

Der folgende Text stellt einen Auszug (S. 69 - 96) dar aus:

Siehl, A. (Hrsg.): Umweltradioaktivität.- Ernst & Sohn, Berlin, 1996.

## **Die terrestrische Strahlung durch natürlich radioaktive Elemente in Gesteinen und Böden**

Joachim Kemski, Ralf Klingel; Kemski & Partner, Beratende Geologen, Bonn,  
Agemar Siehl; Geologisches Institut der Universität Bonn

### **Environmental radiation by naturally occurring radioactive elements in rocks and soils**

#### **Abstract**

The major part of ionising environmental radiation is caused by the naturally occurring primordial elements  $^{40}\text{K}$ , thorium and uranium, respectively the members of their decay series. The distribution of these elements in the earth's crust is governed by their geochemical behaviour during geological and pedogenic processes, resulting in varying concentrations in rocks and soils, which in turn give rise to the local variation of the terrestrial component of the natural radiation. Mobility and fixation of the relevant radionuclides in the geological and pedological cycles is discussed in the context of these processes with special reference to the areal distribution of the terrestrial  $\gamma$ -ray dose rates. The results of screening measurements in the Federal Republic of Germany are reviewed and details are given for several geologically representative areas, e.g. the Cenozoic Neuwied Basin in the middle Rhine valley, the eastern and western part of the steeply folded Paleozoic basement of the *Rheinische Schiefergebirge* and its Mesozoic cover, and the western and northern parts of the Bohemian Massif with outcropping or thinly covered Precambrian to Paleozoic crystalline rocks. The photon energy dose outdoors 1 m above ground varies between 5 and 440 nSv h<sup>-1</sup> with a median value of 60 nSv h<sup>-1</sup> for Germany. The highest values of approximately 250 to 400 nSv h<sup>-1</sup> occur above Upper Paleozoic granites in southern Saxony and eastern Bavaria.

#### **Einleitung**

Am Aufbau der Erdkruste sind die Elemente bis zur Ordnungszahl 92 in unterschiedlicher Menge beteiligt. Während acht Elemente (O, Si, Al, Fe, Ca, Na, K, Mg) etwa 99 Massenprozent ergeben, sind alle übrigen Elemente nur in geringen [mg g<sup>-1</sup>] bis äußerst geringen Konzentrationen [mg t<sup>-1</sup>] vorhanden. Die meisten der natürlich vorkommenden Isotope besitzen stabile Atomkerne, lediglich einige wenige unterliegen spontaner Kernumwandlung. Dabei tritt eine energiereiche Teilchen- bzw. Photonenstrahlung auf, der alle Lebewesen auf der Erde ausgesetzt sind. Liegt der Ursprung dieser Strahlung in den in Gesteinen und Böden vorhandenen natürlichen Radionukliden, so spricht man von *terrestrischer Strahlung*. Den größten Beitrag zur terrestrischen Komponente des natürlichen Strahlenspektrums liefern die Radionuklide der Zerfallsreihen von Uran und Thorium sowie das radioaktive Isotop  $^{40}\text{K}$  (vgl. Siehl, ds. Band). Die folgenden Ausführungen beziehen sich dabei ausschließlich auf die durchdringende Photonen- oder  $\gamma$ -Strahlung. Die Strahlenexposition ist mit wechselnder Zusammensetzung der oberflächennahen Böden und Gesteinen regional sehr variabel. Im

vorliegenden Beitrag sollen die geologischen Ursachen der regionalen und spektralen Verteilung dieser terrestrischen Strahlung erläutert werden.

### **Kenngrößen der terrestrischen Strahlung**

Meßgröße für den Gehalt an radioaktiven Nukliden ist die *spezifische Aktivität* [ $\text{Bq kg}^{-1}$ ] von Materialien. Aufgrund der Proportionalität von Aktivität und Masse eines Stoffes gelten für die wichtigsten geogen vorkommenden Radionuklide folgende Umrechnungen:

1 ppm $\text{U}_{\text{nat}}$ (Uran in natürlicher Isotopenzusammensetzung)	$\approx 25,4 \text{ Bq kg}^{-1}$
1 ppm $^{238}\text{U}$	$\approx 12,4 \text{ Bq kg}^{-1}$
1 ppm $^{232}\text{Th}$	$\approx 4,1 \text{ Bq kg}^{-1}$
1 % $\text{K}_{\text{nat}}$	$\approx 311,7 \text{ Bq kg}^{-1}$

Hierbei werden nicht die Folgeprodukte berücksichtigt, die bei radioaktivem Gleichgewicht im Gestein bzw. Boden in der gleichen Aktivität wie das Mutternuklid vorhanden sind. Zur Berechnung der Gesamtaktivität einer Zerfallsreihe muß also die Aktivität des Mutternuklides mit der Anzahl der radioaktiven Zerfallsprodukte multipliziert werden.

Die bei den Kernumwandlungen emittierte Strahlung verursacht durch die Übertragung von Energie verschiedene Wechselwirkungen mit der umgebenden Materie (vgl. Harder, ds. Band). Die Absorption der Energie wird als *Energiedosis* definiert. Die im Bezugsmaterial freigesetzte kinetische Energie bezeichnet man als *Kerma* (*kinetic energy released in material*). Beide Größen sind stoffspezifisch, sie werden stets auf ein bestimmtes Material bezogen. Es ist üblich, die absorbierte oder freigesetzte Energie je Zeiteinheit anzugeben, wobei als Meßgrößen  $\text{nGy h}^{-1}$  bzw.  $\mu\text{Gy a}^{-1}$  verwendet werden. Bei der Messung der terrestrischen Photonen-Strahlung werden die Werte in der Regel auf Luft bezogen und als *Kermaleistung* (*absorbed dose rate in air*) bezeichnet. Um die natürliche Strahlenbelastung durch terrestrische  $\gamma$ -Strahlung an verschiedenen Meßpunkten miteinander vergleichen zu können, mißt man die Luftkermaleistung in 1 m über dem Erdboden und kann zu Vergleichszwecken auf unterschiedliche Absorptionsraten in verschiedenen Medien umrechnen.

Für Belange des Strahlenschutzes sind insbesondere die Wirkungen ionisierender Strahlung auf den Menschen von Interesse, wobei zwischen der Strahlung von außen und der Strahlung durch inkorporierte Radionuklide zu unterscheiden ist. Da Strahlung im menschlichen Körper nicht gleichmäßig wirkt, werden die Risiken für die verschiedenen Organe getrennt betrachtet. Im Zusammenhang mit der terrestrischen Photonen-Strahlung wird die Kerma auf homogenes biologisches Gewebe der Zusammensetzung 10,1 % H, 11,1 % C, 2,6 % N und 76,2 % O bezogen [1, 2] und als *Äquivalentdosis* mit der Einheit Sievert [Sv] bezeichnet. Neuere Strahlenmeßgeräte sind auch auf dieses Bezugsmaterial kalibriert. Aus der Luftkerma, die in den meisten wissenschaftlichen Veröffentlichungen als Meßgröße benutzt wird, kann man diese Äquivalentdosis durch Multiplikation mit dem Faktor  $1,15 \text{ Sv Gy}^{-1}$  errechnen [1]. Als *Ortsdosis* (ortsfeste Messung) wird in diesem

Zusammenhang die Äquivalentdosis für Weichteilgewebe durch Strahlung von außen bezeichnet, gemessen an einem bestimmten Ort in 1 m über dem Erdboden [1]. Eine Luftkermaleistung von  $1 \text{ nGy h}^{-1}$  führt also zu einer Ortsdosisleistung von  $1,15 \text{ nSv h}^{-1}$ .

### **Berechnung der ortsfesten Energiedosisleistung**

Sind die Konzentrationen von  $^{40}\text{K}$ , Uran und Thorium in den Böden und Gesteinen bekannt, so kann die Dosisleistung an einem bestimmten Ort unter verschiedenen Annahmen berechnet werden [3-6]. Für die terrestrische Strahlenbelastung müssen aufgrund der Massenabsorption der Strahlung nur Radionuklide bis zu einer Bodentiefe von ca. 30 cm betrachtet werden. Folgende Punkte sind dabei zu berücksichtigen:

1. Die natürlich vorhandenen Inhomogenitäten bei der Verteilung von Elementen im Gesteinsverband, insbesondere lokal eventuell vorhandene An- oder Abreicherungen, werden bei der Berechnung außer acht gelassen. Außer von der spezifischen Massenabsorption und der Dichte (vgl. 2. und 3.) ist der Photonen-Fluß von der Erdoberfläche dann lediglich von der mittleren spezifischen Aktivität des als homogen angenommenen Untergrundes abhängig.
2. Die chemische Zusammensetzung der Böden sowie der saisonal variierende Wassergehalt in den Porenräumen des Bodens bestimmen die Absorption der  $\gamma$ -Photonen. Im theoretischen Ansatz wird zur Korrektur der Massenschwächungskoeffizient benutzt, der unabhängig von der Dichte des absorbierenden Mediums für jedes Element des Absorbers und jede Energie der emittierten  $\gamma$ -Strahlung einen bestimmten Wert besitzt. Für die nachfolgend aufgeführten Berechnungen wurde eine mittlere Zusammensetzung des Bodens mit 67,5 Gew.%  $\text{SiO}_2$ , 13,5 Gew.%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 4,5 Gew.%  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  und 4,5 Gew.%  $\text{CO}_2$  sowie einem Wassergehalt von 10 Gew.% angenommen [4]. Weichen die tatsächlichen Werte stärker ab, etwa in eisenreichen Lateriten oder kohlenstoffreichen humosen Böden, so sind die angenommenen Absorptionswerte im ersten Fall zu niedrig und im zweiten Fall zu hoch. Der Einfluß des Wassers in einem Boden ist in diesem Zusammenhang eher als gering einzustufen, er führt nur zu einer leichten Modulation der Dosis im Bereich von 2 bis 5 % [7]. Erst Schneebedeckung kann zu einer Reduzierung der Strahlung bis zu 20 % führen [8].
3. Gesteine weisen, abhängig von ihrer Genese und Mineralzusammensetzung, unterschiedliche Gefüge und Dichten auf. Diese Unterschiede werden im oberflächennahen Bereich durch die Bodenbildung zwar weitgehend egalisiert, allerdings liegen die Schwankungsbreiten der Lagerungsdichte bei humusarmen Böden noch in der Größenordnung von  $1,0$  bis  $2,0 \text{ g cm}^{-3}$ . Die freie mittlere Weglänge (Relaxationslänge) eines Photons im Boden verhält sich umgekehrt proportional zur Dichte und geht in die Berechnung der Dosisleistung mit ein. Die nachfolgenden Ausführungen beziehen sich auf eine mittlere Dichte von  $1,6 \text{ g cm}^{-3}$  [5], was etwa der Lagerungsdichte eines sandigen Bodens entspricht.
4. Innerhalb der natürlichen Zerfallsreihen kann es infolge geochemischer Prozesse zu einer Veränderung des radioaktiven Gleichgewichtes durch eine Fraktionierung der langlebigen Radionuklide kommen. Da die wichtigsten  $\gamma$ -Strahler in der  $^{238}\text{U}$ -Reihe aber erst als Zerfallsprodukte des  $^{226}\text{Ra}$  (ca. 89 % der Strahlung durch  $^{214}\text{Bi}$  und ca. 11 % durch  $^{214}\text{Pb}$ ) auftreten, muß für die Berechnung radioaktives Gleichgewicht angenommen werden. Dies ist nicht immer

gesichert, daher kann es zweckmäßig sein, die Dosisberechnung für die Uran-Reihe anstatt auf das Mutternuklid Uran auf die Aktivität von  $^{226}\text{Ra}$  zu beziehen.

Tabelle 1 zeigt als Ergebnis der oben formulierten Annahmen die Konversionsfaktoren der einzelnen Radionuklide für die Berechnung der ortsfesten Dosisleistung in 1 m über dem Erdboden. Die Schwankungsbreite der verschiedenen Konversionsfaktoren [3, 9, 10] beträgt für das gleiche Elementinventar bei der Berechnung der Dosisleistung insgesamt 12 %, deswegen sind also stets die verwendeten Faktoren anzugeben.

Tabelle 1

Konversionsfaktoren für die Umrechnung der Konzentration bzw. Aktivität von Radionukliden in die Luftkermaleistung in 1 m über dem Erdboden.

Quelle	BECK et al. 1972 [3]	UNSCEAR 1988 [9]	UNSCEAR 1993 [10]	Meßgröße
$^{40}\text{K}$	0,0478	0,043	0,0414	nGy h <sup>-1</sup> je Bq $^{40}\text{K}$
$^{232}\text{Th}$	0,756	0,662	0,623	nGy h <sup>-1</sup> je Bq $^{232}\text{Th}$
$^{238}\text{U}$	0,5	0,427	0,461	nGy h <sup>-1</sup> je Bq $^{238}\text{U}$
$\text{K}_{\text{nat}}$	14,9	13,4	12,9	nGy h <sup>-1</sup> je % $\text{K}_{\text{nat}}$
$^{232}\text{Th}$	3,1	2,7	2,6	nGy h <sup>-1</sup> je ppm $^{232}\text{Th}$
$^{238}\text{U}$	6,2	5,4	5,8	nGy h <sup>-1</sup> je ppm $^{238}\text{U}$
$\text{U}_{\text{nat}}$	6,15	5,36	5,75	nGy h <sup>-1</sup> je ppm $\text{U}_{\text{nat}}$

Aus geologischer Sicht erscheint es sinnvoll, berechnete Dosisleistungen nur für regional begrenzte Gebiete und in ihrer Elementzusammensetzung ähnliche Böden und Gesteine im Untergrund anzugeben. Welche Unterschiede bei der Berechnung auftreten können, wenn größere inhomogene Bereiche unter Annahme mittlerer Konzentrationen zusammengefaßt werden, zeigen zwei Beispiele aus den USA. Legt man eine Untersuchung von Beck & de Planque [4] zugrunde, die mittlere Konzentrationen der Radionuklide in Böden von 370 Bq kg<sup>-1</sup>  $^{40}\text{K}$ , 25 Bq kg<sup>-1</sup>  $^{232}\text{Th}$  und 25 Bq kg<sup>-1</sup>  $^{226}\text{Ra}$  postuliert, so errechnet sich eine mittlere Ortsdosisleistung von 44 nGy h<sup>-1</sup>. Verwendet man als mittlere Aktivitäten von  $^{232}\text{Th}$  35 Bq kg<sup>-1</sup> und von  $^{226}\text{Ra}$  40 Bq kg<sup>-1</sup> [11], so ergibt sich dagegen eine Dosisleistung von 55 nGy h<sup>-1</sup> im Freien. Unter Berücksichtigung der großen geogen bedingten Variationsbreite erscheinen solche Mittelungen aus wissenschaftlicher Sicht fragwürdig und umso weniger aussagekräftig, je größer und im geologischen Aufbau heterogener die gemittelten Areale sind. Auf administrativer Ebene mag ein gewisser Bedarf für solche Zahlen bestehen, daher werden

im nächsten Abschnitt einige Beispiele genannt. Zur besseren Übersicht sind die teilweise in  $\text{nGy h}^{-1}$  angegebenen Werte auf die Ortsdosisleistung in 1 m über dem Erdboden in  $\text{nSv h}^{-1}$  umgerechnet.

### **Schwankungsbreite der Ortsdosisleistung**

Die natürlichen Radionuklide sorgen mit ihrer terrestrischen Strahlung für eine überall vorhandene Grundbelastung. Ultrabasite mit sehr niedrigen Radionuklidkonzentrationen (z.B.: 0,004 % K, 0,5 ppm Th und 0,1 ppm U) ergeben Werte von ca.  $2 \text{ nGy h}^{-1}$  (ca.  $2,3 \text{ nSv h}^{-1}$ ) im Freien, basische Gesteine wie Basalte (z.B.: 0,6 % K, 2 ppm Th, 1 ppm U) lassen Werte von ca. 15 bis  $20 \text{ nGy h}^{-1}$  (ca.  $17 \text{ bis } 23 \text{ nSv h}^{-1}$ ) erwarten. Bei den im UNSCEAR-Report 1993 [10] aufgeführten Daten aus 40 Ländern schwanken die gemessenen Werte zwischen 1 und  $1\,300 \text{ nGy h}^{-1}$  ( $1,15 \text{ bis } 1\,500 \text{ nSv h}^{-1}$ ), die Mittelwerte der Länder variieren von 24 bis  $160 \text{ nGy h}^{-1}$  ( $28 \text{ bis } 185 \text{ nSv h}^{-1}$ ). Die tatsächlichen Belastungen eines einzelnen Menschen durch die Strahlung von außen können, je nach der Beschaffenheit des geologischen Untergrundes, von diesen Mittelwerten zum Teil erheblich abweichen.

Der Mensch in den Industriestaaten verbringt einen Großteil seiner Zeit in Gebäuden, deren Baumaterial häufig aus dem geologischen Umfeld stammt und entsprechende Konzentrationen an natürlichen Radionukliden enthält. Diese Materialien bewirken durch die allseitige Umbauung eines Raumes innerhalb der Häuser in der Regel eine Erhöhung der Strahlenbelastung gegenüber dem natürlichen Untergrund im Freien um ca. 30 %, obwohl die Wände die Strahlung aus dem Boden fast vollständig absorbieren [12, 13, vgl. Lehmann, ds. Band]. Art und Dicke des Baumaterials spielen für solche Betrachtungen eine wesentliche Rolle. Weltweit wurden mittlerweile Meßkampagnen zur Erfassung der Strahlenbelastung durch  $\gamma$ -Strahlen in Gebäuden durchgeführt. Die landesbezogenen Mittelwerte schwanken dabei im Bereich von 20 bis  $190 \text{ nGy h}^{-1}$  ( $23 \text{ bis } 220 \text{ nSv h}^{-1}$ ) [10].

Wenn die Aufenthaltsdauer der Menschen im Freien und in Gebäuden bekannt ist, kann eine effektive Jahresdosis abgeleitet werden. Für internationale Berechnungen geht man von einer Aufenthaltsdauer von 80 % in Gebäuden und von 20 % im Freien aus.

Ein Großteil der Erdoberfläche liefert relativ homogene Werte der terrestrischen Strahlung von 40 bis  $100 \text{ nGy h}^{-1}$  ( $46 \text{ bis } 115 \text{ nSv h}^{-1}$ ). In Europa sind mit sehr niedrigen Dosisleistungen von weniger als  $40 \text{ nSv h}^{-1}$  (Mittelwert) die Sedimente des nordwesteuropäischen Tertiär-Beckens sowie der känozoischen Becken in Spanien zu nennen [14]. Im mittleren Bereich mit  $40 \text{ bis } 70 \text{ nSv h}^{-1}$  liegen die mesozoischen Sedimente des Pariser Beckens und der süddeutschen Schichtstufenlandschaft, die quartären Ablagerungen der Norddeutschen Senke, aber auch die Sedimente des paläozoischen Grundgebirges. Hohe bis sehr hohe Dosisleistungen (Maximalwerte von  $400 \text{ nSv h}^{-1}$ ) liefern die proterozoischen Granitoide Skandinaviens, das Kristallin der Iberischen Meseta sowie die paläozoischen, sauren Magmatite der Böhmisches Masse, des Armorikanischen Massivs und des französischen Zentralmassivs; auf den britischen Inseln fallen die variszischen Zinngranite Cornwalls in diese Kategorie.

Daneben existieren weltweit kleinere Gebiete, die durch extrem hohe Ortsdosen auffallen. Diese erhöhte terrestrische Strahlung ist durch lokale Anreicherungen von Uran und Thorium bedingt. Zusammenstellungen entsprechender Literatur finden sich im UNSCEAR-Report 1993 [10]. Nachfolgend seien einige ausgewählte Beispiele genannt, um eine Vorstellung über die Höhe möglicher Belastungssituationen zu geben. In Indien führen die rezenten bis subrezenten Ablagerungen von thoriumreichen Mineralsanden an der Küste von Kerala zu Dosisleistungen von max. ca. 4 000 nSv h<sup>-1</sup> und in Tamil Nadu von max. ca. 6 000 nSv h<sup>-1</sup>. In Brasilien werden durch Monazit-Sande an der Atlantik-Küste Dosisleistungen bis ca. 4 000 nSv h<sup>-1</sup> erreicht. Hydrothermale Lösungen als Folge vulkanischer und subvulkanischer Phonolith-Intrusionen reicherten in Minas Gerais in der Nähe von Pocos de Caldas Uran und Thorium an. Deszendente Verwitterungslösungen fällten das Uran an Redoxfronten in Form sekundärer Pechblende aus, die heute Dosisleistungen von ca. 3 500 nSv h<sup>-1</sup> hervorrufen (nähere Ausführungen hierzu auch in Nagra [18] und Schorscher & Shea [19]). Thoriumanomale Carbonatite bei Mombasa in Kenia verursachen Ortsdosisleistungen bis ca. 12 000 nSv h<sup>-1</sup>. Im Iran bei Ramsar am Kaspischen Meer entstehen durch radiumreiche Travertine Maxima von ca. 30 000 nSv h<sup>-1</sup>. Viele weitere Anomalien sind von Uran-Lagerstätten bekannt, als Maximalwerte sind in Schweden über oberflächennahen Uran-Anreicherungen bis zu ca. 100 000 nSv h<sup>-1</sup> gemessen worden. Oft haben hier hohe Ortsdosisleistungen ihre Ursache aber in anthropogenen Umverteilungen natürlicher Radionuklide im Zusammenhang mit dem Uran-Bergbau (vgl. Röhnsch, ds. Band). In Thüringen und Sachsen werden über alten Halden des Uran-Bergbaus Dosisleistungen bis ca. 1 000 nSv h<sup>-1</sup> gemessen; im Zuge der Erfassung von WISMUT-Altlasten sind z.B. im Gebiet der Lagerstätte Ronneburg Flächen im Gesamtumfang von 193 ha gefunden worden, die Dosisleistungswerte von mehr als ca. 500 nSv h<sup>-1</sup> aufweisen [20].

## **Verteilung und Geochemie natürlicher Radionuklide**

### **Kalium**

Am Isotopengemisch von natürlichem Kalium ist neben <sup>39</sup>K (93,2 %) und <sup>41</sup>K (6,73 %) auch zu 0,0117 % das radioaktive Nuklid <sup>40</sup>K beteiligt. Es gehört zu den primordialen Radionukliden. Aufgrund seiner Halbwertszeit von  $1,28 \times 10^9$  Jahre sind bereits neun Zehntel des ursprünglich vorhandenen <sup>40</sup>K zerfallen. Es ist ein  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahler und wandelt sich durch Elektroneneinfang zu <sup>40</sup>Ar und durch  $\beta$ -Zerfall zu <sup>40</sup>Ca um. Das Isotopenverhältnis des Kalium ist, von wenigen Ausnahmen abgesehen, konstant. Zu diesen Ausnahmen zählen Verwitterungszonen, in denen intensive Kationenaustauschvorgänge stattgefunden haben sowie Kontaktbereiche von Magmatiten. Kalium ist ein in der Natur weit verbreitetes Element. Es stellt ein wichtiges Kation bei der Bildung der verschiedenen gesteinsbildenden Silikate dar. Hier sind vor allem Feldspäte, Glimmer und Tonminerale zu nennen. In Gesteinen ist Kalium mit einer breiten Spanne vertreten, die Gehalte reichen von 0,004 % in Ultrabasiten bis über 5 % in einigen Graniten und Tonsteinen. In Tabelle 2 sind die Gehalte des radioaktiven <sup>40</sup>K in verschiedenen Gesteinen aufgeführt. Die metamorphen Äquivalente der magmatischen und sedimentären Gesteine sind in den folgenden Tabellen nicht genannt. Ihr Elementgehalt bildet den der Ausgangsgesteine ab, da durch Metamorphoseprozesse keine wesentlichen Änderungen des Gesamtchemismus verursacht werden.

Während der Verwitterung findet in der Regel ein Kalium-Verlust durch Hydrolyse der Silikate sowie die anschließende Verlagerung des mobilen Kations mit dem Sicker- und Porenwasser statt. In Böden ist Kalium gegenüber dem Ausgangsmaterial in den meisten Fällen angereichert, da es in Mineralneubildungen eingebaut wird. An Tonmineralen und organischer Substanz kann Kalium an der Oberfläche reversibel gebunden sein, im Innern in Zwischenschichten aber fixiert werden und somit in unterschiedlicher Konzentration für Verlagerungsvorgänge zur Verfügung stehen. Es nimmt sehr intensiv am biologischen Kreislauf teil, wird hier bevorzugt in Pflanzen eingebaut, aber dem Boden über die Streu nur sehr unvollständig wieder zugeführt. Die in Mikroorganismen enthaltene Menge an Kalium ist mit 0,85 bis 1,75 % der Trockenmasse bei der Gesamtbetrachtung von Böden vernachlässigbar [28].

Tabelle 2

Konzentration von Kalium in Gesteinen und Böden sowie die daraus berechneten spezifischen Aktivitäten und Dosisleistungsanteile in 1 m über dem Erdboden nach [10], Daten nach [13, 21-27, 43].

	Konzentration $K_{nat}$			spezifische Aktivität $^{40}K$			berechnete Dosisleistung		
	[%]			[Bq kg <sup>-1</sup> ]			[nGy h <sup>-1</sup> ]		
	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.
saure Magmatite	3,2	2,5	5,4	997	779	1 683	41	32	70
intermediäre Magmatite	2,8	1,7	3	872	530	935	36	22	39
basische Magmatite	0,6	0,58	0,75	187	181	234	7,7	7,5	9,7
Ultrabasite	0,004	0,001	0,09	1	0,31	28	0,1	0,01	1,2
Sandsteine	1,48	0,01	6,7	461	3	2 081	19	0,1	86
Tonsteine	2,81	0,49	4,3	876	153	1 352	36	6,3	56
Carbonate	0,31	0,02	1,5	97	6	480	4	0,3	20
Krustenmittel	2			623			26		
Böden	1,68	0,05	9,5	523	16	2 960	22	0,6	123

## Thorium

Im geologischen Bereich kommen sechs natürliche Thorium-Isotope vor. Darunter hat  $^{232}Th$  mit  $1,41 \times 10^{10}$  Jahren die längste Halbwertszeit. Es zerfällt über 10 Zwischenstufen zum stabilen  $^{208}Pb$ . In dieser Zerfallsreihe entsteht als Tochternuklid  $^{228}Th$  mit einer Halbwertszeit von 1,9 Jahren. In der  $^{238}U$ -Reihe werden  $^{234}Th$  (24,1 Tage) sowie  $^{230}Th$  (75 400 Jahre) gebildet, in der  $^{235}U$ -Reihe  $^{231}Th$  (25,4 h) und  $^{227}Th$  (18,2 Tage). Thorium ist ein geochemisch immobiles Element mit lithophilem Charakter. Der Ionenradius ( $Th^{4+}$ : 1,10 Å) und die Valenz (Oxidationsstufen +2 bis +4, geochemisch ist aber nur



+4 von Bedeutung) haben zur Folge, daß Thorium in den Hauptmineralen nur in Spurengehalten von einigen wenigen ppm vorkommt. Der ähnliche Ionenradius von Thorium und Uran begünstigt den wechselseitigen Ersatz dieser beiden Elemente in den Kristallgittern der Wirtsminerale. Ebenso ersetzt Thorium Zirkonium und Cer. Daher können in den akzessorischen Mineralen wie Allanit oder Monazit die Gehalte mehrere Prozent betragen. Im magmatischen Zyklus reichert sich Thorium im Laufe der Differentiation an. Es wird vor allem in Minerale der Spätkristallisation eingebaut und geht nicht in die fluide Phase über. Thoriumanomale Granite aus dem Gebiet um Neunburg vorm Wald in Ostbayern enthalten Thorium-Gehalte bis 80 ppm [29]. In natürlichen Wässern ist Thorium sehr schwer löslich und zeigt dementsprechend eine geringe Mobilität. Es wird in geringem Maße mit Anionenkomplexen oder durch hydroxidische und silikatische Kolloide gelöst transportiert. Den wichtigsten Beitrag zur Verlagerung bildet allerdings der Transport in Suspension durch feinkörnigen Gesteinsdetritus. Bei der Verwitterung wird es aufgrund dieses Verhaltens vor allem in Residuen angereichert. Seine gute Adsorptionsfähigkeit an Tonmineralen, Oxiden und Hydroxiden sowie an Kolloiden und organischem Material erklärt die hohen Thorium-Gehalte in Bauxiten, Bentoniten, pelagischen Tonen und Mangan-Knollen [30-33]. Die Verteilung des Thorium in verschiedenen Gesteinen wird in Tabelle 3 spezifiziert.

Tabelle 3

Konzentration von  $^{232}\text{Th}$  in Gesteinen und Böden sowie die daraus berechneten spezifischen Aktivitäten und Dosisleistungsanteile in 1 m über dem Erdboden nach [10], Daten nach [13, 21-27, 43].

	Konzentration $^{232}\text{Th}$			spezifische Aktivität $^{232}\text{Th}$			berechnete Dosisleistung		
	[ppm]			[Bq kg <sup>-1</sup> ]			[nGy h <sup>-1</sup> ]		
	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.
Feldspäte		0,5	10		2	41		1,3	26
Quarze		0,5	10		2	41		1,3	26
Biotite		0,5	50		2	205		1,3	130
Hornblenden		5	50		21	205		13	130
saure Magmatite	12,6	10	90	52	41	369	33	26	234
intermediäre Magmatite	3,9	2	10	16	8	41	10	5,2	26
basische Magmatite	1,9	0,5	2	8	2	8	5	1,3	5,2
Ultrabasite	0,4	0,01	0,5	2		2	1,2	0,03	1,3
Sandsteine	1,7	1	9	7	4	37	4,4	2,6	23
Tonsteine	12,2	10	17	50	41	70	31	26	44
Carbonate	1,1	0,1	3	5	0,5	12	2,9	0,3	7,8
rezente Tiefseetone		3	30		12	123		7,8	78
Bauxite	49			201			127		

Schwarzschiefer		100			410			260	
Phosphate		1	5		4	21		2,6	13
Krustenmittel	13			53			34		
Böden	10,3	4,2	23	42	17	94	27	11	60

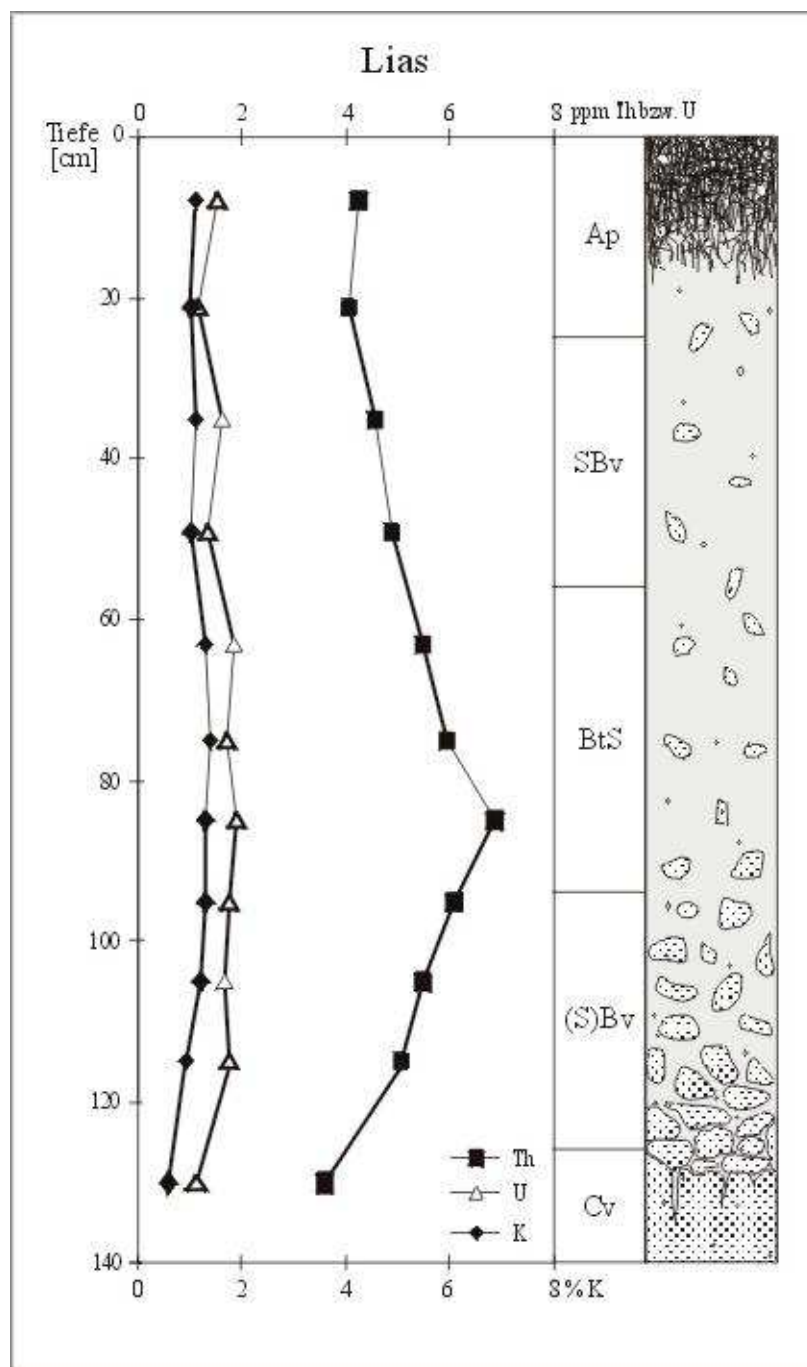


Abbildung 1: Bodenprofil über Sandstein aus dem Lias der Bitburg-Trierer Bucht (Parabraunerde-Pseudogley), Verlagerung von Thorium im Profil. Ap: bearbeiteter humoser Oberboden. SBv: verbraunter Mineralbodenhorizont mit

Stauwassereinfluß, Tonmineralauswaschung. BtS: verlehmteter Mineralbodenhorizont, stauwasserbeeinflußt, Tonmineralanreicherung. (S)Bv: verbrauchter mineralischer Unterbodenhorizont, mäßig stauwasserbeeinflusst. Cv: mineralischer Untergrundhorizont, schwach verwittert. Profil nach [37].

Thorium ist in Böden in der Regel gegenüber dem Ausgangsmaterial angereichert [34-36]. Dabei kann man eine Verlagerung vom obersten Bodenhorizont (A-Horizont) in den B-Horizont beobachten. Ein Bodenprofil aus dem Lias der Bitburg-Trierer Bucht zeigt einen derartigen Anreicherungshorizont, der durch die Verlagerung von Tonmineralen während der Bodenbildung entstanden ist (Abb. 1, [37]). In Böden ist Thorium in pedogenen Phasen, d. h. in Eisen-Oxiden und Tonmineralen, angereichert, in Sedimentgesteinen findet es sich vor allem in schwer löslichen silikatischen Bindungen, in Sulfiden sowie in Eisen-Oxiden [38] (vgl. auch Abb. 2).

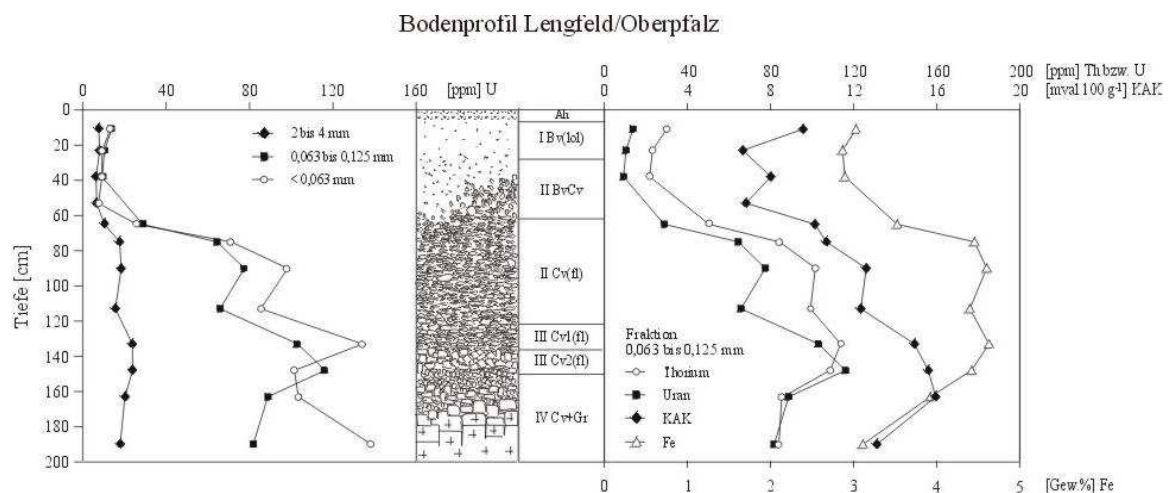


Abbildung 2: Bodenprofil über Granit aus der Oberpfalz, Bayern. Einfluß von Korngröße, Kationenaustauschern und Eisen-Verbindungen auf die Uran- und Thorium-Konzentrationen. Ap: bearbeiteter humoser Oberboden. Bv(lol): verbrauchter Mineralbodenhorizont, Ausgangsmaterial Löß. BvCv: Übergangshorizont mit Eigenschaften sowohl des Mineralbodens als auch des Ausgangsgesteins. Cv(fl): mineralischer Untergrundhorizont, aus einer Fließerdeeinheit aufgebaut. Cv+Gr: schwach verwittertes Ausgangsgestein aus Granit.

## Uran

Uran in natürlicher Isotopenzusammensetzung besteht aus  $^{238}\text{U}$  (99,2672 %, Halbwertszeit:  $4,47 \times 10^9$  Jahre),  $^{235}\text{U}$  (0,7202 %,  $7,04 \times 10^8$  Jahre) und  $^{234}\text{U}$  (0,0056 %,  $2,45 \times 10^5$  Jahre).  $^{238}\text{U}$  und  $^{235}\text{U}$  sind die Mutternuklide für zwei Zerfallsreihen mit den stabilen Endgliedern  $^{206}\text{Pb}$  bzw.  $^{207}\text{Pb}$ , während  $^{234}\text{U}$  als Zwischenprodukt in der  $^{238}\text{U}$ -Reihe entsteht. Das Isotopenverhältnis  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  ist für natürliche Materialien als konstant anzusehen, lediglich in fossilen Kernreaktoren kommt es zur relativen Anreicherung von  $^{235}\text{U}$  [39, vgl. Siehl, ds. Band]. Obwohl Uran in vier Oxidationsstufen (+3 bis +6) auftreten kann, sind in der Natur vorwiegend die Wertigkeiten +4 und +6 verwirklicht. In primär gebildeten Mineralen ist überwiegend die 4-wertige Form eingebaut, die ausschließlich unter reduzierendem Milieu mit sehr geringer Löslichkeit (Löslichkeitsprodukt  $D = 10^{-52}$ ) stabil ist. Bei der Oxidation des  $\text{U}^{4+}$  entsteht die instabile fünfwertige Zwischenform  $\text{UO}_2^+$ , die nur in einem eng begrenzten Milieubereich mit sehr niedrigem Redoxpotential stabil bleibt und ansonsten sehr rasch oxidiert wird. Im oxidierenden Milieu ist  $\text{U}^{6+}$  die stabile Form mit hoher Löslichkeit ( $D = 10^{-23}$ ), die in wässrigen Lösungen Uranyl-Komplexe bildet.

Ähnlich wie Thorium ist Uran aufgrund seines großen Ionenradius ( $U^{4+}$ : 1,05 Å,  $U^{6+}$ : 0,80 Å) ein geochemisch inkompatibles Element. In den wichtigsten gesteinsbildenden Mineralen ist es daher nur als Spurenelement in Konzentrationen von wenigen ppm zu finden. Die mafischen (dunklen) Minerale (Pyroxene, Hornblenden, Glimmer) zeigen vielfach höhere Uran-Konzentrationen als das Gesamtgestein, während die felsischen (hellen) Minerale (Feldspäte, Quarz) eher sehr niedrige Gehalte aufweisen (Tab. 4). Uran reichert sich im Laufe der Differentiation von Magmen in der fluiden Phase stetig an. Es wird dabei bevorzugt in Minerale der spätmagmatischen und pegmatitischen Kristallisation eingebaut, die am Ende einer magmatischen Ausscheidungsfolge entstehen [23]. In solchen Akzessorien wie Apatit, Zirkon oder Monazit können die Gehalte mehr als 1 000 ppm betragen (Tab. 4). Während Uran im Gitter dieser Akzessorien sitzt, sind die Uran-Gehalte in den gesteinsbildenden Mineralen nicht auf einen isomorphen Ersatz im Kristallgitter zurückzuführen. Uran ist hier vor allem entlang von Rissen und Korngrenzen konzentriert. Die wichtigste primäre Quelle des Uran stellen aus diesem Grunde die silikatreichen Gesteine ( $SiO_2$ -Gehalte > 65 Gew.%) dar, vor allem Granite und Pegmatite. Besonders hohe Uran-Konzentrationen (100 bis 130 ppm) finden sich in Albit-Riebeckit-Graniten z.B. in Vermont und in Colorado [40]. Aus Deutschland sind urananomale Granite wie z.B. der Kirchberger Granit (bis ca. 20 ppm) aus Sachsen bekannt [41].

Tabelle 4

Konzentration von Uran in den wichtigsten gesteinsbildenden und einigen uranhaltigen Mineralen, Daten nach [23].

Mineral	Formel	Konzentration $^{238}U$		spezifische Aktivität $^{238}U$	
		[ppm]		[Bq kg <sup>-1</sup> ]	
		Min.	Max.	Min.	Max.
<u>dunkel (mafisch)</u>					
Olivin	$(Mg,Fe)_2SiO_4$	0,01		0,12	
Augit	$(Ca,Mg,Fe,Ti,Al)(Al,Si)_2O_6$	0,01	40	0,12	496
Hornblende	$(Ca,Na)_{2-3}(Mg,Fe,Al)_5(Si,Al)_8O_{22}(OH)_2$	1	30	12	372
Biotit	$K(Mg,Fe)_3AlSi_3O_{10}(OH,F)_2$	1	40	12	496
<u>hell (felsisch)</u>					
Muskowit	$KAl_2(AlSi_3O_{10})(OH,F)_2$	2	8	25	99
Plagioklas (An)	$CaAl_2Si_2O_8$	0,2	5	2,5	62
Kalifeldspat	$KAlSi_3O_8$	0,2	3	2,5	37
Quarz	$SiO_2$	0,1	5	1,2	62
<u>akzessorisch</u>					
Ilmenit	$FeTiO_2$	1	50	12	620
Magnetit	$Fe_3O_4$	1	30	12	372
Epidot	$Ca_2(Al,Fe)_3Si_3O_{12}(OH)$	20	50	248	620
Apatit	$Ca_5(PO_4)_3(F,Cl,OH)$	5	150	62	1 860

Allanit	$(\text{Ca,Ce,Y,La,Th})_2(\text{Al,Fe})_3\text{Si}_3\text{O}_{12}(\text{OH})$	30	700	372	8 680
Titanit	$\text{CaTiSiO}_5$	100	700	1 240	8 680
Monazit	$(\text{Ce,La,Th})\text{PO}_4$	500	3 000	6 200	37 200
Zirkon	$\text{ZrSiO}_4$	300	3 000	3 720	37 200
Xenotim	$\text{YPO}_4$	500	35 000	6 200	434 000

Für das Verhalten von Uran während der Verwitterung spielt einerseits seine Lokalisierung im Kornverband, andererseits seine Fähigkeit zur Komplexbildung in wässrigen Lösungen eine Rolle. Die Löslichkeit aus dem Gesteinsverband hängt von seiner Bindungsform und Mineralisation ab. Aus löslichen Mineralen wie dem Uraninit ( $\text{UO}_2$ ), aus instabilen Phasen im Intergranularraum oder aus den äußersten Mineralkornlagen kann es leicht entfernt werden, während es in verwitterungsresistenten Mineralen wie dem Zirkon verbleibt. Einmal in die wässrige Lösung des Porenraumes gelangt, wird Uran vor allem in Form von Uranyl-Komplexen transportiert; das freie Uranyl-Ion  $\text{UO}_2^{2+}$  kann nur bei niedrigen pH-Werten unter 3 bis 4 existieren. Art und Stabilität solcher Komplexe - und somit die Mobilität des Uran - hängen vom Anionenangebot sowie von den physiko-chemischen Bedingungen der Porenfluide ab [42]. Je nach geochemischem Milieu dominieren unterschiedliche Komplexe, in erster Linie sind hier Hydroxid-, Fluorid-, Sulfat-, Phosphat- und Carbonat-Komplexe zu nennen.

Uran-Anreicherungen haben in den meisten Fällen ihre Ursache in chemisch bedingter Ausfällung aus wässrigen Lösungen. Hierfür sind häufig der Wechsel von einem oxidierenden (gut lösliches  $\text{U}^{6+}$ ) zu einem reduzierenden Milieu (schwer lösliches  $\text{U}^{4+}$ ), eine Änderung des pH-Wertes oder der Temperatur verantwortlich. Notwendig ist aber wahrscheinlich die Anwesenheit von Katalysatoren wie z.B.  $\text{Fe}^{2+}$  oder  $\text{V}^{3+}$ , die durch Reduktion des  $\text{U}^{6+}$  zur Fällung des Uran als Pechblende beitragen. Die Adsorption von  $\text{U}^{4+}$ - und  $\text{U}^{6+}$ -Ionen wird durch ihre Größe und hohe Ladung begünstigt. Organische Stoffe wie Kohlenwasserstoffverbindungen oder inkohltes Pflanzenmaterial können durch die Bildung von metallorganischen Komplexen Uran anlagern. Mineralbildungen mit besonders hohen Adsorptionskapazitäten sind Eisen-, Mangan- und Aluminium-Hydroxidgale, Kieselsäuregele, Tonminerale und Phosphate [43, 44].

In einem differenzierten Bodenprofil aus der Oberpfalz wird einerseits die Abhängigkeit des Uran-Gehaltes von der Korngröße, andererseits seine Affinität zu verschiedenen Bindungsformen verdeutlicht (Abb. 2, [45]). Der verwitterte anstehende Granit wird von einer Abfolge unterschiedlich alter Solifluktsdecken überlagert. Die oberen 30 cm des Profils sind durch die Einwehung von Löß beeinflusst. Genetisch bedingt sind in den beschriebenen Bodenhorizonten unterschiedliche Anteile an Schwer- und Tonmineralen sowie an pedogenen Neubildungen zu finden. Die guten Adsorptionseigenschaften der Tonminerale und der Eisen-Hydroxide spiegeln sich in der starken Zunahme des Uran-Gehaltes in den Kornfraktionen  $< 0,125$  mm sowie im übereinstimmenden Tiefenprofil von Uran, Thorium, Kationenaustauschkapazität und Eisen-Gehalt wider.

Unter den klastischen Sedimentgesteinen enthalten quarzreiche Sandsteine geringe Uran-Mengen, in tonigen Sedimenten führt die Adsorption des Uran an Tonmineralen zu einer Erhöhung der Konzentrationen (Tab. 5). Bei günstigen Mobilisationsbedingungen im Liefergebiet und der Ausbildung reduzierender Bedingungen im Sedimentationsraum kann es zur lagerstättenbildenden Anreicherung von Uran kommen. Hier sind vor allem die bitumenreichen Schwarzschiefer des Paläozoikums zu nennen. Die Uran-Konzentrationen in Kalken sind recht gering. Dies ist zum einen auf die gute Löslichkeit von Carbonat-Komplexen in Wässern und zum anderen auf einen nur geringen Beitrag von primär uranhaltigem bzw. uranadsorbierendem Detritusmaterial in den Kalken selbst zurückzuführen.

Tabelle 5

Konzentration von  $^{238}\text{U}$  in Gesteinen und Böden sowie die daraus berechneten spezifischen Aktivitäten und Dosisleistungsanteile in 1 m über dem Erdboden nach [10], Daten nach [13, 21-27, 43].

	Konzentration $^{238}\text{U}$			spezifische Aktivität $^{238}\text{U}$			berechnete Dosisleistung		
	[ppm]			[Bq kg <sup>-1</sup> ]			[nGy h <sup>-1</sup> ]		
	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.	Mittel	Min.	Max.
saure Magmatite	3,5	3	20	44	38	252	20	18	116
intermediäre Magmatite	1,5	1	8	19	13	101	9	5,8	46
basische Magmatite	0,8	0,3	1	11	4	13	45	1,7	5,8
Ultrabasite	0,05	0,01	0,1	1	0,1	1	0,3	0,1	0,6
Sandsteine	1,6	0,5	3	20	6	38	9	2,9	17
Tonsteine	3,7	1,5	8	34	25	101	21	8	46
Carbonate	1,8	0,3	2,3	23	4	29	10	1	13
rezente Tiefseetone		0,2	4		3	50		1,2	23
Bauxite	11,4	2	27	144	25	340	66	12	157
Schwarzschiefer		3	1 200		38	15 120		17	6 960
Phosphate		50	900		630	11 340		290	5 220
Krustenmittel	2,5			32			14		
Böden	3,2	1	20	40	13	252	19	5,8	116

## Radium

Radium gehört zur Gruppe der Erdalkali-Metalle und ähnelt in seinen chemischen Eigenschaften dem Barium, obwohl es mit 1,52 Å einen größeren Ionenradius als dieses (1,43 Å) hat. Es gibt 25 bekannte Radium-Isotope, die alle radioaktiv sind und durch  $\alpha$ -Zerfall (Ausnahme ist  $^{228}\text{Ra}$ ) in andere Nuklide

umgewandelt werden. Natürliche Isotope existieren auf der Erde in der Thorium-Reihe ( $^{224}\text{Ra}$ , Halbwertszeit: 3,7 Tage und  $^{228}\text{Ra}$ , 5,8 Jahre), in der  $^{235}\text{U}$ -Reihe ( $^{223}\text{Ra}$ , 11,4 Tage) und in der  $^{238}\text{U}$ -Reihe ( $^{226}\text{Ra}$ , 1 600 Jahre). Im geologischen Bereich ist aufgrund der Halbwertszeiten lediglich  $^{226}\text{Ra}$  von Interesse. Radium befindet sich in Gesteinen normalerweise im Gleichgewicht mit seinen Mutternukliden, in Böden sind durch geochemische Prozesse Ungleichgewichte in der Reihe möglich. In oberflächennahem, wässrigem Milieu können neben anderen Spurenelementen auch die Radium-Nuklide mobil sein und von ihren langlebigen Mutternukliden abgetrennt werden. Als Chlorid ist es gut, als Carbonat und Sulfat dagegen nur schwer löslich. Wegen des generell sehr geringen Radium-Gehaltes von Wässern ( $10^{-15}$  bis  $10^{-10}$  g l $^{-1}$   $^{226}\text{Ra}$ ) wird das Löslichkeitsprodukt von Radium-Verbindungen nur selten überschritten [46]. Bei pH-Werten zwischen 4 und 8 liegt Radium hauptsächlich in Form von  $\text{Ra}^{2+}$  vor.  $\text{Ra}^{2+}$  wird in wässrigen Lösungen nicht hydrolysiert. Seine Tendenz zur Komplexbildung ist im Vergleich zu den anderen Erdalkali-Metallen gering, es kommen vor allem Sulfat- und Carbonat-Komplexe vor [47]. In oxidierendem Milieu können Sulfate und Oxide gefällt werden, die Radium der wässrigen Lösung entziehen. Als Mechanismen kommen dabei isomorpher Ersatz anderer Kationen in fremden Kristallgittern (z.B. von Barium in Baryt) sowie Fällung mit Eisen- und Mangan-Oxiden und -Hydroxiden in Frage. Desweiteren kann durch die Adsorption über Ionenaustauschvorgänge an organischem Material, Eisen-Oxiden sowie Tonmineralen Radium gebunden werden [48].

### **Radioaktive Ungleichgewichte**

Die Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen befinden sich in offenen Systemen, wie sie der oberflächennahe Wechselwirkungsbereich von Atmosphäre, Hydrosphäre und Pedosphäre darstellt, nicht immer im radioaktiven Gleichgewicht [49-53]. Ungleichgewichte stellen sich in erster Linie in der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe ein, da die Halbwertszeiten von  $^{238}\text{U}$  ( $4,47 \times 10^9$  Jahre),  $^{234}\text{U}$  ( $2,45 \times 10^5$  Jahre),  $^{230}\text{Th}$  (75 400 Jahre) und  $^{226}\text{Ra}$  (1 600 Jahre) in der Größenordnung geologischer Prozesse mit An- und Abreicherungsvorgängen von  $10^4$  bis  $10^6$  Jahren liegen [27, 32, vgl. Siehl, ds. Band]. Wegen der unterschiedlichen chemischen und physikalischen Eigenschaften der Radionuklide kann es zu Fraktionierungen kommen. Vor allem Verwitterungs- und andere Alterationsprozesse geben den oben genannten Nukliden die Möglichkeit, sich aus dem System zu entfernen und sich unter geeigneten Bedingungen selektiv anzureichern. Auch in anthropogenen Ablagerungen, wie etwa Bergbauhalden, hat sich mitunter noch kein radioaktives Gleichgewicht eingestellt. Bei der Mobilisation können verschiedene Prozesse eine Rolle spielen. Aufgrund der Änderung des geochemischen Milieus erfolgt bei  $^{234}\text{U}$  durch eine Umwandlung von tetravalentem  $\text{U}^{4+}$  in die leichter lösliche hexavalente Form eine Mobilisierung des Isotopes, das als Uranyl-Ion oder -Komplex im wässrigen Medium transportiert wird. Ebenfalls auf unterschiedliches Lösungsverhalten zurückzuführen ist die relative Anreicherung von  $^{234}\text{Th}$  und  $^{230}\text{Th}$  durch die Bindung in unlöslichen Residualmineralen oder durch Adsorption an Tonminerale bei gleichzeitigem Abtransport des mobileren Uran.  $^{226}\text{Ra}$  findet sich in natürlichen Wässern wegen seiner guten Löslichkeit stets in höheren Aktivitäten als seine Mutternuklide. In Böden und jungen Sedimenten ist es oft im Überschuß vorhanden, hier ist die bevorzugte Bindung des Radium an Tonminerale der wichtigste Anreicherungsprozeß. Neben diesen geochemisch bedingten Vorgängen spielen auch Mechanismen eine Rolle, die direkt mit dem radioaktiven Zerfall verknüpft sind. Durch den Ausstoß energiereicher  $\alpha$ -Partikel beim Zerfall von  $^{238}\text{U}$ -Atomen kann das

Kristallgitter um diese Atome Defekte aufweisen. So gelangen die Tochternuklide, speziell  $^{234}\text{U}$ , leichter in Kontakt mit Porenwässern und werden mobilisiert. Desweiteren kann durch die Emission eines  $\alpha$ -Partikels auf die unmittelbaren Uran-Folgeprodukte ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ) ein Impuls ausgeübt werden, der einen Rückstoß der neu entstandenen Atome in den Porenraum zur Folge hat (*alpha recoil*). Ein anderer Prozeß, der ebenfalls zu radioaktiven Ungleichgewichten führt, ist die Migration des gasförmigen  $^{222}\text{Rn}$  (vgl. Kemski, Klingel & Siehl (b), ds. Band). Dadurch kommt es zu Anreicherungen der Radon-Folgeprodukte, die nicht mit den geochemischen Eigenschaften der Böden und beteiligten Lösungen zusammenhängen, sondern vielmehr über die Unterschiede in den bodenphysikalischen Kennwerten gesteuert werden. Alle diese Prozesse sind bei der Betrachtung der terrestrischen Strahlungskomponente wichtig, da ja die stärksten  $\gamma$ -Strahler der Uran-Zerfallsreihe erst nach dem Radium auftreten. Gerade in Böden kann also nicht immer aus der Konzentration des Uran auf die Aktivität der Tochternuklide geschlossen werden und umgekehrt. In der  $^{232}\text{Th}$ -Reihe betragen die Halbwertszeiten der Folgeprodukte maximal wenige Jahre. Innerhalb dieser kurzen Zeitspannen sind lediglich Prozesse von Bedeutung, die bei rezenten Sedimenten (z.B.: See-, Talauablagerungen, Moore) zu einer Trennung der  $^{232}\text{Th}$ - und  $^{228}\text{Th}$ -Isotope (Transport im Detritus) vom  $^{228}\text{Ra}$  (Transport in gelöster Form) führen.

### **Zur Situation in der Bundesrepublik Deutschland**

Zur Uran-Prospektion wurden von der Nachkriegszeit bis in die 80er Jahre in der gesamten Bundesrepublik ausgedehnte Untersuchungen durchgeführt. In den östlichen Bundesländern hat die WISMUT vor allem das Grund- und Deckgebirge in Thüringen und Sachsen sehr systematisch und intensiv unter verschiedenen Gesichtspunkten der Uran-Gewinnung untersucht (vgl. Röhnsch, ds. Band). Große Gebiete dieser Länder wurden in den 80er Jahren aero- $\gamma$ -spektrometrisch vermessen, und es wurden Spezialkarten 1 : 25 000 hergestellt. Leider sind heute nur wenige dieser Daten zugänglich. Eine zusammenfassende Darstellung über die Höhe der Ortsdosisleistungen in diesen Bundesländern ist durch das Bundesamt für Strahlenschutz in Vorbereitung. Nach Borsdorf, Malinowski & Naumann [54] und eigenen Stichproben heben sich im Süden das Vogtland und das westliche Erzgebirge mit Dosisleistungen zwischen 80 und 100 nSv h<sup>-1</sup> heraus. Die flächenhaft höchsten Werte mit mehr als 140 nSv h<sup>-1</sup> werden hier im Kirchberger und Eibenstocker Granit sowie ihren Kontakthöfen beobachtet; ebenso hohe Dosisleistungen treten über den Graniten und Porphyren im Raum von Zinnwald bis Dippoldiswalde im Ost-Erzgebirge sowie im Döhlener Becken mit seinen uranhaltigen Kohlen auf. Im Thüringer Becken schwanken die Werte um 70 nSv h<sup>-1</sup>. Niedrigere Ortsdosisleistungen von 25 bis 50 nSv h<sup>-1</sup> sind im Quartär des mitteldeutschen Tieflandes zu finden, hier kann es allerdings entlang der aus dem kristallinen Sockel entwässernden Flußläufe zu Radionuklidanreicherungen kommen, die in den Aueböden der Elbe und des Oderbruchs zu erhöhten, für die weiträumige Umgebung untypischen Werten um 100 nSv h<sup>-1</sup> führen [55].

In den alten Bundesländern konzentrierte sich die Uran-Suche auf die Oberpfalz, den Schwarzwald, den Harz und das Saar-Nahe-Bergland. Neben diesen gezielten und teilweise sehr detaillierten Prospektionen wurden in den 70er und 80er Jahren im Zuge eines neu entwickelten Umweltbewußtseins und einer neuen, strengeren Bewertung der Strahlungs Dosen erstmals



systematische Messungen im Freien und in Wohnräumen durchgeführt. Bis 1974 wurden insgesamt etwa 25 000 Messungen der Ortsdosisleistung im Freien und 30 000 Messungen in Wohnhäusern vorgenommen, die Daten wurden auf Verwaltungsbezirke bezogen und schließlich für die alten Bundesländer gemittelt [56]. Nach Einbeziehung der Meßwerte aus den neuen Bundesländern beträgt der Mittelwert für die gesamte Bundesrepublik  $60 \text{ nSv h}^{-1}$  bei einer Schwankungsbreite zwischen 5 und  $440 \text{ nSv h}^{-1}$  [57]. Wie schon eingangs angedeutet, ist diese Art der Mittelung aus geologischer Sicht unbefriedigend, da sie die natürliche Gliederung des Untergrundes in verschiedene geologische Einheiten mit entsprechend unterschiedlicher Strahlensignatur zu „administrativen“ Mittelwerten verrechnet. Gerade die Zuordnung zu geologischen Strukturen kann aber eine Interpretation der Daten zu Zwecken des Strahlenschutzes sehr viel besser stützen. Trotz der geringen topographischen Auflösung und fehlender spektraler Differenzierung der Untersuchungen lassen sich durchaus gewisse Parallelen zwischen dem geologischen Bau und der regionalen Verteilung der Strahlenexposition erkennen. Erhöhte Dosisleistungen (mehr als  $70 \text{ nSv h}^{-1}$ ) treten vor allem in den Kristallingebieten Bayerns, des Schwarzwaldes, des Odenwaldes sowie im Vulkangebiet des Neuwieder Beckens auf. Weiter fallen die paläozoischen Sedimente des Unterkarbon am Ostrand des Rheinischen Schiefergebirges sowie die Rotliegend-Sedimente des Saar-Nahe-Raumes auf. Relativ niedrige Dosisleistungen unter  $30 \text{ nSv h}^{-1}$  finden sich über den quartären Ablagerungen der Norddeutschen Tiefebene. Im einzelnen ist jedoch die Variation der geologischen Schichtglieder innerhalb eines Verwaltungsbezirkes zu groß und Lagerungsgeometrie, Bodenüberdeckung und Verwitterungszustand sind zu wenig berücksichtigt, um die vorhandene Korrelation der geologischen Gegebenheiten mit der terrestrischen Strahlungskomponente für exakte Prognosen zu nutzen.

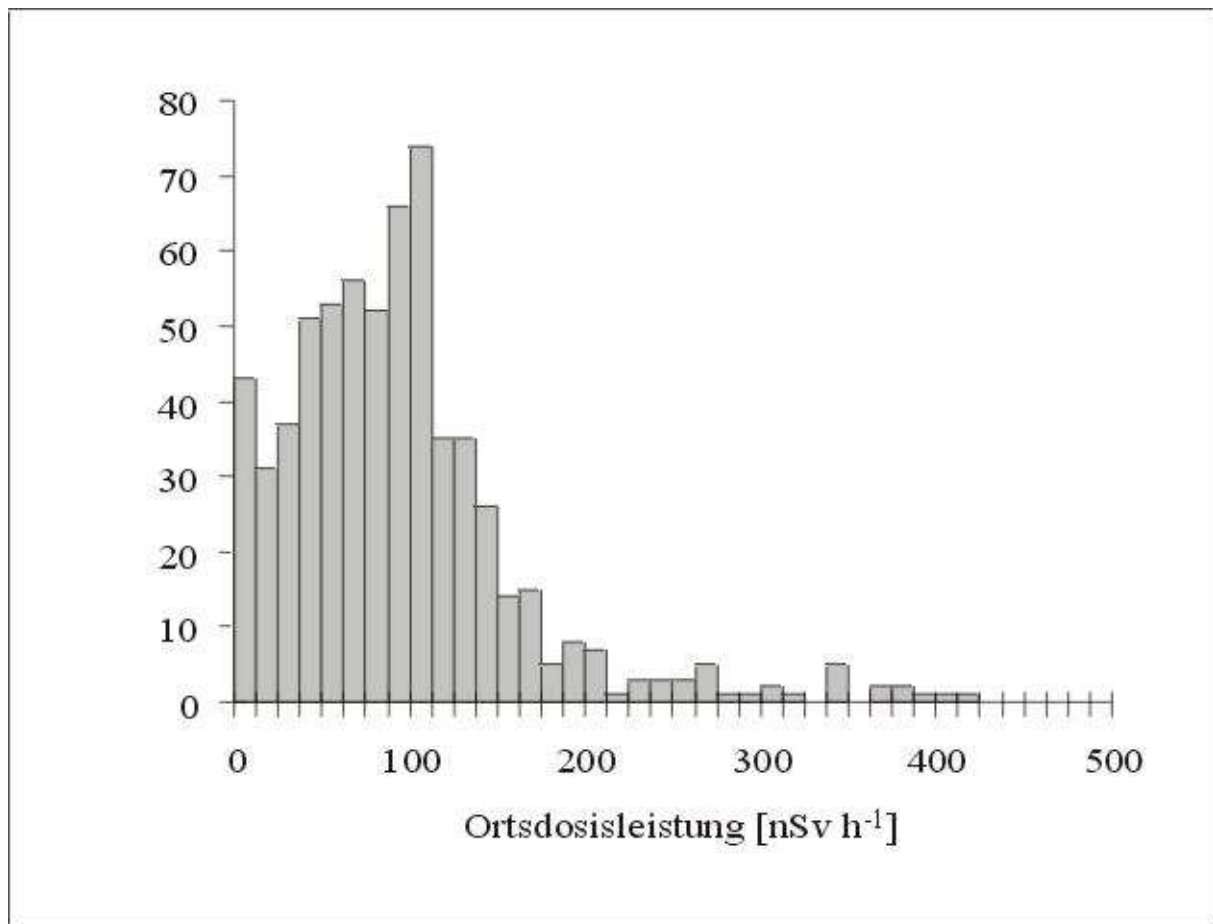


Abbildung 3: Häufigkeitsverteilung der berechneten Ortsdosisleistungen (n= 644) über Festgesteinen in der Bundesrepublik.

Aus diesem Grunde wurden Areale mit relativ hohen Ortsdosisleistungen im Freien und einem jeweils typischen Verband von Gesteinen und Böden bei gut bekannter geologischer Struktur vom Geologischen Institut der Universität Bonn in der Zeit von 1986 bis 1989 beispielhaft auf ihre natürlichen Radionuklidkonzentrationen untersucht [24]. Dabei konnte gezeigt werden, auf welche Weise die regionalen Unterschiede in der Ortsdosisleistung auf den geochemischen Variationen des geologischen Untergrundes beruhen. Eine Zusammenfassung der Werte nach Gesteinsarten ermöglicht eine weitergehende Interpretation des Datenkollektivs. Die Klassifizierung aller beprobten Festgesteinstypen ergibt ein breites Maximum, bei dem die Klassen von ca. 40 bis 110 nSv h<sup>-1</sup> nahezu gleich stark vertreten sind (Abb. 3). Im Vergleich dazu besitzt die Verteilung aller Böden ein deutliches Maximum bei ca. 80 nSv h<sup>-1</sup> mit einer geringeren Streuungsbreite (Abb. 4). Hier zeigt sich die vereinheitlichende Wirkungsweise der Bodenbildung durch Verwitterung und häufigen Eintrag von Fremdmaterial; auffallend ist eine geringe Besetzungsdichte der niedrigen Dosisleistungsklassen.

Während der <sup>40</sup>K-Anteil beim Vergleich zwischen Gesteinen und den darüberliegenden Böden nahezu unverändert bleibt, ist für <sup>232</sup>Th und <sup>238</sup>U eine Anreicherungstendenz in den Böden zu erkennen (Abb. 5). Über sauren Magmatiten, die in der Bundesrepublik Deutschland weit verbreitet sind (Schwarzwald, Odenwald, Fichtelgebirge, Ostbayern, Thüringer Wald, Erzgebirge), ist mit erhöhten Ortsdosisleistungen zu rechnen. 80 % aller Meßwerte für diese Gesteinsgruppe liegen zwischen 85 und 265 nSv h<sup>-1</sup>.

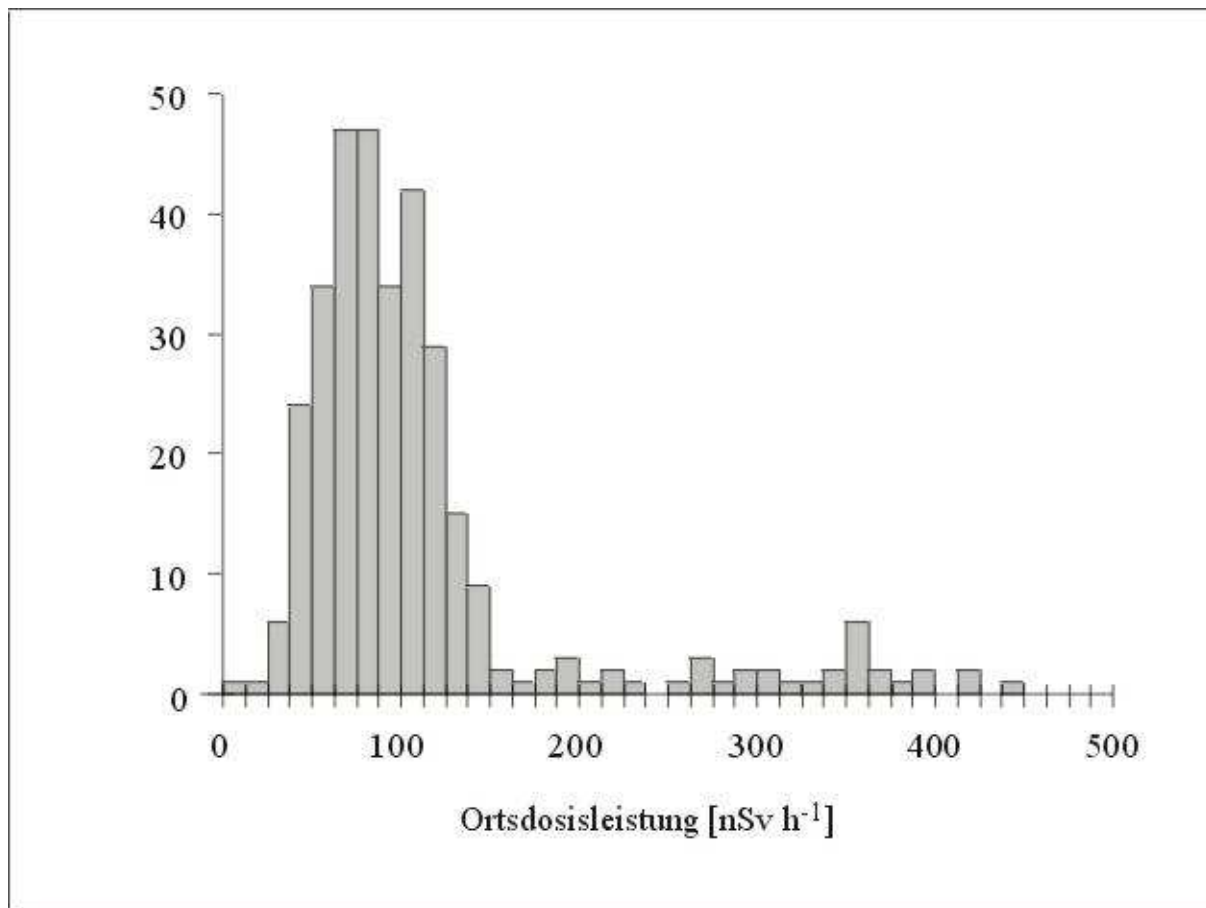


Abbildung 4: Häufigkeitsverteilung der berechneten Ortsdosisleistungen (n= 328) über Böden in der Bundesrepublik.

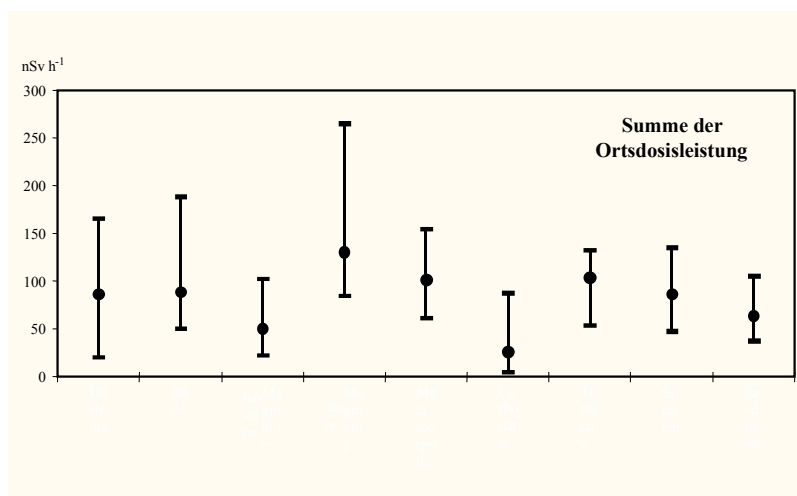
Die Variation innerhalb dieser Gesteinsgruppe zeigt das Beispiel der bayerischen Granite (Abb. 6). Kalium ergibt bei allen Graniten vergleichbare Dosiswerte, die Uran- und Thorium-Anteile variieren aber je nach Magmengeneese beträchtlich. Die 10- und 90-Perzentilwerte aller übrigen geologischen Einheiten liegen zwischen ca. 10 und 150 nSv h<sup>-1</sup> (Abb. 5), nur Ausreißer erreichen mehr als 200 nSv h<sup>-1</sup>. Der Median der Metamorphite liegt für die untersuchten Proben bei ca. 100 nSv h<sup>-1</sup>. Da es sich bei den untersuchten Gesteinen im wesentlichen um Paragneise handelt, sind die Radionuklidgehalte mit den Gehalten der Ausgangsmaterialien (meist Tonsteine) vergleichbar. Die Sedimentgesteine differieren deutlich in ihren Radionuklidgehalten. Die vorwiegend kalkigen Sedimente ergeben die im Vergleich geringsten Dosisleistungen. Eine Korngrößenabhängigkeit der Dosisleistungen wird durch die Trennung der silikatischen Sedimente in eine Ton-, Silt- und Sandfraktion ersichtlich.

Im folgenden werden die einzelnen Untersuchungsgebiete kurz vorgestellt, die geochemischen Spezifika erläutert und am Beispiel des Saarlandes die regionale Aufgliederung eines größeren Untersuchungsgebietes aufgrund geologischer Kriterien näher betrachtet.

Das *Neuwieder Becken* im Mittelrheingebiet liegt in südöstlicher Fortsetzung der Niederrheinischen Bucht und stellt ein junges Absenkungsgebiet im Rheinischen Schiefergebirge dar. Im Alttertiär beginnt die Absenkung innerhalb des aufsteigenden devonischen Gebirgssockels und reicht bis in die heutige Zeit. Die seismische Unruhe dieses Gebietes dokumentiert sich im häufigen Auftreten

kleinerer Erdbeben, besonders im südwestlichen Teil des Beckens. Die mehrere 1 000 m mächtigen unterdevonischen Sand-, Silt-, und Tonsteine bauen den anstehenden Gebirgssockel auf. Über diesem abgesunkenen Gebirgsrumpf lagern im Neuwieder Becken zumeist flach geneigt oder horizontal kanozoische Sedimente: die ältesten Schichten der Beckenfüllung sind limnische Tone und fluviatile Sande des Tertiär, in die geringmächtige Trachyttuff-Bänder eingeschaltet sind. Darüber liegen kiesige, sandige und lehmige quartäre Aufschüttungen des Rheins und seiner Nebenflüsse, äolischer Löß sowie der vom Laacher See stammende, nur ca. 13 000 Jahre alte Bims [58]. Die Vulkan- und Schlackenkegel sowie Lavaströme des jungquartären Vulkanismus und die großflächigen Bimsdecken und Traßströme des Laacher See-Ausbruches prägen das heutige Landschaftsbild. Als industriell nutzbare Gesteine wurden neben den Schlacken und dem Traß besonders die Bimstufe in einem Maße abgebaut, daß sie heute in weiten Teilen des Neuwieder Beckens nur noch in spärlichen Resten vorhanden sind. An der durch diesen Abbau morphologisch um mehrere Meter abgetragenen Erdoberfläche liegt oft der die Bimse unterlagernde Würm III-Löß frei. In Hanglagen dokumentiert sich der Einfluß der periglazialen Klimabedingungen während des Pleistozän durch das Auftreten von Solifluktsdecken.

Die berechneten Dosisleistungen schwanken zwischen 4 und 380 nSv h<sup>-1</sup>, bei einem Median von 114 nSv h<sup>-1</sup>. Die Unterteilung in verschiedene Gesteine und Böden zeigt auffallend hohe Werte mit durchschnittlich 180 nSv h<sup>-1</sup> bei den Selbergit-Vulkaniten, hier erreichen auch die Anteile von Kalium, Thorium und Uran jeweils Maximalwerte (Abb. 7). Die Dosisleistungen der alkalischen Foidite und Bimstufe sind ebenfalls in den oberen Bereich (> 100 nSv h<sup>-1</sup>) einzustufen. Beim Thorium und Uran überwiegen niedrige Dosisleistungen, es treten aber dort charakteristische Ausreißer zu hohen Werten auf, wo die unteren Schichten der Bimstufe (Meerboden- und Niedermendiger-Tuffe) durch Erosion freigelegt sind; hier sind generell die höchsten Dosiswerte im Freien zu erwarten. Kalkalkalische basische Vulkanite und die Sedimente weisen dagegen niedrigere Werte auf. Die Böden liegen mit durchschnittlich 90 nSv h<sup>-1</sup> nur gering über den Sedimenten, doch deutlich unter allen Vulkaniten.



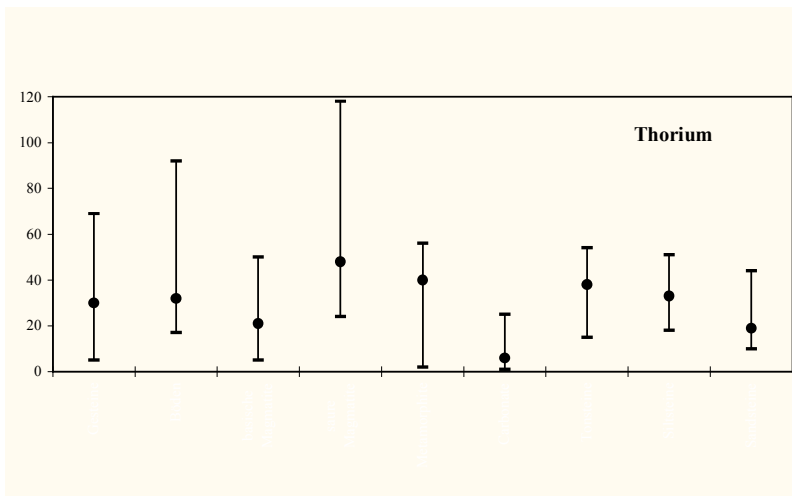
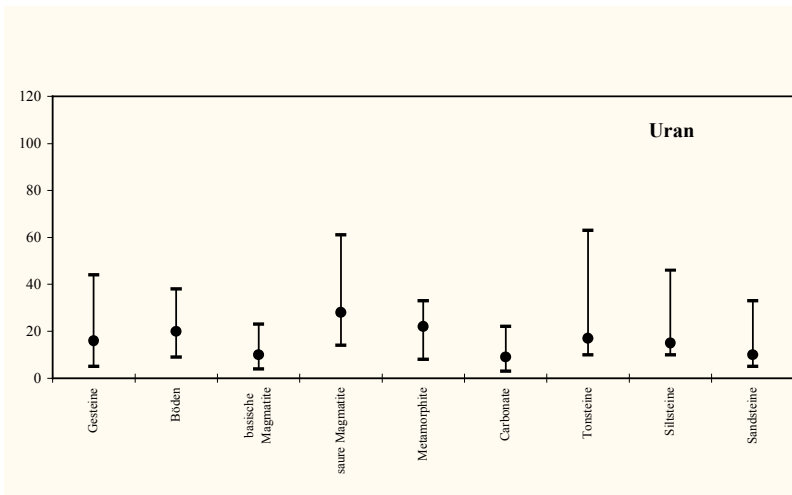
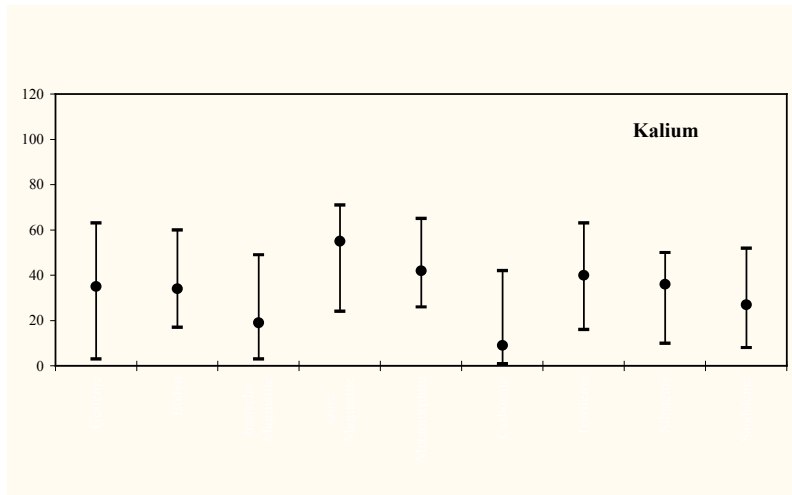


Abbildung 5: Berechnete Ortsdosisleistungen in 1 m über dem Erdboden sowie die Anteile der Radionuklide  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  für verschiedene Gesteine und Böden in der Bundesrepublik (Median-Werte sowie 10- und 90-Perzentile).

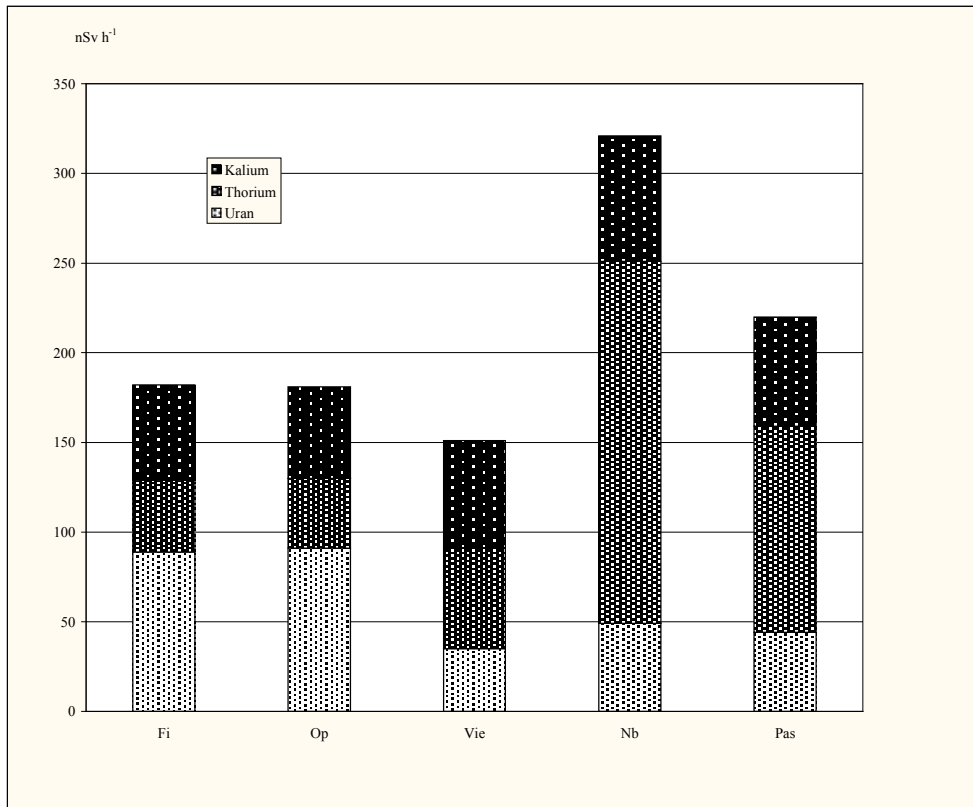


Abbildung 6: Berechnete Dosisleistungen in 1 m über dem Erdboden für verschiedene Granitareale in Ostbayern (Median-Werte). Fi: Fichtelgebirge. Op: Nördliche Oberpfalz. Vie: Oberviechtacher Granit. Nb: Neunburger Granit. Pas: Granite des Passauer Waldes.

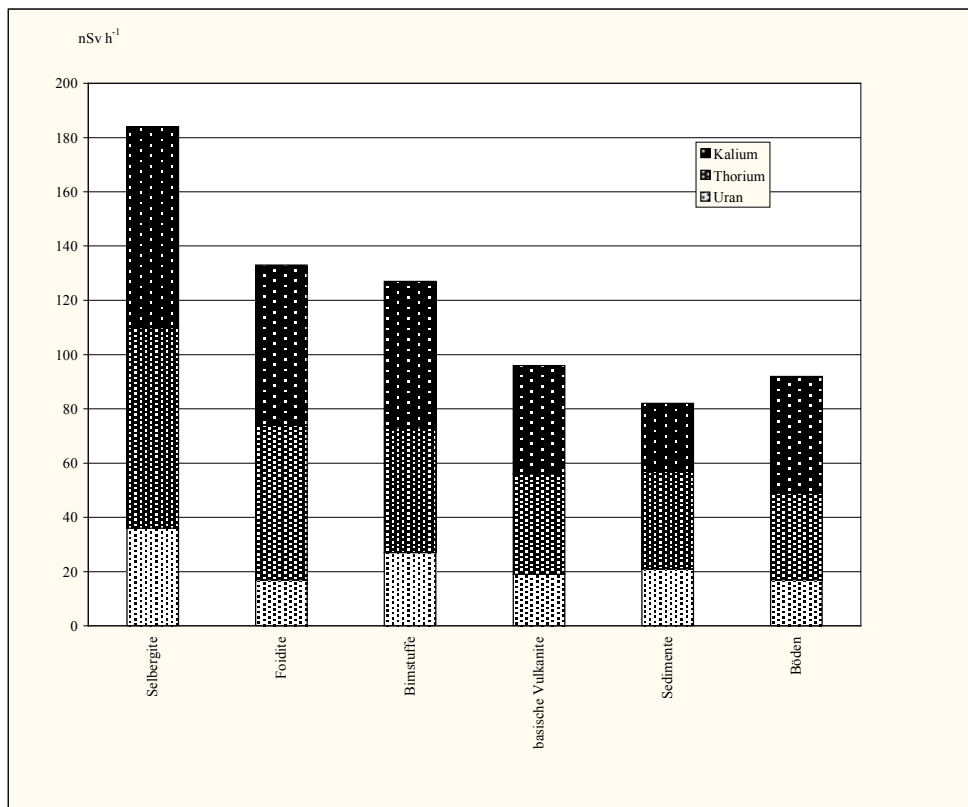


Abbildung 7: Berechnete Dosisleistungen in 1 m über dem Erdboden für das Neuwieder Becken, untergliedert nach verschiedenen Gesteinsarten (Median-Werte).

Das Gebiet des *Westerwald-Taunus* umfaßt zwei unterschiedliche geologische Baueinheiten - das paläozoische Rheinische Schiefergebirge und die meso- und känozoische Hessische Senke. Die Sedimente des Rheinischen Schiefergebirges setzen sich hier vorwiegend aus devonischen marinen Tonschiefern und Sandsteinen zusammen, untergeordnet treten Carbonate des Devon und Unterkarbon auf. Im Lahn-Dill-Gebiet schalten sich basische Vulkanite (Diabase und Diabastuffe) sowie saure Keratophyre ein. Unter dem tropischen Klima des Tertiär verwitterten die Gesteine tiefgründig und bildeten als Umlagerungsprodukte die Tonvorkommen des Westerwaldes. Im Tertiär drangen basische Vulkanite auf und ergossen sich über weite Flächen des Westerwaldes und der Hessischen Senke. Mit dem Vogelsberg entstand der größte Schildvulkan Mitteleuropas. Im Altquartär setzten Hebung und Reliefbildung ein, in der letzten Eiszeit wurden große Areale von äolisch abgelagertem Löß bedeckt.

Die berechneten Dosisleistungen schwanken zwischen 2 und 230 nSv h<sup>-1</sup>, bei einem Median von 57 nSv h<sup>-1</sup>. Die Gesteine des Westerwaldes zeichnen sich durch eine vergleichsweise hohe Dosisleistung von ca. 80 nSv h<sup>-1</sup> aus (Böden 120 nSv h<sup>-1</sup>), die Gesteine des Vogelsberges weisen wesentlich niedrigere Werte von ca. 50 nSv h<sup>-1</sup> (Böden: 75 nSv h<sup>-1</sup>) auf (Abb. 8). Die niedrigsten Werte finden sich bei den Gesteinen im Lahn-Dill-Gebiet mit 40 nSv h<sup>-1</sup> (Böden: 50 nSv h<sup>-1</sup>). Bei den tertiären Vulkaniten und ihren Böden am Vogelsberg und im Westerwald dominiert die spezifische Dosisleistung des Thorium vor Kalium und Uran, bei den Diabasen im Lahn-Dill-Gebiet halten sich Thorium und Kalium die Waage. Vergleicht man die Anteile der einzelnen Radionuklide an der Gesamtdosis, so ist generell eine geringfügige Zunahme der Uran- und Thorium-Anteile vom Gestein zum Boden festzustellen, weniger ausgeprägt gilt dies auch für Kalium.

Die ältesten Schichten im *Sauerland*, dunkle Ton- und Siltsteine, stammen aus dem Ordovizium. Im Unter- und Mitteldevon wurden rote Tonschiefer und Siltsteine abgelagert; in dieser Zeit setzt ein sporadisch auftretender saurer, submariner Vulkanismus ein, der im nördlichen Rothaargebirge über 100 m mächtige Keratophyr-Decken hinterläßt. Im Mitteldevon entstehen lokal ausgedehnte und mächtige Carbonate aus Riffen und Riffschutt, gleichzeitig schalten sich basische submarine Lavaergüsse und ihre vulkanischen Lockerprodukte ein. Im Oberdevon treten z.T. carbonatische Feinklastika sowie Sandsteine mit einer Gesamtmächtigkeit von 300 bis 400 Metern auf. Die weitere Schichtfolge bis in die Kreide ist geprägt durch den Wechsel von Carbonaten und Sandsteinen in einer teils tonig-kalkigen, teils sandigen Ausbildung.

Die berechneten Dosisleistungen schwanken zwischen 2 und 410 nSv h<sup>-1</sup>, bei einem Median von 67 nSv h<sup>-1</sup>. Die Meßwerte ergeben eine bimodale Verteilung, die beiden Modi bei 10 und 90 nSv h<sup>-1</sup> werden durch die starken petrographischen Unterschiede der Proben und einen hohen Anteil an Carbonaten mit niedrigen Werten hervorgerufen. Hohe Werte bis 115 nSv h<sup>-1</sup> treten über den sauren Vulkaniten im nördlichen Rothaargebirge (mitteldevonische Keratophyre) sowie über Tonsteinen mit hohen Thorium- und Uran-Gehalten auf (Abb. 9). Über Carbonaten sowie basischen Vulkaniten sind die niedrigsten Dosisleistungen festzustellen. Die Böden vereinheitlichen die lithologischen Unterschiede und lassen eine Tendenz zur Thorium-Anreicherung erkennen.

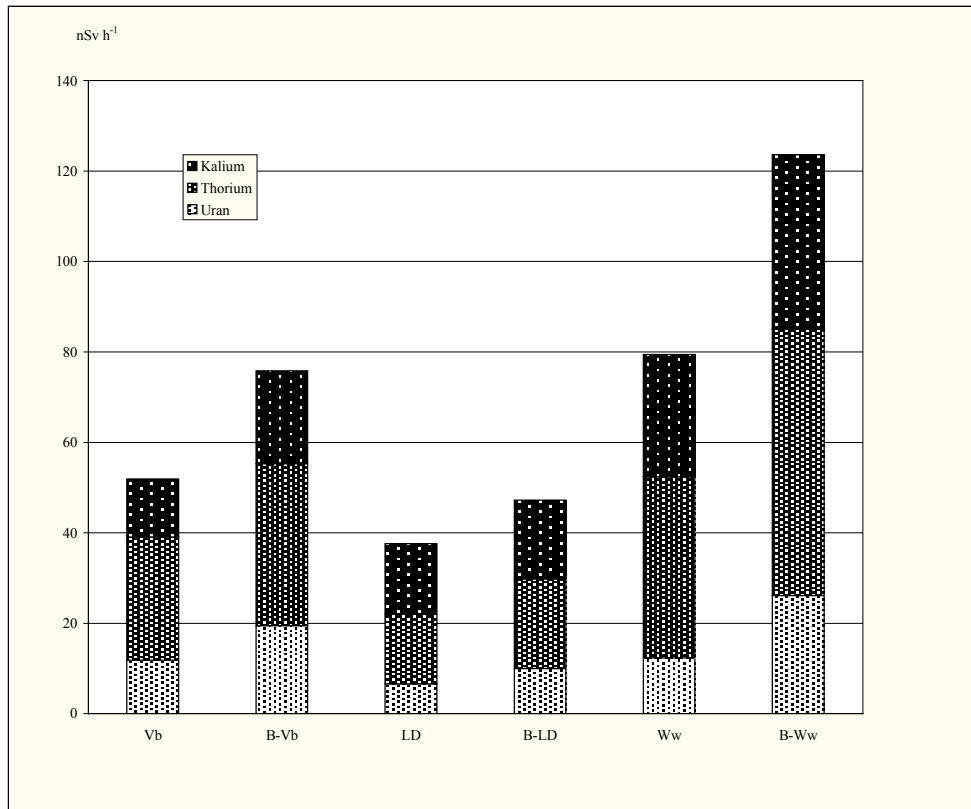


Abbildung 8: Berechnete Dosisleistungen in 1 m über dem Erdboden für den Westerwald und Vogelsberg (Median-Werte): Vb: Basalte des Vogelsberges. B-Vb: Böden des Vogelsberges. LD: Gesteine des Lahn-Dill-Gebietes. B-LD: Böden des Lahn-Dill-Gebietes. Ww: Gesteine des Westerwaldes; B-Ww: Böden des Westerwaldes.

Das *Ostbayerische Grundgebirge* bildet den Südwestrand der Böhmisches Masse, einer großflächigen mitteleuropäischen Grundgebirgsauftragung mit sehr alten Gesteinen. Die hier zutage tretenden Gesteinsabfolgen sind durch mehrfache Gebirgsbildungen überprägt. Die Ausgangsgesteine dieser metamorphen Serien bilden präkambrische und altpaläozoische Sedimente und Magmatite, die im jüngeren Paläozoikum durch Regionalmetamorphose mit Versenkung in Tiefen von mehreren Kilometern bei Temperaturen bis 600 °C und Drücken bis 8 kbar zu Phylliten, Glimmerschiefern, Quarziten und Gneisen umgewandelt worden sind. Während der variszischen Orogenese drangen granitische und dioritische Schmelzen auf, die den metamorphen Faltenbau in Form von Stöcken, gangförmigen, plattigen Körpern oder komplex zusammengesetzten Granitmassiven durchsetzen. An den flachen Hängen des ostbayerischen Mittelgebirges überlagern an vielen Stellen in der letzten Eiszeit gebildete Solifluktuionsdecken das anstehende Festgestein. Eine Beeinflussung durch äolisch verfrachteten Löß ist ebenfalls in vielen Böden zu erkennen.

Die berechneten Dosisleistungen im ostbayerischen Gebiet schwanken zwischen 4 und 500 nSv h<sup>-1</sup>, der Median von 110 nSv h<sup>-1</sup> liegt deutlich über den Werten der anderen hier betrachteten Gebiete. Die Dosisleistungen der Metamorphite und Sedimente des Vorlandes liegen unter 100 nSv h<sup>-1</sup>, die der Magmatite im Durchschnitt bei knapp 200 nSv h<sup>-1</sup> (Abb. 10). Die Magmatite zeigen vor allem für Thorium und Uran eine große Spannweite; auffällig sind die hohe Thorium-Dosisleistung des Neunburger Granites von ca. 200 nSv h<sup>-1</sup> und die erhöhten Uran-Dosisleistungen der Granite des



Fichtelgebirges und der nördlichen Oberpfalz von ca. 90 nSv h<sup>-1</sup> (Abb. 6). Bei den Böden zeigt sich keine Zunahme der Dosisleistungen gegenüber den entsprechenden Gesteinen (Abb. 10).

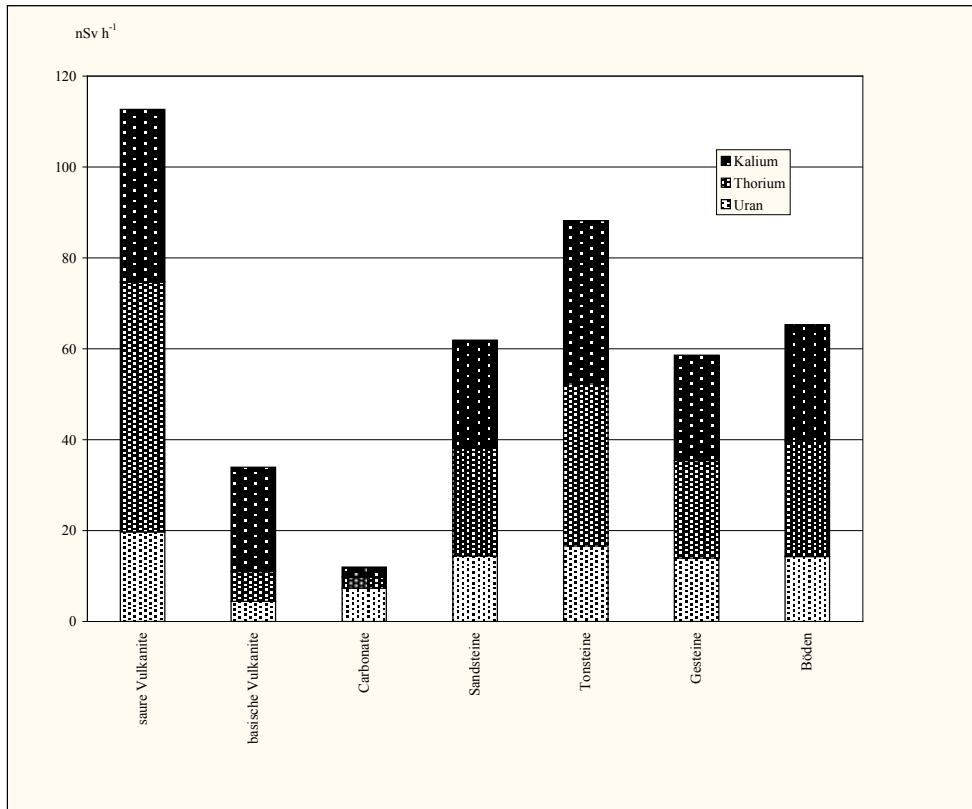


Abbildung 9: Berechnete Dosisleistungen in 1 m über dem Erdboden für das Sauerland (Median-Werte).

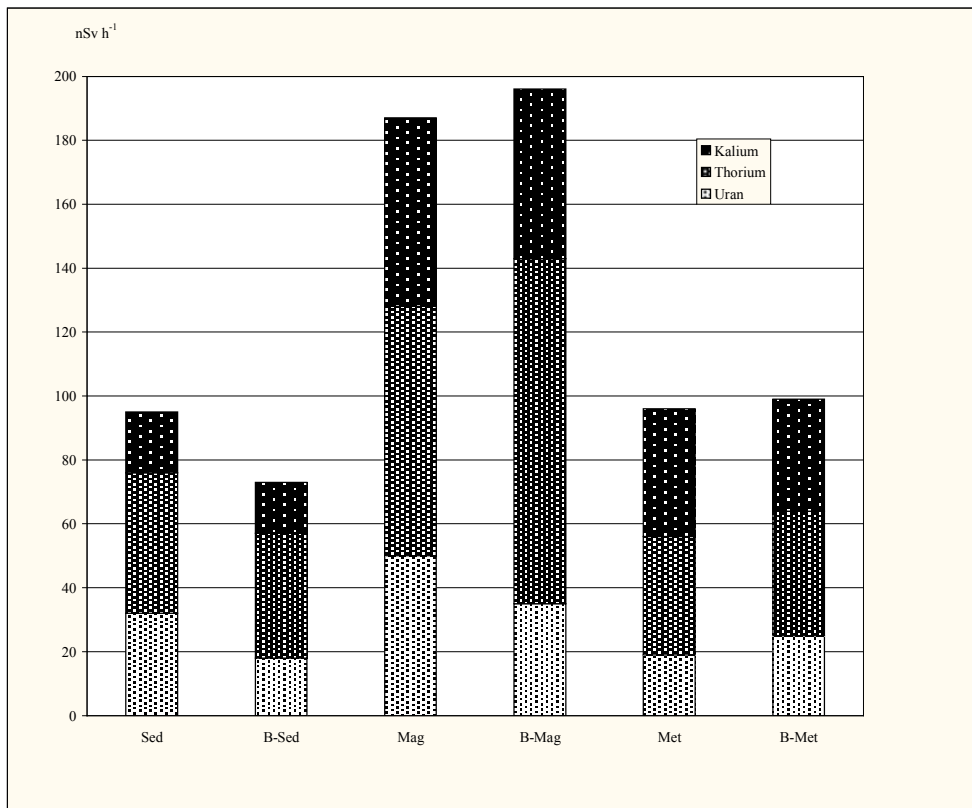


Abbildung 10: Berechnete Dosisleistungen in 1 m über dem Erdboden für Ostbayern (Median-Werte). Sed: Sedimente. B-Sed: Böden über Sedimenten. Mag: Magmatite. B-Mag: Böden über Magmatiten. Met: Metamorphite. B-Met: Böden über Metamorphiten.

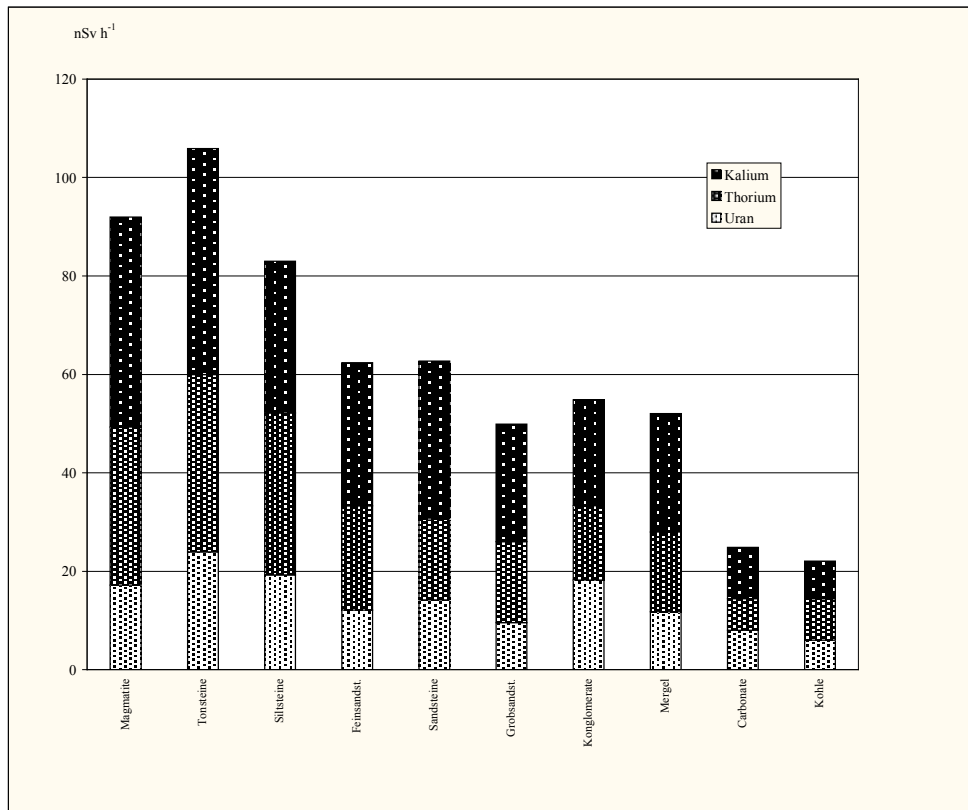


Abbildung 11: Berechnete Dosisleistungen in 1 m über dem Erdboden für das Saarland, untergliedert nach Gesteinsarten (Median-Werte).

Aus dem *Saarland* wurden 256 Festgesteinsproben der verschiedenen stratigraphischen Einheiten untersucht sowie an 123 Standorten die Radionuklidgehalte der Böden ermittelt. Die detaillierte Untersuchung dieses Raumes ist aus geologischer Sicht wegen der großen Vielzahl sedimentärer und magmatischer Gesteine besonders interessant. Der saarländische Anteil am Rheinischen Schiefergebirge beschränkt sich auf einen schmalen Streifen am südwestlichen Rand des Hunsrücks, der sich aus gefalteten und geschieferten, graubunten Tonschiefern und hellen Quarziten des tiefsten Unterdevon zusammensetzt. Die flachwelligen Kuppen des südöstlich anschließenden Saar-Nahe-Berglandes bauen sich aus Gesteinsserien des Karbon und Perm auf. Hier nahm im jüngeren Paläozoikum eine ausgedehnte Beckenstruktur den Abtragungsschutt der umliegenden Hochgebiete des variszischen Gebirges bis zu einer Mächtigkeit von etwa 8 500 m auf. Die zyklisch aus konglomeratführenden Arkose-Sandsteinen, Silt- und Tonsteinen sowie Kohlelagen zusammengesetzten Sedimentfolgen des Oberkarbon enthalten etwa 90 bauwürdige Steinkohleflöze. Im Unterrotliegend nahm die Absenkungsrate des Beckens zu, und es kam zu weitflächigen Überflutungen mit erhöhtem Absatz grobkörniger Sedimente. Fluviale und deltaische Sandsteine wechsellagern mit feinkörnigen, lakustrinen, teilweise carbonathaltigen, grauroten Silt- und Tonsteinfolgen. An der Wende Unter-/Oberrotliegend wurden mächtige Lavadecken basaltischer bis andesitischer Zusammensetzung und rhyolithische Tuffe gefördert, die sich mit konglomeratischen Rotsedimenten verzahnen. Tektonische Bewegungen, verbunden mit dem Aufdringen subvulkanischer

Schmelzmassen in Form von Staukuppen und Gängen, engten in zunehmendem Maße das Becken im Oberrotliegend ein. Die Auffaltung des NE-SW-streichenden Saarbrücker Hauptsattels teilt den

Beckenbereich in zwei Synklinorien: die Prims-Mulde am Hunsrückrand im Norden und die unter mesozoischen Schichten verdeckte Saargemünd-Zweibrücker Mulde im Süden. Parallel zum Schichtstreichen verlaufende sowie querschlägig und diagonal dazu angeordnete, NW-SE- und N-S-streichende Störungen, die meist auch in das überlagernde Deckgebirge hineinreichen, zerlegen den gefalteten Schichtstapel in ein Schollenmosaik. Im Warndt westlich der Saar und im Bliesgau im Süden werden die permo-karbonen Gesteine von mesozoischen Gesteinen des Lothringer Schichtstufenlandes überlagert. Die flachlagernde und bis zu 700 m mächtige Abfolge sandiger, kalkig-dolomitischer und mergeliger Gesteinsserien des Buntsandstein und Muschelkalk bildet hier charakteristische morphologische Schichtstufen. In weiten Teilen des Landes überlagern quartäre Deckschichten den Untergrund. Besonders im Süden und Südwesten existieren ausgedehnte Lößflächen. Die karbonischen Gesteine werden von sogenannten Kohlelehmen, Verwitterungsbildungen der Tonsteine, überdeckt. Hier sowie über den Sedimenten des Unterrotliegend haben sich vorwiegend staunasse Böden ausgebildet. Im nördlichen Teil des Saarlandes überwiegen Bodenbildungen mit pleistozänen Fließerden.

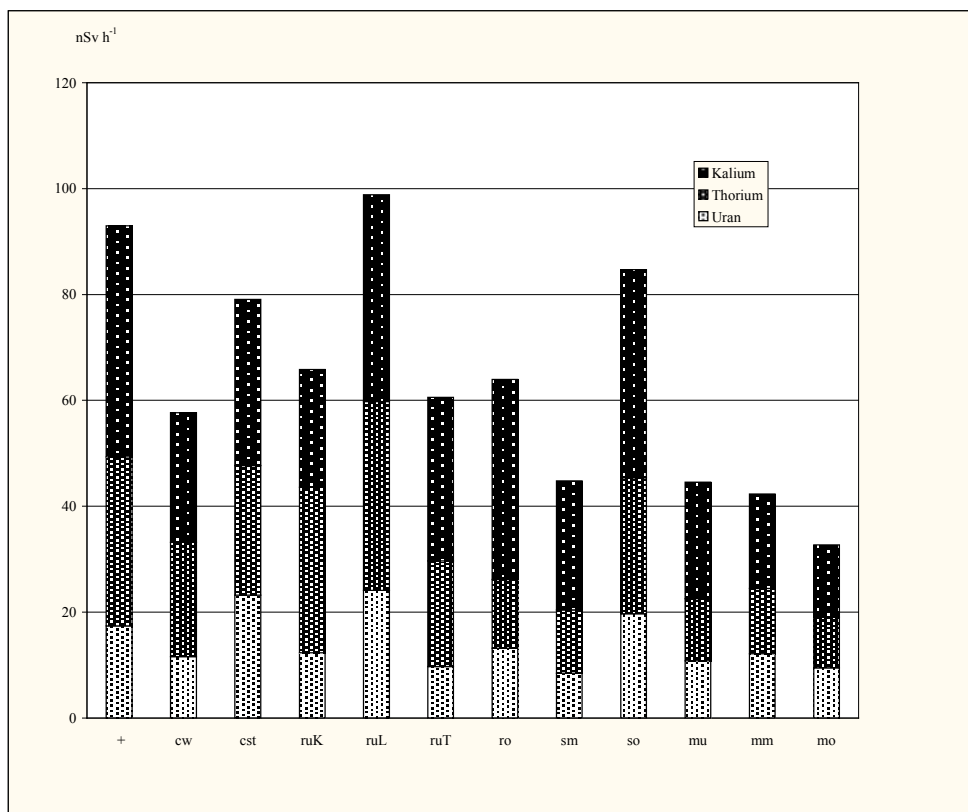


Abbildung 12: Berechnete Dosisleistungen für Gesteine in 1 m über dem Erdboden für das Saarland (Median-Werte). +: Magmatite. cw: Westfal. cst: Stefan. ruK: Kuseler Schichten. ruL: Lebacher Schichten. ruT: Tholeyer Schichten. ro: Oberrotliegend. sm: Mittlerer Buntsandstein. so: Oberer Buntsandstein. mu: Unterer Muschelkalk. mm: Mittlerer Muschelkalk. mo: Oberer Muschelkalk.

Die unterschiedlichen Bildungsbedingungen der Gesteine bilden sich im geochemischen Stoffbestand ab (Abb. 11 und 12). Kalium ist stark in den Magmatiten (intermediäre Vulkanite, Rhyolithe) vertreten und wird in erster Linie durch den Feldspatgehalt gesteuert. Daher zeigen die Rhyolithe eine anteilige  $^{40}\text{K}$ -Dosisleistung von durchschnittlich  $40 \text{ nSv h}^{-1}$  und damit im Vergleich der Gesteinsarten einen sehr hohen Wert. In den konglomeratischen Schichtgliedern des Rotliegend und in den sandigen Sedimenten des Oberen Buntsandstein ist ebenfalls detritischer Kalifeldspat der Hauptträger des Kalium. Bei den übrigen Sedimentgesteinen ist die  $^{40}\text{K}$ -Dosisleistung dem Tonmineralgehalt direkt proportional. Vor allem die tonigen Sedimente der Lebacher Schichten weisen hohe Kalium-Dosiswerte auf. Dies spiegelt sich auch bei der Betrachtung der Korngrößenzusammensetzung wider: die feinkörnigen Tonsteine mit hohem Tonmineralgehalt heben sich deutlich von den Silt- und Sandsteinen mit höheren Quarz-Gehalten ab. Carbonate und Kohlegesteine weisen aufgrund ihrer chemischen Zusammensetzung niedrige Kalium-Gehalte und somit auch niedrige  $^{40}\text{K}$ -Dosisleistungen auf ( $< 20 \text{ nSv h}^{-1}$ ).

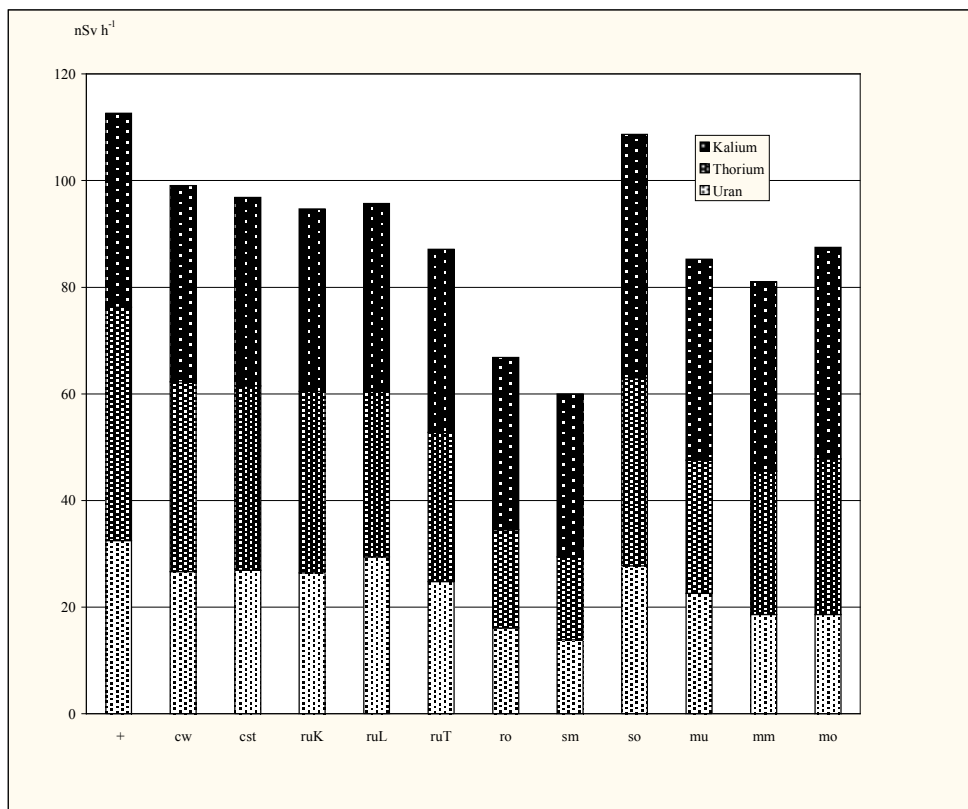


Abbildung 13: Berechnete Dosisleistungen für Böden in 1 m über dem Erdboden für das Saarland. Daten untergliedert nach Ausgangsgesteinen. Abkürzungen vgl. Abb. 12.

Die berechneten Dosisleistungen der  $^{232}\text{Th}$ -Reihe erreichen Beträge bis  $70 \text{ nSv h}^{-1}$ , die sich in den Sedimenten einiger weniger stratigraphischer Einheiten konzentrieren: in den „Violetten Zonen“ (Dezimeter-mächtige Lagen des Oberen Buntsandstein) sowie in Silt- und Sandsteinen der Lebacher und Kuseler Schichten des Unterrotliegend. Mittlere Dosisleistungen um  $30 \text{ nSv h}^{-1}$  finden sich bei den Magmatiten und den Ton- sowie einigen Siltsteinen aus dem Rotliegend. Niedrige Dosisleistungen sind bei der überwiegenden Zahl der Sedimente anzutreffen, auch hier besonders bei

den Carbonaten und Kohlegesteinen. Der Dosisleistungsanteil der  $^{238}\text{U}$ -Reihe liegt bei den untersuchten Gesteinen des Saarlandes stets unter  $25 \text{ nSv h}^{-1}$ ; Carbonate, Mergel, Sandsteine und Kohlegesteine zeigen noch geringere Werte. Nur einzelne urananomale Gesteine erreichen über  $100 \text{ nSv h}^{-1}$ : der Nohfeldener Rhyolith bei Ellweiler, einige kohleführende Horizonte der Dilsburger Schichten des Unterkarbon, ferner Silt- und Sandsteinhorizonte des Oberen Buntsandstein, der Lebacher Schichten und ein Konglomerat an der Basis des Mittleren Buntsandstein bei Körprich. Die Dosisleistungswerte über den Böden weichen von diesem Bild deutlich ab (Abb. 13). Die Schwankungsbreite ist hier geringer als über den unterlagernden Ausgangsgesteinen. In den überwiegend tonigen und lehmigen Verwitterungsbildungen sind über fast allen stratigraphischen Einheiten Uran, Thorium und Kalium - wenn auch in unterschiedlichem Maße - gegenüber dem Gestein angereichert, was sich in erhöhten Dosisleistungswerten widerspiegelt.

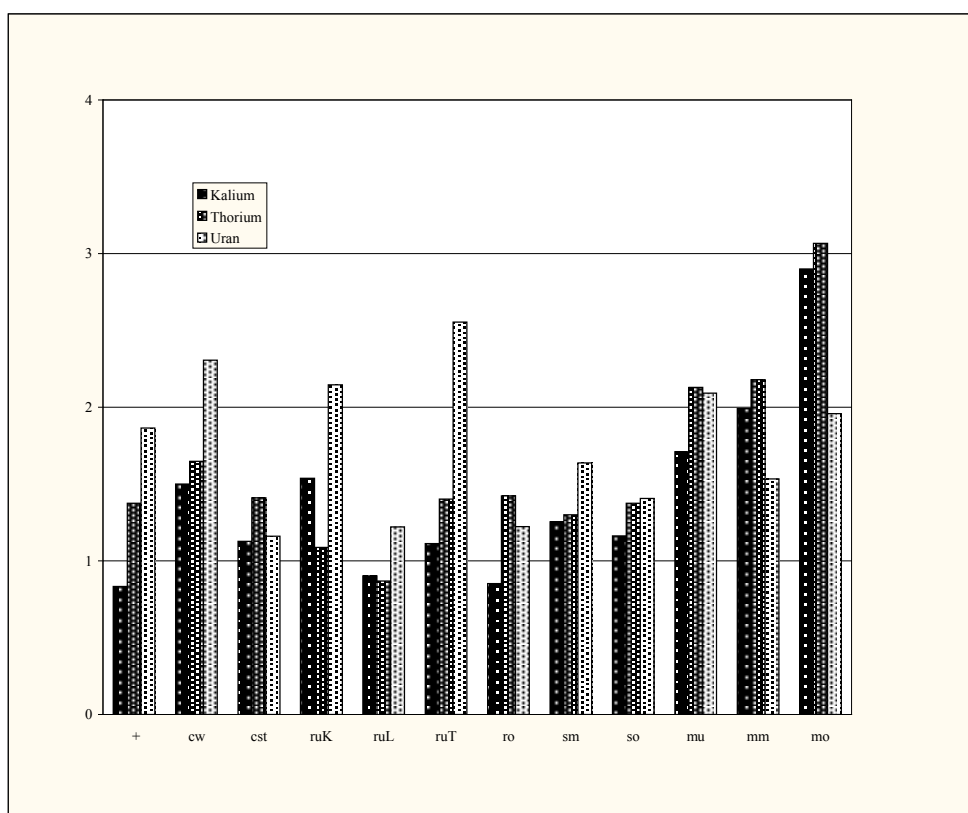


Abbildung 14: Anreicherungs-faktoren der Isotope  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  für Böden aus dem Saarland. Daten untergliedert nach Ausgangsgesteinen. Abkürzungen vgl. Abb. 12.

In bezug auf den Anreicherungs-faktor Boden/Gestein sind mit Ausnahme des Muschelkalk für Kalium relativ geringe Veränderungen (Faktor 0,9 bis 1,4) festzustellen (Abb. 14). Die Arkose-Sandsteine des Oberrotliegend, die Tonsteine der Lebacher Schichten sowie die feldspatreichen Magmatite lassen sogar eine verwitterungsbedingte Mobilisierung und Abreicherung erkennen. Uran zeigt die größten relativen Änderungen während der Bodenbildung (Faktor 1,1 bis 2,5). Höhere Uran-Gehalte in Böden des Westfal, der Kuseler und der Tholeyer Schichten korrespondieren mit der Ausbildung toniger und siltiger Verwitterungslehme. In den Böden über den primär radionuklidarmen Carbonaten findet eine beachtliche Anreicherung aller drei betrachteten Radionuklide statt. Eine Carbonat-Lösung während

der Verwitterung erfolgt durch die im natürlichen Wasserkreislauf enthaltenen Säuren ( $\text{HCO}_3^-$ ) sowie die anthropogen bedingten Emissionen von Säurebildnern ( $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$ ). In den Verwitterungshorizonten der Böden reichern sich daher die resistenten und neugebildeten Silikate an, die gleichzeitig die Träger der radioaktiven Elemente sind. Derartige Erhöhungen der Elementkonzentrationen sind bis zum Faktor 6 bekannt [59].

In Abbildung 15 sind die berechneten Ortsdosisleistungen über den Böden der wichtigsten lithologischen Einheiten des Saarlandes in ihrer räumlichen Verteilung dargestellt. Die Homogenisierung des Radionuklidinventars durch die Bodenbildung hat relativ einheitliche Median-Werte zwischen ca. 80 und 100  $\text{nSv h}^{-1}$  zur Folge; dabei pausen sich die primär höheren Radionuklidgehalte der Magmatite sowie der Sandsteine des Oberen Buntsandstein auch in den überlagernden Böden durch. Die große Schwankungsbreite der Ortsdosisleistung beim Buntsandstein spiegelt deutlich deren Abhängigkeit von den radiochemischen Eigenschaften des Ausgangsgesteines wider.

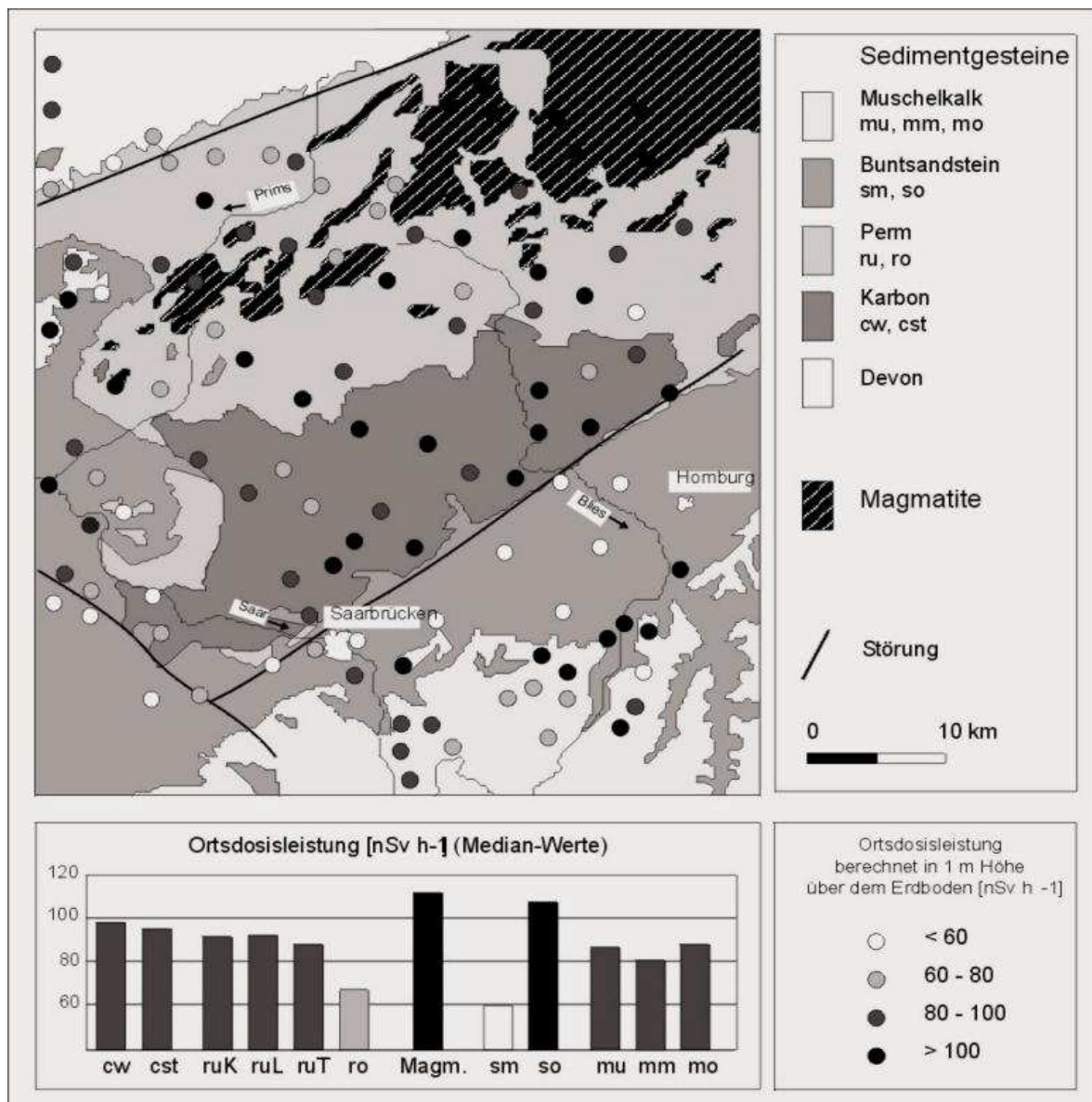


Abbildung 15: Geologische Karte des Saarlandes mit der Ortsdosisleistung der Böden, berechnet aus  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  (Median-Werte). Daten untergliedert nach Ausgangsgesteinen. Abkürzungen vgl. Abb. 12.

## Literatur

- [1] Deutsche Industrie Norm (1985): Begriffe und Benennungen in der radiologischen Technik - Dosisgrößen und Doseinheit.- DIN 6814, Teil 3, 12 S.
- [2] ICRP (International Commission on Radiological Protection) (1991): 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection.- ICRP Publ. 60, Annals of the ICRP, 21.
- [3] Beck, H.L.; DeCampo, J.; Gogolak, C. (1972): In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry.- U.S. Atomic Energy Commission, Health and Safety Laboratory, HASL-258, 75 S.
- [4] Beck, H.L.; de Planque, G. (1968): The radiation field in air due to distributed gamma-ray sources in the ground.- U.S. Atomic Energy Commission, Health and Safety Laboratory, HASL-195, 53 S.
- [5] Beck, H.L. (1982): The physics of environmental gamma radiation fields.- in: Adams, J.A.S.; Lowder, W.M.; Gesell, T.F. (Hrsg.): The natural radiation environment II.- 101-133, Nat. Techn. Inform. Service, U.S. Dept. of Commerce Rep. CONF-720805
- [6] Dimitrijevic, C. (1972): Praktische Berechnung der Abschirmung von radioaktiver und Röntgen-Strahlung.- 145 S.
- [7] Grasty, R.L.; Carson, J.M.; Charbonneau B.W.; Holman, P.B. (1984): Natural background radiation in Canada.- Geol. Surv. Canada, Bull. 360, 39 S.
- [8] Saito, K. (1991): External doses due to terrestrial gamma rays on the snow cover.- Radiat. Prot. Dosim., 35, 31-39
- [9] UNSCEAR (1988): Sources, effects and risks of ionizing radiation. - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report to the General Assembly, with annexes, 134 S.
- [10] UNSCEAR (1993): Sources, effects and risks of ionizing radiation.- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report to the General Assembly, with annexes, 549 S.
- [11] Myrik, T.E.; Berven, B.A.; Haywood, F.F. (1983): Determination of concentrations of selected radionuclides in surface soil in the U.S.- Health Phys., 45, 631-642
- [12] Bundesminister für Umweltschutz, Naturschutz und Reaktorsicherheit (1986): Umweltpolitik - Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung. Jahresbericht 1986.- Ber. BMU, 612 S.
- [13] Bundesminister für Umweltschutz, Naturschutz und Reaktorsicherheit (1991): Umweltpolitik - Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung. Jahresbericht 1991.- Ber. BMU, 276 S.
- [14] Green, B.M.R.; Hughes, J.S.; Lomas, P.R. (Hrsg.) (1992): Radiation Atlas - Natural Sources of ionising radiation in Europe.- 34 S.
- [15] Wedepohl, K.H. (Hrsg.) (1978): Handbook of Geochemistry. II/2: Elements Si (14) to V (23); II/5: Elements La (57) to U (92).-
- [16] Hurley, P.M.; Fairbairn, H.W. (1957): Abundance and distribution of uranium and thorium in zircon, shene, apatite, epidote, and monazite in granitic rocks.- Trans. Am. Geophys. Union, 38, 939-945
- [17] Tilton, G.R.; Nicolaysen, L.O. (1957): The use of monazites for age determination.- Geochim. Cosmochim. Acta, 11, 28-36
- [18] Nagra (Hrsg.) (1993): Pocos de caldas. Die Natur experimentiert mit.- Nagra informiert, 1/93, 53 S.

- [19] Schorscher, H.D.; Shea, M.E. (1991): The regional geology, mineralogy and geochemistry of the Pocos de Caldas alkaline complex, Minas Gerais, Brazil.- *Nagra Techn. Ber.*, NTB 90-19, 456 S.
- [20] Schmidt, H.; Reichard, C. (1993): Ergebnisse zum WISMUT-Umweltkataster im Uranerzbergbaugebiet von Ronneburg.- in: *Die Altlasten des Uranbergbaus und der Uranerzaufbereitung.- Veröffentlichungen Museum für Naturkunde der Stadt Gera, Naturwiss. Reihe*, 20, 7-40
- [21] Fiedler, H.J.; Rösler, H.J. (1988): *Spurenelemente in der Umwelt.-* 278 S.
- [22] Pohl, W. (1992): *Petraschek's Lagerstättenlehre.-* 503 S.
- [23] Dybek, J. (1962): *Zur Geochemie und Lagerstättenkunde des Urans.-* 155 S.
- [24] Wurster, P.; Siehl, A. (1992): *Der geologische Einfluß des Untergrundes auf die natürliche Strahlenexposition in der Bundesrepublik Deutschland.- Schriftenreihe Reaktorsicherheit und Strahlenschutz, BMU-1992-328*, 88 S.
- [25] Klement, A.W. (1982): *CRC Handbook of environmental radiation.-* 475 S.
- [26] Ivanovitch, M.; Harmon, R.S. (Hrsg.) (1982): *Uranium series disequilibrium - Applications to environmental problems.-* 571 S.
- [27] Durrance, E.M. (1986): *Radioactivity in geology - Principles and applications.-* 441 S.
- [28] Scheffer, F.; Schachtschabel, P. (1989): *Lehrbuch der Bodenkunde.-* 491 S.
- [29] Wiegand, J. (1993): *Geochemische und radiometrische Untersuchungen an den Graniten des Neunburg-Thansteiner Massivs (Oberpfalz).- Bonner Geowiss. Schriften*, 10, 117 S.
- [30] Pliler, R.; Adams, J.A.S. (1962): *The distribution of thorium and uranium in a Pennsylvanian weathering profile.- Geochim. Cosmochim. Acta*, 26, 1137-1146
- [31] Langmuir, D.; Herman, J.S. (1980): *The mobility of thorium in natural waters at low temperatures.- Geochim. Cosmochim. Acta*, 44, 11, 1753-1766
- [32] Hussain, N.; Krishnaswami, S. (1980): *U-238 series radioactive disequilibrium in groundwaters: implications to the origin of U-234 excess and fate of reactive pollutants.- Geochem. Cosmochim. Acta*, 44, 9, 1287-1291
- [33] Greeman, D.J.; Rose, A.W.; Jester, W.A. (1990): *Form and behavior of radium, uranium, and thorium in central Pennsylvania soils derived from dolomite.- Geophys. Res. Lett.*, 17, 6, 833-836
- [34] Rosholt, J.N. (1959): *Natural radioactive disequilibrium of uranium series.- U.S. Geol. Surv. Bull.*, 1084-A, 30 S.
- [35] Hansen, R.O.; Stout, P.R. (1968): *Isotopic distributions of uranium and thorium in soils.- Soil Sci.*, 105, 1, 44-50
- [36] Hansen, R.O.; Huntingdon, G.O. (1969): *Thorium movements in morainal soils of the High Sierra, California.- Soil Sci.*, 108, 4, 257-265
- [37] Roth, S. (1996): *Geochemische Untersuchungen zur Mobilität natürlicher Radionuklide in drei Verwitterungsprofilen.- unveröffentl. Diplomarbeit, Univ. Bonn*
- [38] Greeman, D. J. (1992): *The geochemistry of uranium, thorium, and radium in soils of the eastern United States.- Ph.D. Thesis, Penn. State Univ.*, 231 S.
- [39] Naudet, R. (1991): *Oklo: des réacteurs nucléaires fossiles.-* 685 S.
- [40] Everhardt, D.L. (1956): *Uranium bearing vein deposits in the US.- U.S. Geol. Surv. Pap.*, 300, 97-103
- [41] Lange, G.; Mühlstedt, P.; Freyhoff, G.; Schröder, B. (1991): *Der Uranerzbergbau in Thüringen und Sachsen - ein geologisch-bergmännischer Überblick.- Erzmetall*, 44, 3, 162-171



- [42] Langmuir, D. (1978): Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits.- *Geochim. Cosmochim. Acta*, 42, 6, 547-569
- [43] Boyle, R.W. (1982): Geochemical prospecting for thorium and uranium deposits.- *Developments in economic geology*, 16, 498 S.
- [44] Klingel, R.; Klinger, C.; Thein, J. (1995): Zur Mobilität von Uran und Radium.- in: Merkel, B.; Hurst, S.; Löhnert, E.P.; Struckmeier, W. (Hrsg.): *Uranium-mining and hydrogeology*.- *GeoCongress* 1, 315-324
- [45] Rolffs, M. (1994): Geochemische und radiometrische Untersuchungen an einem Bodenprofil auf Granit bei Lengfeld (südliche Oberpfalz).- unveröffentl. Diplomarbeit, Univ. Bonn, 88 S.
- [46] Langmuir, D.; Riese, A.C. (1985): The thermodynamic properties of radium.- *Geochim. Cosmochim. Acta*, 49, 1593-1601
- [47] Weigel, F. (1977): Radium.- *Gmelins Handbuch der anorgan. Chemie*, 31, 2, 436 S.
- [48] Reichel, A. (1995): Modellierung der Komplexbildung und der Sorption von Radium.- unveröffentl. Diplomarbeit, Techn. Univ. Berlin, 72 S.
- [49] Killeen, P.G.; Carmichael, C.M. (1976): Determination of radioactive disequilibrium in uranium ores by alpha-spectrometry.- *Geol. Surv. Can.*, Paper 75-38, 1-17
- [50] Ostrihansky, L. (1976): Radioactive disequilibrium investigations, Elliot Lake area, Ontario.- *Geol. Surv. Canada*, Paper 75-38, 19-48
- [51] Levinson, A.A.; Coetzee, G.L. (1978): Implications of disequilibrium in exploration for uranium ores in the surficial environment using radiometric techniques - A review.- *Minerals Sci. Engng.*, 10, 1, 19-27
- [52] Culbert, R.R.; Leighton, D.G. (1981): Low energy gamma spectrometry in the geochemical exploration for uranium.- *J. Geochem. Explor.*, 14, 49-68
- [53] Osmond, J.K.; Cowart, J.B.; Ivanovich, M. (1983): Uranium isotopic disequilibrium in ground water as an indicator of anomalies.- *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 34, 1, 283-308
- [54] Borsdorf, K.H.; Malinowski, D.; Naumann, M. (1995): Radiologische Belastung von Böden in Sachsen.- *Z. angew. Geol.*, 41, 111-117
- [55] Hannemann, M.; Kopp, D. (1995): Ableitung der terrestrischen Gamma-Dosisleistung im nordostdeutschen Tiefland aus Messungen, Bodenkarten und geologischen Zusammenhängen.- *Brandenburgische Geowiss. Beitr.*, 1/95, 130-131
- [56] Bundesminister des Innern (1978): Die Strahlenexposition von außen in der Bundesrepublik Deutschland durch natürliche radioaktive Stoffe im Freien und in Wohnungen unter Berücksichtigung des Einflusses von Baustoffen.- *Ber. BMI*, 40 S.
- [57] Kammerer, L.; Peter, J.; Burkhardt, J.; Trugenberger-Schnabel, A.; Bergler, I. (1995) *Umweltradioaktivität in der Bundesrepublik Deutschland 1992 und 1993 - Daten und Bewertung*.- *BfS-Schr-14/95*, 64 S.
- [58] Street, M.; Baales, M.; Weninger, B. (1994): Absolute Chronologie des späten Paläolithikums und Frühmesolithikums im nördlichen Rheinland.- *Archäologisches Korrespondenzblatt*, 24, 1-28
- [59] Greeman, D.J.; Rose, A.W. (1990): Form and behaviour of radium, uranium and thorium in central Pennsylvanian soils derived from dolomite.- *Geophys. Res. Lett.*, 17, 833-836