl. I S. 2000) geändert worden ist.
8. *Dosisfaktoren zur Berechnung der Strahlenexposition; Bundesanzeiger vom 23.07.2001*. 23. Juli 2001.
9. *Richtlinie 2000/60/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 23. Oktober 2000 zur Schaffung eines Ordnungsrahmens für Maßnahmen der Gemeinschaft im Bereich der Wasserpolitik*. Amtsblatt der EG Nr. L 327, S. 1.
10. Bundes-Bodenschutzgesetz vom 17. März 1998 (BGBl. I S. 502), das zuletzt durch Artikel 3 des Gesetzes vom 9. Dezember 2004 (BGBl. I S. 3214) geändert worden ist.
11. **Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie, [Hrsg.]**. Bodenbericht des Landes Mecklenburg-Vorpommern. Phase 1 des Bodenschutzprogramms Mecklenburg-Vorpommern. Güstrow, 2002.
12. **Fiedler, H. J. und Rösler, H. J.** *Spurenmittel in der Umwelt*. Jena, Stuttgart : G. Fischer Verlag, 1993.
13. **Baumann, K. und Puchert, W.** Radioaktivität in Brunnen und im Förderwasser - ein Phänomen?. *bbr Fachmagazin für Brunnen- und Leitungsbau*. 2007, Bd. 06.
14. **Piper, A. M.** A graphic procedure in the geochemical interpretation of water analysis. *Trans. Amer. Geophys. Union*. 1944, Bd. 25, 6, S. 914-928.
15. **Löffler, H.** *Typisierung von Grundwässern im Lockergesteinsbereich*. Schwerin : unveröffentlichte Arbeit VEB Hydrogeologie, 1972.
16. **Gellermann, R. und Fröhlich, K.** Nutzung der Uranisotope U-234 und U-238 in der Hydrologie und Hydrogeologie. *Freiberger Forschungshefte C397*. 1984.
17. **Osborn, J. K. und Cowart, J. B.** Chapter 9: Groundwater. [Hrsg.] M. und Harmon, R. S. Ivanovich. *Uranium Series Disequilibrium: Application to Environmental Problems*. Oxford : Oxford University Press, 1992.
18. **Gellermann, R. und Stolz, W.** Uran in Wässern. *Umweltwissenschaften und Schadstoffforschung*. 1997, Bd. 9(2), S. 61-120.
19. **Beyermann, M., Bünger, T. und Gehrcke, K. und Obrikat, D.** *Strahlenexposition durch natürliche Radionuklide im Trinkwasser in der Bundesrepublik Deutschland*. Salzgitter : Bundesamt für Strahlenschutz, 2009. urn:nbn:de:0221-20100319945.

20. **Sipos, M.** Contamination of agricultural soils by mineral fertilization. *Julius Kühn Archiv*. 2009, Bd. 424, S. 73 ff.
21. **Schnug, E.** Uran: Boden - Pflanze - Nahrungskette. *BfR Statusseminar 21. Juli 2005*.
22. *Verordnung über das Inverkehrbringen von Düngemitteln, Bodenhilfsstoffen, Kultursubstraten und Pflanzenhilfsmitteln (Düngemittelverordnung - DüMV) vom 16. Dezember 2008 (BGBl. I S. 2524), die zuletzt durch Artikel 1 der Verordnung vom 14. Dezember 2009 (BGBl. I S. 3905) geändert worden ist.*
23. **Süß, E.** Eintrag von Uran über Phosphat und KPN-Dünger: Gefahr für das Grundwasser? Referat zum Seminar Grundwasserschutz im Sommersemester 2005 der Bergakademie Freiberg.
24. **Kratz, S. et. al.** Uranium balances in agroecosystems. [Hrsg.] de Koik, L. J. und Schnug E. *Loads and Fate of fertilizer-derived uranium*. Leiden : Backhuys Publishers, 2008.
25. **FUGRO-HGN GmbH;** *Grundwasserneubildung in Mecklenburg-Vorpommern 2009 – Ergänzende Beschreibung*. Archiv LUNG Güstrow : Unveröffentlicht.

7 ANLAGEN

- 1 Grundlagen: Uran-Zerfallsreihen und Alpha-Zerfall
- 2 Methodik des LUNG zur Radioaktivitätsbestimmung der Mineraldüngemittel

Anlage 1 Grundlagen: Uran-Zerfallsreihen und Alpha-Zerfall

Die Uran-Zerfallsreihen: Grundlegende Zusammenhänge

Im Folgenden werden Grundkenntnisse zum Atomaufbau, zur Kernphysik und zur Physik der Radioaktivität vorausgesetzt. In diesem Zusammenhang wird auf die einschlägige Fachliteratur verwiesen.

In der Natur gibt es verschiedene radioaktive Zerfallsreihen. Innerhalb einer Zerfallsreihe werden ausgehend vom Mutternuklid (z. B. U-238) durch Alpha- oder Beta-Zerfall (-umwandlung) die Folgekerne (Tochterkerne) gebildet. Diese sind selbst wieder radioaktiv, bis die Zerfallsreihen bei den stabilen Blei-Isotopen (Pb-206, Pb-207, Pb-208) enden.

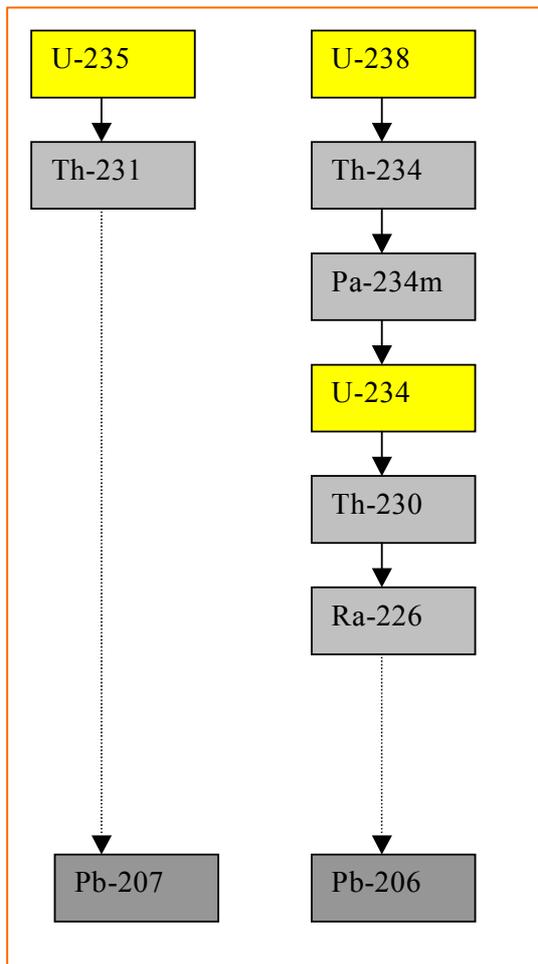


Abb. 1 Die Uran Zerfallsreihen

In nebenstehender Abb.1 sind die Zerfallsreihen des Urans dargestellt. In der Natur kommen die Uranisotope in festen Verhältnissen vor. Das Massenverhältnis U-238/U-235 beträgt ca. 142, während das Aktivitätsverhältnis 21,7 beträgt:

$$\frac{m_{U-238}}{m_{U-235}} = 142 \text{ (0,7\% U-235)}, \text{ Wegen } A = \lambda \cdot N \rightarrow \frac{A_{U-238}}{A_{U-235}} \approx 21,7$$

mit der Zerfallskonstanten $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ und der Halbwertszeit $T_{1/2}$

Wenn innerhalb einer Zerfallsreihe alle Radionuklide die gleiche Aktivität A ($=$ Zerfallsrate) in $\text{Bq} = \text{s}^{-1}$ haben, spricht man vom radioaktivem Gleichgewicht. Das heißt

$$A_{U-238} = A_{Th-234} = A_{Pa-234m} = A_{U-234} = \dots$$

Zerfall = Nachbildung

gilt für jedes einzelne Radionuklid der Reihe.

Zu beachten ist aber: $m_{U-238} \neq m_{Th-234} \neq m_{Pa-234m} \dots$

Speziell für die Uranisotope gilt:

$$A_{U-238} = A_{U-234} \text{ jedoch } m_{U-238} \neq m_{U-234}$$

$$\frac{m_{U-238}}{m_{U-234}} = \frac{4,47 \cdot 10^9}{2,45 \cdot 10^5} = 1,82 \cdot 10^4 \rightarrow m_{U-238} \approx m_{U-Gesamt}$$

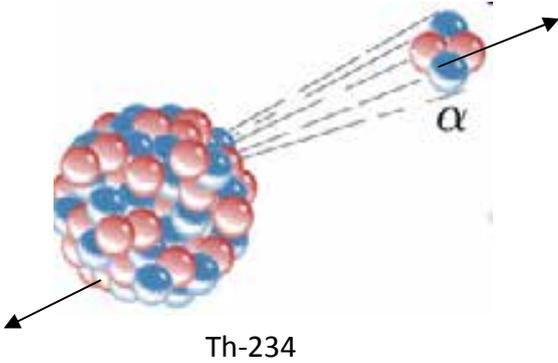
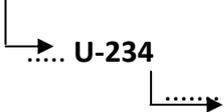
Im radioaktiven Gleichgewicht haben die Isotope U-234 und U-238 die gleiche Aktivität A . Die Gesamtmasse $m_{U-Gesamt} \approx m_{U-238}$ wird praktisch nur durch U-238 bestimmt. Die anderen U-Isotope sind bezüglich ihrer Masse vernachlässigbar ($\leq 0,7\%$).

Aus den obigen Angaben lässt sich auch der Zusammenhang zwischen der Aktivität A [Bq] eines Stoffes und dessen Masse m [mg] ableiten. Für Uran ($U-238 = U_{Gesamt}$) erhält man:

$$m_{U-Gesamt} [\text{mg}] \approx 0,0806 \cdot A_{U-238} [\text{Bq}] \text{ bzw. } A_{U-238} [\text{Bq}] \approx 12,4 \cdot m_{U-Gesamt} [\text{mg}]$$

Der Alpha Zerfall

Die Umwandlung der einzelnen Radionuklide innerhalb einer Zerfallsreihe geschieht durch Alpha- und Beta-Zerfall. In unserem Zusammenhang ist der α -Zerfall von besonderem Interesse und soll deshalb noch etwas näher betrachtet werden:

<p>Der Alpha-Zerfall</p>  <p>Th-234</p> <p>Beim Alpha -Zerfall wandelt sich der Ausgangskern U-238 (Mutterkern) in den Tochterkern um (zerfällt) unter Aussendung eines α-Teilchens, bestehend aus 2 Protonen und 2 Neutronen. Dies wird durch folgende Reaktionsgleichung beschrieben:</p> $\text{U-238} \rightarrow \text{Th-234} + \alpha; \quad \alpha: 2n+2p$ <p style="text-align: center;">  </p> <p>Das Th-234 zerfällt über Pa-234m zum U-234</p>	<p>Energiebilanz:</p> <p>Beim α-Zerfall wird die Zerfallsenergie frei. Diese verteilt sich zu etwa 95 % auf die kinetische Energie des freiwerdenden α-Teilchens. Der Rest der Zerfallsenergie mündet in eine Anregung des Folgekerns und/oder in die kinetische Energie des Folgekerns. Der Folgekern erleidet einen Rückstoß.</p> <p>Im Folgenden wird davon ausgegangen, dass Uran innerhalb eines Kristallgitters (in Mineralien, Gesteinen,...) gebunden ist. Infolge der Rückstoßenergie können die Folgekerne aus dem Kristallgitter herausgeschlagen werden, während die noch nicht zerfallenden U-238 Kerne im Kristallgitter verbleiben.</p> <p>Somit ist ein Teil der beim Zerfall von U-238 entstehenden Folgekerne wie z. B. U-234 weniger fest im Kristallgitter gebunden!</p>
---	---

Die Verschiebung des radioaktiven Gleichgewichts

Das radioaktive Gleichgewicht im Ausgangsmaterial wird durch diesen Prozess zunächst nicht gestört. Im Gestein/Boden stimmen die Aktivitäten überein:

$$A_{\text{U-238}} = A_{\text{U-234}}$$

Beim Kontakt mit Grundwasser können entsprechend der physiko-chemischen Bedingungen die einzelnen Nuklide der Zerfallsreihe in Lösung gehen. Aufgrund der vorgenannten Prozesse kann aber wegen der dafür höheren Verfügbarkeit etwas mehr U-234 „gelöst“ werden als U-238.

$$\text{Im Grundwasser } A_{\text{U-238}} \neq A_{\text{U-234}}, \quad A_{\text{U-238}} < A_{\text{U-234}}$$

→ Das radioaktive Gleichgewicht ist zugunsten des U-234 verschoben!

Für diese Tatsache gibt es seit langem viele experimentelle Belege. Für Uran in Grundwasser und Trinkwasser findet man in verschiedenen Publikationen folgende Angaben:

$$\frac{A_{U-234}}{A_{U-238}} := 1,15 - 2,0$$

Im Extremfall wurden sogar Verhältnisse A_{U-234}/A_{U-238} bis 12,6 gefunden.

Welche konkreten Ursachen diese starken Unterschiede haben ist den Autoren derzeit nicht genau bekannt. Möglicherweise spielt auch hier die Gesteinsart und deren Zusammensetzung eine wichtige Rolle. Denkbar ist, dass bei Festgesteinen die o.g. Isotopenverschiebung zugunsten U-234 im Grundwasser stärker zum Tragen kommt als bei Lockergesteinen mit wesentlich größerer spezifischer Oberfläche, da in Lockergesteinen die Löslichkeit des Urans (und zwar für alle Uranisotope) von vornherein größer sein sollte als in Festgesteinen.

Mit dieser Hypothese ließen sich einerseits die z. T. relativ hohen Uran-Gehalte in den Grundwässern in M-V bei vergleichsweise niedrigen Urankonzentrationen in den zugehörigen wasserführenden Böden (Lockergesteine) erklären. Gleichzeitig haben wir hier eine zwar statistisch signifikante, jedoch relativ geringere Verschiebung des Isotopenverhältnisses zugunsten des U-234.

Andererseits stammen die aus anderen Gegenden Deutschlands gemessenen erhöhten Uranwerte im Grundwasser aus Festgesteinen mit deutlich höherem Uran-Gehalt. Und hier ergibt sich wegen der niedrigen Löslichkeit des Urans aus den Festgesteinen eine stärkere Verschiebung zugunsten der U-234 Isotope.

Anlage 2 Methodik des LUNG zur Radioaktivitätsbestimmung der Mineraldüngemittel

Aus ersten Voruntersuchungen wurde ersichtlich, dass γ -spektrometrisch U-234 nur in Düngern mit sehr hohem U-Gehalt quantitativ bestimmbar ist. Ebenso sind die γ -spektrometrischen Ergebnisse zu U-238 mit relativ großen Messunsicherheiten behaftet. Somit ist die γ -Spektrometrie für eine ausreichend genaue Messung des Verhältnisses A_{U-234}/A_{U-238} nicht anwendbar. Davon ausgehend wurde folgende hauptsächlich auf der α -Spektrometrie basierende Methodik erarbeitet:

1. α -Spektrometrie Mineraldünger komplett - feste Phase:
Mikrowellenaufschluss mit HNO_3 von ca. 5g Dünger \rightarrow radiochemische Probenaufbereitung \rightarrow Separation der U-Isotope \rightarrow elektrolytische Abscheidung \rightarrow α -spektrometrische Ermittlung der U-234-, U-235- und U-238-Isotope.
2. α -Spektrometrie Mineraldünger in Lösung - flüssige Phase:
Auflösung von 5 g (in einem Fall 87 g) Mineraldünger in 500 g Aqua dest. \rightarrow Trennung fest/flüssig (dekantieren/filtrieren) \rightarrow radiochemische Probenaufbereitung \rightarrow Separation der U-Isotope \rightarrow elektrolytische Abscheidung \rightarrow α -spektrometrische Ermittlung der U-234-, U-235- und U-238-Isotope.
3. γ -Spektrometrie Mineraldünger komplett - feste Phase:
Direktmessung ohne PV im 1 l Ringbehälter oder in 70 cm³ Plastschälchen \rightarrow γ -spektrometrische Bestimmung von folgenden Nukliden: U-235, Pa-234m (U-238), Ra-228, Ra-226, Pb-210 u. a.

Bei den α -spektrometrischen Analysen konnte so das Verhältnis A_{U-234}/A_{U-238} direkt aus den zugehörigen Nettopeakflächen bestimmt werden. Dieses Verhältnis wird nicht durch Unsicherheiten bei der Efficiency der Messanordnung, bei der radiochemischen Probenvorbereitung (z. B. Ausbeute) und anderen Unsicherheiten, sondern nur durch die Zählstatistik beeinflusst. Dadurch waren insbesondere bei Düngern mit höherem Uran-Gehalt Messunsicherheiten für das Verhältnis A_{U-234}/A_{U-238} im Bereich von nur 1 bis 3 % erreichbar, auch wenn die Unsicherheit bei der Messung der spezifischen Aktivität der einzelnen Uran-Isotope meist größer als 10 % war. Für Dünger mit sehr niedrigem Uran-Gehalt lagen die 1- σ -Messunsicherheiten für das Verhältnis A_{U-234}/A_{U-238} auch bei etwa 10 %.