TECHNISCHE UNIVERSITÄT BERGAKADEMIE FREIBERG

Von der Fakultät für Geowissenschaften, Geotechnik und
Bergbau der Technischen Universität Bergakademie Freiberg
genehmigte

DISSERTATION

Radium- und Radon-Isotopen-Untersuchungen als Hilfsmittel für die Aquiferdiagnose unter besonderer Berücksichtigung der geochemischen und hydrochemischen Verhältnisse im Grundwasserleiter

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium /Doktor der Naturwissenschaften/
Dr. rer. nat.

vorgelegt von

Diplom-Geologin Stephanie Hurst
geb. am 20.03.1960 in Rammersweier

Gutachter:
1. Prof. Dr. Broder Merkel, TU Bergakademie Freiberg, Institut für Hydrogeologie
2. Prof. em. Dr. Gert Bernhard, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

Tag der Verleihung: 12.12.2014

INHALT

LISTE DES ABKÜRZUNGEN 12
LISTE DER TABELLEN 17
1. EINLEITUNG - BISHERIGE ARBEITEN 23
1.1 ZIELSETZUNG 23
1.2 BISHERIGE ARBEITEN ZU RADIUM UND RADON 25
2. RADIUM UND RADON: GRUNDLAGEN 27
2.1 ENTSTEHUNG UND VORKOMMEN 27
2.1.1 VORKOMMEN IN DER LITHOSPHÄRE 27
2.1.2 VORKOMMEN IN DER HYDROSPHÄRE 29
2.2 PHYSIKALISCHE UND CHEMISCHE EIGENSCHAFTEN 31
2.2.1 RADIOAKTIVITÄT 31
2.2.2 CHEMISCHE UND PHYSIKALISCHE EIGENSCHAFTEN VON RADIUM 32
2.2.3 CHEMISCHE UND PHYSIKALISCHE EIGENSCHAFTEN VON RADON 33
2.3 DAS VERHALTEN VON RADON UND RADIUM IM GRUNDWASSERLEITER 34
2.3.1 DAS VERHALTEN VON RADON 34
2.3.2 GEOCHEMIE UND HYDROCHEMIE DES RADIUMS 35
2.3.3 VERHALTEN VON RADIUM BEI ANWESENHEIT VON KOLLOIDEN UND TONMINERALEN 37
2.3.4 STOFFTRANSPORT UND ADSORPTION 38
2.3.5 DAS VERHALTEN VON RADIUM BEI ANWESENHEIT VON EISEN UND MANGAN 41
2.3.5.1 HYDROLYSE DES EISEN-III 42

2.3.5.2 BILDUNG VON EISENHYDROXIDNIEDERSCHLÄGEN AUF GESTEINSOBERFLÄCHEN UND IHRE ALTERATION 42
2.3.5.3 PARAMETER WELCHE DIE HYDROLYSE, DIE BILDUNG VON NIEDERSCHLÄGEN UND DIE ALTERATION BEEINFLUSSEN ... 43
2.3.5.4 RADIUM-ADSORPTION AN EISEN- UND MANGANHYDROXIDE 45
3. DIE RADIUM-ISOTOPENVERHÄLTNIS-METHODE ALS HILFSMITTEL FÜR DIE AQUIFERDIAGNOSE 47
3.1 GRUNDLAGEN DER HYDRAULIK 47
3.1.1 PERMEABILITÄT (K) 47
3.1.2 WEITERE HYDRAULISCHE PARAMETER 48
3.2 HYDRAULISCHE METHODEN FÜR DIE AQUIFERDIAGNOSE 49
3.2.1 PUMPVERSUCHE 50
3.2.1.1 DATENERHEBUNG 50
3.2.1.2 AUSWERTUNG 50
3.3 VERÄNDERUNG VON RADIUM- UND RADONISOTOPENVERHÄLTNISSEN IM VERLAUF VON PUMPVERSUCHEN ALS INDIKATOREN FÜR FLIEßVERHALTEN UND MISCHUNG VERSCHIEDEN MARKIERTER GRUNDWÄSSER 52
3.3.1 THEORIEN ZU DEN RADIUM-ISOTOPENVERHÄLTNIS-METHODEN 52
3.3.1.1 EINSCHÄTZUNG DER RELATIVEN FLIEßGESCHWINDIGKEIT - FLIEßZEITMODELL - 53
3.3.1.2 EINSCHÄTZUNG DER ZUMISCHUNG EINES FREMDEN SYSTEMS - MISCHMODELLE - 57
3.3.1.3 UNTERSCHEIDUNG VON DOPPELPOROSITÄT, LEAKAGE UND SCHEINBARER DOPPELPOROSITÄT -

DOPPELPOROSITÄTSMODELL -..... 58
3.3.1.4 METHODE ZUM NACHWEIS ANTHROPOGENER RADIONUKLIDE IM GRUNDWASSER - KONTAMINATIONSMODELL - 60
3.3.1.5 ÄNDERUNG DES ^{222}RN/^{226}RA-VERHÄLTNISSES - REDOXMODELL - 60
3.3.1.6 ÄNDERUNG DES ^{222}RN-GEHALTES - DRUCKÄNDERUNGSMODELL -..... 61
4. PROBENAHME, PRÄPARATION UND ANALYSE VON WASSERPROBEN 63
4.1 RADIUM IN GRUNDWASSERPROBEN 63
4.1.1 PROBENAHME..... 63
4.1.2 PRÄPARATION 63
4.1.3 MESSUNG 63
4.2 RADON IN GRUNDWASSERPROBEN 64
4.2.1 PROBENAHME..... 64
4.2.2 PRÄPARATION 64
4.2.3 MESSUNG 64
5. ERGEBNISSE UND DISKUSSION DER RA- UND RN- ISOTOPEN-UNTERSUCHUNGEN UNTER BERÜCKSICHTIGUNG DER GEOLOGIE, DER WASSERCHEMIE UND DER KONVENTIONELLEN ISOTOPENUNTERSUCHUNGEN (^{3}H, ^{2}H, ^{18}O, ^{13}C, ^{14}C)..... 65
5.1. GEOLOGIE DES BEREICHES DER KTB UND DES KTB-UMFELDES..... 65
5.2 AUSWERTUNG DER CHEMISCHEN UND RADIOMETRISCHEN

UNTERSUCHUNGEN VON EINZELPROBEN VON GRUNDWÄSSERN VERSCHIEDENER REGIONEN 67
5.2.1 RELATION ZWISCHEN DEN SPEZIFISCHEN ELEKTRISCHEN LEITFÄHIGKEITEN UND DEN RADIUM-AKTIVITÄTEN 68
5.2.2 RELATION ZWISCHEN DEN CHLORID-GEHALTEN UND DEN RADIUM-AKTIVITÄTEN 71
5.2.3 RELATION ZWISCHEN DEN SULFAT-GEHALTEN UND RADIUM-AKTIVITÄTEN 72
5.2.4 RELATION ZWISCHEN DEN BARIUM- UND STRONTIUM-GEHALTEN SOWIE DEN EISEN- UND MANGAN-GEHALTEN UND DEN RADIUM-AKTIVITÄTEN..... 72
5.2.5 RELATION ZWISCHEN DEN PH-WERTEN UND DEN RADIUM-AKTIVITÄTEN 75
5.2.6 RELATION ZWISCHEN DEN REDOX-POTENTIALEN UND DEN RADIUM-AKTIVITÄTEN..... 78
5.2.7 RADONAKTIVITÄTEN IN RELATION ZU RADIUMAKTIVITÄTEN UND ENTNAHMETIEFEN SOWIE RADIUMAKTIVITÄTEN IN RELATION ZU DEN VERWEILZEITEN DES GRUNDWASSERS, ^{226}RA/^{228}RA-VERHÄLTNISSE..... 78
5.2.8 DISKUSSION EINZELNER UNTERSUCHUNGSGEBIETE..... 84
5.2.8.1 KTB-UMFELD..... 84
5.2.8.2 SÜDSCHWARZWALD - HERKUNFT DES RADIUMS 85
5.2.8.3 MYDLOVARY (ČR) - ANWENDUNG DES KONTAMINATIONSMODELLS 86
5.3 UNTERSUCHUNGEN AN FLUID- UND GESTEINSPROBEN AUS DER KTB-VB UND AN FLUIDPROBEN DER KTB-HB..... 88
5.3.1 PUMPVERSUCH APRIL 1990 AN DER KTB-VB 89

5.3.1.1 RADIUM-AKTIVITÄTEN DER FLUIDPROBEN 90
5.3.2 PUMPVERSUCH AUGUST BIS DEZEMBER 1991 AN DER KTB-VB 91
5.3.3 RADONAKTIVITÄTEN VON FLUID- UND GASPROBEN AUS DER KTB-VB 93
5.3.4 RELATION DER RA-AKTIVITÄTEN DER FLUIDE ZU DENEN DES GESTEINS DER KTB-VB 94
5.3.5 UNTERSUCHUNGEN AN FLUIDEN DER KTB-HB 95
5.4 PUMPVERSUCHE IM NÄHEREN KTB-UMFELD 96
5.4.1 PUMPVERSUCHE IN EINEM GRANIT-/DIABAS-GRUNDWASSERLEITER 96
5.4.1.1 PECHBRUNN SILVANA I 96
5.4.1.2 PECHBRUNN SILVANA II 99
5.4.1.3 ZUSAMMENFASSENDE BEURTEILUNG DER GRUNDWÄSSER AUS SILVANA I UND II 101
5.4.2 PUMPVERSUCH IN EINER TIEFBOHRUNG IM EGERGRABEN UND VERGLEICHENDE UNTERSUCHUNG DES GRUNDWASSERS AUS EINER THERMALQUELLE: KARLOVY VARY (KARLSBAD, ČR) 102
5.4.2.1 EINFÜHRUNG UND BESCHREIBUNG DER PROBENAHMESTELLEN 102
5.4.2.2 VERLAUF DES PUMPVERSUCHS IN DER BOHRUNG HJ-2 103
5.4.2.3 CHEMISCHE ZUSAMMENSETZUNG DER FLUIDE 104
5.4.2.4 ERGEBNISSE DER RADIUM- UND RADONISOTOPENUNTERSUCHUNGEN UNTER BERÜCKSICHTIGUNG DER ISOTOPENHYDROLOGISCHEN UNTERSUCHUNGEN 106

5.4.2.5 ERGEBNISSE DER GASANALYSEN 109
5.4.2.6 ZUSAMMENFASSUNG DER ERGEBNISSE UND DARAUS ABGELEITETE FOLGERUNGEN 110
5.4.3 PUMPVERSUCH IN KELLERHAUS NE` MANTEL (OBERPFALZ) 111
5.5 PUMPVERSUCHE IM WEITEREN KTB-UMFELD 113
5.5.1 PUMPVERSUCH IM OBEREN BUNTSANDSTEIN (RHÖT) UNTERFRANKENS: WIESENFELD BEI KARLSTADT 113
5.5.1.1 ERGEBNISSE DER VOR-ORT-MESSUNGEN UND DER HYDROCHEMISCHEN UNTERSUCHUNGEN 113
5.5.1.2 ERGEBNISSE DER ISOTOPENUNTERSUCHUNGEN 114
5.5.1.3 ERGEBNISSE DER RADIUM-UNTERSUCHUNGEN UND INTERPRETATION 114
5.5.2 PUMPVERSUCH IM UNTEREN KEUPER/BENKER SANDSTEIN OBERFRANKENS: NEUHAIDHOF BEI CREUSSEN 117
5.5.2.1 ERGEBNISSE DER VOR-ORT-MESSUNGEN UND WASSERCHEMIE 118
5.5.2.2 ERGEBNISSE DER TRITIUMUNTERSUCHUNGEN 118
5.5.2.3 ERGEBNISSE DER RADIUM- UND RADON-AKTIVITÄTSBESTIMMUNGEN 118
5.5.3 PUMPVERSUCH IN EINEM GRUNDWASSERLEITER DES MITTLEREN KEUPER: THERMALBOHRUNG BAYREUTH/OBERFRANKEN 120
5.5.3.1 ERGEBNISSE DER ISOTOPENUNTERSUCHUNGEN 120
5.5.3.2 ERGEBNISSE DER GASGEHALTSBESTIMMUNGEN 122
5.5.3.3 ERGEBNISSE DER RADIUM- UND RADON-AKTIVITÄTSBESTIMMUNGEN 123

5.5.4 PUMPVERSUCH IM MITTLEREN KEUPER/BURGSANDSTEIN: ECKERSDORF/OBERFRANKEN 123
5.5.4.1 ERGEBNISSE DER VOR-ORT-MESSUNGEN 125
5.5.4.2 ERGEBNISSE DER ISOTOPENUNTERSUCHUNGEN 125
5.5.4.3 ERGEBNISSE DER RADIUM- UND RADON-AKTIVITÄTSBESTIMMUNGEN 125
5.5.5 PUMPVERSUCH IM MUSCHELKALK UND ROTLIEGENDEN DER BOHRUNG TREUCHTLINGEN T2 126
5.5.5.1 ERGEBNISSE DER RADIUM-AKTIVITÄTSBESTIMMUNGEN .. 128
5.6 PUMPVERSUCHE IN BADEN-WÜRTTEMBERG 128
5.6.1 DREI HORIZONTIERTE PUMPVERSUCHE IN EINER OPALINUSTON-BOHRUNG IN WÜRTTEMBERG (GEISINGEN) 128
5.6.1.1 ERGEBNISSE DER VOR-ORT-MESSUNGEN 130
5.6.1.2 ERGEBNISSE DER ISOTOPENUNTERSUCHUNGEN 130
5.6.1.3 ERGEBNISSE DER RADIUM UND RADON-AKTIVITÄTSBESTIMMUNGEN 132
6. UNTERSUCHUNGEN AN GESTEINSPROBEN 136
6.1 RÖNTGENFLUORESZENZANALYSE (RFA) 136
6.2 PROBENAHME 136
6.3 PRÄPARATION 136
6.4 MESSUNG UND AUSWERTUNG 137
7. ERGEBNISSE UND DISKUSSION DER GESTEINSUNTERSUCHUNGEN 138
7.1 BOHRKERN AUS DER BOHRUNG KARLOVY VARY HJ-2 138
7.1.1 PETROGRAPHISCHE BESCHREIBUNG DER BEARBEITETEN BOHRKERNABSCHNITTE DER BOHRUNG HJ-2 IM EGERGRABEN . 138
7.1.1.1 BESCHREIBUNG DER DÜNNSCHLIFFE 141

7.1.1.2 ERGEBNISSE DER RÖNTGENFLUORESZENZANALYSE UND DER KRISTALLWASSER-BESTIMMUNG NACH DER PENFIELD-METHODE 150

7.1.1.3 DISKUSSION DER ERGEBNISSE DER DÜNNSCHLIFF- UND DER RÖNTGENFLOURESZENZANALYSE UNTER BERÜCKSICHTIGUNG DES GRUNDWASSERCHEMISMUS 157

7.1.2 BESTIMMUNG DER ^{226}RA- ^{228}RA- UND ^{230}TH-AKTIVITÄTEN AN GESTEINSPROBEN DER BOHRUNG KARLOVY VARY HJ-2 159

7.1.3 BESTIMMUNG DER Δ^{18}O-WERTE AN GESTEINSPROBEN DER BOHRUNG KARLOVY VARY HJ-2 162

7.1.4 VERGLEICHENDE INTERPRETATION DER GEOCHEMISCHEN, ISOTOPEN-GEOCHEMISCHEN UND RADIOMETRISCHEN ERGEBNISSE 168

7.2 GESTEINSOBERFLÄCHEN 169

7.2.1 BESTIMMUNG DER ^{238}U-GEHALTE, DER ^{234}U/^{238}U- UND ^{230}TH/^{234}U-VERHÄLTNISSE, SOWIE DER ^{226}RA- UND ^{228}RA-AKTIVITÄTEN UND DER ^{226}RA/^{228}RA-VERHÄLTNISSE AN AUSGEWÄHLTEN GESTEINSPROBEN AUS DER BOHRUNG KARLOVY VARY HJ-2 169

7.2.1.1 PRÄPARATION UND LEACHING 169

7.2.1.2 DISKUSSION UND INTERPRETATION DER ERGEBNISSE 173

7.2.2 LEACHING-TESTS AN GESTEINSPROBEN AUS SIBYLLENBAD 174

7.3 RADIUMGEHALTSBESTIMMUNGEN AN VERSCHIEDENEN GESAMTGESTEINSPROBEN 175

8. GEOCHEMISCHE UND RADIOMETRISCHE

UNTERSUCHUNGEN AN EISEN- UND MANGAN-OXIHYDROXIDEN 177
8.1 SEQUENTIELLE EXTRAKTION DER EISEN- UND MANGANOXIHYDROXIDE 178
8.1.1 PRÄPARATIONSVERFAHREN 178
8.1.2 ERGEBNISSE DER SEQUENTIELLEN EXTRAKTION 179
8.2 RÖNTGENAUFNAHMEN 180
8.3 ELEKTRONENMIKROSKOPISCHE AUFNAHMEN VERBUNDEN MIT ENERGIEDISPERSIVER RÖNTGENANALYSE EDX 181
8.3.1 PRÄPARATION UND MESSUNG 181
8.3.2 ERGEBNISSE DER ELEKTRONENMIKROSKOPIE UND DER EDX 182
8.4 RÖNTGENFLUORESZENZANALYSEN 184
8.5 ZUSAMMENFASSENDE DISKUSSION DER ERGEBNISSE DER EISEN- UND MANGANOXIHYDROXID-UNTERSUCHUNGEN 194
9. KURZE GESAMTZUSAMMENFASSUNG DER ARBEIT 194
DANK 195
LITERATURVERZEICHNIS 196
VERZEICHNIS DER VERWENDETEN KARTEN 204
ANHANG A: FUßNOTEN 206
ANHANG B: TABELLEN 210
ANHANG C: AUFNAHMEN DER UNTERSUCHTEN BOHRKERNABSCHNITTE DER BOHRUNG KARLOVY VARY HJ 2. 309
ANHANG D: GEOLOGIE DES KTB-UMFELDES (AUS: GEOLOG. KARTE DES KTB-UMFELDES OBERPFALZ 1: 50.000, HANNOVER 1991) 313

LISTE DES ABKÜRZUNGEN

A	:	Ampere
a	:	Jahr
Äquiv.-%	:	Äquivalent-Prozent
Bq/kg	:	Bequerel pro Kilogramm
BRD	:	Bundesrepublik Deutschland
ca.	:	circa
DIC	:	Gelöster anorganischer Kohlenstoff (dissolved inorganic carbon)
d.h.	:	das heißt
dpm	:	decay per minute
bzw.	:	beziehungsweise
EC	:	Electron Capture
EDTA	:	Ethylendiamintetraessigsäure
EDV	:	Elektronische Daten Verarbeitung
EDX	:	Energiedispersive Röntgenanalyse
el.	:	elektrisch
EM	:	Elektronenmikroskopie
frdl.mündl.Mitt.	:	freundliche mündliche Mitteilung
Gew.-%	:	Gewichtsprozent
GOK	:	Geländeoberkante
GWM	:	Grundwassermessstelle
g	:	Gramm
h	:	Stunde
Hrsg	:	Herausgeber
i.W.	:	im Wesentlichen
i. Zshg.	:	im Zusammenhang
KAK	:	Kationenaustauschkapazität
keV	:	Kiloelektronenvolt
km	:	Kilometer
KTB	:	Kontinentalie Tiefbohrung
KTB-VB	:	Vorbohrung des kontinentalen Tiefbohrprogrammes
KTB-HB	:	Hauptbohrung der kontinentalen Tiefbohrung
kV	:	Kilovolt
kW	:	Kilowatt
m	:	Meter
M	:	molar, Molarität
Min.	:	Minuten
ME	:	Mache-Einheiten

ml	**:**	Milliliter
mmol/kg	**:**	Millimol pro Kilogramm
mV	**:**	MilliVolt
Nml/g	**:**	Milliliter (bei Normzustand) pro Gramm
NW-SE	**:**	Nordwest-Südost
o.	**:**	oder
o.g.	**:**	oben genannt
pMC	**:**	percent Modern Carbon (veraltet: % mod.)
ppm	**:**	parts per million
PV	**:**	Pumpversuch
REM	**:**	Rasterelektronenmikroskopie
resp.	**:**	beziehungsweise
REV	**:**	Repräsentatives Elementarvolumen
RFA	**:**	Röntgenfluoreszenzanalyse
RWSP	**:**	Ruhewasserspiegel
S/cm	**:**	Siemens pro Zentimeter
s.o.	**:**	siehe oben
spez. el.	**:**	spezifische elektrische (Leitfähigkeit)
(Leitfähigkeit)		
s.u.	**:**	siehe unten
sog.	**:**	so genannt
TEM	**:**	Transmissionselektronenmikroskopie
TDS	**:**	Total Dissolved Solids, gesamte gelöste Feststoffe
TU	**:**	Tritium-Units (Tritiumeinheiten)
U	**:**	Umdrehung
u.a.	**:**	unter anderem
Univ.	**:**	Universität
ü.NN	**:**	über Normalnull
vgl.	**:**	vergleiche
z.B.	**:**	zum Beispiel
ZEV	**:**	Zone von Erbendorf-Vohenstrauß
z.T.	**:**	zum Teil
µg/a	**:**	Mikrogramm pro Jahr

LISTE DER ABBILDUNGEN

Abb. 1 : Fließdiagramm für das Vorgehen bei der vorliegenden Arbeit

Abb. 2 : Schematische Darstellung des α-Rückstoßeffektes

Abb. 3 : Schematische Darstellung des Verhaltens einiger Zerfallsprodukte von ^{238}U und ^{232}Th im Grundwasserleiter

Abb. 4 : Konvektion und Dispersion sowie das Strömungsbild in einem natürlichen Porengrundwasserleiter

Abb. 5 : a) Entwicklung des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses, wenn ein homogener Aquifer gegeben ist.
b) Zerfall von ^{224}Ra für verschiedene Ausgangsaktivitäten, wenn keine Nachbildung dieses Isotops stattfindet. Das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis entwickelt unter denselben Bedingungen eine ähnliche Linie.

Abb. 6 : Abb. a) und b) zeigen den Fall einer im Verlauf eines Pumpversuchs steigenden Ra-Isotopenaktivität bei unterschiedlichen Fließgeschwindigkeiten;
Abb. c) und d) den Fall einer im Verlauf eines Pumpversuchs fallenden Ra-Isotopenaktivität;
e) Veränderung der Ra-Isotopenverhältnisse im Grundwasser im Verlauf eines Pumpversuchs, wenn ein Doppelporositäts-Grundwasserleiter vorliegt

Abb. 7 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den spez. el. Leitfähigkeiten:
a) 90 bis 1400 µS/cm, b) bis 160000 µS/cm

Abb. 8 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Chloridgehalten:
a) 0 bis 900 mg/l, b) bis 10000 mg/l

Abb. 9 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Sulfatgehalten:
a) 0 bis 60 mg/l, b) bis 3000 mg/l

Abb. 10 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Bariumgehalten

Abb. 11 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Strontiumgehalten

Abb. 12 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Eisengehalten

Abb. 13 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den pH-Werten

Abb. 14 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu a) den Redoxpotentialen und b) den Gehalten an freiem Sauerstoff

Abb. 15 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den ^{222}Rn-Aktivitäten der entsprechenden Grundwässer

Abb. 16 : ^{222}Rn-Aktivitäten im Verhältnis zu den Endteufen der entsprechenden Grundwasserentnahmestellen

Abb. 17 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Tritiumgehalten der entsprechenden Grundwässer

Abb. 18 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den ^{228}Ra-Aktivitäten

Abb. 19 : ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse im Verlauf der beiden Pumpversuche an der KTB-VB

Abb. 20 : ^{224}Ra /^{228}Ra-Verhältnisse im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Silvana I

Abb. 21 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Silvana II

Abb. 22 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Wiesenfeld IV

Abb. 23 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Creußen/Neuhaidhof C

Abb. 24 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Thermalbohrung Bayreuth

Abb. 25 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Eckersdorf

Abb. 26 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Treuchtlingen

Abb. 27 : Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf der Pumpversuche an der Bohrung Geisingen

Abb. 28 : Detail-Skizzen von Dünnschliffen des Bohrkerns der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Abb. 29 : Entsprechend der RFA-Analyse erhaltene Oxid- und Elementgehalte des Gesteins der Bohrung HJ-2 gegen die Tiefe aufgetragen

Abb. 30 : Korrelation der Zr-Gehalte ausgewählter Proben des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 mit den Rb-Gehalten

Abb. 31 : Variation der Radium-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 mit der Tiefe

Abb. 32 : Korrelation der Rb-Gehalte mit den Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 für 2 verschiedene Konzentrationsbereiche

Abb. 33 : Korrelation der Sr-Gehalte mit den Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 für 2 verschiedene Konzentrationsbereiche

Abb. 34 : Korrelation der Ba-Gehalte mit den Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 für 2 verschiedene Konzentrationsbereiche

Abb. 35 : Korrelation der $\delta^{18}O$-Werte und SiO_2-Gehalte des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2

Abb. 36 : Korrelation der $\delta^{18}O$-Werte mit den Al_2O_3- und K_2O-Gehalten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2

Abb. 37 : Korrelation der $\delta^{18}O$-Werte mit den Radium-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2

Abb. 38 : Korrelation der SiO_2-Gehalte mit den ^{228}Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2

Abb. 39 : Korrelation der K_2O- und der Al_2O_3-Gehalte mit den ^{228}Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2

Abb. 40 : Röntgenaufnahmen von 5 Fe-/Mn-Oxidhydroxid-Proben

Abb. 41 : Densitometerkurve von 2 Fe-/Mn-Oxidhydroxidproben. Zum Vergleich ist die Kurve eines reinen α-Fe-OOH beigefügt

Abb. 42 : Kopien von REM-Aufnahmen von Fe-/Mn-Oxidhydroxiden aus Drosen und dem Südschwarzwald

Abb. 43 : Halbquantitative Analysen von Fe-/Mn-Oxidhydroxiden aus Drosen und dem Südschwarzwald durch EDX

Abb. 44 : TEM-Aufnahmen von Fe-/Mn-Oxidhydroxiden aus Drosen und dem Südschwarzwald

LISTE DER TABELLEN

Tabelle 1 : Die drei natürlichen radioktiven Zerfallsreihen

Tabelle 2 : Chemisch-physikalische Daten von Radium

Tabelle 3 : Thermodynamische Daten für verschiedene Ra-Spezies

Tabelle 4 : Physikalische Daten von Radon

Tabelle 5 : Umwandlungsprodukte des amorphen Eisen(III)-Hydroxides in einer $NaHCO_3$ – bzw. einer NH_4Cl/NH_3–Pufferlösung bei Anwesenheit von Cystein und Mn

Tabelle 6 : Freundlich- und Freundlich-ähnliche Konstanten für die Adsorption von Radium an Eisenhydroxide

Tabelle 7 : Zerfall des ^{224}Ra nach der Formel $N_t=N_0*e^{-t/\tau}$, wenn keine Nachbildung von ^{224}Ra durch Mutterisotope erfolgt

Tabelle 8 : $^{224}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnisse nach der Zeit t, bei einem $^{224}Ra/^{228}Ra$-Startverhältnis von 1

Tabelle 9a : Ergebnisübersicht der radiometrischen und isotopenhydrologischen Untersuchungen aller entnommenen Grundwasserproben

Tabelle 9b : Vor-Ort-Messungen an den entnommenen Grundwasserproben.

Tabelle 9c : Kationengehalte der untersuchten Grundwasserproben

Tabelle 9d : Anionengehalte der untersuchten Grundwasserproben

Tabelle 9e : Übersicht über Radium-Isotopenverhältnisse, Endteufen der Entnahmestellen, Pumpversuchszeiten und Pumpraten

Tabelle 10a : Ergebnisse von Tritiumgehaltsbestimmungen, sowie von Radium- und Radon- Aktivitätsbestimmungen von Grundwasser aus dem Südschwarzwald

Tabelle 10b : Ergebnisse des Leaching-Tests an Gesteinsproben aus dem Südschwarzwald

Tabelle 11 : Ergebnisse von Radium-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Umgebung des Uran-Aufbereitungsbetriebes MAPE in Mydlovary (ČR)

Tabelle 12a : Radium-Aktivitäten von Fluid- und Gesteinsproben aus der KTB-Vorbohrung

Tabelle 12b : Ra-Isotopenverhältnisse während des PV im April 1990 aus der KTB-Vorbohrung

Tabelle 12c : Ergebnisse der Radium- und ^{222}Rn-Untersuchungen an zwei mit dem Tiefensampler nach dem Pumpversuch am 12.04.1990 entnommen Proben aus der KTB-VB

Tabelle 12d : Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen von Fluiden der KTB-VB (PV Sept.-Dez. 1992)

Tabelle 12e : Ergebnisse der ^{222}Rn-Aktivitätsbestimmungen an Fluid- und Gasproben der KTB-VB

Tabelle 12f : Ergebnisse von ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th-Aktivitätsbestimmungen an Fluidproben aus der KTB-Hauptbohrung

Tabelle 13 : Ergebnisse von vor-Ort-Messungen und wasserchemischen Untersuchungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana I (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen während eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.1990

Tabelle 14 : Ergebnisse von Radium-und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana I (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen wärend eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.1990

Tabelle 15 : Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana (alt) (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen vor und während eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.1990

Tabelle 16 : Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung St.Linus entnommen vor und während eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.1990

Tabelle 17 : Ergebnisse von Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana II und den Brunnen Silvana I, Silvana (alt) und St.Linus, sowie einer Probebohrung in Pechbrunn; entnommen zwischen März 1990 und Januar 1992

Tabelle 18 : Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben entnommen aus der Bohrung Silvana II, Pechbrunn

Tabelle 19 : Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen und der wasserchemischen Untersuchungen an Proben, die während des Pumpversuchs in Karlovy Vary an der Bohrung HJ-2 und an der Sprudelquelle BJ-36 entnommen wurden

Tabelle 20a : Ergebnisse der isotopenhydrologischen und der radiometrischen Untersuchungen an Proben, die während des Pumpversuchs in Karlovy Vary an der Bohrung HJ-2 und an der Sprudelquelle BJ-36 entnommen wurden

Tabelle 20b : Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Proben, die während des Pumpversuchs in Karlovy Vary an der Bohrung HJ-2 und an der Sprudelquelle BJ-36 entnommen wurden

Tabelle 21 : Ergebnisse der Gasanalysen an Fluidproben, entnommen aus der Bohrung Karlovy Vary HJ-2 und der Sprudelquelle (BJ-36)

Tabelle 22a : Ergebnisse von Radium-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben entnommen aus der Bohrung Kellerhaus bei Mantel (Oberpfalz)

Tabelle 22b : Ergebnisse von hydrochemischen Untersuchungen und Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben entnommen aus der Bohrung Kellerhaus bei Mantel (Oberpfalz)

Tabelle 23a : Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen und isotopenhydrologischen Untersuchungen an Grundwasserproben aus der Bohrung TB Wiesenfeld IV

Tabelle 23b : Ergebnisse der chemischen Untersuchungen an TB Wiesenfeld IV

Tabelle 23c : Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung TB Wiesenfeld IV

Tabelle 24a : Ergebnisse von Tritiumbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Creußen/Neuhaidhof C, entnommen während eines Pumpversuchs vom 07. bis. 11.10.1991

Tabelle 24b : Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Creußen/Neuhaidhof C, entnommen während eines Pumpversuchs vom 07. bis. 11.10.1991

Tabelle 25a : Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Thermalwasserbohrung Bayreuth

Tabelle 25b : Ergebnisse der Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben der Thermalwasserbohrung Bayreuth

Tabelle 25c : Ergebnisse der quantitativen Gasuntersuchungen an Grundwasserproben die am 23.11.1990 und am 11.06.1991 an der Thermalwasserbohrung Bayreuth entnommen wurden

Tabelle 26a : Ergebnisse von Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Eckersdorf B2, entnommen während eines Pumpversuchs vom 07. bis 11.10.1991

Tabelle 26b : Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Eckersdorf B2, entnommen während eines Pumpversuchs von 07. bis 11.10.1991

Tabelle 27 : Ergebnisse von Radium-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Treuchtlingen T2, entnommen während eines Pumpversuchs vom 28. bis 29.01.1992

Tabelle 28a : Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen an Grundwasserproben aus der Bohrung KB13 bei Geisingen

Tabelle 28b : Ergebnisse von Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung KB 13 Geisingen

Tabelle 28c : Ergebnisse von Kohlenstoff -13- (^{13}C) und Sauerstoff -18- (^{18}O)- Bestimmungen an Gesteinsproben (Geisingen)

Tabelle 28d : Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung KB 13, entnommen während 3 Pumpversuchen in unterschiedlichen Entnahmebereichen

Tabelle 29 : Ergebnisse der geochemischen Untersuchungen an Gesteinsproben des Bohrkerns aus der Bohrung Karlovy Vary HJ 2

Tabelle 30 : Radium- und Thorium-Isotopengehaltsbestimmungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Karlovy Vary HJ 2

Tabelle 31 : Ergebnisse der $\delta^{18}O$-Messungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Tabelle 32a : Ergebnisse von Uran-238-Gehaltsbestimmungen und Bestimmungen der Isotopenverhältnisse von $^{234}U/^{238}U$ und $^{230}Th/^{234}U$ an ausgewählten Proben der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Tabelle 32b : Leaching-Test mit 0,1n HCl an Gesteinspulver der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Tabelle 33 : Ra-Isotopenverhältnisbestimmungen an Leaching-Fluid (HCl) von Gesteinsproben zweier Bohrkerne aus Sibyllenbad

Tabelle 34 : ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th-Aktivitätsbestimmungen an verschiedenen Gesteinsproben

Tabelle 35 : Ergebnisse von radiometrischen Untersuchungen an auswählten natürlichen Eisen- und Manganoxidhydroxidproben

Tabelle 36 : Ergebnisse der Röntgenfloureszenzanalysen (RFA) an Eisen-/Mangenhydroxid-Proben, die aus in Stollen austretenden Grundwässern ausgefällt bzw. gebildet (Biofilme) wurden

1. EINLEITUNG - BISHERIGE ARBEITEN

1.1 Zielsetzung

Die hier vorliegende Arbeit über die Auswirkungen von Pumpversuchen auf die Radium-Isotopenverhältnisse und über das geochemische und hydrochemische Verhalten von Radium entstand auf Anregung und mit Unterstützung von Herrn Dr. L. Eichinger (Fa. HYDROISOTOP, Attenkirchen – jetzt Schweitenkirchen) und Herrn Dr. F. Buheitel (Radioanalytisches Labor Dr. Buheitel, Reichertshofen).

Isotopenuntersuchungen werden seit einigen Jahrzehnten in zunehmendem Maß als Hilfsmittel für die Aquiferdiagnose eingesetzt. Besonders die natürlichen schweren Isotope des Wassermoleküls, Deuterium (^{2}H) und Sauerstoff-18 (^{18}O), und das anthropogene radioaktive Tritium (^{3}H, "Bombentritium"), sowie das stabile Isotop des Kohlenstoffs, Kohlenstoff-13 (^{13}C), und das radioaktive Isotop Kohlenstoff-14 (^{14}C) finden in der Trinkwassererkundung, Deponieerkundung, Altstandortsanierung etc. Anwendung.

Aus solchen Isotopenuntersuchungen lassen sich spezifischere Kenntnisse über den Grundwasserleiter gewinnen, als aus nur hydrochemischen und hydraulischen Untersuchungen.

Aber nicht nur der zunehmende differenzierte Einsatz von Isotopenmethoden brachte für die Hydrogeologie eine Erweiterung des Spektrums diagnostischer Methoden, sondern auch in der Hydraulik wurden große Fortschritte erzielt. Hier werden besonders die hydraulischen Methoden, die im Rahmen der Kohlenwasserstoffexploration entwickelt wurden, verstärkt in der Grundwassererkundung zum Einsatz gebracht. Es handelt sich um sehr exakte Methoden zur Messung und Auswertung hydraulischer Druckverhältnisse im Grundwasserleiter.

In Ergänzung zu den Ergebnissen solcher hydraulischer Untersuchungen kann die in dieser Arbeit vorgestellte Radiumisotopenverhältnis-Methode Aufschlüsse über Mischsysteme im Grundwasserleiter geben.

Es ist anzumerken, dass die Probenahmen und Laborarbeiten zwischen 1989 und 1992 durchgeführt wurden. Alle Angaben zu Grundwasseraltern sind auf diesen Zeitraum zu beziehen.

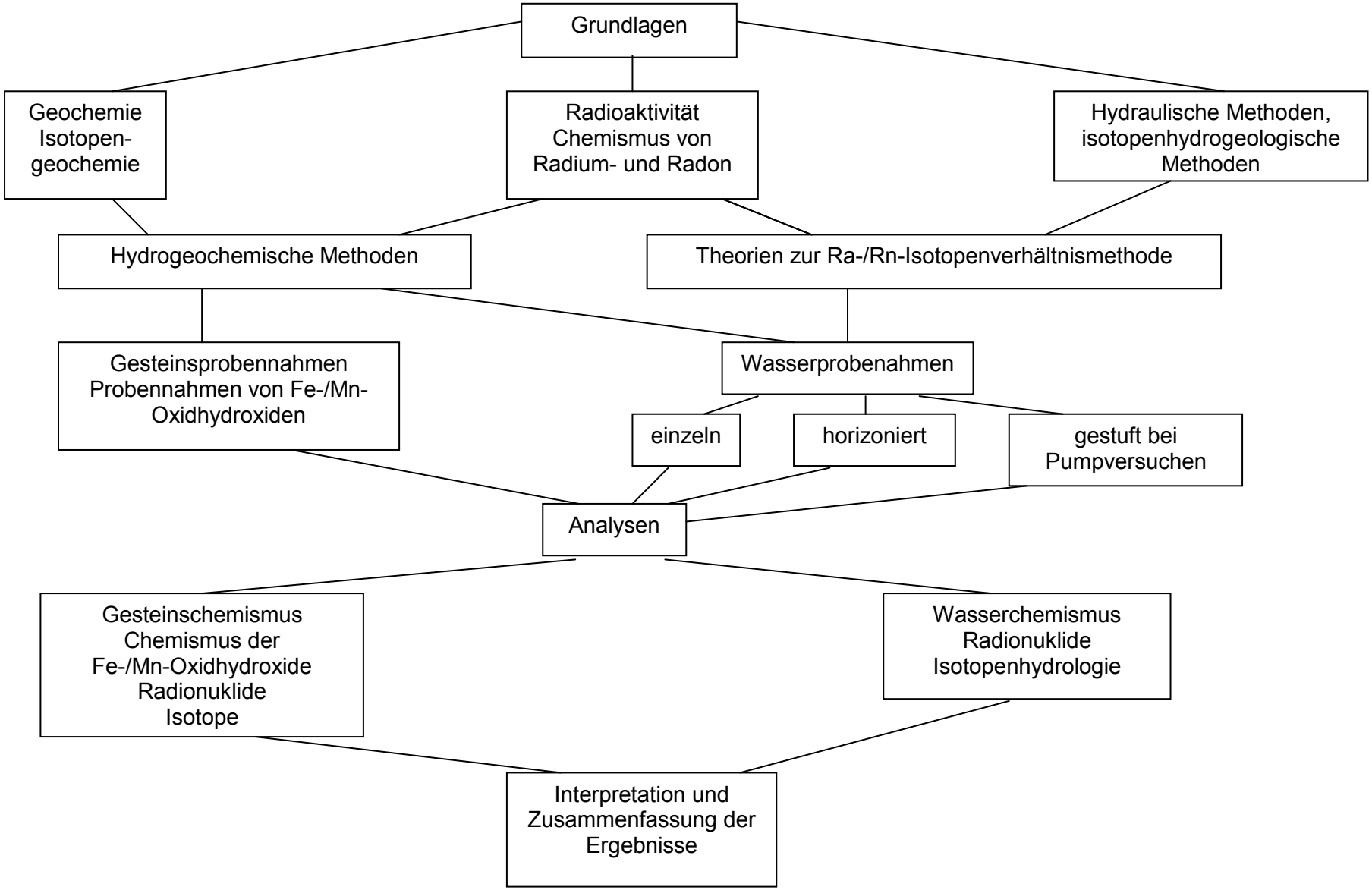


Abb. 1 zeigt ein Fließdiagramm für das Vorgehen bei der vorliegenden Arbeit.

Die Erkenntnisse der Geochemie werden seit vielen Jahren ebenfalls im Bereich der Hydrogeologie und in vielen Bereichen des Umweltschutzes eingesetzt, da die Wechselwirkung zwischen einem Substrat (z.B. Gestein, Boden) und einem bestimmten Wasserinhaltsstoff von großer Bedeutung für die Qualitä von Grundwasser ist. Für eine genaue Beurteilung des Verhaltens eines Grundwasserinhaltsstoffes ist es unabdinglich seine geochemisch-hydrochemischen Eigenschaften unter den jeweiligen Randbedingungen zu kennen. Deshalb, und um nicht nur die relativ kurzfristige Veränderungen der Radium-Isotopie im Grundwasserleiter zu erfassen, wurde im Rahmen dieser Arbeit auch eine Annäherung an die Vorgänge bei langanhaltenden Wasser-/Gesteins-Wechselwirkungen mittels geochemischer Untersuchungen versucht.

Dabei wurde als Schwerpunkt die Wechselwirkung zwischen Grundwasser und Gestein in einem tieferen Grundwasserleiter bearbeitet. Daneben wurde das Lösungs-/Fällungsverhalten von Radium bei Anwesenheit von Eisen und Mangan im oberflächennahen Grundwasserbereich betrachtet.

1.2 Bisherige Arbeiten zu Radium und Radon

Die Isotope des Erdalkalimetalls Radium wurden bisher in Deutschland i. W. aus epidemiologischen Gründen bei der Trink-, Mineral- und Heilwasseranalyse untersucht. Eine epidemiologische Übersichtsstudie für die (Alt-) BRD wurde z.B. 1987 von GANS et al. veröffentlicht. Neuere Untersuchungen u.a. des Bundesamtes für Strahlenschutz dienten i.W. der Vorbereitung einer EU-Richtlinie zu Radioaktivität in Trinkwasser und deren Umsetzung in deutsches Recht.

Die wichtigsten chemischen und physikalischen Eigenschaften des Radiums wurden bereits von seiner Entdeckerin Marie Curie (vgl. CURIE et al. 1898 und CURIE, 1902) beschrieben. LANGMUIR und RIESE (1985) veröffentlichten thermodynamische Daten von Radium, die sie aus der Interpolation von thermodynamischen Daten von Barium-Phasen gewonnen hatten.

AMES et al. (1983) untersuchten die Radium-Adsorption an amorphe Eisenhydroxide.

In Staaten, in denen Uranabbau in größerem Maßstab betrieben wurde (z.B. USA, Kanada, Osteuropa) gab es in den 70er- und 80er-Jahren viele geochemische und hydrochemische Studien über Radium im Grundwasser, da Radium aus den Uranlagerstätten Trinkwasserversorgungen und Oberflächengewässer gefährdete (vgl. z.B. MARCOS & BUSH,

1982 oder BENES et al., 1982).

Kontamination von Gewässern oder natürlich erhöhte Werte in Trinkwasser zogen wiederum Versuche nach sich, Radiumkonzentrationen im Wasser zu senken (vgl. z.B. CLIFFORD et al., 1981 oder BENES et al., 1986).

Umfassendere Studien zu Radium in Gewässern, Boden und Pflanzen (vorwiegend i. Zshg. mit Uranbergbau) wurden in IAEA (1984, 1990 und 2014) veröffentlicht.

Von GELLERMANN und anderen Autoren (vgl. z.B. GELLERMANN et al., 1987) wurden in den 80er Jahren Methoden zur Altersdatierung an Grundwässern mittels verschiedener U-Seriennuklide veröffentlicht. U.a. wurde auch eine bereits von CHERDYNTSEV (1971) vorgeschlagene Ra/Rn-Datierungsmethode entwickelt. Diese Methoden kamen jedoch nicht in größerem Rahmen zur Anwendung.

Die Bedeutung der Veränderung des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses unter unterschiedlichen hydraulischen Bedingungen wurde von ZUKIN et al. (1987) ansatzweise aufgezeigt.

KREST & HARVEY (2003) verwendeten die kurzlebigen Radium-Isotope als Tracer für den Austausch zwischen Grundwasser und Oberflächenwasser in den Everglades.

CONDOMINES et al. (2012) nutzten die Ra-Isotopenverhältnisse eines südfranzösischen Thermalwassers um Aussagen über die Aufstiegszeit, das Alter und zur Mischung mit Meerwasser und Karstwasser abzuleiten.

Veröffentlichungen über das Edelgas Radon in Grundwässern haben meist epidemiologische Sachverhalte zum Hintergrund. In Bad Brambach im Vogtland (SW-Sachsen), wo die höchsten Radongehalte Europas in Grundwässern auftreten, wird Radon allerdings schon seit einigen Jahren zur Erdbebenvorhersage und zur Bestimmung von Radon-Verweilzeiten gemessen (vgl. z.B. KOCH & TAUCHERT, 1986). Zwischenzeitlich wurde Radon im Grundwasser oder in der Bodenluft auch für andere seismologische Studien oder in der Geothermie oder im Bereich der Bodenkunde als Tracergas genutzt.

Eine bedeutend umfangreichere Literatur als über Radon in Grundwässern gibt es über Radon in Bodenluft, Atmosphäre und Innenräumen. Darauf kann hier nicht näher eingegangen werden.

Eine zusammenfassende Literaturauswertung zum Verhalten von Radium und Radon im Grundwasser ist in PORCELLI, 2008, zu finden.

2. RADIUM UND RADON: GRUNDLAGEN

2.1 Entstehung und Vorkommen

Anmerkung: Die folgenden mit hochgestellten lateinischen Ziffern gekennzeichneten Fußnoten (Anmerkungen, Definitionen sowie Umrechnungsformeln) sind dem Anhang A zu entnehmen.

Es gibt vier natürlich entstehende und 21 künstliche Radiumisotope (*Karlsruher Nuklidkarte*, 1974 und 2012). Alle Isotope des Radiums sind radioaktiv. Auf die künstlichen Radium-Isotope wird hier nicht näher eingegangen, da sie für die bearbeitete Problemstellung von keinerlei Bedeutung sind.

Die vier natürlich vorkommenden Radiumisotope ^{226}Ra, ^{228}Ra, ^{224}Ra und ^{223}Ra*1)* entstehen aus dem α-Zerfall von ^{230}Th, ^{232}Th, ^{228}Th und ^{227}Th*1)* und sind Glieder der radioaktiven Zerfallsreihen von ^{238}U, ^{232}Th und ^{235}U. ^{226}Ra, ^{224}Ra und ^{223}Ra sind wiederum selbst α-Strahler, wogegen ^{228}Ra dem ß-Zerfall unterliegt (vgl. Tab. 1).

2.1.1 Vorkommen in der Lithosphäre

Radium tritt überall in der Natur auf. In Abhängigkeit von der Konzentration der Mutterisotope im Gestein und Grundwasser, sowie von Grundwasserchemismus und -bewegung ist es in der Geo- und Hydrosphäre in unterschiedlichen Konzentrationen zu finden.

Schon die Mutterisotope ^{238}U und ^{232}Th sind in Mineral und Gestein unregelmäßig verteilt. Von Spuren bis zur Bildung eigener Mineralien sind alle denkbaren Konzentrationen vertreten. Das Uranmineral Pechblende ist das radiumreichste Mineral (HOLLEMANN, 1985). Auf 2,78 Mio. Uran-Atome kommt dort ein Radium-Atom, wenn das Mutterisotop und die Töchter sich im Gleichgewicht befinden. Das heißt, dass auf 1000 kg Uran 0,34 g Radium kommen (siehe auch 2.2.1). Marie Curie, die das Radium 1898 entdeckte (CURIE et al., 1898), gewann 1902 (CURIE, 1902) das erste Radiumchlorid aus ca. 5 Tonnen Pechblende aus Joachimsthal/Jachimov (ČR).

Radium kommt aber auch in allen anderen Uran-Mineralien sowie in Calcit, Baryt (mit Gehalten bis zu $1 * 10^{-5}$%), Pyromorphit, Limonit und Pyrolusit vor.

Von GOCKEL (1914) und anderen Autoren wurden schon sehr bald nach der Entdeckung des Radiums zahlreiche Untersuchungen an verschiedenen Gesteinen vorgenommen. Die Zusammenhänge zwischen den Gesteinsarten, ihrem Mineralgehalt und ihrem Radiumgehalt bzw. zwischen der Magmendifferentiation und dem differenzierten Uran- und Thoriumgehalt der Gesteine wurden schon damals weitgehend erkannt.

Da Uran und Thorium in sauren Gesteinen häufiger vertreten sind als in basischen, und in Magmatiten häufiger als in Metamorphiten, tritt Radium entsprechend auch eher in sauren als in basischen Magmatiten oder in Metamorphiten auf. In Sedimenten ist das Vorkommen von Radium ebenfalls an das Vorhandensein von Uran und Thorium gebunden. Dort können Uran und Thorium in Schwermineralanreicherungen auftreten oder eingebaut in die Zwischenschichten von Tonmineralien oder angereichert in Kohle.

Es gibt aber auch viele Fälle, in denen zwar Radium an Gesteinsoberflächen angereichert wurde, wo aber primär verhältnismäßig wenig Uran im Gestein vorhanden ist. In Bad Brambach (Erzgebirge/Vogtland) z.B. werden Grundwässer mit sehr hohen ^{222}Rn-Gehalten angetroffen, die auf hohe ^{226}Ra-Konzentrationen im oder am Gestein des Grundwasserleiters schließen lassen. Dort wurde in den 50-er Jahren jedoch vergeblich auf Uran prospektiert. D. h., dass der Urangehalt des Gesteins für einen wirtschaftlichen Abbau zu niedrig war. Folglich handelt es sich dort um an den Gesteinsoberflächen adsorbiertes Radium, dessen Entstehungsorte vermutlich die uranhaltigen Provinzen des Erzgebirges sind.

Das Edelgas ^{222}Rn tritt überall da auf, wo auch das Mutterisotop ^{226}Ra zu finden ist. Prinzipiell ist Radon sehr viel beweglicher als Radium. Es kann sich in Kleinstkapillaren des Gesteins ansammeln und dort zerfallen, oder aber weitermigrieren und am Grundwasserkreislauf teilnehmen. Gelangt es in die Bodenluft der ungesättigten Zone, oder wird es in der ungesättigten Zone selbst produziert, so kann es von dort aus in die Atmosphärenluft übergehen. Dasselbe gilt natürlich auch für Radon das an der Erdoberfläche gebildet wird. Ein Austreten in die Atmosphärenluft kann i.W. durch hohen Wassergehalt im Boden, Gefrornis oder hohen Luftdruck stark minimiert werden. Durch Erwärmung (Sonneneinstrahlung) und niedrigen Wassergehalt im Boden sowie niedrigen Luftdruck wird der Übergang von Radon in die Atmosphärenluft erleichtert. Radon ist das Isotop, das mit seiner Strahlung und der seiner Töchter am meisten zur natürlichen Strahlenbelastung des Menschen beiträgt (vgl. PHILIPSBORN, 1990/I). Mit Radon sind immer auch die kurzlebigen Folgeprodukte zu sehen, die oft die Messgrößen sind.

2.1.2 Vorkommen in der Hydrosphäre

Radium wird - ebenso wie alle anderen geogenen Grundwasserinhaltsstoffe - vom Grundwasser aus dem durchflossenen Gestein aufgenommen. Die Konzentration von Radium im Grundwasser ist abhängig von der Konzentration der Mutterisotope von Radium und von Radium selbst im Muttergestein, sowie von der Konzentration der Mutterisotope im Grundwasser und vom Grundwasserchemismus. Erhöht sich mit wachsender Verweilzeit die Gesamtmineralisation eines Grundwassers so erhöht sich damit auch die Radium-Konzentration. WIEGAND & FEIGE (2002) z.B. stellten erhöhte Radium-Aktivitäten in Grubenwässern der Ruhr-Kohlereviere fest.

Radon ist in Grundwässern im oberflächennahen Bereich in bedeutend größeren Konzentrationen gelöst als Radium. Dies kann auf verschiedene Ursachen, die unter Kap. 2.3 näher erläutert werden, zurückgeführt werden.

In tieferen Grundwasserbereichen sind die Rn-Aktivitäten relativ geringer, da dort meist reduzierende Verhältnisse herrschen, die eine Akkumulation von Radium auf den Gesteinsoberflächen weitgehend ausschließen.

Im Meerwasser sind die Radium-Aktivitäten durchschnittlich niedriger als im Grundwasser und im kontinentalen Oberflächenwasser.

Tiefenprofil-Messungen von ^{228}Ra im Toten Meer erbrachten Aktivitäten von 0,006 Bq/kg [2)] in 300 m Tiefe bis 0,020 Bq/kg in 0,5 m Tiefe (SOMAYAJULU & RENGARAJAN, 1987). Eine inverse Konzentrationsentwicklung, nämlich eine Aktivitätszunahme mit der Tiefe konnte im Indischen Ozean beobachtet werden (CHUNG, 1987). Hier lagen die ^{226}Ra-Aktivitäten von oberflächennahen Proben bei 0,001 Bq/kg, während an Proben aus 3000 bis 4000 m Tiefe Werte um 0,005 Bq/kg gemessen wurden. Die ^{226}Ra-Aktivitäten von oberflächennahem Meerwasser des Golfes von Mexiko liegen zwischen 0,001 und 0,002 Bq/kg (REID et al., 1979). Höhere Aktivitäten können an Partikel gebunden im Merrwasser gefunden werden (VAN DER LOEFF & GEIBERT, 2008). KU & LUO (2008) beschrieben Radium als einen Tracer für großskaliges Vermischen von Ozeanwasser. So gibt es zum Beispiel einen abnehmenden Trend in der Tiefsee vom Nord-Pazifik zum Nord-Atlantik (via indischen und antarktischen Ozean).

Die Radium-Aktivitäten von kontinentalen Oberflächenwässern dagegen können bedeutend höhere Werte erreichen. IYENGAR (1984) gibt für Brasilien Werte zwischen 0,007 und 0,222 Bq/l, für Jugoslawien zwischen 0,0004 und 0,115 Bq/l und für Australien zwischen 0,003 und 0,315 Bq/l an. Nach GMELIN (1977) enthalten Oberflächenwässer weltweit Ra-Aktivitäten zwischen 0,0005 und 0,750 Bq/l.

2.2 Physikalische und chemische Eigenschaften

2.2.1 Radioaktivität

Radioaktivität ist definiert als die Eigenschaft bestimmter Nuklide sich unter Strahlenemission in andere Nuklide umzuwandeln. Dieser Vorgang wird auch als radioaktiver Zerfall bezeichnet.

Atomkerne können auf verschiedene Arten zerfallen. Die häufigsten Zerfallsarten sind, benannt nach den dabei emittierten Teilchen, α-, ß- und γ-Zerfall.

α-Zerfall tritt häufig bei Elementen mit Z > 82 auf und trägt wesentlich zur natürlichen Radioaktivität aus den Zerfallsreihen von ^{238}U, ^{232}Th und ^{235}U bei. Beim α-Zerfall handelt es sich um die Emission von positiv geladenen ^{4}He-Kernen. Dabei ändert sich die Massenzahl um 4 und die Ordnungszahl um 2 Einheiten, z. B.

$$^{226}_{88}Ra \rightarrow {}^{222}_{86}Rn + {}^{4}_{2}He + \delta E.$$

Die Zerfallsenergie δ E entspricht der Differenz aus der Masse des ^{226}Ra-Kerns und der Summe der Massen von ^{222}Rn- und ^{4}He-Kern.

Beim Alphazerfall stoßen sich das entstehende Tochternuklid und das gleichzeitig entstehende α-Teilchen entsprechend der Schemazeichnung Abb. 2 voneinander ab. Dieser Effekt wird α-recoil oder α-Rückstoßeffekt genannt. Er kann z.B. bewirken, dass die Zerfallsprodukte direkt in das Grundwasser überführt werden.

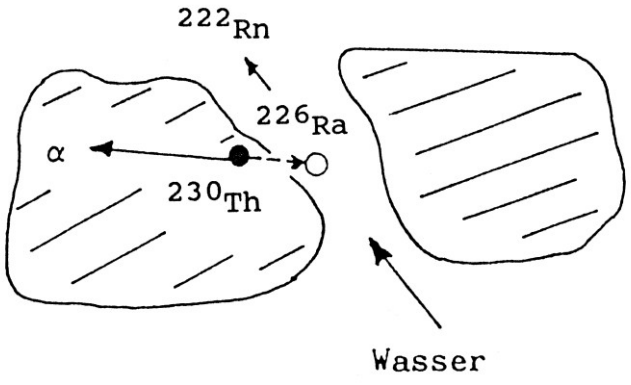


Abb. 2: Schematische Darstellung des α-Rückstoßeffektes (α-recoil).

ß-Zerfall kommt bei Isotopen nahezu aller Elemente vor. Es werden drei Arten unterschieden: $ß^+$, $ß^-$ und Elektroneneinfang EC (electron capture). Die durch den Zerfall bedingte Strahlung besteht beim $ß^+$-Zerfall aus Positronen und Neutrinos, beim $ß^-$-Zerfall aus Elektronen und Antineutrinos, während beim EC nur ein Antineutrino emittiert wird. Die Teilchen entstehen jeweils aus Neutronen.

Der γ-Zerfall tritt nur bei höheren Ordnungszahlen auf und ist ein sekundärer Effekt des α- oder ß-Zerfalls, wo beim Zerfall das Tochternuklid in einen angeregten Zustand versetzt und damit auf ein höheres Energieniveau gebracht wird. Von diesem höheren Energieniveau geht es unter Aussendung von Photonen in einen energetisch niedrigeren Gleichgewichtszustand über.

Die Kernumwandlung selbst geschieht spontan, aber mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit, die mit dem Term "Zerfall pro Sekunde" ausgedrückt wird *2)*.

^{226}Ra hat eine spezifische Aktivität von $3{,}66*10^6$, d.h. pro g ^{226}Ra finden $3{,}66*10^6$ Zerfälle pro Sekunde statt bzw., von einem Gramm ^{226}Ra zerfallen pro Sekunde $1{,}36*10^{-11}$ g, das sind 428 µg/a. Dies entspricht einer Bildung von 0,17 cm^3 He/a (siehe auch Tab. 2, Anhang B).

Mit 1620 Jahren (^{226}Ra), 5,7 Jahren (^{228}Ra), 3,64 Tagen (^{224}Ra) und 11,43 Tagen (^{223}Ra) haben die Radium-Isotope sehr unterschiedliche Halbwertszeiten. ^{222}Rn, das Tochterisotop von ^{226}Ra hat eine Halbwertszeit von 3,82 Tagen (vgl.Tab. 1, Anhang B).

2.2.2 Chemische und physikalische Eigenschaften von Radium

Radium gehört chemisch zur Gruppe der Erdalkalimetalle. Die Ähnlichkeit im chemischen Verhalten mit den einzelnen Gliedern dieser Gruppe ist vom Calcium (Ca) zum Barium (Ba) steigend. Da Ra also dem Ba am ähnlichsten ist, werden bestimmte chemisch-physikalische Daten des Ra in der Tab. 2 in Anhang B auf das Ba bezogen.

Liegt Ra als Karbonat, Nitrat oder Sulfat vor, ist es normalerweise kaum löslich: in Wasser und verdünnten Säuren ist $RaSO_4$ unlöslich, $RaCO_3$ löst sich in Säuren (HOLLEMANN, 1985). Als Hydroxid und Chlorid dagegen ist es sehr gut löslich, $RaCl_2$ wird leicht hydrolytisch gespalten, als Hydroxid ist es stark basisch.

Die Lösung von Ra in Salzen von Pb und den leichteren Erdalkalimetallen wurde anhand des Verteilungskoeffizienten D abgeschätzt, wobei

$$D \approx [mM^{2+}][N_{RaX}]/[mRa^{2+}][N_{MX}].$$

(m=Molarität, N=Molfraktion, X=Salz, M=Kation in Salz X)

Die D-Werte fallen jeweils mit steigender Temperatur. Es gibt ebenfalls eine Abnahme der D-Werte unter den Sulfat- und Karbonatmineralen, die folgendermaßen verläuft:

Anhydrit ($CaSO_4$) > Coelestin ($SrSO_4$) > Anglesit ($PbSO_4$) > Baryt ($BaSO_4$) > Aragonit ($CaCO_3$) > >Strontianit ($SrCO_3$) > Witherit ($BaCO_3$) > Cerussit ($PbCO_3$).

LANGMUIR & RIESE (1985) untersuchten die thermodynamischen Eigenschaften von Radium. Die Enthalpie, Gibbs freie Energie sowie die Entropie von wässrigen Radium-Spezies und von Radium-Feststoffen wurden aus empirischen Daten bestimmt, oder für 25°C und 1 bar geschätzt.

Die Schätzungen fußten auf der Extrapolation von thermodynamischen Eigenschaften der entsprechenden Barium-, Strontium- und Calcium-Spezies.

BARD et al. (1985) veröffentlichten thermodynamischen Daten, die aus verschiedenen Quellen zusammengetragen bzw. abgeleitet wurden. Die Daten aus beiden Veröffentlichungen sind in Tab. 3, Anhang B) zusammengefasst.

2.2.3 Chemische und physikalische Eigenschaften von Radon

Eine Zusammenstellung von chemischen und physikalischen Eigenschaften von Radon ist in Tabelle 4 in Anhang B aufgeführt.

Atmosphärenluft enthält im Mittel $6 \cdot 10^{-18}$ Volumen-% bzw. $4{,}6 \cdot 10^{-17}$ Gewichts-% Radon (HOLLEMANN, 1985).

Radon hat im Vergleich zu Luft (1,29 g/l) mit 9,73 g/l eine hohe Dichte. Deshalb, und wegen der ständigen Produktion von Rn in der oberflächennahen Lithosphäre befindet sich im bodennahen Bereich der Atmosphäre bedeutend mehr Rn als im oberen.

Radon ist gut löslich in organischen Lösungsmitteln. Erdöl kann 20 mal mehr Radon lösen als Wasser. Die Verteilungskoeffizienten für Radon sind:

Olivenöl: 29

Kohlenstoffdisulfid: 23

Cyclohexan: 18

Wasser: 0,254

Der Verteilungskoeffizient K[4)] von Toluol/Wasser beträgt bei 20°C 45. $K_{Gas/Wasser}$. Er wird für Rn in Wasser mit zunehmender Temperatur kleiner:

0,51 bei 0°C

0,34 bei 10°C

0,25 bei 20°C

0,19 bei 30°C

Ebenso sinkt K mit sinkendem Salzgehalt des Wassers. Oberflächenwässer können wenig Rn enthalten, da sich die Gasphase über dem Wasser durch die Luftbewegung ständig verdünnt und somit das Gleichgewicht immer wieder neu eingestellt werden muss (vgl. PHILIPSBORN, 1990/II). Weiterhin ist der Verteilungskoeffizient für die Wasserprobenahme zur Radon-Bestimmung von Bedeutung, da herkömmliche Probenahmemethoden -das Abfüllen von Wasser in Behälter- die Gefahr in sich bergen, dass sich vom Gesamtgasgehalt und der Temperatur des Wassers abhängige unbekannte Gehalte an Radon verflüchtigen.

2.3 Das Verhalten von Radon und Radium im Grundwasserleiter

Radium und Radon verhalten sich entsprechend ihren sehr unterschiedlichen chemischen Eigenschaften (Erdalkalimetall und Edelgas) im Grundwasserleiter[5)] sehr verschieden. Das Verhalten von Radium und der Vorläuferisotope von Radium in Grundwasser ist auf der Schemazeichnung Abb. 3 dargestellt.

2.3.1 Das Verhalten von Radon

Aus Mineralien und Gesteinen wird weitaus weniger ^{222}Rn freigesetzt als produziert wird. Die Rückstoßenergie beim α-Zerfall beträgt 86 keV und bewirkt eine Reichweite von ca. 0,04 µm. Wegen dieser geringen Distanz kann nur das Rn aus dem Gesteins- oder Mineralverband entweichen, das nahe an dessen Oberfläche produziert wird (vgl. ANDREWS & WOOD, 1972). Nach Untersuchungen von KRISHNASWAMI & SEIDEMANN (1988) werden 1-20% des im Gestein produzierten ^{222}Rn freigesetzt.

Die weitere Migration erfolgt dann durch Diffusion und durch konventionellen Transport im Grundwasserleiter. Je nach Beschaffenheit des Grundwasserleiters kann es -besonders wenn größere Konzentrationen an anderen Gasen (z.B. CO_2, CH_4) gegeben sind- zu einem "Ausgasen" des Grundwassers kommen. Dieser "Treibgaseffekt" bewirkt, dass das Radon mit aufsteigenden Gasen mitgerissen wird. Hier und auch in der ungesättigten Zone kontrollieren der Luftdruck und die Wassertemperatur das Ausmaß der Entgasung.

2.3.2 Geochemie und Hydrochemie des Radiums

In Abhängigkeit von der chemischen Beschaffenheit des Grundwassers kann Radium in den unterschiedlichsten Spezies gelöst und wieder ausgefällt werden (vgl. 2.2.2).

Radium tritt mit großer Wahrscheinlichkeit nie als eigene reine Phase im Grundwasser auf, sondern immer als Mischphase mit häufiger vorkommenden Ionen wie z.B. Barium.

So kann es z.B. bei Anwesenheit von Ba auch zu einer locker gebundenen Form von $Ba(Ra)SO_4$ in Wässern kommen. Bei einer Ausfällung dieser Spezies wird Ra mittels Okklusion in die entstehende Kristallphase eingebaut. Es entsteht ein Mischkristall.

Die Interaktion von Ra mit Ba ist unabhängig vom pH-Wert, aber immer abhängig vom Sulfatgehalt. Sulfationen im Wasser unterdrücken die Desorption von Ra von den Gesteinsoberflächen (näheres zur Adsorption in Kapitel 2.3.4).

Radiolyse, d.h. die Zersetzung von Wassermolekülen durch α-, ß- und γ-Strahler kann in einem sonst reduzierenden Milieu die Bildung von Oxidanten bewirken. So werden z.B. Sulfide i.W. durch radiolytisch gebildetes H_2O_2 aber auch durch andere Oxidanten zu Sulfaten aufoxidiert. D.h., dass besonders in Uranlagerstätten oder sulfidhaltigen Gesteinen mit höheren U- und Th-Gehalten auch bei Abwesenheit von freiem Sauerstoff ständig Sulfat gebildet wird (vgl. VOVK, 1987).

Im oberflächennahen Grundwasserbereich spielen vor allem organische Kolloide und Eisenkolloide eine große Rolle für das Verhalten von Radium.

Der oberflächennahe Grundwasserbereich wird auch Oxidationszone genannt, da hier Grundwässer mit freiem Sauerstoff auftreten, wodurch ein oxidierendes Milieu entsteht. In der tiefer folgenden an freiem O_2 ärmeren bzw. freien Reduktionszone dagegen laufen alle hydrogeochemischen Prozesse in einem reduzierenden Milieu ab, was sich entscheidend auf die Interphase-Reaktionen auswirkt.

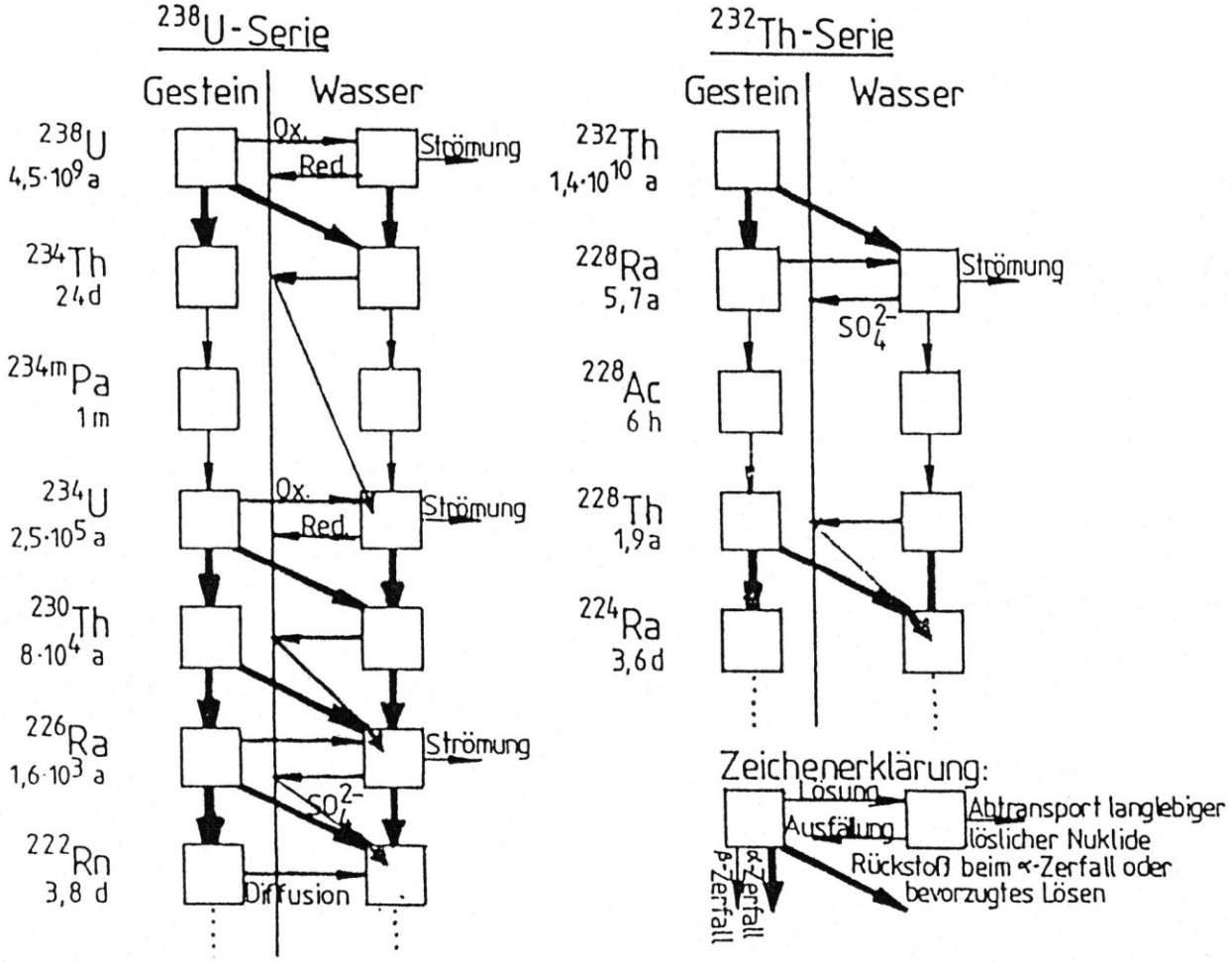


Abb. 3: Schematische Darstellung des Verhaltens einiger Zerfallsprodukte von ^{238}U und ^{232}Th im Grundwasserleiter (nach F. Buheitel, unveröff.).

2.3.3 Verhalten von Radium bei Anwesenheit von Kolloiden und Tonmineralen

Kolloide sind sehr kleine feinst verteilte Partikel aus Ton- oder anderen Mineralien, SiO_2, Eisenhydroxiden oder organischem Material, die über längere Zeit im Grundwasser stabil sind. Spurenelemente wie Radium können an diese Teilchen sorbiert werden und an ihnen im Grundwasser über weite Strecken transportiert oder z. B. bei einer pH- oder Salinitätsveränderung mit ihnen ausgefällt werden. Die Konzentration der Kolloide im Grundwasser ist eine Funktion von Gesteinszusammensetzung (Tonmineral-, Silikat- und Eisengehalt) und Mineralisation des Wassers. Untersuchungen zur Hydrolyse der Aktiniden ergaben, dass diese häufig in kolloidaler Form ins Grundwasser übergehen (LIESER et al., 1990). Für Radium sind bisher keine derartigen Untersuchungen veröffentlicht. Es wird davon ausgegangen, dass Radiumionen wegen ihrer 2-Wertigkeit nicht so häufig kolloidal auftreten, wie die meist 3- bis 5-wertigen Aktiniden. Untersuchungen der Arbeitsgruppe KIM (Radiochemie Garching) zeigen aber, dass Barium, welches sich dem Radium chemisch am ähnlichsten verhält, in huminstoffhaltigen Wässern zu 50-75% mit Kolloiden transportiert wird (frdl. mündl. Mitt. P. Zeh, Inst. f. Radiochemie, Garching).

Huminstoffe bilden Teilchen von geringer Größe (<2µm) und vermögen Wasser und andere Moleküle sowie Ionen irreversibel anzulagern, Schwermetalle z. T. auch irreversibel als Komplex, z. T. sind sie an Tonminerale und Oxide sorbiert.

Huminsäuren sind in Wasser schwer löslich und bilden auch mit mehrwertigen Kationen schwerlösliche Verbindungen, die Humate. Diese sind in NaOH besser löslich. Humine sind in kalter NaOH unlöslich.

Die *Fulvene*, welche ebenfalls kolloidal auftreten, enthalten gekreuzt konjugierte Doppelbindungen, die besonders reaktionsfähig sind. Fulvosäuren sind nicht säurefällbar. Sie liegen oft in adsorbierter Form vor, gebunden an Eisen- und Al- Oxide, Tonminerale und höhermolekulare organische Verbindungen.

Sie stellen Verbindungen aus Peptiden, Ligninen oder Cellulosen dar. Metall-, N- oder H-Kationen stellen die Verbindung zu negativ geladenen Tonmineralen her. Laut ^{14}C-Altersbestimmungen in Mooren und Schwarzerde können Fulvosäuren mehr als 5000 Jahre alt werden (SCHEFFER, 1989).

Die *Kationenaustauschkapazität* (KAK) der Huminstoffe beträgt 50000 – 75000 mmol/kg. Die KAK der Humine ist kleiner als die der Humate, aber größer als die der Fulvate.

Zum Vergleich die KAK der Tonminerale (in mmol/kg):

Dreischichttonminerale	:	200 bis 2000
Al-, Fe-, Mn-Oxide	:	10 bis 50
Zweischichttonminerale	:	bis 150

2.3.4 Stofftransport und Adsorption

Der Übergang von Radium ins Grundwasser erfolgt sowohl durch Lösung von der Gesteinsoberfläche als auch durch Rückstoß (recoil) beim radioaktiven Zerfall des Thoriums (siehe 2.2.1). Hat die Trennung von der Gesteinsoberfläche stattgefunden, so wirken dispersive und konvektive Kräfte des Grundwassers auf das Radium ein. Es wird einerseits durch Diffusion, andrerseits durch die gravitativ bedingte, dispersiv wirkende Grundwasserbewegung selbst, weitertransportiert. Da die Diffusion auf osmotischen Kräften beruht, wirkt sie so lange weiter, bis die Konzentration des gelösten Radiums im Grundwasser völlig ausgeglichen ist (BRDICKA, 1985). Ein völliger Ausgleich kann aber für den hier betrachteten Zeitraum nicht in Frage kommen, da ständig neues Ra nachproduziert wird und auch die Grundwasserbewegung als ausgleichsstörender Faktor eine Rolle spielen kann.

Im Porengrundwasserleiter spielt die korngerüstbedingte Dispersion, die ihre Ursachen in der unterschiedlichen Durchströmung willkürlich angeordneter Porenkanäle hat, eine große Rolle (Abb. 4). Die so genannte Makrodispersion bezeichnet den viel komplexeren Stofftransport in einem inhomogen aufgebauten Kluft- oder Kluft-/Poren-Grundwasserleiter (SPITZ, 1985). Hier müssen zur Beschreibung eines dispersiven Transports in Strömungsrichtung die statistische Lageverteilung, die Häufigkeit, die Erstreckung und die Öffnungsweite von Klüften und Schichtfugen berücksichtigt werden.

Zwischen der mittleren Migrationsgeschwindigkeit eines Stoffes (u`) und der mittleren Migrationsgeschwindigkeit (Abstandsgeschwindigkeit) des Grundwassers (u) besteht nach TJUTJUNOVA (1976) folgende Beziehung:

$$u` = u/(1+k)$$

Wie in Kapitel 2.3.2 dargelegt, gibt es die unterschiedlichsten Formen in denen Radium in einem Grundwasserleiter migrieren kann. Diese beeinflussen in erster Linie sein Migrationsverhalten.

Radium kann aber auch an die Gesteinsoberflächen oder an im Grundwasserstrom treibende Kolloide adsorbiert werden, sofern solche vorhanden sind. Da also auch die Adsorption für das geochemisch-hydrochemische Verhalten von Radium eine große Rolle spielt, soll hier kurz auf ihr Wesen eingegangen werden.

Nach der Langmuir'schen Adsorptionsisotherme beschränkt sich die Adsorption gewöhnlich auf die Bildung einer einmolekularen Oberflächenschicht, da dann die Bindekräfte der Oberflächenatome des festen Stoffs abgesättigt sind. Bei Kolloiden bildet sich auf den Grenzflächen eine elektrische Doppelschicht aus. Innen sind sie positiv geladen, außen negativ. Je höher die Ladung ist, desto mehr Fremdionen können adsorbiert werden bzw. je höher bei gegebener Temperatur die Konzentration des zu adsorbierenden gelösten Stoffes in der an das feste Adsorptionsmittel angrenzenden Lösungsphase ist, desto größer ist auch die an der festen Oberfläche adsorbierte Stoffmenge, da es sich um einen Gleichgewichtszustand handelt. Die adsorbierte Stoffmenge kann aber mit steigender Konzentration nur so lange zunehmen, bis die ganze feste Oberfläche belegt ist.

Daher nähert sich die je Flächeneinheit des Adsorptionsmittels adsorbierte Stoffmenge einem bestimmten Sättigungswert, nämlich dem der maximalen Oberflächenbegrenzung. Mathematisch wird diese Beziehung entweder durch

$$a = \frac{c_{ao} * c}{k + c}$$

die Freundlich-Isotherme: $a = k * c^n$,

oder die lineare Isotherme: $a = k * c$

(SPITZ, 1985)

zum Ausdruck gebracht, in welcher ***a*** die je Oberflächeneinheit adsorbierte Masse und ***c*** die Konzentration (bzw. den Partialdruck) des zur Adsorption kommenden Stoffes bedeutet, während ***k*** und ***n*** Konstanten sind, die bei gegebener Temperatur von der Natur und Beschaffenheit des Adsorptionsmittels (Adsorbens) und des zu adsorbierenden Stoffes (Adsorbendum) abhängen und damit die Verschiedenheiten der Oberflächenaffinitäten zwischen Adsorbens und Adsorbendum zum Ausdruck bringen (HOLLEMANN, 1985).

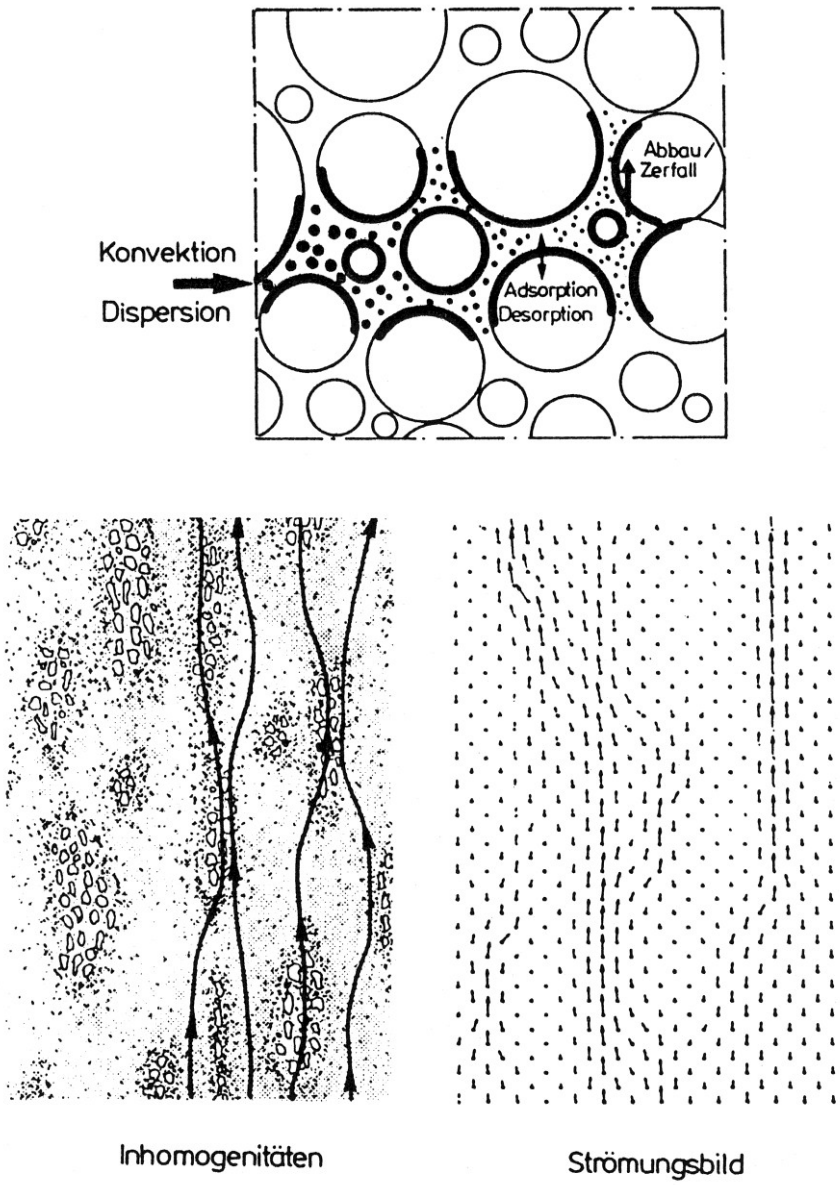


Abb. 4: Konvektion und Dispersion (oben) sowie das Strömungsbild (unten) in einem natürlichen Porengrundwasserleiter (aus SPITZ, 1985)

Die Ionenart, die mit einem der Eigenionen die am schwersten lösliche Verbindung eingeht, wird am stärksten adsorbiert.

Ionen-Adsorption ist reversibel, adsorbierte Ionen sind austauschbar. Der Austausch erfolgt in äquivalenten Mengen (d.h. unter Berücksichtigung der Wertigkeit), z.B. $6K^{+}$ gegen $3Ca^{++}$ oder $2Al^{+++}$, $2NO_3^{-}$ gegen $1SO_4^{--}$.

Die Zeit und die Art des physikalischen Kontaktes spielt neben der Oberflächenbeschaffenheit bei der Adsorption eine Rolle.

Nach TJUTJUNOVA (1976) erfolgt die Adsorption von Stoffen durch Lockergesteine und durch Hydroxid-Koagulate von Elementen mit wechselnder Wertigkeit in drei Stadien. Zuerst diffundieren die Komponenten in die Hydrathülle, welche das Lockergesteins - oder Koagulat - Teilchen umgibt. Danach erfolgt ihre Adsorption auf der Teilchenoberfläche. Sind Mikro- und Ultramikroporen vorhanden, diffundieren die Stoffe in diese hinein, so dass die Adsorption das ganze Teilchen umfasst.

Die Adsorptionsgeschwindigkeit hängt vom Sorbenten, vom sorbierten Stoff und dessen Konzentration sowie von der Filtergeschwindigkeit ab.

2.3.5 Das Verhalten von Radium bei Anwesenheit von Eisen und Mangan

Die Elemente Eisen und Mangan kommen wegen ihrer wechselnden Wertigkeit in vielen verschiedenen Phasen im Grundwasser vor. Experimentelle Untersuchungen zeigen, dass ihre Ausfällung i.W. vom Redoxpotential und pH des Wassers abhängt (TJUTJUNOWA, 1976).

Beim Eintritt in oberflächennahe Grundwasserbereiche (Oxidationszone) oder in den Bereich eines bewetterten Bergwerkstollens gelangen Grundwässer in ein Milieu mit freiem Sauerstoff, das u.a. zur Ausfällung von Eisen- und Manganhydroxiden führt. Diese Oxidhxdroxid- oder Hydroxidmasse hat eine schleimige bis dünnbreiige Konsistenz und meist die typische Rostfarbe des Eisens bzw. die Schwarzfärbung des Mangans. Da sie in den oberflächennahen Grundwässern eine große Rolle für die Löslichkeit des Radiums spielt, wird im Folgenden auf ihre Genese und die diese beeinflussenden Parameter eingegangen.

2.3.5.1 Hydrolyse des Eisen-III

Die Fällungsreaktionen des Eisens und Mangan sind vor allem Redoxreaktionen, die mit Elektronenübergang verlaufen. Außer bei sehr niedrigem pH-Wert unterliegen eisenhaltige Lösungen immer einer hydrolytischen Polymerisierungsreaktion. Diese beinhaltet einen Protonenverlust des ursprünglichen Hexa-Aquo-Ions $Fe(H_2O)_6^{3+}$, wobei Hydroxo- und Oxo-Verbindungen gebildet werden. Dieser Prozess beginnt sofort nach der Lösung des Eisens und setzt sich kontinuierlich über einen längeren Zeitraum fort.

Werden einem wässrigen eisenhaltigen System OH^--Ionen (Base) zugefügt, kann die Hydrolyse schnell ausgelöst werden. Zunächst entstehen mono- und dinukleare Spezies. Mit der Erhöhung des OH/Fe-Verhältnisses bilden sich mehr kleine labile polynukleare Spezies, wobei der pH-Wert gleichzeitig sinkt. Wird das Milieu saurer entstehen höhernukleare Spezies (vgl. CORNELL et al., 1989a).

2.3.5.2 Bildung von Eisenhydroxidniederschlägen auf Gesteinsoberflächen und ihre Alteration

Beim Übergang von Grundwässern aus einem eher reduzierenden in ein oxidierenderes Milieu -also bei Zutritt von freiem Sauerstoff, oder bei der Zumischung eines Grundwassers mit positiverem Redoxpotential- werden das im Grundwasser vorhandene Eisen und Mangan aufoxidiert. Aus den Ionen, Komplexen oder Kolloiden entstehen Sole, die bei Erhöhung der Konzentration als Gele ausgefällt werden. Die Gele kondensieren anschließend unter Wasseraustritt.

Laborversuche (vgl. CORNELL et al., 1989a) zeigten, dass die Zugabe von eisenhaltiger Lösung mit genügend basischem Charakter zur Ausfällung von Ferrihydrit führten. Dieses kann sowohl im Fe(II)- als auch im Fe(III)-System entstehen. Es ist thermodynamisch instabil und wird mit der Zeit in den meisten Fällen in die stabileren kristallineren Oxide α-FeOOH=Goethit (Lösung/Wiederausfällung) und α-Fe_2O_3=Hämatit (Dehydritisierung/interne Umordnung) überführt.

Bei Anwesenheit von Mangan kann dieses an Goethit oder *Lepidokrokit* (τ-FeOOH) adsorbiert werden. Ähnlich sollte es sich mit Akaganeit (ß-FeOOH) verhalten.

In Grundwässern sind üblicherweise alle Eisenverbindungen außer Hämatit metastabil. Die thermodynamischen Bewertungskriterien für die Stabilität der festen Phasen gelten

jedoch nur für Wässer mit relativ konstanter Zusammensetzung und solange Fest- und Flüssigphase im Gleichgewicht sind. Je länger sich ein System nicht im thermodynamischen Gleichgewicht befindet, desto größer ist die Wahrscheinlichkeit der Anhäufung von metastabilen Verbindungen in den Fällungsprodukten. Mit der Ausfällung beginnen jedoch sofort Alterationsprozesse. Das kolloidale $Fe(OH)_3$ z.B. beginnt sofort bei der Koagulation zum Gel zu Hämatit zu kristallisieren.

2.3.5.3 Parameter welche die Hydrolyse, die Bildung von Niederschlägen und die Alteration beeinflussen

Die Kondensation und beginnende Kristallisation des Fe-Hydroxid-Koagulates (Hydrogoethit) führt zu einer starken Verminderung seiner Sorptionskapazität. Die weitere Kristallisation, die von einer Abgabe des gebundenen Wassers begleitet wird, führt zu einer Verminderung der Gesamtoberfläche des Niederschlags und folglich wieder zu einer Verminderung seiner Sorptionskapazität (kapillar gebundenes Wasser kann jedoch nur bei erhöhten Temperaturen entfernt werden). Gleichzeitig verändern sich die Sorptionseigenschaften des Sorbenten. Vermutlich existieren spezifische Adsorptionsplätze für unterschiedliche Ionen, so dass sich die einzelnen Adsorbenda nicht gegenseitig von den Plätzen verdrängen, es sei denn, es kommt zu einer völligen Erschöpfung der Sorptionskapazität.

Nach VDOVENKO (1975) hängt der Gehalt an Radium, der mit den Eisenhydroxiden ausgefällt wird, in einem großen Ausmaß vom pH-Wert und weiterhin vom Radiumgehalt des Grundwassers ab. KURBATOW (1932) beschreibt, dass bei einem pH-Wert von 8,25 Radium zu 100% mit Eisenhydroxid aus einer Lösung ausgefällt wird. Die Anwesenheit von Sulfationen behindert diese Ausfällung. Versuche von KURBATOV (1932) ergaben, dass bei Abwesenheit von Sulfationen ca. 50% des Radiums an Eisenhydroxide gebunden ist, während die Anwesenheit von Sulfationen die Bindung/Adsorption von Radium auf ca. 4-5% erniedrigt. Auch Kationen mit einem gewissen Desorptionsvermögen erniedrigen das Adsorptionsvermögen von Eisenhydroxiden gegenüber Radium und zwar in der Reihenfolge $H^+ > Mg^{2+} > Ba^{2+} > Sr^{2+} > Ca^{2+} > K^+ > Na^+$.

Hohe Radiumkonzentrationen in marinen Schlämmen werden der Radiumadsorption an langsam ausfallende Eisenhydroxide zugeschrieben (IWASAKI & MATSUDA, 1951).

Bei Fällung von Fe-Hydroxiden auf den Oberflächen von Kaolinit- und Hydroglimmer-

Teilchen wird deren Sorptionskapazität erhöht, während eine Fe-Hydroxid-Ausfällung auf Montmorillonit-Teilchen deren Sorptionskapazität erniedrigt.

Bestimmte Kationen mit entsprechendem Ionendurchmesser wie Al^{3+}, Mn^{2+}, Cu^{2+}, Co^{2+}, Ni^{2+} und Zn^{2+} können Eisen sowohl bei der Hämatit- als auch bei der Goethitbildung diadoch ersetzen. Dabei entstehen z.T. auch neue Mineralphasen, wie z.B. Spinelle. Durch diesen Vorgang kann eine Verzögerung der Alteration eintreten (CORNELL et al., 1989a).

Organische Substanzen, die z.B. in Form von Huminsäuren auftreten, können ebenfalls von Einfluss auf das Alterationsverhalten der Hydroxide sein. CORNELL et al. (1989b) untersuchten in leicht reduzierendem saurem Milieu den Einfluss von L-Cystein und fanden heraus, dass bei dessen Gegenwart bei gegebenem Cystein/Eisen-Verhältnis Lepidokrokit (γ-FeOOH) entsteht. Normalerweise wird dieses Mineral durch Oxidation eines Fe(II)-Systems gebildet. Je nach Cystein/Eisen-Verhältnis können sich aber auch Goethit oder Hämatit bilden. Bikarbonationen wiederum unterdrücken die Lepidokrokitbildung und Mn verzögert den Kristallisationsprozess im Cystein/Eisen-Hydroxid-System. Bei der gemeinsamen Ausfällung von Mn und amorphen Fe(III)-Hydroxiden wird die Redoxreaktion mit Cystein wegen des diadochen Einbaus von nicht reduzierbarem Mn(II) für Fe(III) behindert (vgl. CORNELL et al., 1990). Hier können je nach mineralogischer Zusammensetzung des Grundwassers Goethit, Hämatit, Hausmannit (Mn_3O_4), Rhodochrosit ($MnCO_3$) und Manganit (γ-MnO(OH)) entstehen (siehe auch Tab. 5 in Anhang B).

Die Anwesenheit von Silikatspezies beeinträchtigt im alkalischen Milieu die Bildung von Goethit und Hämatit, indem die Auflösung von Akaganeit (ß-FeO(OH)) behindert wird. Dabei modifizieren Silikate die Morphologie von Goethit, jedoch nicht die von Hämatit (vgl. CORNELL & GIOVANOLI, 1990). Die Wechselwirkung zwischen Mangan und Akaganeit bei pH-Werten zwischen 7,5 und 8,5 führt laut CORNELL & GIOVANOLI (1991) zur Ausfällung des Mangans als Manganit. Die Auflösung von Akaganeit wird hierbei von adsorbierten Manganspezies behindert.

Außerdem spielen mikrobielle Lebensgemeinschaften an Grenzflächen (Biofilme) eine wesentliche Rolle bei der Entstehung der Fe- und Mn-Hydroxide.

2.3.5.4 Radium-Adsorption an Eisen- und Manganhydroxide

Bei der Ausfällung der Fe- und Mn-Hydroxide werden Fremdionen, wie z.B. Radium mitgefällt. Bei einer Mitfällung gelangen Fremdionen -in diesem Fall Ra^{2+}- im Lauf der Abscheidung in den Niederschlag.

AMES et al. (1983) machten eine vergleichende Studie zur Uran- und Radium-Adsorption an amorphe Eisenhydroxide. Hier wurde das Adsorptionsverhalten für Reaktionen in Kochsalzlösung und in Natriumhydrogenkarbonatlösung bei unterschiedlichen Temperaturen und pH-Werten geprüft. Die Freundlich-Konstanten und Freundlich-ähnliche Konstanten wurden bestimmt (vgl. Tab. 6). Es zeigte sich, dass die Adsorption von Radium an die Hydroxide mit steigender Temperatur bei beiden Lösungen ansteigt. Weiterhin zeigte sich, dass eine Zugabe von Ca^{2+}und Ba^{2+} signifikante Effekte für die Ra-Adsorption bewirkte. Zusammenfassend stellten die o.g. Autoren für eine gemeinsame Migration von U und Ra in (Grund-) Wässern fest:

- bei hoher Gesamtmineralisation der Wässer und geringem Anteil an Erdalkalien: geringe U-Adsorption und starke Ra-Adsorption;
- bei niedriger Gesamtmineralisation und geringem Anteil an Erdalkalien: geringe bis starke U- und Ra-Adsorption;
- bei niedriger Gesamtmineralisation und hohem Anteil an Erdalkalien: bevorzugte U-Adsorption, geringere Ra-Adsorption;
- bei hoher Gesamtmineralisation und hohem Anteil an Erdalkalien: niedrige Adsorptionsraten für U und Ra.

Es ist zu beachten, dass sich in einer natürlichen Umgebung verschiedene Lösungs- und Fällungsprozesse sowie Adsorptions- und Desorptionsprozesse gegenseitig beeinflussen. Kolloidales Mn-Dioxid adsorbiert z.B. aus einer sauren Ba-Ra-Lösung Radium bevorzugt gegenüber dem Barium. Kolloidale Kieselsäure adsorbiert Radium bei neutralem pH-Wert zu 86-100% aus einer $Ba(Ra)Cl_2$-Lösung.

In Folge einer Akkumulation von Radium auf den Gesteinsoberflächen wird verstärkt Radon produziert, das von diesen grundwassernahen "Startpositionen" aus leicht ins Grundwasser abgegeben werden kann. Durch die Sorption von Radium einerseits und die erhöhte Produktion von Radon andrerseits liegt damit im Grundwasser ein stark erhöhtes

$^{222}Rn/^{226}Ra$-Verhältnis vor.

Ergebnisse von Untersuchungen hierzu sind Kapitel 8 zu entnehmen.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass Ra **relativ immobil** ist

- bei hohem pH-Wert und hohem Redoxpotential wenn:
- ein hoher SO_4^{2-}-Gehalt im Grundwasser gegeben ist, bzw. bei Sulfatsättigung und gleichzeitiger Abwesenheit von Ba-Ionen,
- bei Anwesenheit von O_2 und Erdalkalien aus Sulfid Sulfat wird, durch das Ra mitgefällt wird,
- Hydrogenkarbonat in entsprechender Konzentration vorhanden ist,
- bei Anwesenheit von O_2 Fe- und Mn-Oxidhydroxide ausgefällt werden, mit denen es mitgefällt wird und
- Ra-Ionen bei Anwesenheit von Tonmineralen in deren Zwischenschichten eingelagert werden.

Dagegen ist Ra **relativ mobil** wenn:

- ein niedriger pH-Wert und ein niedriges Redoxpotential gegeben sind,
- zusätzlich eine entsprechende Konzentration an Fe-/Mn-Kolloiden, kolloidale Kieselsäure bzw. organ. Kolloide vorhanden sind, die Ra komplexieren,
- eine hohe Mineralisation des Wassers gegeben ist verbunden mit einem schwachen Dissoziationsgrad der Wasserinhaltsstoffe und Ra z.B. als locker gebundenes $Ba(Ra)SO_4$ migriert.

3. DIE RADIUM-ISOTOPENVERHÄLTNIS-METHODE ALS HILFSMITTEL FÜR DIE AQUIFERDIAGNOSE

Eine umfassende Aquiferdiagnose wird aufgrund geophysikalischer, hydraulischer, hydrochemischer und isotopenhydrologischer Untersuchungen erstellt. Die im Folgenden vorgestellte neue Radium-Methode kann ähnlich wie konventionelle Isotopenmethoden Aufschluss über Grundwassermischsysteme geben, die infolge hydraulischer Veränderungen im Grundwasserleiter entstehen.

Mit Hilfe dieser Methode können Mischsysteme erkannt werden, die von den konventionellen Isotopenmethoden "übersehen" werden.

Weiterhin sind mit Hilfe der Radium-Methode zusätzliche Aussagen über die Speicher- und Leitungseigenschaften eines Grundwasserleiters möglich.

Die Methode beruht darauf, dass

a) Grundwassersysteme eine bestimmte Ra-isotopische Markierung besitzen,

b) die Radium-Isotope sehr unterschiedliche Halbwertszeiten haben und

c) infolge der hydraulischen Veränderungen verschieden markierte Systeme vermischt werden.

Im Folgenden soll deshalb zunächst kurz auf die Grundlagen der Hydraulik eingegangen werden.

3.1 Grundlagen der Hydraulik

Hydraulik in der Hydrogeologie ist die Lehre von den Durchlässigkeits- und Leitfähigkeitseigenschaften eines Grundwasserleiters. Ein Grundwasserleiter wiederum ist als eine Gesteinsabfolge definiert, die fließfähiges Grundwasser enthält. Grundwasser ist im Gestein fließfähig, wenn bestimmte Leiter- und Speichereigenschaften gegeben sind. Zu den Grundlagen der Hydraulik vgl. z.B. HÖLTING, 1989, FREEZE & CHERRY, 1979.

3.1.1 Permeabilität (k)

Die Durchlässigkeit oder Permeabilität eines Gesteins ist ein Maß für seine Fähigkeit Fluide[6)] zu transportieren. Die Permeabilität ist eine gesteinsspezifische Eigenschaft, welche von der Natur des durchfließenden Grundwassers unabhängig ist.

Sie hängt von der Anzahl, der Größenordnung und der Verbindung der Hohlräume im Gestein

ab.

$$K = \frac{q \cdot \mu}{J \cdot \rho \cdot g}$$

q = spezifischer Durchfluss

μ = dynamische Viskosität

J = hydraulischer Gradient

ρ = Dichte des Fluids

g = Erdbeschleunigung

3.1.2 Weitere hydraulische Parameter

Die hydraulische Leitfähigkeit ist die Eigenschaft eines Gesteins unter bestimmten Druckverhältnissen zu einem bestimmten Grad durchfließbar zu sein. D.h., dass sie sowohl von den Gesteins- als auch von den Fluideigenschaften bestimmt wird. I.W. hängt sie aber vom nutzbaren oder effektiven Hohlraumvolumen ab. Die Hohlräume in einem Gestein sind in ihrer Größe und Form -je nach Genese des Gesteins- sehr unterschiedlich. Lockersedimente haben nur Porenhohlräume, während verfestigte Sedimente Kluft- und Porenhohlräume und Magmatite nur Klufthohlräume haben. Bei stark verfestigten Sedimenten - z.B. Sandsteinen- treten die Porenhohlräume bezüglich ihrer hydraulischen Leitfähigkeit allerdings gegenüber den Klüften in den Hintergrund.

Die hydraulische Leitfähigkeit wird als Durchlässigkeitsbeiwert (k_f-Wert) berechnet. Sie bezieht sich ebenso wie die Permeabilität auf einen Punkt im Grundwasserleiter:

$$k = \frac{q}{J} = \frac{Q}{A \cdot J}$$

Q = Durchfluss (l/s)

A = Querschnittsfläche (m^2)

während die Betrachtungsweise bei der *Transmissivität T* zweidimensional ist, weshalb auch von "Profildurchlässigkeit" (vgl. z.B. LANGGUTH & VOIGT, 1980) gesprochen wird:

$$T = \frac{q \cdot H}{J} = \frac{Q}{B \cdot J}$$

H = Mächtigkeit des Grundwasserleiters

B = Breite des betrachteten Querschnitts

Die Strömung einer Flüssigkeit hängt in hohem Maß von der inneren Reibung (Viskosität) ab. Sie kann laminar (wirbelfrei, glatt durchströmend) oder turbulent (wirbelnd) erfolgen. Bei einer laminaren Strömung bildet sich in einem rohrförmigen Hohlraum ein parabolisches Geschwindigkeitsprofil aus, da die Teilchen in der Hohlraummitte sich schneller bewegen, als die an der Hohlraumwandung, da sie dort mehr oder weniger haften können. Solche Verhältnisse sind in der Natur am ehesten noch bei Porengrundwasserleitern gegeben. Bei den sehr anisotropen Kluftgrundwasserleitern wechselt die Hohlraumgröße ständig, so dass auch die Fließgeschwindigkeit sehr ungleichmäßig ist und es bei einer bestimmten Kluftöffnungsweite zu einer turbulenten Strömung kommen kann. Bei einem dichten Netz von relativ großen Hohlräumen, oder bei extrem langsamen Grundwasserfließgeschwindigkeiten in größeren Tiefen kann auch im Kluftgrundwasserleiter eine laminare Strömung entstehen.

3.2 Hydraulische Methoden für die Aquiferdiagnose

Um das Fließverhalten des Grundwassers in einem bestimmten Grundwasserleiter oder mehreren durch eine Bohrung erschlossenen Grundwasserleitern beurteilen zu können, werden hydraulische Tests vorgenommen. Dabei handelt es sich in der Regel um ein- oder mehrstufige Pumpversuche mit Wiederanstiegsmessung (vgl. 3.2.1), Auffüllversuche oder Tracerversuche (vgl. 3.2.2). Als Voraussetzung für die Arbeit mit solchen Tests wird von folgenden Annahmen ausgegangen:

- Es wird ein hinreichend großes Teilgebiet definiert, das so genannte Repräsentative Elementarvolumen (REV). Dieser Bereich wird als Kontinuum betrachtet.
- Ein zu untersuchender Bereich des Grundwasserleiters im Festgestein muss genügend groß sein um ein Kontinuum darzustellen.

3.2.1 Pumpversuche

Pumpversuche werden entweder einstufig oder mehrstufig durchgeführt, d.h. entweder nur mit einer Pumprate während der gesamten Pumpversuchsdauer oder mit unterschiedlichen (meist ansteigenden) Pumpraten.

Zur Erstellung einer Brunnencharakteristik, d.h. eines Graphen, der die Beziehung zwischen Entnahme und Spiegelabsenkung im Brunnen darstellt, wird mehrstufig jeweils bis zum stationären Zustand gepumpt (vgl. auch GLA, 1994).

Einfacher ist es, den quasistationären Zustand nicht abzuwarten, sondern eine geohydraulische Auswertung im instationären Zustand vorzunehmen.

3.2.1.1 Datenerhebung

Während des Abpumpens werden die Grundwasserstände gemessen. Dies geschieht entweder mit einem Lichtlot, oder mittels eines automatischen Druckaufnehmers, der in die Entnahmestelle eingebaut wird. Genauere Daten und mehr Einzelwerte können mit dem Druckaufnehmer erhalten werden. Bei Grundwässern mit hohen Gasgehalten (z.B. CO_2) ist eine Datenerfassung ohne Druckaufnehmer fast nicht möglich, da hier der Grundwasserspiegel durch die Entgasung stark schwankt.

3.2.1.2 Auswertung

Die Auswertung der Daten erfolgt für den quasistationären Zustand durch einfaches Auftragen der Pumpzeit gegen die Grundwasser-Absenkung. Heute wird jedoch häufig nur bis zum instationären Zustand gepumpt. Die graphische Auswertung erfolgt durch Auftragen der Absenkung ***s*** gegen die Zeit bzw. r^2/t auf halb oder doppelt logarithmischem Papier. Mit Hilfe der sog. Theiss'schen Typkurven, die über diese Graphik gelegt werden, kann ein Pumpversuch normalerweise schnell ausgewertet werden. In Fällen, in denen auf diese Weise keine genaue Auswertung möglich ist, kann auch die erste Ableitung des Logarithmus gebildet werden, da hierdurch die Kurvensteigung exakter ermittelt werden kann (vgl. z.B. BOURDET et al., 1983).

Meist wird die Auswertung mittels entsprechender computergestützter Verfahren vorgenommen.

Bei der Auswertung der Kurve ist zu beachten, dass in der ersten Pumpphase das

Grundwasser aus der so genannten Brunnenspeicherung, also das im Brunnen oder Pegel stehende Grundwasser abgepumpt wird. Weiterhin muss der so genannte Skineffekt berücksichtigt werden. Dieser Effekt kommt in den Entnahmestellen zum Tragen, deren nähere Umgebung durch Frakturen/Risse, die beim Abteufen entstanden, bzw. durch Säuern oder Fracen nach dem Abteufen poröser (negativer Skinfaktor) wurde, oder durch verschmieren von Bohrspülung wasserundurchlässiger (positiver Skinfaktor).

Erst nach Wirksamwerden bzw. Überwindung dieser beiden Effekte erfolgt die so genannte radiale Zuströmphase, die für die Auswertung genutzt werden kann. Diese Phase kann in den so genannten quasistationären Gleichgewichtszustand übergehen. Dieser ist dadurch gekennzeichnet, dass ebensoviel Grundwasser der Entnahmestelle zuströmt, wie ihr entnommen wird. Hier gibt es keine weitere Grundwasserabsenkung (vgl. z.B. STOBER, 1986).

Doppelporositäten sind häufig in Festgesteins-Grundwasserleitern gegeben. Hier erfolgt der Grundwasserzustrom zunächst aus den größeren Klüften, anschließend werden die kleineren Kapillaren aktiviert. Nach dieser Phase tritt dann langsam wieder eine Equilibrierung ein.

Die unterschiedlichen Phasen bei Doppelporosität erzeugen unterschiedliche Drücke, die bei der Auswertung mit der doppelt logarithmischen Methode sehr gut am Abflachen der Kurve erkannt werden können.

Allerdings gibt es auch Fälle einer so genannten Pseudodoppelporosität. Dies wurde z.B. bei Pumpversuchen im Opalinuston beobachtet (frdl. mündl. Mitt. U. Hekel). Hier erfolgt eine Abflachung der Kurve infolge eines Einspeisens von Grundwasser z.B. aus Beobachtungspegeln oder Brunnen in der Umgebung der Entnahmestelle in den Grundwasserleiter.

In den Fällen, in denen nicht klar ist, ob es sich um eine echte Doppelporosität oder um eine Pseudodoppelporosität handelt, sollten parallel zum Pumpversuch die Radiumisotope gemessen werden. Die Art der Änderung der Isotopenverhältnisse zeigt auf, welcher von beiden Fällen gegeben ist.

3.3 Veränderung von Radium- und Radonisotopenverhältnissen im Verlauf von Pumpversuchen als Indikatoren für Fließverhalten und Mischung verschieden markierter Grundwässer

Die unterschiedlichen Halbwertszeiten der Radiumisotope stellen die Grundlage für diese neu entwickelten Methoden dar. Die beiden Isotope aus der ^{232}Th-Serie, ^{228}Ra und ^{224}Ra, eignen sich wegen ihrer relativ kurzen Halbwertszeiten von 5,7 Jahren bzw. 3,6 Tagen sehr gut zur Einschätzung von Entwicklungen im Verlauf von kurzfristigen Änderungen der hydraulischen Situation in einem Grundwasserleiter, wie sie im Verlauf von Pumpversuchen gegeben sind. Ein weiterer Vorteil dieser beiden Isotope ist, dass in der ^{232}Th-Zerfallsreihe nur zwei ebenfalls kurzlebige Isotope zwischen ^{228}Ra und ^{224}Ra auftreten, so dass diese Radiumisotope in einem überschaubaren Zeitraum ins Aktivitätsgleichgewicht kommen.

Die unterschiedlichen ^{224}Ra/^{228}Ra-Aktivitätsverhältnisse[9)] in Grundwässern wurden in der Literatur gelegentlich (vgl. z.B. CHERDYNTSEV, 1971) beschrieben, aber bisher nur ansatzweise systematisch gedeutet. ZUKIN et al. (1987) überlegen z.B., ob ^{224}Ra/^{228}Ra-Aktivitätsverhältnisse unter 1 in der Zumischung von einem anderen Grundwasser begründet sein können. Sie schließen weiter, dass ein langer Migrationsweg von Radium von einer Stelle erhöhter Radium-Produktion (Porenraum bzw. Kleinkappilaren) zur Entnahmestelle zu einer Erniedrigung dieses Aktivitätsverhältnisses führen muss.

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten Theorien führen diese Überlegungen weiter und ergänzen sie. Es wird eine in der Praxis anwendbare Methode entwickelt.

3.3.1 Theorien zu den Radium-Isotopenverhältnis-Methoden

Migriert Grundwasser von Punkt A zu Punkt B, so verändern sich

- in einem REV;
- unter gleich bleibenden hydraulischen Bedingungen;
- unter gleich bleibenden hydro- und geochemischen Bedingungen;
- bei homogenem Radionuklidgehalt des Muttergesteins;
- in einem übersichtlichen Zeitraum

der Radiumisotopengehalt und das ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis nicht.

Wenn eine dieser fünf Bedingungen nicht zutrifft, so ändern sich der

Radiumisotopengehalt und das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis.

Das $^{224}Ra/^{228}Ra$ Ausgangsverhältnis kann unterschiedlich sein.

Ist z.B. innerhalb des REV überall die gleiche Aktivität des Muttergesteins gegeben - wobei es keinen wesentlichen Fremdeintrag geben darf - so muss das Isotopenverhältnis um 1 betragen.

Gibt es jedoch einen länger andauernden Eintrag von ^{228}Ra über das migrierende Grundwasser, so wird ^{228}Th an den Gesteinsoberflächen abgelagert, das wiederum verstärkt ^{224}Ra ins Grundwasser produziert. Nimmt die ^{228}Ra-Zufuhr wieder ab, so steigt das $^{224}Ra/^{228}Ra$ Isotopenverhältnis zunächst zwischen 1 und 2, da das ^{228}Th auf den Gesteinsoberflächen weiterhin mehr ^{224}Ra bildet. Von diesen Oberflächen aus kann ^{224}Ra leichter ins Grundwasser gelangen, als wenn es innerhalb des Gesteins produziert wird, wo kein Kontakt zum migrierenden Grundwasser besteht. Nach ca. 5 Halbwertszeiten des ^{228}Th (ca. 10 a) pendelt sich jedoch das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis wieder bei 1 ein.

3.3.1.1 Einschätzung der relativen Fließgeschwindigkeit - Fließzeitmodell -

Eine Änderung der hydraulischen Bedingungen z.B. durch Entnahme von Grundwasser aus einem Bohrloch oder Brunnen führt im einfachsten Fall (Abb. 5a) mit zunehmender Zeit zu einer Abnahme des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses. Dies beruht darauf, dass durch die Entfernung des Grundwassers in der unmittelbaren Bohrlochumgebung ein Potentialgefälle entsteht, das eine schnellere Migration von Grundwasser aus der weiteren Umgebung zum Bohrloch/Brunnen zur Folge hat. Während der Migration zum Bohrloch zerfällt das im Grundwasser vorhandene kurzlebige ^{224}Ra ($t_{½}$=3,6 d) entsprechend den in Tab. 7 nach $N_t=N_o*e^{-t/\tau}$ [2)] errechneten Raten nachweislich, wodurch ein erniedrigtes $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis (vgl. Tab. 8) zustande kommt.

Die "Nachproduktion" von ^{224}Ra aus dem ^{228}Th des durchflossenen Gesteins ist zu gering, um -für die Dauer eines Pumpversuchs- einen merklichen Einfluss auf das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis auszuüben. Zwar entsprechen die Werte in der Natur nach einer bestimmten Fließzeit wegen eventueller Lösungs-/Fällungsprozesse sicher nur selten den in der Tab. 7 errechneten; da die einzelnen Isotope des Radium sich jedoch chemisch praktisch gleich

verhalten, ist davon auszugehen, dass immer gleiche Anteile der jeweiligen Isotope gelöst und gefällt werden. Das Isotopenverhältnis von $^{224}Ra/^{228}Ra$ bleibt damit durch diese Prozesse unbeeinflusst, und erlaubt Aussagen über bestimmte Vorgänge im Grundwasserleiter.

Unter der Voraussetzung, dass die Mutterisotope homogen im und am Gestein des betreffenden Grundwasserleiters verteilt sind und unter der Voraussetzung, dass die Pumprate nicht ständig verändert wird, strebt das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis nach einer gewissen Zeit einen neuen Gleichgewichtszustand an, der dann unter dem ursprünglichen liegt (Abb. 5a, 5b).

Bevor dieser Gleichgewichtszustand eintritt kann -bei gegebenem Ausgangs-$^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis des Grundwassers eines solchen Grundwasserleiters nach einer bestimmten Pumpversuchsdauer- entsprechend Tab. 8 und Abb. 5b die etwaige mittlere Fließzeit vom Herkunftsort des Radiums zur Entnahmestelle abgeleitet werden. Der Vergleich dieser Fließzeit mit der Entnahmedauer, d.h. mit der bisher vergangenen Pumpzeit erlaubt eine zusätzliche Abschätzung der Ergiebigkeit des Grundwasserleiters:

- Liegt die mittlere Fließzeit weit unter der tatsächlichen Pumpzeit, so ist ein sehr ergiebiger Grundwasserleiter gegeben;
- Entspricht die mittlere Fließzeit nahezu der Abpumpzeit, so ist ein relativ unergiebiger Grundwasserleiter gegeben.

Inhomogene Verhältnisse bewirken, dass der o.g. Gleichgewichtszustand nicht eintritt. Dies ist der Fall, wenn ein Grundwasser aus einem System mit etwas anderem Chemismus und damit auch anderen Redox- und pH-Bedingungen in das zunächst aktivierte (bepumpte) System überführt wird. Eine Vermischung zweier solcher chemisch unterschiedlicher Systeme hat eine Änderung der hydrochemischen Verhältnisse und eine Änderung der Radium-Isotopenverhältnisse des entstandenen Mischwassers zur Folge.

Eine Änderung der Radium-Isotopenverhältnisse kann aber auch in der Vermischung zweier hydrochemisch sehr ähnlicher oder gleicher Grundwässer begründet sein, die lediglich unterschiedliche Radiumaktivitäten aufweisen. Aus dem variierenden Chemismus des Grundwassers, dessen komplexe Mischungsvorgänge aus dem resultierenden Mischsystem nicht nachvollzogen werden können, sowie aus der Gesamtaktivität des Radiums können diese Mischprozesse deshalb nicht erkannt werden.

Da sich aber alle Radium-Isotope chemisch gleich verhalten, kann aus ihrem sich ändernden Isotopenverhältnis abgeleitet werden, ob tatsächlich eine Mischung verschiedener Grundwässer stattfand.

Die Zumischung kann sowohl in der hydraulisch aktiven Absenkphase des Pumpversuchs erfolgen, als auch in der Phase des quasistationären Gleichgewichts. In dieser letzten Phase können mittels der $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse noch Informationen über den Grundwasserleiter bzw. das Grundwasser gewonnen werden, die durch rein hydraulische Methoden nicht erhältlich sind.

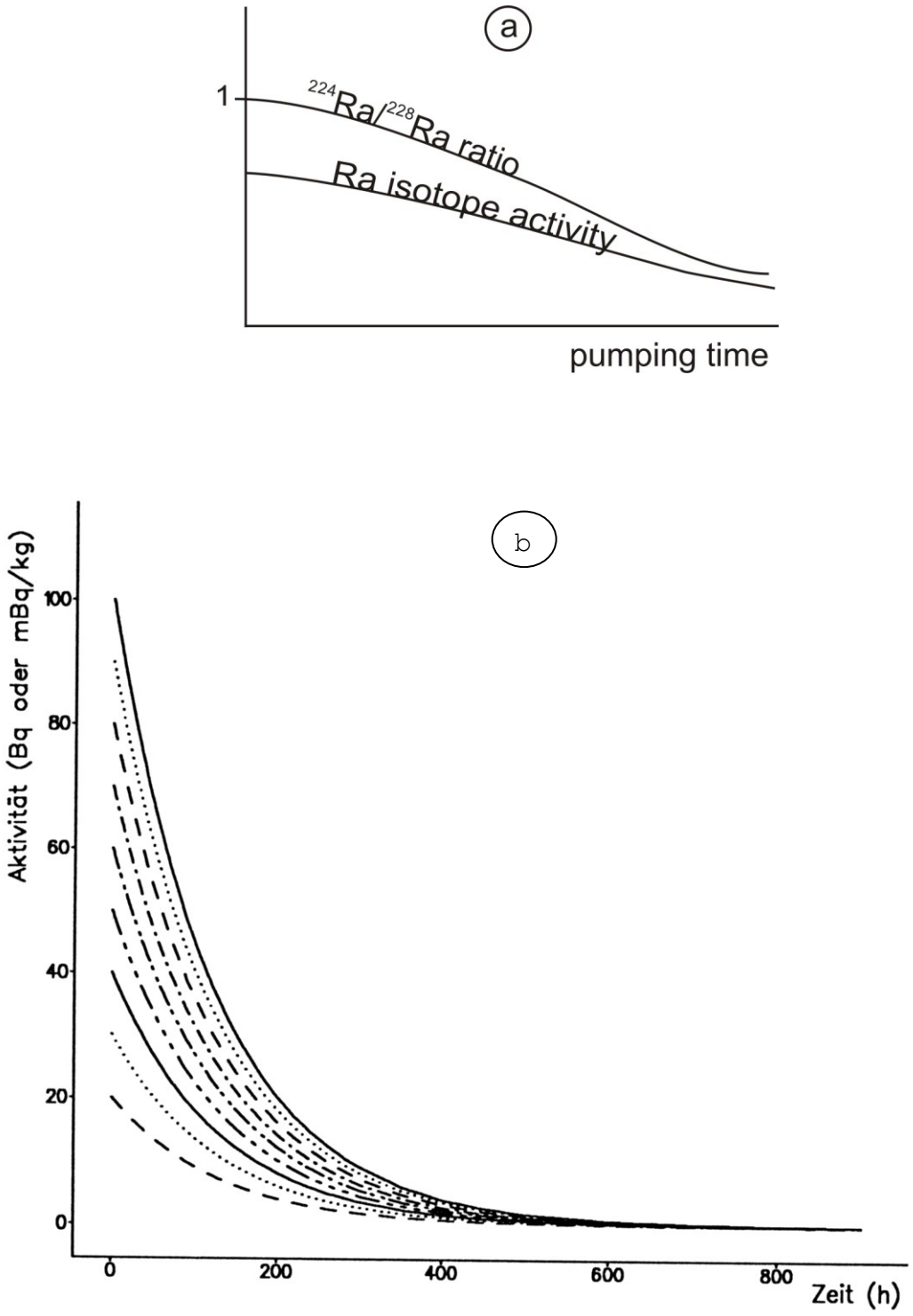


Abb. 5:

a) Entwicklung des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses, wenn ein homogener Aquifer gegeben ist;

b) Zerfall von ^{224}Ra für verschiedene Ausgangsaktivitäten, wenn keine Nachbildung dieses Isotopes stattfindet. Das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis entwickelt unter denselben Bedingungen eine ähnliche Linie.

3.3.1.2 Einschätzung der Zumischung eines fremden Systems - Mischmodelle -

Abb. 6a und 6b zeigen den Fall einer im Verlauf eines Pumpversuchs steigenden Ra-Isotopenaktivität. Das zunächst abgepumpte bohrlochnahe Grundwasser hat in beiden Fällen eine niedrigere Radium-Aktivität als das anschließend hinzugeführte Radium im bohrlochfernen Bereich.

Im Fall (a) hat es aber eine längere Migrationszeit als im Fall (b), weshalb das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis bei a fällt und bei b etwa gleich bleibt.

Wenn die hydraulischen Bedingungen sich nicht ändern, wird sich im Lauf der folgenden Jahre verstärkt ^{228}Th, das beim Zerfall des ^{228}Ra entsteht, aus dem zum Bohrloch fließenden Grundwasser an den Gesteinsoberflächen absetzen. Von dort wird es ^{224}Ra ins Wasser produzieren, d. h., dass das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis sich auch im Fall, der in Abb. 6a dargestellt ist, langfristig 1 nähern wird.

Auf den Abb. 6c und d sind die $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse bei bohrlochnah hoher und bohrlochfern niedriger Aktivität dargestellt. Hier steigt das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis oder bleibt gleich, da beim Zerfall des ^{228}Th, das an den Oberflächen des Aquifergesteins sitzt, in Bohrlochnähe weiterhin viel ^{224}Ra an das Grundwasser abgeben wird. Bei langsamer Grundwassermigration steigt es mehr als bei schnellerer Migration. Ist sowohl eine schnelle Migration und damit starke Verdünnung als auch ein sehr niedriger Radium-Isotopengehalt gegeben, so kann es auch ein Absinken des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses geben.

Im Lauf der folgenden Jahre wird das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis bei gleich bleibenden hydraulischen Verhältnissen ebenfalls sinken, da das überschüssige ^{228}Th ($t_{½}$= 1,9 a) an den Gesteinsoberflächen allmählich zerfällt.

3.3.1.3 Unterscheidung von Doppelporosität, Leakage und scheinbarer Doppelporosität - Doppelporositätsmodell -

Bei manchen Pumpversuchen kann nicht eindeutig geklärt werden, ob eine Stagnation der Absenkung auf zusickerndes Wasser aus dem Hangend - oder Liegendbereich ("Leakage") zurückzuführen ist, oder ob es sich um Grundwasser aus dem Grundwasserleiter (Doppelporosität) selbst handelt (z.B. im Malm: STOBER, 1986). In einem solchen Fall kann die Interpretation der Ra-Isotopenverhältnisse eine Entscheidung bringen.

Abb. 6e zeigt die Entwicklung des Radiumisotopenverhältnisses während der Pumpversuchsphase, in der die Kleinkapillaren bei Doppelporosität aktiviert werden. Wegen der größeren Oberfläche werden in den Kleinkapillaren insgesamt höhere Ra-Gehalte in die Porenhohlräume abgegeben als in großen Klüften. Das Grundwasser aus den Kleinkapillaren fließt beim Abpumpen schneller in den Bereich des Bohrlochs als unter natürlichen Bedingungen, weshalb mehr kurzlebige ^{224}Ra-Isotope "überleben". Damit zeigt die Steigung der ^{224}Ra/^{228}Ra-Linie den Zeitabschnitt an, in dem verstärkt Grundwasser aus den Kleinkapillaren abgezogen wird.

Hier dient das gleich bleibende ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis zur Kontrolle, ob das abgepumpte Wasser aus dem gleichen Bereich des Grundwasserleiters stammt oder ob nicht eventuell Fall 6b und damit ein "Leakage" gegeben ist.

Vor dem Einsatz der Radium-Methode muss in einem solchen Fall genau überlegt werden in welchen Zeitabschnitten des Pumpversuchs mit einem Zufluss von Grundwasser aus den Kleinkapillaren gerechnet werden kann. Wenn während des Pumpversuchs eine genaue Beobachtung der Absenkung möglich ist, genügt es, eine Anzahl von drei Grundwasserproben zu entnehmen: vor, während und nach der Stagnationsphase.

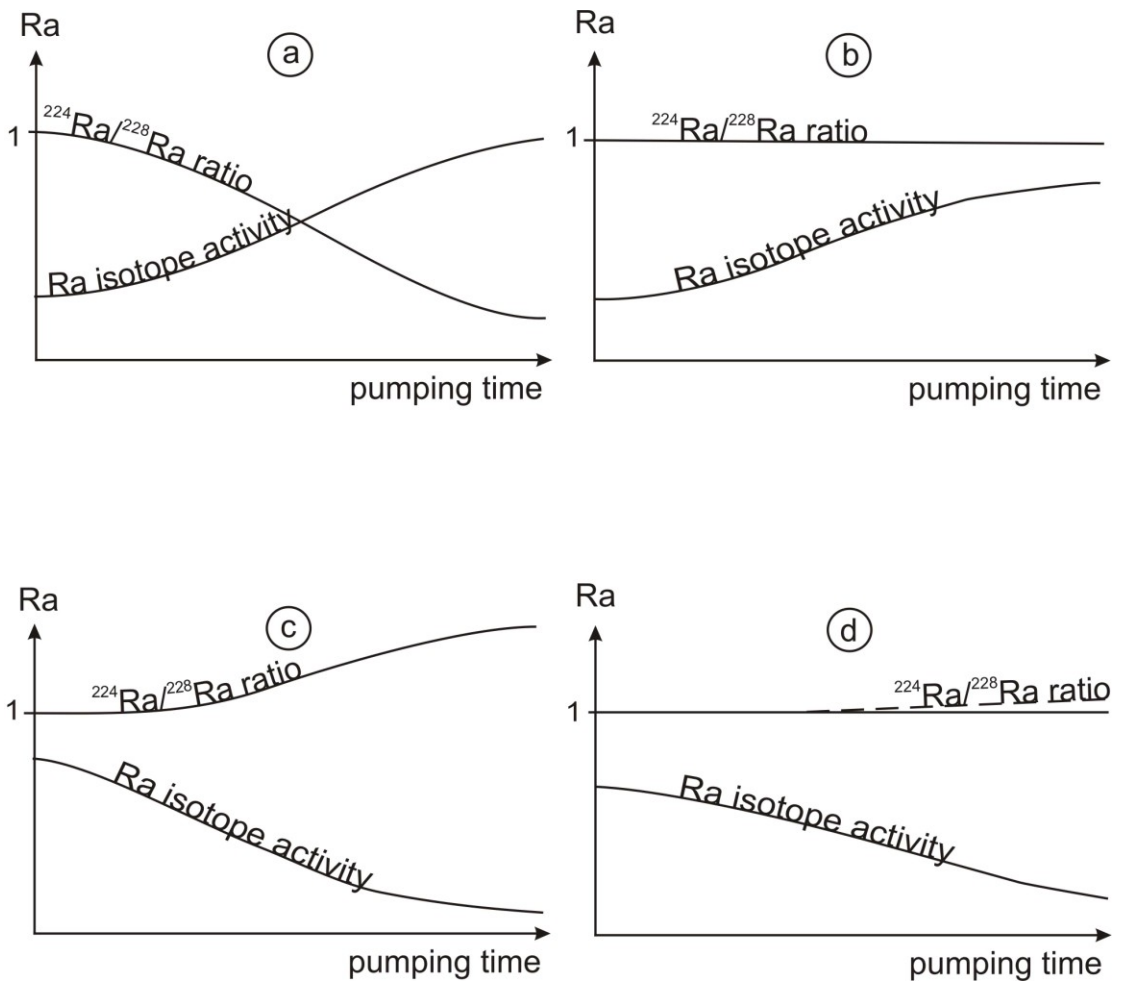


Abb. 6: Abb. a) und b) zeigen den Fall einer im Verlauf eines Pumpversuchs steigenden Ra-Isotopenaktivität bei unterschiedlichen Fließgeschwindigkeiten, Abb. c) und d) den Fall einer im Verlauf eines Pumpversuchs fallenden Ra-Isotopenaktivität (siehe Text).

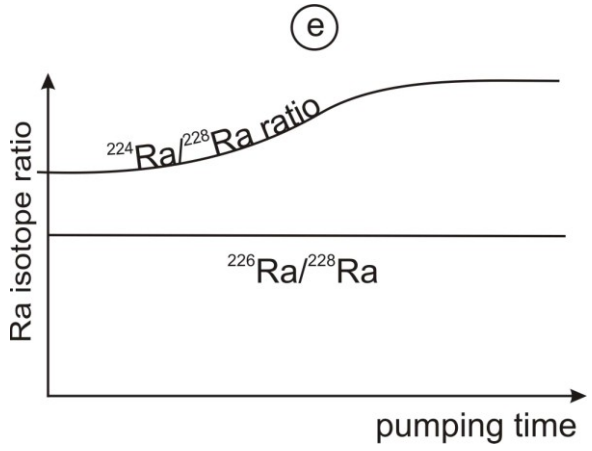


Abb. 6e: Veränderung der Ra-Isotopenverhältnisse im Grundwasser im Verlauf eines Pumpversuchs, wenn ein Doppelporositäts-Grundwasserleiter vorliegt.

3.3.1.4 Methode zum Nachweis anthropogener Radionuklide im Grundwasser - Kontaminationsmodell -

Mit Hilfe des Isotopenverhältnisses $^{224}Ra/^{228}Ra$ in Grundwasser in der Umgebung von anthropogen erhöhten Radium-Vorkommen lassen sich auch Aussagen über die Fließzeit des Grundwassers von einer Eintragsstelle bis zur Entnahmestelle machen.

Migriert solches Radium aus einer Eintragsstelle mit dem Grundwasser in eine Umgebung, die einen niedrigeren natürlichen Radiumgehalt besitzt, so verringert sich mit fortschreitender Zeit aufgrund des schnellen Zerfalls die ^{224}Ra-Aktivität gegenüber der ^{228}Ra-Aktivität. Das Grundwasser in einer gewissen Distanz zur Eintragsstelle hat dann von Beginn des Abpumpens an ein sehr niedriges $^{224}Ra/^{228}Ra$-Aktivitätsverhältnis.

Durch diese Methode können folgende Fragen geklärt werden:

- Gibt es eine anthropogen erhöhte Radionuklidkonzentration im Grundwasser, bzw. gibt es in unmittelbarer Umgebung der Grundwasserentnahmestelle eine Radionuklid-Altlast (z.B. Altlasten aus einem Uranabbau- oder Aufbereitungsbetrieb oder aus einem Betrieb in dem mit thoriumhaltigen Materialien gearbeitet wird)?
- Wie groß ist die mittlere Verweilzeit des Grundwassers, bzw. wie lange dauert der Radionuklidtransport von der Eintragsstelle zur Entnahmestelle?

3.3.1.5 Änderung des $^{222}Rn/^{226}Ra$-Verhältnisses - Redoxmodell -

Eine Möglichkeit zur größenordnungsmäßigen Bestimmung des im Wasser gelösten Anteils an ^{226}Ra im Verhältnis zum an der Gesteinsoberfläche fixierten ^{226}Ra ist die Messung von ^{222}Rn im Grundwasser. Ein großes $^{222}Rn/^{226}Ra$-Verhältnis zeigt einen hohen Anteil an ^{226}Ra an, das an den Gesteinsoberflächen haftet.

Die Abnahme von $^{222}Rn/^{226}Ra$ zeigt an, dass Grundwasser aus reduzierenden Bereichen zugemischt wird, der Anstieg des Verhältnisses zeigt eine Zumischung von Grundwasser aus dem oxidierenden Bereich an.

3.3.1.6 Änderung des ^{222}Rn-Gehaltes - Druckänderungsmodell -

In schwach durchlässigen Grundwasserleitern wie z.B. Tonen findet kaum ein vertikaler Gasaustausch, bzw. eine Entgasung, statt. Unter solchen Bedingungen stellt ein Pegel oder Brunnen eine Art "Entgasungs-Kamin" dar. D.h. bedingt durch das Druckgefälle beim Übergang aus dem (engen) Grundwasserleiter in den nach oben offenen (weiten) Hohlraum eines Bohrlochs (bzw. Brunnens) entweicht das Radon aus der direkten Umgebung der Entnahmestelle in das Bohrloch.

Das Edelgas Radon ist unabhängig von der chemischen Beschaffenheit seiner flüssigen, festen oder gasförmigen Umgebung. Da es extrem gut löslich ist, reagiert es sofort auf alle Bewegungen im Grundwasserleiter. Wird nun Radon im Verlauf eines Pumpversuchs in einem Grundwasserleiter mit homogener ^{226}Ra-Verteilung gemessen, so steigt seine Aktivität so lange an, bis das Wasser aus einem Bereich entnommen wird, der nicht von der Entgasung in den Brunnen oder Pegel betroffen ist.

Umgekehrt zeigt der Anstieg des Rn-Gehaltes an, ob der Grundwasserleiter homogen aufgebaut ist, oder ob es eine vertikale Entweichungsmöglichkeit für Gase gibt.

Für die Anwendung der hier aufgeführten Methoden ist folgendes zu beachten:

1) Die unmittelbare Umgebung eines Bohrlochs ist normalerweise der am besten durchlüftete Bereich des Grundwasserleiters. Deswegen sind häufig Eisen- und Manganhydroxide im Nahbereich des Bohrlochs angereichert, die bei ihrer Fällung Radium aus dem Grundwasser mitfällen. Die daraus folgende Abreicherung von Radium in der unmittelbaren Umgebung eines Bohrlochs muss bei der Bewertung von Radiumuntersuchungen im Verlauf von Pumpversuchen immer berücksichtigt werden. Vor der Entnahme der ersten Probe sollte deshalb -wie es auch für andere Probenahmen üblich ist- das Volumen des Bohrlochinhalts drei mal ausgetauscht sein. Weiterhin ist die Messung des Sauerstoffgehalts und des Redoxpotentials vor Ort als Kontrolle zu empfehlen. Wird die Probe zu früh entnommen, so kann ein Anstieg der Radiumaktivität im Grundwasserleiter vorgetäuscht werden;

2) Für alle oben aufgeführten Modelle gibt es Übergangsfälle, die dann eine genaue Interpretation erschweren. Häufig sind in der Praxis nur Tendenzen von Entwicklungen erkennbar. Gelegentlich treten auch innerhalb eines Pumpversuchs bei Änderungen der hydraulischen Bedingungen unterschiedliche Entwicklungen auf.

Diese können summarisch eine bestimmte Entwicklung bestätigen oder aber die Inhomogenität des untersuchten Bereichs aufzeigen.

4. PROBENAHME, PRÄPARATION UND ANALYSE VON WASSERPROBEN

4.1 Radium in Grundwasserproben

4.1.1 Probenahme

Die Grundwasserprobenahme zur Radium-Untersuchung erfolgt mittels 5 l PE-Behältern, in die etwa 4 l Grundwasserprobe gegeben werden. Um eine Adsorption von Radium an der Gefäßwand zu vermeiden wird das Radium unmittelbar bei der Probenahme von einem zugegebenen Barium-Blei-Sulfat mitgefällt. Als Ausbeutetracer werden gleichzeitig ca. 10 Bq ^{133}Ba zugegeben. Radium wird bei einem hohen Karbonatgehalt des Wassers mit anderen Karbonaten mitgefällt. Da aber das Ra^{2+}-Ion nicht genau in das Bariumkarbonatgitter passt, wird es nicht quantitativ mitgefällt, weshalb für die Fällung ein niedriger pH-Wert eingestellt werden muss.

4.1.2 Präparation

Im Labor wird der Sulfatniederschlag mit EDTA im alkalischen Bereich gelöst und anschließend im schwach sauren Bereich wieder als $BaSO_4$ ausgefällt, so dass das Blei als stabiler EDTA-Komplex in Lösung bleibt. Der $BaSO_4$-Niederschlag wird durch mehrstündiges Rühren in heißer konzentrierter Sodalösung in Bariumkarbonat überführt. Dieses wird mit HCl aufgelöst und das so entstandene Barium-(Radium-)Chlorid eingedampft. Der Trockenrückstand wird in 1 ml H_2O gelöst und mit Instagel (Fa. Packard Canberra) in ein ca. 3 ml fassendes Szintillationsgefäß überführt.

4.1.3 Messung

Die Bestimmung der Probenaktivität erfolgt durch Flüssigszintillation gekoppelt mit einer gamma-spektrometrischen Messung mit einem Germaniumdetektor. Diese beta-gamma-Koinzidenzschaltung erlaubt eine sehr genaue Bestimmung auch niedriger Aktivitäten (vgl. BUHEITEL 1992).

4.2 Radon in Grundwasserproben

4.2.1 Probenahme

Die Radon-Probenahme erfolgt mit Hilfe eines 1 - 2 l Wasserprobe fassenden Edelstahlbehälters in den die Grundwasserprobe unter Förderdruck eingeleitet wird. Datum und Uhrzeit der Probenahme werden für die spätere Auswertung der Messung notiert.

4.2.2 Präparation

Im Labor wird die Grundwasserprobe mit Stickstoff als Trägergas aus dem Edelstahlbehälter in einen Kolben überführt, wo das Probengas bei ca. 60°C unter ständigem Rühren ausgetrieben und über NaOH geleitet wird zur CO_2-Entfernung. Von dort aus wird es weitergeleitet über die Trocknungsmittel Phosphorsäure und Phosphorpentoxid (mit $CoCl_2$ als Farbindikator) und gelangt schließlich in ein U-Rohr mit Aktivkohle. Das U-Rohr ist in ein Kältebad aus einer Aceton-Flüssigstickstoffmischung getaucht, wodurch die Gasprobe bei einer Temperatur zwischen -70°C und -80°C an die Aktivkohle adsorbiert wird. Aus dem U-Rohr wird die mit Radon beladene Aktivkohle in eine Plastikdose überführt.

4.2.3 Messung

Die mit dem Radon-Gas beladene Aktivkohle wird nach mindestens 5 Stunden, in denen sich das Gleichgewicht zwischen den 4 nächsten Radon-Töchtern und ^{222}Rn einstellt, gamma-spektrometrisch gemessen.

5. Ergebnisse und Diskussion der Ra- und Rn- Isotopen-untersuchungen unter Berücksichtigung der Geologie, der Wasserchemie und der konventionellen Isotopenuntersuchungen (^{3}H, ^{2}H, ^{18}O, ^{13}C, ^{14}C)

Im Folgenden wird zunächst die Geologie des KTB-Umfeldes kurz zusammengefasst, dann werden die Ra-Analysenergebnisse der einzelnen Wasserproben in Bezug auf die Wasserchemie und das geochemische Umfeld betrachtet. Anschließend werden die Ergebnisse der Pumpversuche im Zusammenhang mit ihrem jeweiligen geochemischen und hydrochemischen Hintergrund diskutiert.

5.1. Geologie des Bereiches der KTB und des KTB-Umfeldes (vgl. auch Stettner, 1990)

Die meisten der für die vorliegende Arbeit untersuchten Grundwasser- und Gesteinsproben stammen aus dem näheren und weiteren Umfeld der KTB, sowie aus der Vorbohrung der KTB selbst.

Deshalb wird hier ein kurzer Überblick über die Geologie dieses Gebietes gegeben.

Die Lokation der KTB liegt in Bayern, im nördlichen Oberpfälzer Wald, zwischen Windisch-Eschenbach und Erbendorf. Sie gehört zur geologischen Großeinheit Böhmische Masse, deren westliche Begrenzung - die NW-SE verlaufende Fränkische Linie- nur wenige km entfernt ist. Jenseits dieser Grenze stehen mesozoische Sedimente an, die zum Fränkischen Schichtstufenland gehören.

Nördlich der Bohrlokation verläuft die Grenze zwischen Moldanubikum im S und Saxothuringikum im N.

Die KTB-Lokation befindet sich im Bereich der sog. Zone von Erbendorf-Vohenstrauß (ZEV) bzw. Neustädter Scholle, die zum Moldanubikum gehört. Bei den Gesteinen des Moldanubikums handelt es sich i.W. um präkambrische Metamorphite. Die Neustädter Scholle selbst wird von Gneisen und Metabasiten dominiert, welche tektonisch durch bei Subduktion und Wiederaufschiebung entstandene Verwerfungen parallel zur Fränkischen Linie vom östlichen Teil des Moldanubikums getrennt sind.

Die zwischen Moldanubikum und Saxothuringikum liegende Zone von Tirschenreuth-Mähring entstand durch Einengungsvorgänge infolge jungvariszischer Krustenbewegungen. Diese Nahtstelle ist durch das aufgrund der Mobilisation erzhaltiger Lösungen entstandene Vorkommen von Uran gekennzeichnet. Ebenfalls ein

Produkt der jungvariszischen Krustenbewegungen sind die etwas weiter N' und NE' (z.B. Falkenberg) anstehenden Fichtelgebirgsgranite.

Vereinzelt kommen im N und NE auch tertiäre Sedimente (z.B. bei Mitterteich), sowie tertiäre Basalte (z.B. bei Pechbrunn) vor.

Bei diesen handelt es sich um die westlichen Ausläufer der Sedimente und Vulkanite des Egergrabens.

Da ein Bohrkern aus einer Bohrung im Egergraben geochemisch bearbeitet wurde, wird eine kurze Zusammenfassung der Geologie des Egergrabens gegeben.

Der im Tertiär entstandene Egergraben (vgl. z.B. SUK et al., 1984; BERNSTEIN et al., 1972; VYLITA, 1990) erstreckt sich südlich des Erzgebirges in WNW-ESE-Richtung. Er wird in drei Teilbecken unterteilt, die primär tektonisch voneinander getrennt sind, das Egerbecken, das Sokolovbecken und das Nordböhmische Becken.

Die tertiären Sedimente des Egergrabens werden unterlagert von den kristallinen Einheiten der westlichen und nordwestlichen Böhmischen Masse.

Das Smrciny-Kristallin ist ein Teil der Sachsen-Vogtland Zone. Dazu gehören die kristallinen Schiefer von Cheb, der Svatava-Block und die Glimmer-Schiefer von Dylen.

Das Erzgebirgs-Kristallin wird im S durch die Erzgebirgsstörung, im W durch das Eibenstock-Massiv und im NE durch das Elbtalsynklinorium begrenzt. Es umfasst das gesamte Erzgebirgsantiklinorium und einzelne isolierte Vorkommen.

Der Erzgebirgspluton ist ein Komplex von intrusiven herzynischen Gesteinen mit granitoider Zusammensetzung, der in den Kristallinkörper des Erzgebirges und der Smrciny-Berge eingedrungen ist.

Das Eger-Becken ist mit miozänen Sanden und Tonen gefüllt, die dem oberproterozoischen kristallinen Grundgebirge aufliegen. Die maximale Sprunghöhe dieses Beckens beträgt 300-400 m, die Mächtigkeit der neogenen Sedimente bis zu 300 m. Die Relikte eozäner Sedimente sind ebenso wie wenige Vulkanite des unteren Miozäns nur als Kluftfüllungen erhalten.

Im Quartär gab es im Eger-Becken neovulkanische Ausbrüche. Es gab ein kleines postglaziales Becken, das mit Diatomeenerde und Torf gefüllt wurde - Soos bei Hajek, in der Nachbarschaft von Franzensbad. Das Eger-Becken ist bis heute die seismisch aktivste Region im Böhmischen Massiv.

Im Gegensatz zum Eger-Becken ist die Struktur des Sokolov-Beckens hauptsächlich durch die WSW-ENE-Störungen kontrolliert, obwohl die frühere transversale NW-SE-Störung in die Bildung der Beckenfüllung mit einbezogen war. Zwei größere Störungen haben die Beckenstruktur bestimmt. Es sind die Erzgebirgsstörung im N und die Eger-Störung im S.

Das Sokolov-Becken zeichnet sich durch eine spezielle Entwicklung der neogenen Abfolgen aus, die durch die synsedimentäre Absenkung einzelner Blöcke, in die das Becken unterteilt ist, bedingt wird. Die Sedimente sind von frühmiozänem Alter (spätes Eger bis Ottnang).

Das Nordböhmische Becken ist ein typisches Beispiel für ein Becken, das während einer vulkano-tektonischen Absenkung gebildet wurde. Der Bereich von Zadek senkte sich in die entleerte Magmenkammer, die mit ihrem Material das Duppauer Gebirge gebildet hatte. Die Beckenfüllung besteht aus paläogenen und eozänen Sedimenten, sowie Tuffen und Tuffiten aus dem unteren Miozän. Das Liegende der Kohleflöze besteht aus Sanden, das Hangende aus Seesedimenten (Sande, Tone). Die Gesamtmächtigkeit beträgt max. 500 m (bei Most).

5.2 Auswertung der chemischen und radiometrischen Untersuchungen von Einzelproben von Grundwässern verschiedener Regionen

Die Ergebnisse der Radium- und Radon-Untersuchungen an allen Grundwasserproben enzhält Tabelle 9 in Anhang B. Von den Mehrfachbeprobungen bei Pumpversuchen wurden jeweils die erste und die letzte Probe der im Verlauf von Pumpversuchen entnommenen Proben mit in diese Auswertung einbezogen.

Die Aktivitäten der einzelnen Grundwasserproben lagen für ^{226}Ra zwischen Werten unter 0,001 Bq/l und ca. 24 Bq/l. Die höchste Aktivität zeigte eine Grundwasserprobe aus einer Tiefbohrung im Oberrheingraben bei Bruchsal.

Der höchste gemessene Wert bei ^{228}Ra lag mit ca. 18 Bq/l im Grundwasser der KTB-VB in einem ähnlichen Bereich. Dort wurden auch die höchsten ^{224}Ra-Aktivitäten gemessen. Sie lagen aufgrund der langen Aufstiegszeit nur bei ca. 11 Bq/l.

Eine Interpretation des hydrochemischen Verhaltens von Radium ist mit Hilfe eines hydrogeochemischen Modellprogrammes nur begrenzt möglich. Es gibt, wie in Kapitel 2.3 schon ausgeführt, nur extrapolierte thermodynamische Daten von Radium. Diese sind im Rahmen eines hydrogeochemischen Rechenprogrammes auch deswegen nur unzulänglich einsetzbar, weil Radium in der Natur nicht in reinen Spezies auftritt,

sondern nur in Mischphasen. Die Möglichkeit des kolloidalen Transports von Radium stellt zusätzlich -besonders bei oberflächennahen Grundwasserleitern- einen nur unzureichend darstellbaren Faktor dar.

Unabhängig davon zeigen einfache Korrelationen von anhand der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen wasserchemischen und geochemischen Daten deutliche Tendenzen für das Verhalten von Radium im Grundwasser auf.

Die Ergebnisse dieser Korrelationen von Ra-Analysenergebnissen mit einzelnen, die Lösungs- und Fällungsprozesse von Radium besonders beeinflussenden hydrochemischen Parametern werden im Folgenden diskutiert.

5.2.1 Relation zwischen den spezifischen elektrischen Leitfähigkeiten und den Radium-Aktivitäten

Wichtig für die Interpretation dieser Werte ist es, die Rolle, die die spezifische elektrische Leitfähigkeit und damit der Mineralgehalt der einzelnen Grundwässer in Bezug auf die Radium-Aktivität spielt, zu erfassen. Dadurch kann eine grobe Einteilung der Grundwässer bezüglich ihrer Radium-Aktivität vorgenommen werden.

Die Korrelation der Radiumgehalte mit den Leitfähigkeiten der Grundwässer erlaubt Rückschlüsse auf das geochemische Umfeld und die Herkunft der Grundwässer.

Auf Abb.7 sind die spezifischen elektrischen Leitfähigkeiten der einzelnen Grundwässer gegen die ^{226}Ra-Aktivitäten aufgetragen.

Auf der oberen Abb. (7a) sind Grundwässer mit spezifischen elektrischen Leitfähigkeiten von ca. 90 bis 1000 µS/cm, auf der unteren Abb. (7b) solche mit höheren Werten aufgetragen.

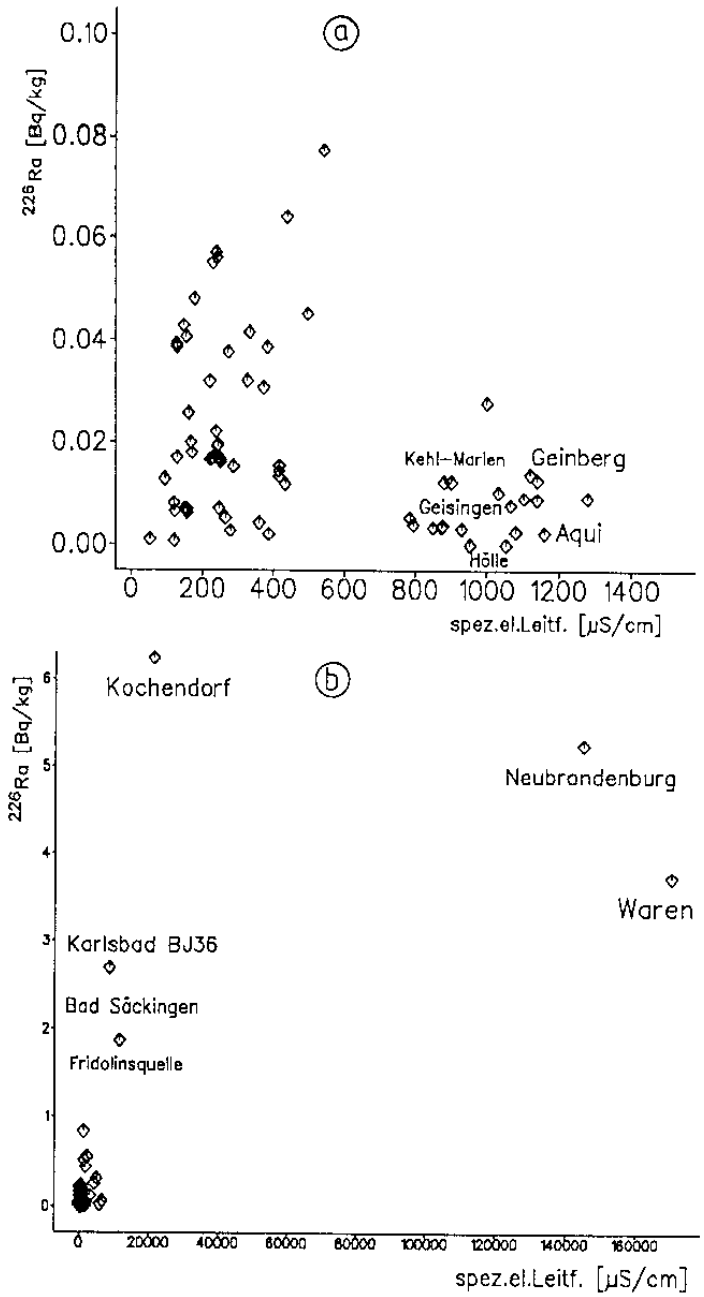


Abb. 7: ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den spez. el. Leitfähigkeiten:

a) 90 bis 1400 µS/cm,

b) bis 160000 µS/cm.

Die geringere Steigung der oberen Geraden ist im Wesentlichen auf die Tatsache zurückzuführen, dass hier auch alle Grundwässer aus der Oxidationszone erfasst sind, wo wegen der unter 2.3.2 beschriebenen Fällungsprozesse nur sehr wenig Ra in Lösung ist.

Entsprechend Abb. 7a ist für eine große Gruppe von Grundwässern eine positive Korrelation gegeben. Eine Korrelationsgerade durch diese Gruppe würde in einer groben Annäherung dem Zusammenhang

Ra [Bq/kg] ≈ Lf [µS/cm]/1.5*10^4 folgen.

Die weit oberhalb einer daraus erstellten Geraden liegenden Radium-Aktivitäten wären als verhältnismäßig hoch, die darunter liegenden als niedrig anzusehen.

Eine etwas kleinere Gruppe liegt mit im Vergleich zur Leitfähigkeit relativ niedrigen Ra-Gehalten außerhalb des Korrelationsbereiches. Hier handelt es sich um Grundwässer mit primär niedrigem Radionuklidgehalt des Gesteins, die aus dem Tertiär (Evaporite -> hohe Mineralisation) und Quartär der Oberrheinebene, aus jurassischen Tonen oder aus variszischem Grundgebirgsgestein (Metamorphite) stammen.

Es sind zwar nur in wenigen Fällen Daten von Uran-Aktivitäten bzw. -Konzentrationen vorhanden, jedoch ist davon auszugehen, dass die Grundwässer, die oberhalb der Geraden liegen, ursprünglich Bereichen mit erhöhten ^{238}U-Gehalten im Gestein entstammen.

Dies ist bei den Grundwässern aus:

- Sibyllenbad T (Phyllite),
- Falkenberg Sauerbrunnen (Granit),
- Glossner Bräu, Neumarkt,
- T&T, Regensburg (verkarsteter Malmkalk),
- Sprudelquelle, Karlsbad (stark alterierter Granit/Diabas) und
- Silvana I, Pechbrunn (tuffitische Diabase)

der Fall. Die Tatsache, dass Sibyllenbad A einmal in der Nähe der Geraden liegt und einmal sehr weit davon entfernt, ist auf hydraulisch bedingte chemische Veränderungen (Mischsystem) zurückzuführen. Die Abweichung von der Geraden bei der Probe Pechbrunn Silvana I beim Beginn des Pumpversuchs bedeutet z.B., dass in unmittelbarer Bohrlochumgebung eine erhöhte Radiumproduktion gegeben ist (vgl.3.3).

Zu den Grundwässern, deren Radium-Aktivitäten weit unterhalb der Geraden liegen, gehören:

- Pegel Kehl-Marlen (quartäre und tertiäre Rheingrabenfüllung),
- Badquelle, Bad Säckingen (quartäre Sedimente, Granit),
- Prinzenquelle, Hölle (vulkanische Fazies des Oberdevons),
- Hechtsberg, Pegel-Bohrungen im Kinzigtal (i.W. Gneise).

Die Korrelationsgerade ermöglicht damit vor allem für Wässer, die nicht aus der Oxidationszone stammen, eine Aussage bezüglich der U-Serienisotopen-Produktion im Grundwasserleiter.

Dies kann aus der absoluten Ra-Aktivität allein nicht abgelesen werden.

Durch eine Betrachtung einzelner Anionen, die für die el. Leitfähigkeiten verantwortlich sind, soll im Folgenden eine Annäherung an die Ursache der aufgezeigten Tendenzen versucht werden.

5.2.2 Relation zwischen den Chlorid-Gehalten und den Radium-Aktivitäten

Wegen der Erhöhung der Löslichkeit von Ionen bei Anwesenheit von Chlorid wäre hier eigentlich eine deutliche positive Korrelation zu erwarten.

Entsprechend Abb. 8a ist eine solche Korrelation nicht gegeben. Die Tendenz ist eher gegenläufig. Demnach ist die Löslichkeit von Radium bei Grundwässern mit mittleren bis niedrigen Chloridgehalten nicht von diesen abhängig. Bei den auf der Abbildung aufgetragenen Werten fallen lediglich die beiden Grundwasserproben aus Karlovy Vary HJ2 aus dem Rahmen. Dies ist auf deren Nähe zu einer Uranlagerstätte, bzw. deren Herkunft aus relativ uranhaltigem Gestein zurückzuführen. Insgesamt scheint die Konzentration von Radium in diesen Grundwasserproben somit mehr von der Radiumquelle als vom Chloridgehalt bestimmt zu sein.

Entsprechend Abb. 8b gibt es bei Chloridgehalten von mehr als 1 g/l eine positive Korrelation mit Radium. Hier ist eine deutliche Abhängigkeit des Gehaltes an gelöstem Radium vom Chloridgehalt auszumachen.

5.2.3 Relation zwischen den Sulfat-Gehalten und Radium-Aktivitäten

Die Radiumaktivitäten und die SO_4^{2-}-Ionen zeigen keine Korrelierbarkeit (vgl. Abb. 9). Tendenziell scheint bei niedrigen Sulfatgehalten (Abb. 9a) eine höhere Löslichkeit von Radium vorzuliegen, die mit zunehmendem Sulfatgehalt wieder abnimmt. Bei sehr hohen Sulfatgehalten (Abb. 9b) geht die Tendenz dagegen zu einer positiven Korrelation mit Radium.

Die Ursache dafür, dass bei niedrigen Sulfatgehalten keine eindeutigere negative Korrelation vorliegt, ist darin begründet, dass der Dissoziationsgrad von Erdalkalisulfaten in schwachen Lösungen im Gegensatz z.B. von Alkalisulfaten, Alkalichloriden oder Erdalkalichloriden normalerweise nicht sehr hoch ist (vgl. z.B. VOIGT, 1990).

Dieses Ergebnis bestätigt auch die Annahme von BENES (1982) und anderen Autoren, dass ein bedeutender Anteil von gelöstem Ra als $Ba(Ra)SO_4$-Ionenpaar bestehen kann, neben einem signifikanten Anteil von Ra^{2+}-Ionen (vgl. 2.3.2.)

5.2.4 Relation zwischen den Barium- und Strontium-Gehalten sowie den Eisen- und Mangan-Gehalten und den Radium-Aktivitäten

Die in Abb. 10 und 11 dargestellten Relationen von Barium und Strontium mit Radium zeigen trotz der chemischen Ähnlichkeit die Unabhängigkeit des gelösten Radiumgehaltes von diesen beiden Erdalkalien. Auch zwischen dem Eisengehalt und dem Radiumgehalt der Grundwasserproben ist eine direkte Korrelation nicht zu erkennen (Abb. 12), obwohl Radium bevorzugt von deren Hydroxiden mitgefällt wird und vermutlich auch schon bei der Migration im Grundwasser komplexiert wird.

Der Gehalt an gelöstem Radium im Grundwasser ist damit i.W. vom Gehalt an Radionukliden im Aqifergestein und nur sekundär von chemisch ähnlichen Kationen abhängig.

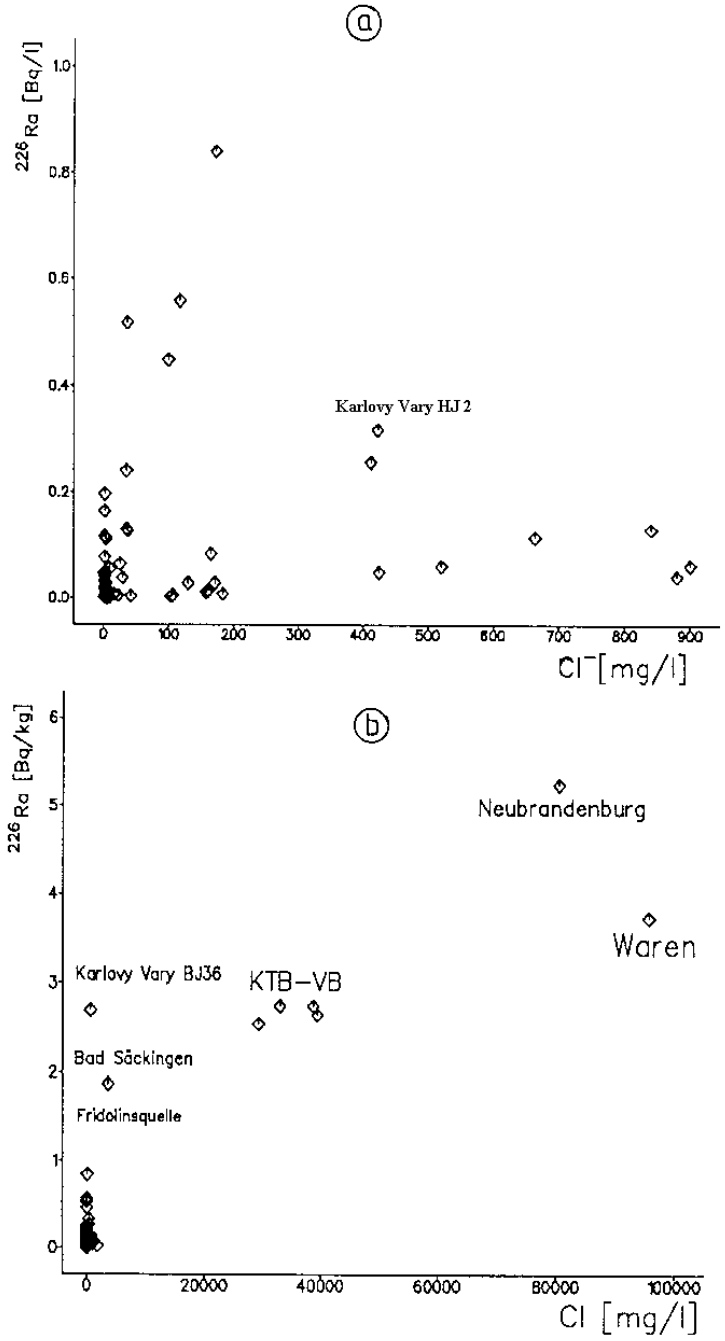


Abb. 8: ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Chloridgehalten:

a) 0 bis 900 mg/l,

b) bis 10000 mg/l

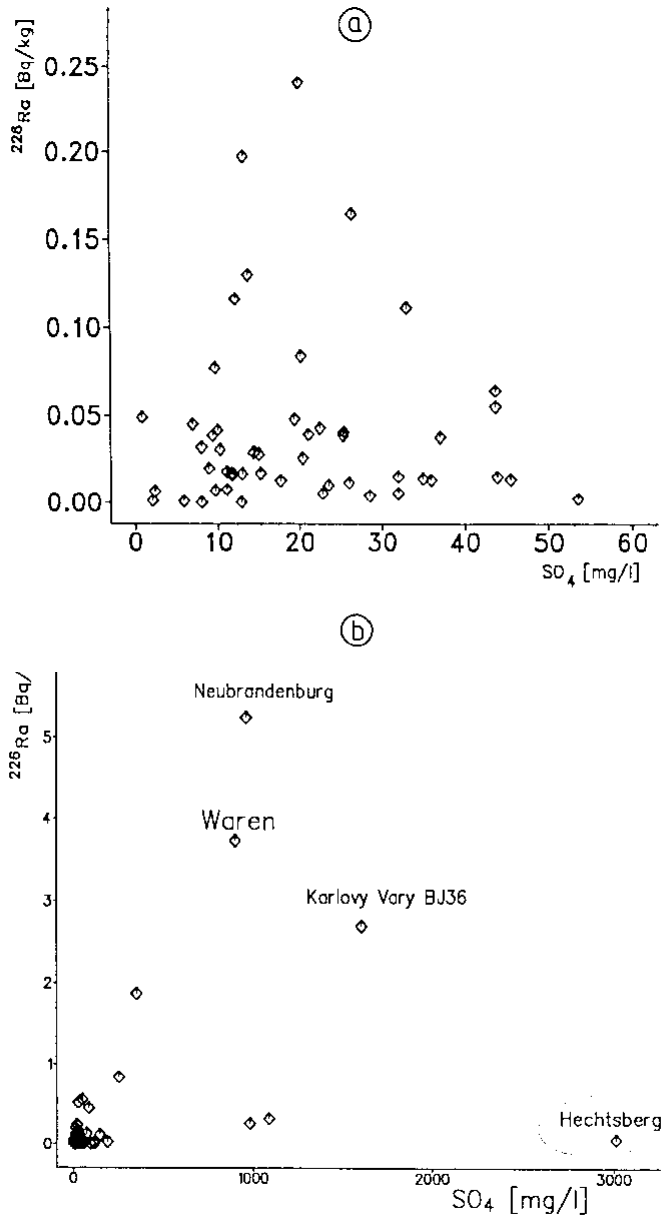


Abb. 9: ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Sulfatgehalten:

a) 0 bis 60 mg/l,

b) bis 3000 mg/l

5.2.5 Relation zwischen den pH-Werten und den Radium-Aktivitäten

Abb. 13 zeigt eine gleichmäßige Verteilung des Radiums über einen pH-Wert-Bereich zwischen ca. 4 und 9, bei Radiumkonzentrationen unter 0,5 Bq/kg. Bei darüberliegenden Radiumkonzentrationen liegt der pH-Wert immer zwischen 6 und 7. Dies scheint nicht nur bei den hochsalinaren Fluiden der Fall zu sein, sondern auch Proben aus nicht so stark mineralisierten Grundwässern mit erhöhten Radiumgehalten liegen in diesem pH-Wert-Bereich.

Eine solche Tendenz war nicht zu erwarten. Mit Erniedrigung des pH-Wertes sollte entsprechend den oben beschriebenen chemischen Eigenschaften von Radium eigentlich eine steigende Löslichkeit einhergehen. Es handelt sich bei den Grundwässern mit Radiumgehalten von mehr als 0,5 Bq/kg sowohl um Brines als auch um schwach bis mittelstark mineralisierte Grundwässer (TDS<1000 mg/l). Die hier zu beobachtende Gesetzmäßigkeit ist deshalb nicht allein auf die hohe Löslichkeit der Grundwasserinhaltsstoffe zurückzuführen.

Das Mitfällen von Radium mit Karbonaten, Sulfaten und Hydroxiden bietet eine Erklärung dafür, dass unter alkalischen Bedingungen weniger Radium im Grundwasser gelöst vorliegt.

Für die geringen Radiumgehalte in sauren Grundwässern gilt, dass entweder in den untersuchten Beispielen niedrigere Primärgehalte an Radionukliden im Gestein vorhanden waren oder, dass es sich um Grundwässer aus dem oberflächennahen Bereich handelt. Diese wiederum haben einerseits eine niedrige Gesamtmineralisation weil sie sehr "jung" sind - und damit auch einen niedrigen Gehalt an gelöstem Radium -, andrerseits haben sie einen hohen Gehalt an freiem Sauerstoff, der zu einer Mitfällung von Radium mit i.W. Fe- und Mn-Hydroxiden führt.

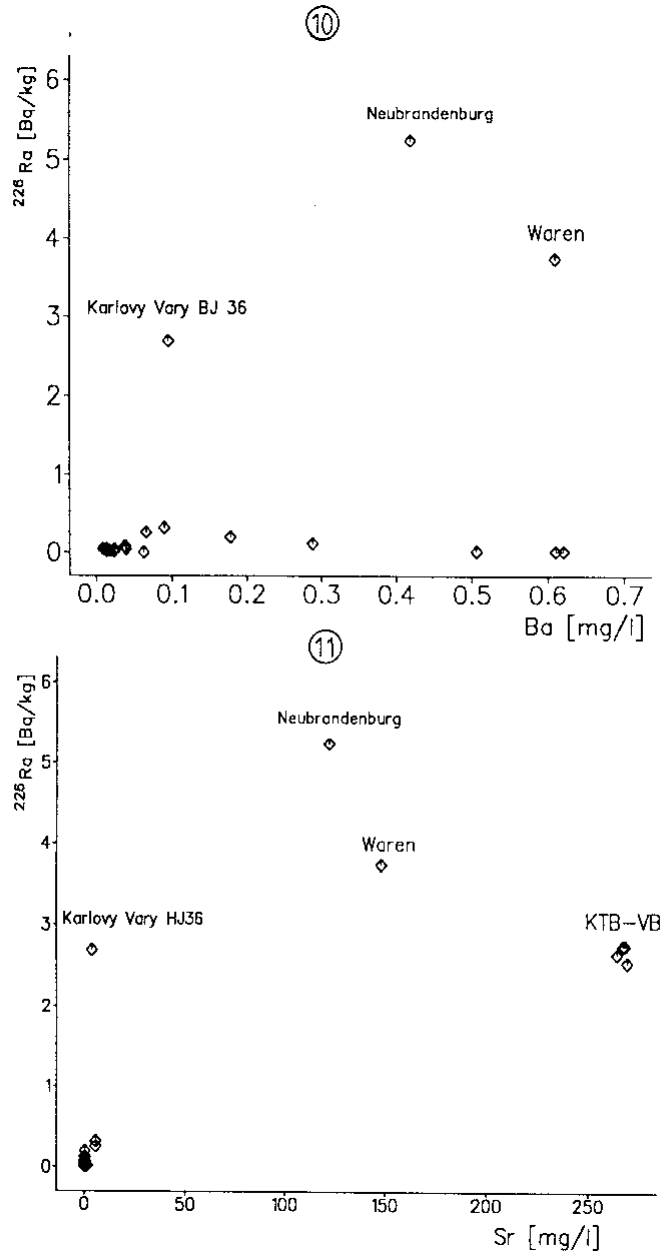


Abb. 10 (oben): ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Bariumgehalten.

Abb. 11 (unten):^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Strontiumgehalten.

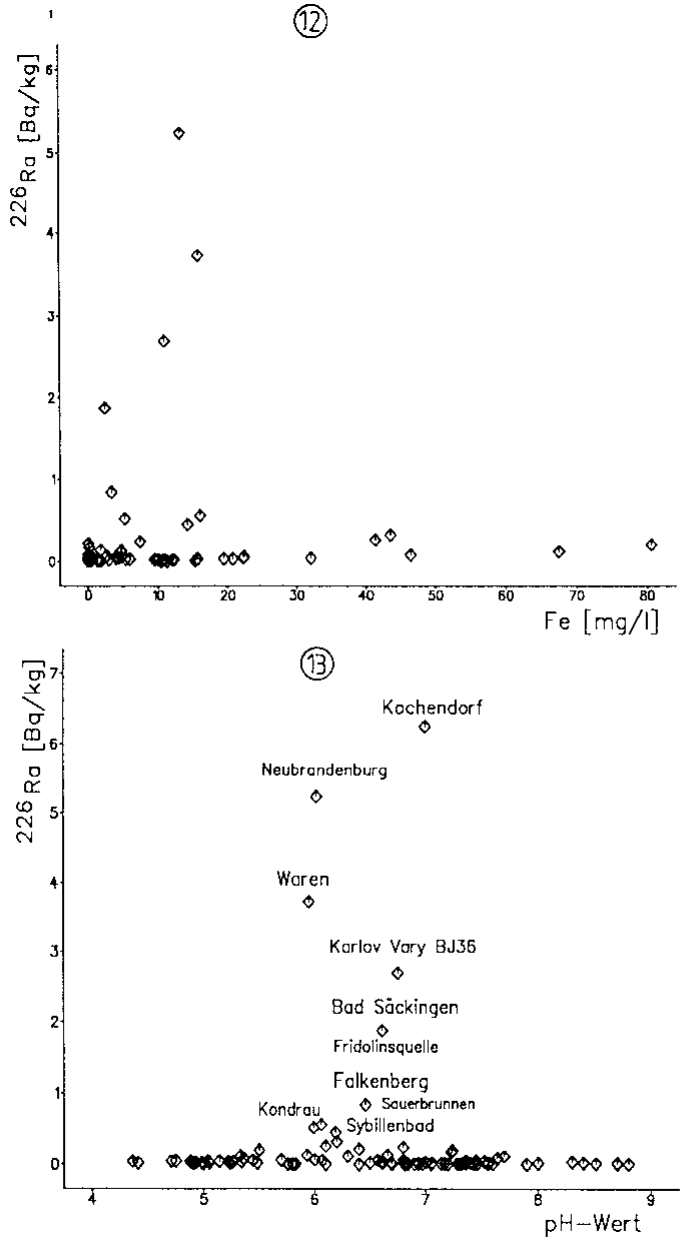


Abb. 12 (oben): ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Eisengehalten.

Abb. 13 (unten): ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den pH-Werten.

5.2.6 Relation zwischen den Redox-Potentialen und den Radium-Aktivitäten

Da die Anwesenheit von freiem Sauerstoff bzw. anderen Oxidanten in Grundwässern sowohl das Ausfällen von Sulfaten und Karbonaten, als auch von Eisen- und Manganhydroxiden bewirken, ist mit steigendem Redoxpotential eine Erniedrigung des Gehaltes an gelöstem Radium in Grundwässern zu erwarten. Dies ist entsprechend Abb.14 a auch deutlich zu verfolgen. Damit erweist sich das Redoxpotential von Grundwasser als ein Hauptindikator dafür, mit welchem Löslichkeitsgrad von Radium im Grundwasser zu rechnen ist. Entsprechend den hier untersuchten Grundwässern gibt es ab einem Redoxpotential von ca. 250 bzw. 350 mV nur noch Radiumaktivitäten unter 0,1 bzw. 0,05 Bq/kg.

Parallel dazu kann die gegenläufige Entwicklung der ^{226}Ra-Aktivitäten zu den Gehalten an freiem Sauerstoff betrachtet werden (Abb. 14 b).

5.2.7 Radonaktivitäten in Relation zu Radiumaktivitäten und Entnahmetiefen sowie Radiumaktivitäten in Relation zu den Verweilzeiten des Grundwassers, ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse

Eine gegenläufige Tendenz ist zwischen den ^{222}Rn-Aktivitäten und den ^{226}Ra-Aktivitäten (Abb. 15) zu erkennen. Dies liegt in der Tatsache begründet, dass bei einer Adsorption von Radium an die Gesteinsoberflächen (i.W. im oberflächennahen Grundwasserbereich) eine Anreicherung des langlebigen Isotopes ^{226}Ra stattfindet, die eine verstärkte Abgabe des Tochterisotops ^{222}Rn ins Grundwasser zur Folge hat (vgl. 2.3.5.4).

Auf denselben Effekt ist zurückzuführen, dass die Radonaktivitäten mit wachsender Entnahmetiefe abnehmen, wie aus den Abb. 16a und 16b zu entnehmen ist.

Mit steigender Verweilzeit und fallendem ^{3}H-Gehalt des Grundwassers nehmen die Radium-Aktivitäten zu (Abb. 17). Dies bestätigt, dass die jungen Grundwässer, die i.W. im oberfächennahen Bereich anzutreffen sind, im Verhältnis zu den Tiefengrundwässern niedrige Radium-Aktivitäten besitzen.

Abb.18 zeigt die ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse aller entnommenen Grundwasserproben. Sie bewegen sich zwischen ca. 0,3 bis 0,4 und 10 (Bq/kg)/(Bq/kg) Die niedrigsten Werte wurden für Wiesau Neue Ottoquelle und Bad Alexandersbad berechnet. Sie deuten auf eine positive Thoriumanomalie hin.

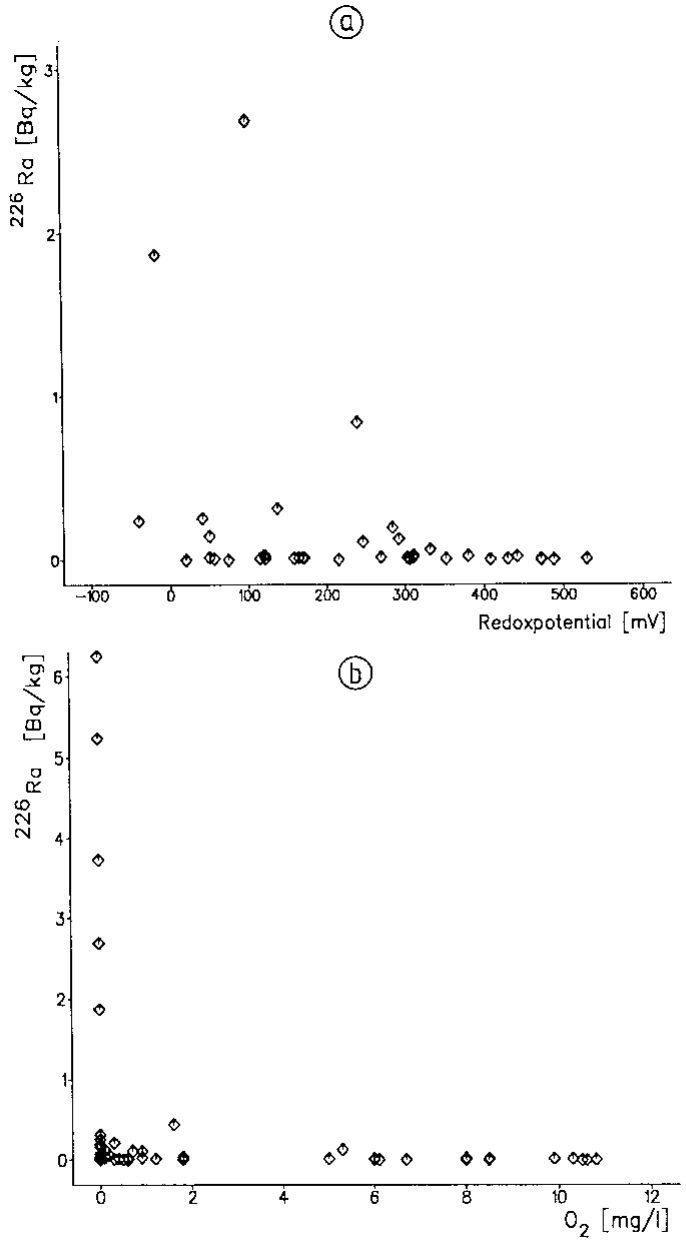


Abb. 14: ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu

a) den Redoxpotentialen und

b) den Gehalten an freiem Sauerstoff.

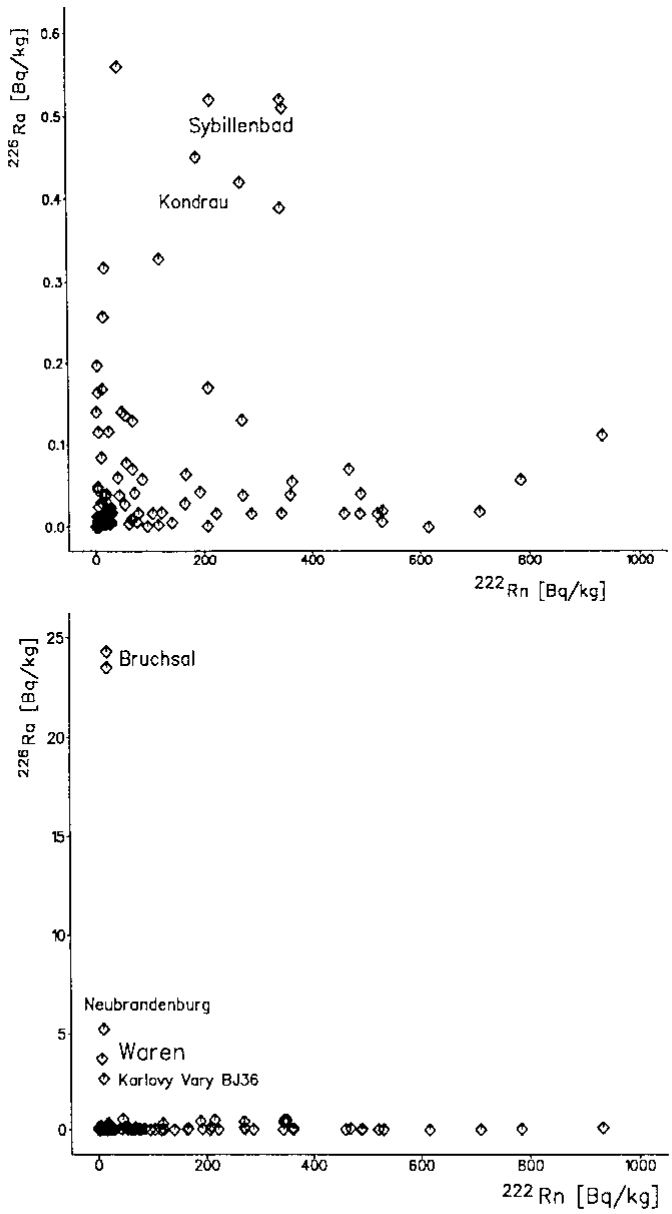


Abb.15 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den ^{222}Rn-Aktivitäten der entsprechenden Grundwässer.

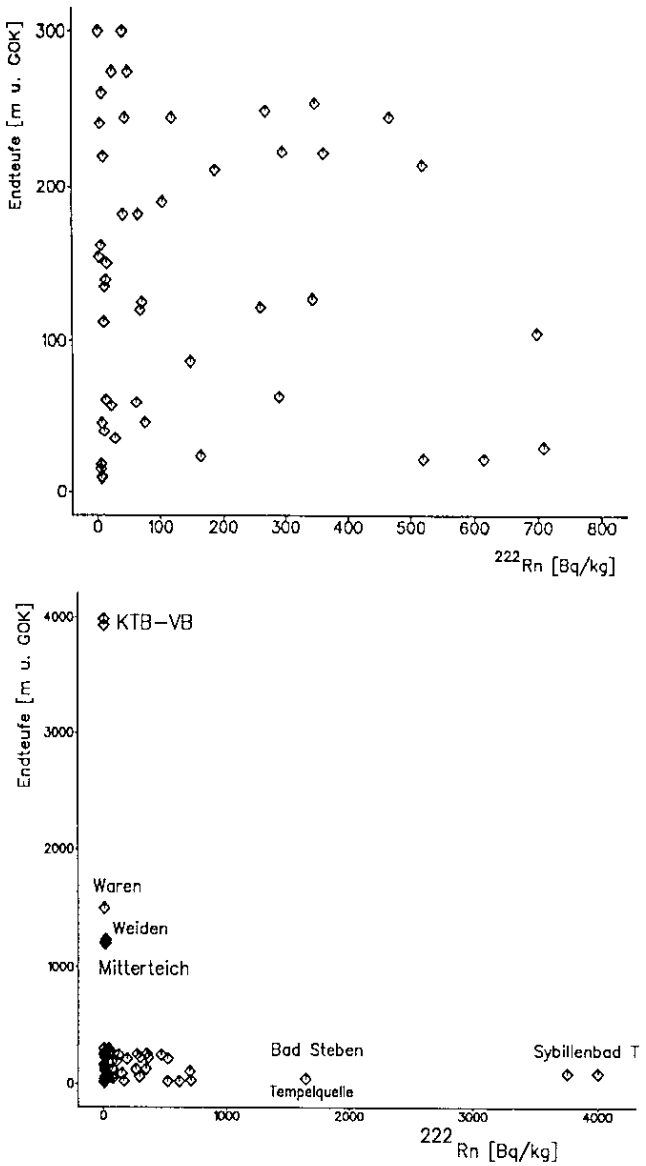


Abb.16 : ^{222}Rn-Aktivitäten im Verhältnis zu den Endteufen der entsprechenden Grundwasserentnahmestellen.

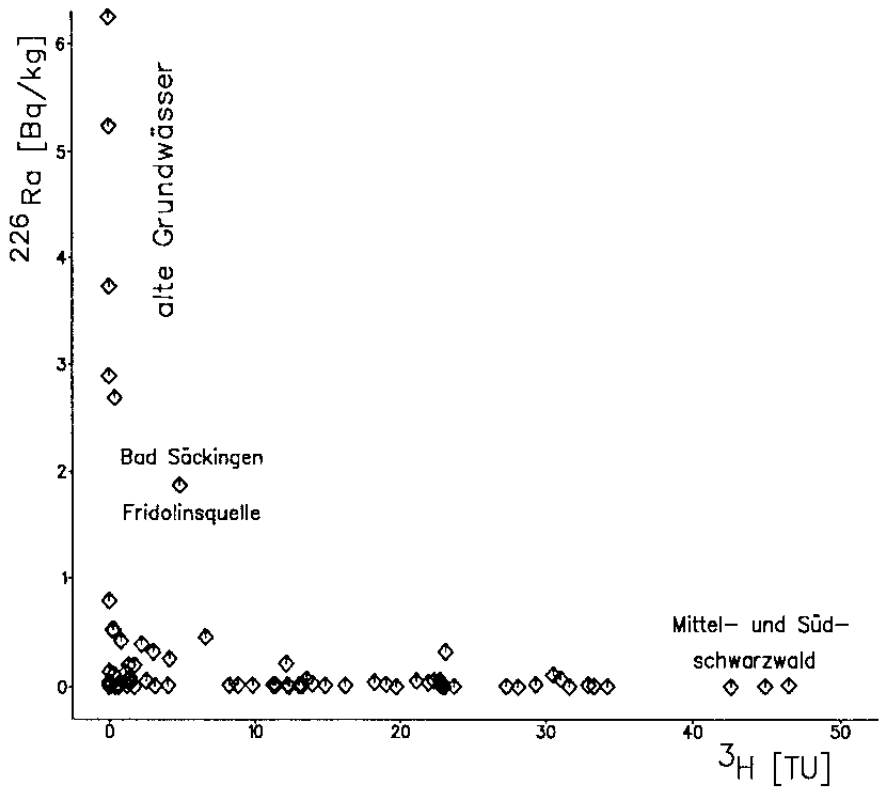


Abb. 17 : ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den Tritiumgehalten der entsprechenden Grundwässer

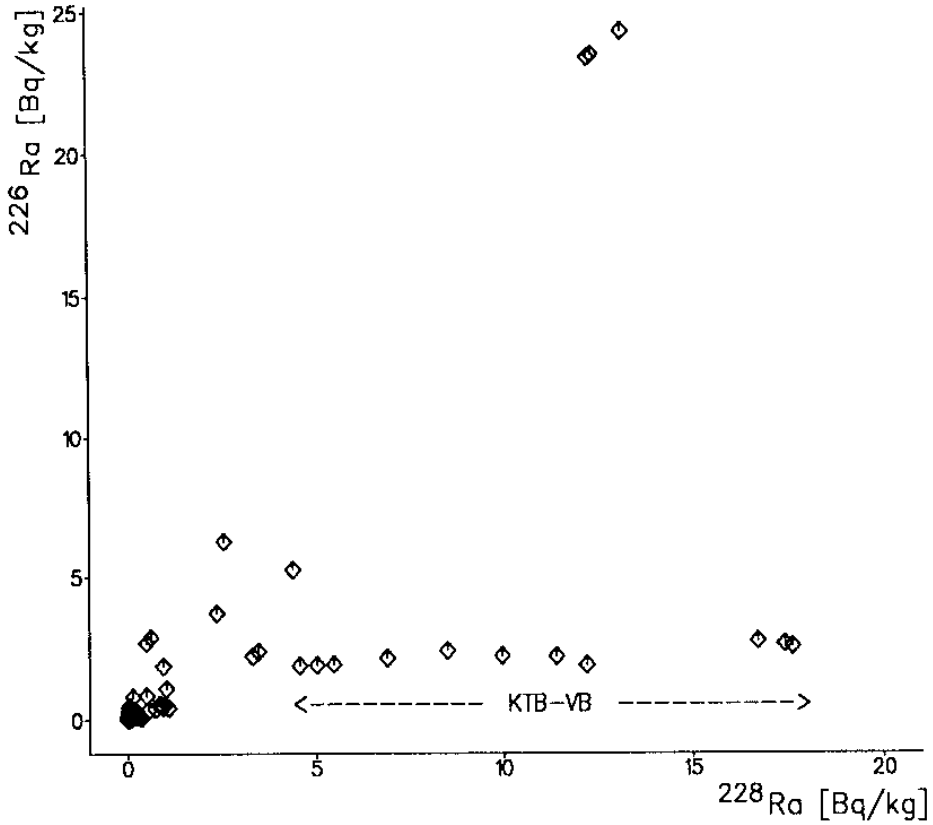


Abb. 18: ^{226}Ra-Aktivitäten im Verhältnis zu den ^{228}Ra-Aktivitäten.

Die höchsten Werte zeigen Proben aus Sibyllenbad. Dies ist auf die Nähe der Probenahmestellen zur sog. Zone von Tirschenreuth-Mähring, die wegen ihrer Uranvererzungen bekannt ist, zurückzuführen.

Die Fluidproben aus der KTB-VB haben mit fortschreitender Pumpversuchsdauer zunehmende $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse. Dies liegt am abnehmenden Einfluss einer lokalen positiven Thoriumanomalie (vgl.5.3). Insgesamt scheint es bei den untersuchten Proben mit niedrigen bis mittleren Radiumgehalten eine Tendenz zu einem - relativ zum Aktivitätsgleichgewicht von 1 - erniedrigten $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis zu geben. Inwieweit es eine primäre positive Thoriumanomalie im Gestein gibt und inwieweit sich dieses Ungleichgewicht erst bei der Migration der Mutterisotope von ^{226}Ra herausbildete ist unklar. Um dies im Einzelnen zu klären, müssen umfangreichere Untersuchungen der Radionuklidgehalte des Aquifergesteins vorgenommen werden als dies im Rahmen dieser Arbeit möglich war (vgl. 7.1 bis 7.3).

5.2.8 Diskussion einzelner Untersuchungsgebiete

Ergebnisse aus Untersuchungsgebieten, in denen nicht nur einzelne Grundwasserproben entnommen und gemessen wurden, werden hier kurz vorgestellt und charakterisiert.

5.2.8.1 KTB-Umfeld

Die meisten der oben diskutierten Werte stammen von Untersuchungen von Grundwässern aus dem KTB-Umfeld.

Die an Fluiden der KTB-VB (KTB-Vorbohrung) und der KTB-HB (KTB-Hauptbohrung) durchgeführten Untersuchungen, sowie Entnahmestellen im KTB-Umfeld, an denen Pumpversuche durchgeführt wurden, werden gesondert diskutiert (vgl. 5.3 u. 5.4).

Die Grundwasserproben, die im näheren und weiteren Umfeld der KTB entnommen wurden, zeigten je nach Geologie (primärem Radionuklidgehalt), Hydrochemie und Entnahmetiefe sehr unterschiedliche Radiumgehalte. Die gemessenen Extremwerte betrugen 0,001 (Höllensprudel) bzw. 2,69 Bq/kg (Karlovy Vary Sprudelquelle) für ^{226}Ra, 0,003 (Poppenreuth) bzw. 1,08 Bq/kg für ^{228}Ra (Sibyllenbad M5) und 0,003 (Mitterteich) bzw. 1,01 Bq/kg für ^{224}Ra (Sibyllenbad M5).

Die Minimumwerte sind im Fall von Mitterteich auf primär niedrige Radionuklidgehalte des tertiären Gesteins zurückzuführen, in den anderen beiden Fällen auf Entnahmebereiche aus der Oxidationszone.

Die Maximumwerte wurden in der Umgebung von bekannten Uranvererzungszonen (Zone von Tirschenreuth-Mähring, Jachymov) gemessen.

Die unterschiedlichen $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse der Probe aus Karlovy Vary ($Q_{226/228}$=5,4) und der Proben aus Sibyllenbad ($Q_{226/228}$=0,5) deuten an, dass es sich um zwei unterschiedliche Uranvererzungszonen handeln muss, die nicht miteinander in Verbindung stehen.

Weiterhin sind bei mehrfach beprobten Entnahmestellen aus Sibyllenbad z.T. starke Schwankungen in den Radiumaktivitäten zu beobachten. Diese sind in unterschiedlichen Entnahmebedingungen (z.B. unterschiedlich langes Abpumpen vor den Probenahmen, und/oder unterschiedliche Entnahmeraten) begründet, in deren Folge es zu unterschiedlichen Mischungsverhältnissen in den Grundwasserleitern kam.

5.2.8.2 Südschwarzwald - Herkunft des Radiums

Die quantitative und qualitative Erfassung und Bewertung von Grundwässern, welche im Bereich von Stollen des Schluchseewerkes (nördl. Bad Säckingen) zirkulieren, war Gegenstand einer Dissertation (BIEHLER, 1995) an der Universität Tübingen. In diesem Zusammenhang fanden auch Beprobungen von Grundwässern zur Isotopen-Gehaltsbestimmung statt.

Tab. 10a gibt die Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen wieder.

Die *Tritiumgehalte* zeigen, dass in fast allen Probenamestellen der Stollen aus dem Schluchseewerk ein sehr junges Wasser vorliegt. Die Probe aus dem Münstertal weist den geringsten Anteil an jungem Grundwasser auf.

Die *Radium-Aktivitäten* in den untersuchten Grundwasserproben sind sehr unterschiedlich. Die Werte reichen von unter 1 mBq/l bis über 100 mBq/l.

Die Radium-Isotopenverhältnisse zeigen zusammen mit den Tritiumergebnissen, dass der größte Teil des Radiums durch Lösungs-Prozesse ins Wasser gelangt und nur ein unbedeutender Anteil direkt aus dem Rückstoß (recoil) beim α-Zerfall stammt:

Da das Wasser sehr jung ist und die Aktivität des langlebigen ^{226}Ra ($t_{1/2}$ = 1620 a) sehr gering gegenüber der des ^{228}Ra ($t_{1/2}$ = 6.7 a), muss das

$^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis des durch α-recoil produzierten Radiums sehr klein sein (im Bereich von 10^{-3}).

Vermutlich stammt der größte Teil des Radiums deshalb aus dem oberflächennahen Bereich, wo das neu gebildete Grundwasser noch einen niedrigeren pH-Wert hat, wo außerdem noch größere Gehalte an Huminstoffen zu erwarten sind und somit die Löslichkeit des Radiums noch höher ist.

Die durch Leaching-Tests mit 0,1n HCl erhaltenen $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse von Gesteinsproben sind, entsprechend Tab. 10b, zum Teil denen des Grundwassers ähnlich (EF1 und MF2) und zum Teil unterscheiden sie sich stark (DF1).

Über das ursprünglich im Gestein vorhandene $^{238}U/^{232}Th$-Verhältnis lässt sich aufgrund der Ergebnisse der Grundwasser- und Gesteinsuntersuchung nur etwas aussagen, wenn vom aktualistischen Prinzip ausgegangen wird. Es ist nämlich nicht klar, ob das Material, das sich auf den Kluftoberflächen angereichert hat, nur aus der unmittelbaren Umgebung stammt, oder z.T. auch über größere Entfernungen hertransportiert wurde. Wenn die Ergebnisse aber nach dem aktualistischen Prinzip ausgewertet werden, d.h. wenn angenommen wird, dass sich die Grundwasserfließrichtung und die Zusammensetzung der Inhaltsstoffe des Grundwassers innerhalb der letzten ca. 5 Halbwertszeiten von ^{226}Ra (ca. 8000 a) nicht wesentlich geändert haben, kann die Aussage getroffen werden, dass der größte Teil des Kluftflächen-Überzuges aus den Bereichen oberhalb der Entnahmestellen umgelagert wurde.

Die ^{222}Rn-Aktivitäten sind gegenüber den ^{226}Ra-Aktivitäten stark erhöht. Es ist deshalb davon auszugehen, dass ein Großteil des Radiums an den Gesteinsoberflächen haftet und das produzierte ^{222}Rn von dort aus durch α-Recoil oder Leaching ins Grundwasser abgegeben wird.

5.2.8.3 Mydlovary (ČR) - Anwendung des Kontaminationsmodells

In der näheren und weiteren Umgebung des Uranaufbereitungsbetriebes MAPE der ČR wurden 7 Grundwasserproben entnommen und auf ihren Radiumgehalt hin untersucht. Der geologische Untergrund besteht aus tertiären Sedimenten, die z.T. schluffig, z.T. feinsandig ausgebildet sind. Die zwischen 7 und 21 m tiefen Probenahmestellen lagen z.T. ca. 100 m von einem industriellen Absetzbecken (Schlammteich) entfernt, dessen Inhalt aus den Rückständen der Uranerzaufbereitung,

Na_2CO_3, HCl und Wasser besteht. Das Uran ist gegenüber dem ursprünglichen Gehalt des Erzes zu ca. 90% aus dem Schlamm entfernt, die Zerfallsprodukte befinden sich dagegen noch fast vollständig in diesen sog. "tailings". Die Fragestellung bei dieser Untersuchung war, ob eine Radionuklidmigration aus dem Schlammteich in die natürliche Umgebung resp. das Grundwasser stattfindet. Die in Tabelle 11 aufgeführten Ergebnisse der Untersuchungen zeigen mit 0,573±0,046 Bq ^{226}Ra/kg den Maximalwert auf, der an der Grundwasserprobe aus der GWM K1 gemessen wurde. Diese Entnahmestelle war schon bei einer Durchsicht der regelmäßig hier durchgeführten chemischen Untersuchungen wegen ihrer hohen Sulfat- und Chloridgehalte aufgefallen. Die ^{226}Ra-Aktivitäten aller anderen Proben lagen unter 0,1, die meisten sogar unter 0,02 Bq ^{226}Ra/kg. Dadurch ist ein Einfluss von Sickerwasser aus dem Schlammteich auf die GWM K1 als sicher zu betrachten.

Es ist davon auszugehen, dass die natürlichen ^{226}Ra-Aktivitäten in den Grundwässern der tertiären Sedimente eher im Bereich von 0,02 als von 0,1 Bq/kg liegen. Es ist deshalb wahrscheinlich, dass die Entnahmestelle K9 mit 0,096 Bq/kg ebenfalls einem Einfluss von Sickerwasser aus dem Schlammteich unterliegt.

Um herauszufinden inwieweit die anderen Proben ebenfalls einen Sickerwassereinfluss aufzeigen kann entsprechend Kap. 3.3.1.4 (Kontaminationsmodell) das ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis herangezogen werden. Bei den Proben aus K1, K9 und Nakri 52 liegt dieses Verhältnis bei 0,5 und ist damit gegenüber dem Gleichgewichtswert von 1 stark erniedrigt. Für die beiden erstgenannten Proben wird damit der Verdacht bestätigt, dass es sich um Grundwässer mit Sickerwassereinfluss aus dem Schlammteich handelt. Bei der Probe aus GWM Nakri 52 ist der Sickerwassereinfluss nur aus dem ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis zu ersehen. Die Fließzeit des Sickerwassers zu den GWM beträgt ca. 3,5±1,5 Tage für die Entnahmestellen Nakri 52 und K9 sowie 3,5±3 Tage für die Entnahmestelle K1. Falls sich aufgrund des langandauernden Radionuklidtransports schon ^{228}Th-Anreicherungen in der unmittelbaren Umgebung der Entnahmestellen gebildet haben, die ^{224}Ra nachbilden, ist die jeweilige Fließzeit eher kürzer einzuschätzen.

5.3 Untersuchungen an Fluid- und Gesteinsproben aus der KTB-VB und an Fluidproben der KTB-HB

Die geologisch/petrographischen und hydrochemisch-/isotopenhydrologischen Untersuchungen an der Vor- und Hauptbohrung der Kontinentalen Tiefbohrung sind nicht Gegenstand dieser Arbeit. Die Ergebnisse besonders der hydrochemischen und isotopenhydrologischen Untersuchungen werden jedoch -soweit veröffentlicht- in die Interpretation mit einbezogen. Für nähere Informationen wird auf die KTB-Reports 87-1 bis 91-4 und weitere im Text zitierte Literatur verwiesen.

Während des Abteufens der Vorbohrung (KTB-VB) wurden u.a. in den Bereichen 3447m, 3930 m, 3986 m und 3995 m offene Fluid-führende Klüfte festgestellt. Die Fluide waren hochmineralisiert (FRITZ & LODEMANN, 1990). Eine getrennte Beprobung der drei letztgenannten Fluid-führenden Bereiche mit einem Geocom-Sampler und eine anschließende Untersuchung der Fluide auf ihre Ra-Isotope zeigte, dass mit ca. 17 Bq/kg und ca. 11 Bq/kg für ^{228}Ra und ^{224}Ra hohe Aktivitäten vorlagen. Die ^{226}Ra-Aktivitäten lagen dagegen mit ca. 2,6 Bq/kg in einem für hochmineralisierte Fluide normalen bis niedrigen Bereich. Dass die Werte für alle drei Bereiche gleich sind und gleichzeitig ein sehr hohes ^{228}Ra/^{226}Ra-Verhältnis aufweisen, lässt auf eine Vermischung der Fluide aus den drei Entnahmebereichen im Bohrloch schließen (Tab. 12a).

Das relativ niedrige ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis ist auf den langen Spülungsumlauf bei der Zirkulation im Rahmen der Geocom-Beprobung zurückzuführen. Berechnet nach der Zerfallskonstante von ^{244}Ra des Fluids aus 3930 m, zeigt es die Summe der Aufenthaltszeit des Fluids im Bohrloch und der Aufstiegszeit des Geocomsamplers mit 54 Stunden an (vgl. KESSELS et al., 1990). Dadurch wird aufgezeigt, dass:

- ein ursprüngliches ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis von 1 gegebenen ist, und
- die Fluidprobe tatsächlich aus der unmittelbaren Bohrlochumgebung stammt.

Bei der Probe aus 3447 m lagen die Aktivitäten mit ca. 1 Bq/kg sowohl für ^{226}Ra als auch für ^{228}Ra in einem verhältnismäßig niedrigen Bereich. Das Isotopenverhältnis lag damit ebenfalls bei 1.

Die gleichzeitig entnommenen Fluidproben zur Untersuchung von ^3H wiesen bis zu 5,6 TU Tritium auf (3930 m), wodurch der Anteil der Kontamination des Fluids durch Bohrspülung aufgezeigt wurde (LODEMANN & FRITZ, 1990).

Im April 1990 wurde an der KTB-VB ein Pumpversuch vorgenommen. Ein zweiter Pumpversuch dauerte von August bis Dezember 1991. Das mit einem Gesamtmineralgehalt von ca. 60 g/l (FRITZ & LODEMANN, 1990) sehr stark mineralisierte Wasser konnte jeweils nur aus dem Teufenbereich zwischen 3850 und 4000 m zufließen. Oberhalb dieses Bereiches war die Bohrung abgesperrt.

Geologisch handelte es sich bei dem bepumpten Gesteinsbereich um intrusive Metabasite. Im o.g. unzementierten Bereich wurde in 3861 m Tiefe eine epidotimprägnierte Zone mit Zufluss stark salinaren Grundwassers ausgemacht. Zwischen 3798 und 3873 m gibt es lokal eine starke Zerklüftung mit Epidot-Mineralisation (vgl. SIGMUND et al., 1990). Im Bereich zwischen 3990 und 4000 m liegt stark alterierter Amphibolit vor.

5.3.1 Pumpversuch April 1990 an der KTB-VB

Der Entnahmebereich des Fluids aus der KTB-Vorbohrung lag zwischen 3850 und 4000 m (Endteufe). Oberhalb war die Bohrung zementiert.

Der Pumptest begann am 07.04.1990 um 23.00 h und endete am 11.04.1990 um 18.00 h, was einer Förderzeit von 92 Stunden entspricht. Die Förderrate schwankte zwischen 10 und 15 l/min. Das Gesamtfördervolumen betrug 71,0 m^3, entsprechend einem 2-fachen Volumenaustausch (vgl. PEKDEGER et al., 1990).

Zunächst wurde Leitungswasser aus dem Ortsnetz Windischeschenbach abgepumpt, das zur Reinigung des Bohrloches von Spülflüssigkeit diente und eine im Verhältnis zu den Fluiden aus der Vorbohrung niedrige spez. el. Leitfähigkeit besaß. Nach Anstieg der Leitfähigkeit auf den erwarteten, schon aus vorangegangenen Sampler-Probenahmen bekannten Wert von ca. 82000 µS/cm wurden die ersten Wasserproben entnommen.

5.3.1.1 Radium-Aktivitäten der Fluidproben

Die Aktivität des ^{226}Ra, ^{228}Ra und ^{224}Ra lagen - wie oben erwähnt- bei den früher entnommenen Fluid-Proben aus dem Geocom-Sampler im Tiefenbereich unterhalb 3930 m bei 2,6, 18 und 12 Bq/kg.

Die ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{224}Ra-Aktivitäten der ersten Fluid-Probe des Pumpversuchs lagen mit 1,9±0,3; 12,2±1,2 und 9,2±1,1 Bq/kg in einem deutlich niedrigeren Bereich als in den Sampler-Proben.

Dies ist ein Hinweis darauf, dass hier entweder noch ein Mischwasser aus Leitungswasser und Fluid vorlag, oder, dass bereits die Zumischung eines Fluids aus einem Bereich des Grundwasserleiters gegeben war, der nicht unmittelbar von der "Thorium-Kluft" beeinflusst wird. Es ist stark anzunehmen, dass beide Möglichkeiten zutrafen.

Das gegebene ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis bestätigt eine von anderer Seite berechnete (LODEMANN & FRITZ, 1990) max. Aufstiegszeit von 53 h.

Das ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis stieg im weiteren Verlauf des Pumpversuches an. Dies war tendenziell auch bei dem ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis zu beobachten. Die Aktivitäten der Isotope ^{228}Ra und ^{224}Ra gingen leicht zurück, während die Aktivität des ^{226}Ra leicht anstieg. Dies deutet darauf hin, dass mit fortschreitender Abpumpzeit ein Fluid zugemischt wurde, dessen Radium-Isotopie nicht der des Fluids in der "Thorium-Kluft" entsprach. Das veränderte ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis zeigt die Herkunft der "Thorium-Kluft"-fernen Fluidkomponente aus einem Bereich mit anderem ^{238}U/^{232}Th-Verhältnis auf (Abb. 19, Tab. 12b).

Die abnehmende Aktivität der Ra-Isotope aus der ^{232}Th-Reihe zeigte, dass es sich bei der schon durch das Gamma-Log erkannten "Thoriumkluft", im Bereich der Endteufe (4000 m) der KTB-VB, um eine ganz lokale Erscheinung handeln muss.

Nach dem Pumpversuch wurde am 12.04.1990 eine Probenahme mit dem Tiefensampler durchgeführt. Hier konnten an zwei Proben Bestimmungen der Ra-Aktivitäten des Fluids durchgeführt werden. Wie aus Tab. 12c zu ersehen ist, sind die ^{224}Ra- und ^{228}Ra-Gehalte nach dem Ende des Pumpversuchs weiter abgesunken, während der ^{226}Ra-Gehalt anstieg, d.h., dass das Fluid, das den Wiederanstieg bewirkte, aus einem bohrlochferneren Bereich nachfloss.

Eine Änderung der U/Th-Verhältnisse im Verlauf dieses Pumpversuchs wurde ebenfalls beobachtet, durch welche die obige Interpretation bestätigt wird (frdl. mündl. Mitt. von Prof. H. Maier, Bamberg).

5.3.2 Pumpversuch August bis Dezember 1991 an der KTB-VB

Im Verlauf des Pumpversuches Ende 1991 wurden insgesamt 5 Fluidproben auf ihre Radium-Aktivitäten hin untersucht (Tab. 12d).

Diese zeigen gegenüber den Proben, die in der Anfangsphase des ersten Pumpversuchs entnommen wurden, erniedrigte ^{228}Ra-Aktivitäten und dementsprechend erhöhte ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse. Das bedeutet, dass mit fortschreitendem Pumpversuch der Anteil des Fluids aus der "Thorium-Kluft" immer kleiner wurde, und dass das (die) zugemischte(n) Fluid(e) einem Bereich entstammte(n), in dem nur noch eine geringe Erhöhung der Th-Aktivität gegenüber der U-Aktivität gegeben ist (Abb.19).

Über die Entwicklung der ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse im Verlauf des Pumpversuchs, lässt sich eine grobe Abschätzung des Anteils an zugemischtem Fluid, das nicht aus der "Thoriumkluft" stammt (Fremdanteil), machen. Für diese Kalkulation wird angenommen, dass das zugemischte Fluid ein ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis von 1 hat, also im Aktivitätsgleichgewicht ist, und dass das Ausgangsverhältnis des Fluids in der Thorium-Kluft bei 0,15 lag.

Bei der beim ersten Pumpversuch als erstes entnommenen Fluidprobe war entsprechend dem ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis noch kein Fremdanteil auszumachen. Die Erniedrigung der ^{226}Ra- und ^{228}Ra-Aktivität war demnach auf die Verdünnung mit Spülwasser zurückzuführen, das selbst keine nennenswerten Ra-Aktivitäten besitzt. Die Änderung, die im ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis der letzten Probe des zweiten Pumpversuchs zu sehen war, zeigt einen Fremdanteil von ca. 80% auf.

Wird dagegen angenommen, dass in den beiden zuletzt gemessenen Proben des zweiten Pumpversuchs nur noch das zugemischte Fluid (100%) gemessen wurde und das Fluid der "Thoriumkluft" vollständig abgepumpt war, so ist davon auszugehen, dass es in der weiteren Umgebung der "Thoriumkluft" ebenfalls noch eine leichte positive Th-Anomalie gibt, da das Fluid ein ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis von ca. 0,7 hat.

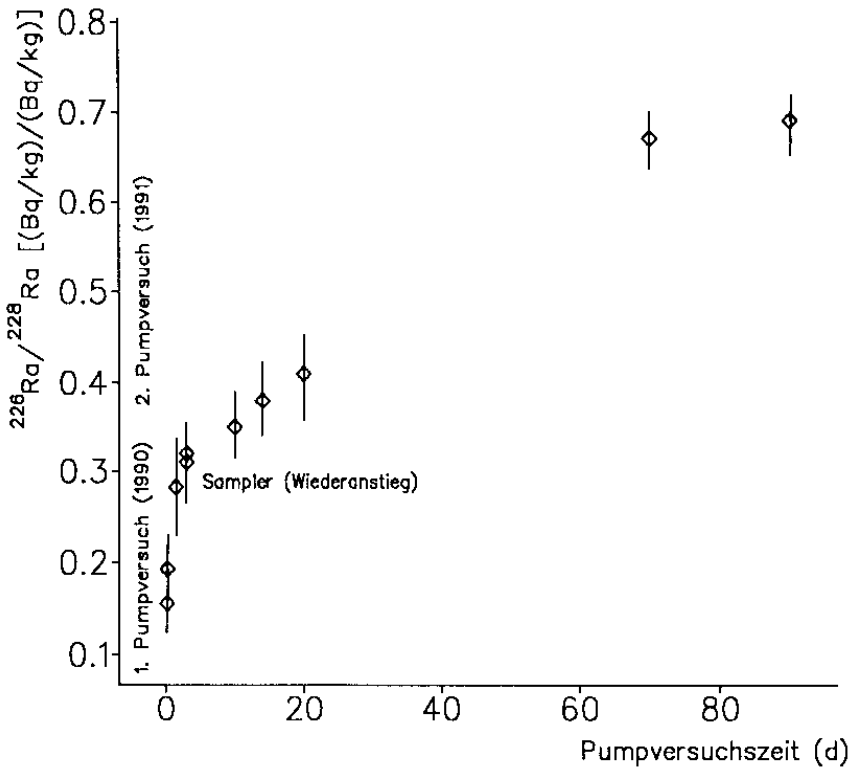


Abb. 19: $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse im Verlauf der beiden Pumpversuche an der KTB-VB.

5.3.3 Radonaktivitäten von Fluid- und Gasproben aus der KTB-VB

Die Radonaktivitäten von zwei Fluidproben, die nach dem ersten Pumpversuch und am Ende des zweiten Pumpversuches entnommen wurden, sowie von zwei Gasproben, die ebenfalls am Ende des zweiten Pumpversuches entnommen wurden, sind Tab. 12c und 12e zu entnehmen.

In den Proben der nach dem ersten Pumpversuch mit einem Sampler entnommenen Fluide wurden ^{222}Rn-Aktivitäten von 4,4±3,0 bzw. 5,5±3,6 Bq/kg gemessen.

Am Ende des zweiten Pumpversuchs betrugen die ^{222}Rn-Aktivitäten 2,5±0,3 in einer vor dem Degasser entnommenen Fluidprobe und 2,8±0,3 in einer nach dem Degasser entnommenen Fluidprobe.

Bei einem Vergleich der ^{222}Rn-Gehalte der Fluidproben beider Pumpversuche muss berücksichtigt werden, dass die ersten beiden Proben direkt im Grundwasserleiter entnommen wurden, also in einem Bereich, wo das Fluid noch nicht so stark druckentlastet war. Deshalb kam es auch nicht zu einer so starken Entgasung wie bei den während des zweiten Pumpversuchs entnommenen Proben.

Das Volumenverhältnis von Gas/Fluid betrug hier 800 l/m^3, entsprechend einem Verhältnis von 4/5. Bei Radongehalten von 2,2±0,3 bzw. 1,1±0,2 Bq/l Gas aus Degasserproben müssten - bei einer proportionalen Verteilung von Radon im freien Gas und im Fluid- insgesamt ca. 2,8+2,2=5,0 bzw. 1,4+1,1=2,5 Bq/l Gesamt-^{222}Rn im nicht entgasten Fluid gewesen sein. An den unterschiedlichen ^{222}Rn-Aktivitäten der Degasserproben ist jedoch zu sehen, dass große Schwankungen in der ^{222}Rn-Aktivität des Gases aus dem Degasser möglich sind.

Die ^{222}Rn-Aktivität der Fluidproben, die dem System vor und nach dem Degasser entnommen wurden, können als gleich betrachtet werden (die Entgasung fand schon weit vor dem Degasser statt). Wird nun die Gesamt-^{222}Rn-Aktivität des nicht entgasten Fluids mittels der ^{222}Rn-Aktivitäten der Fluidproben berechnet, so beträgt die Gesamt-^{222}Rn-Aktivität des am 17.12.1991 entnommenen nicht entgasten Fluids aus der KTB-VB 2,5+2=4,5 bzw. 2,8+2,2=5,0 Bq/l.

Eine zusammenfassende Betrachtung aller genannten Radonmessungen und Berechnungen lässt den Rückschluss zu, dass eine ^{222}Rn-Aktivität von ca. 5 Bq/l im nicht entgasten Fluid gegeben ist.

Wird eine Aufstiegszeit, die entsprechend dem $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis vom 17.12.1991 etwa 20 bis 25 Stunden beträgt, angenommen, so erhält man eine tatsächliche ^{222}Rn-Aktivität im Grundwasserleiter von ca. 6 Bq/l.

Aus diesem Wert lässt sich wiederum ein $^{222}Rn/^{226}Ra$-Verhältnis von ca. 3 berechnen, was bedeutet, dass nur etwa 1/3 des im Grundwasserleiter befindlichen Radiums in Lösung ist, während ca. 2/3 des gesamten Radiums an den Gesteinsoberflächen haftet (vgl. Redoxmodell 3.3.1.5).

5.3.4 Relation der Ra-Aktivitäten der Fluide zu denen des Gesteins der KTB-VB

Vergleichende Untersuchungen von Gesteinsproben (Bohrklein) aus der KTB-VB bestätigten insgesamt die schon durch das Gamma-Log erhaltenen Informationen.

Wie aus Tab. 12a zu entnehmen ist, liegen die $^{226}Ra/^{228}Ra$ Aktivitätsverhältnisse des Gesteins aus 1995, 2500, 3450 und 3932 m Tiefe bei 1, es liegt also ein ganz normales Gleichgewichtsverhältnis vor. Das $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis des Fluids aus 3450 m Tiefe liegt ebenfalls bei 1. Bis zu diesem Tiefenbereich liegen demnach ausgeglichene Ra-Isotopenverhältnisse sowohl im Fluid als auch im Gestein, als auch zwischen Fluid und Gestein vor.

In den Proben aus dem Geocom-Sampler aus 3930 m bzw. 3986 m Tiefe ist das $^{226}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnis des Fluids mit 0,14±0,01 bzw. 0,16±0,01 sehr niedrig, während das des Gesteins bei 1 liegt.

Erst im Bereich von 3986 bzw. 3991 m erniedrigt sich das $^{226}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnis des Gesteins auf etwa 0,5 und im Bereich 3995 m auf etwa 0,3.

Da das $^{228}Th/^{228}Ra$-Verhältnis des Gesteins immer bei 1 liegt, muss angenommen werden, dass die gemessene Gesteinsprobe kaum Kontakt zu dem Fluid mit dem niedrigen $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis hatte. Im Falle eines längerwährenden Fluidkontaktes, würde sich das aus dem ^{228}Ra des Fluides produzierte ^{228}Th auf den Gesteinsoberflächen absetzen und das $^{228}Th/^{228}Ra$-Verhältnis wäre bedeutend höher. Da auch das Gamma-Log im Bereich 1930 m keine Erhöhung des Th-Gehaltes anzeigte, ist die Plausibilität dieser Interpretation gewährleistet.

Es handelt sich damit bei dem Fluid, das in 3930 m Tiefe mittels eines Geocom-Samplers entnommen wurde, um ein Mischfluid zwischen dem in 3995 m Tiefe

auftretenden Fluid und dem in 3930 m Tiefe auftretenden Fluid, wobei die weitaus größte Komponente aus 3995 m Tiefe stammen muss.

Dieses Fluid zirkulierte also nicht natürlicherweise im Gestein bis in den Bereich der Fluid-führenden Kluft bei 3930 m, sondern stieg vor (oder während) der Beprobung mit dem Geocom-Sampler im Bohrloch selbst bis in diese Höhe auf.

5.3.5 Untersuchungen an Fluiden der KTB-HB

Aus der Hauptbohrung der Kontinentalen Tiefbohrung konnten nur zwei Fluidproben zur ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th-Aktivitätsbestimmung erhalten werden. Sie stammten aus zwei Entnahmebereichen bei 3184 m und 3162.5 m. Da es sich um eine puddingartige Mischung aus Originalfluid und Bohrspülung handelte, war eine Aufbereitung entsprechend Kap. 4.1.2 nicht möglich. Die Masse wurde deshalb eingedampft und die ^{226}Ra-, ^{228}Ra und ^{228}Th-Aktivitäten des Trockenrückstands wurden bestimmt. Zum Vergleich wurde auch eine "Nullprobe" (Bohrspülung) gemessen und deren Aktivitäten dann von denen der Mischproben abgezogen (Tab. 12f).

Als Ergebnis sind zwar mit max. ca. 0,50 Bq/kg ^{226}Ra und 1,2 Bq/kg ^{228}Ra nicht so hohe Aktivitäten wie im Endteufenbereich ("Thoriumkluft") der KTB-VB zu sehen, jedoch sind die ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse mit 0,33±0,33 (3184 m) und <0,5 (3162,5 m) durchaus vergleichbar.

Das Gamma-Log des beprobten Teufenbereiches zeigt eine positive Thoriumanomalie an, welche die Plausibilität der genannten Ergebnisse stützt.

Zwischen der Hauptbohrung und der Vorbohrung wurde durch Beobachtung der Wasserspiegelabsenkung eine hydraulische Verbindung ausgemacht. Es ist jedoch unwahrscheinlich, dass das beprobte Fluid aus der Hauptbohrung zum gleichen hydrogeochemischen System gehört wie das Fluid aus dem Endteufenbereich der Vorbohrung, da ein Vertikalabstand von ca. 900 m zwischen beiden besteht.

Die wiederholten positiven Thoriumanomalien der Vorbohrung und der Hauptbohrung sind möglicherweise die Folge einer Uranabreicherung. Da das U/Th-Verhältnis dadurch sehr klein wird, wäre zu überlegen, inwieweit Uran eine Mobilisierung erfuhr, welche bei einer anschließenden Fixierung in der weiteren Umgebung der KTB eine Lagerstättenbildung zur Folge gehabt haben könnte (z.B. Zone von Tirschenreuth-Mähring).

5.4 Pumpversuche im näheren KTB-Umfeld

5.4.1 Pumpversuche in einem Granit-/Diabas-Grundwasserleiter

An einer 125 m tiefen Neubohrung zur Mineralwassererkundung in der Oberpfalz wurde im Frühjahr 1990 ein 40-tägiger Pumpversuch durchgeführt (Silvana I). Im Winter 1991/1992 wurde an einer weiteren Bohrung, die nur ca. 40 m von der ersten entfernt lag, ebenfalls ein Pumpversuch durchgeführt (Silvana II).

Die Bohrpunkte liegen ca. 400 m ü. NN. Geologisch handelt es sich hier um einen Ausläufer des Steinwaldgranits, der sehr stark zersetzt ist, sich mit pliozänen, tuffitischen Basalten verzahnt und von ca. 4 m pleistozäner Fließerde überdeckt wird.

In der näheren Umgebung dieser Bohrungen gab es schon früher Brunnen (z.B. Silvana (alt), St. Linus), durch die bekannt war, dass das hier befindliche Grundwasser stark CO_2 - haltig ist. Das Auftreten der hohen CO_2-Gehalte ist auf die letzte Exhalationsphase des tertiären Vulkanismus zurückzuführen.

5.4.1.1 Pechbrunn Silvana I

Im Verlauf dieses Pumpversuchs wurden insgesamt 7 Grundwasserproben zur Bestimmung der Radium-Aktivitäten und 5 Proben zur Bestimmung der ^{222}Rn-Aktivitäten entnommen (Tab.14). Die beiden benachbarten, nur 40 bzw. 80m entfernten Brunnen, Silvana (alt) bzw. St. Linus, wurden zum Vergleich ebenfalls beprobt (Tab. 15 und 16).

Die Radium-Aktivitäten der Proben aus Silvana I lagen mit max. ca. 0,2 Bq/kg (^{226}Ra) insgesamt in einem für solche Grundwasserleiter durchschnittlichen Bereich.

Zu Beginn des Pumpversuchs (1. PV-Tag) gab es ein starkes Absinken der Ra-Aktivität des Grundwassers aus der Bohrung Silvana I, das von einem entsprechenden Absinken der spez. el. Leitfähigkeit begleitet wurde. Hier konnte im Gegensatz zum Pumpversuch an der KTB-VB schon anhand der spez. el. Leitfähigkeit festgestellt werden, dass ein stärker mineralisiertes Grundwasser sukzessive mit einem schwächer mineralisierten Grundwasser vermischt wurde. Die Ergebnisse der chemischen Grundwasseranalyse zeigen parallel das Abnehmen der Konzentrationen bestimmter Ionen (Tab. 13).

Die gleichzeitige Steigung des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses bestätigte nicht nur, dass ein Grundwasser mit einer niedrigeren Ra-Aktivität aus einem bohrlochferneren Bereich zugemischt wurde, sondern zeigte auch eine relativ langsame Grundwassermigration an bzw. eine langsame Zumischung des neuen Grundwassertyps.

Mit einer Erhöhung der Pumpleistung wurde auch die Geschwindigkeit der Zufuhr aus dem Bereich des Grundwasserleiters mit niedrigen Ra-Aktivitäten erhöht. Dadurch fiel das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis zunächst stark ab und pendelte sich dann auf einem statischen Wert ein. Dieser Wert war durch die Fließgeschwindigkeit bzw. Entnahmemenge und den Ausgangswert des Ra-Isotopenverhältnisses im bohrlochfernen Grundwasser definiert. Während des kurzen Kontakts mit dem Gestein in Bohrlochnähe konnte nur wenig Ra an das Grundwasser abgegeben und das Verhältnis deswegen kaum beeinflusst werden.

Das Einpendeln des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnisses auf einen Wert, der etwas über 1 lag, verlief parallel zum Erreichen des quasistationären Zustandes (Abb. 20). Diese Tatsache lässt den Schluss zu, dass seit dem Einpendeln der spez. el. Leitfähigkeit (etwa ab dem 4. PV-Tag) immer Grundwasser aus demselben bohrlochferneren Grundwasserregime gefördert wurde (vgl. Mischmodelle 3.3.1.2).

Das heißt konkret, dass das zunächst bepumpte Grundwasserregime nach der Entnahme von ca. 150.000 l Grundwasser mehr oder weniger erschöpft war, bzw. dass immer das gleiche Mischungsverhältnis zwischen den beiden Grundwässern bestand. Dies ist eine grundlegende Information zur Konzipierung der Brunnenbewirtschaftung.

Die parallele Beprobung der Grundwässer zweier weiterer nur ca. 30 m tiefer Brunnen im Umkreis von ca. 40 und 80 m (Silvana (alt), St. Linus) zeigte, dass diese zwar von einer Absenkung betroffen waren, dass sich aber in ihren Ra-Isotopengehalten und -Verhältnissen keine Änderung ergab. Sie wurden chemisch nicht durch ein fremdes Grundwasserregime beeinflusst.

Eine parallele ^{3}H-Bestimmung an Grundwasser aus Silvana I ergab wiederum, dass dieses kein Tritium enthielt und somit nicht von oberflächennahen Grundwässern aus dem Regime der beiden anderen Brunnen beeinflusst worden war. Deren Grundwässer wiesen jeweils Tritiumgehalte und damit Anteile von "jungem" Grundwasser auf (Tab. 17).

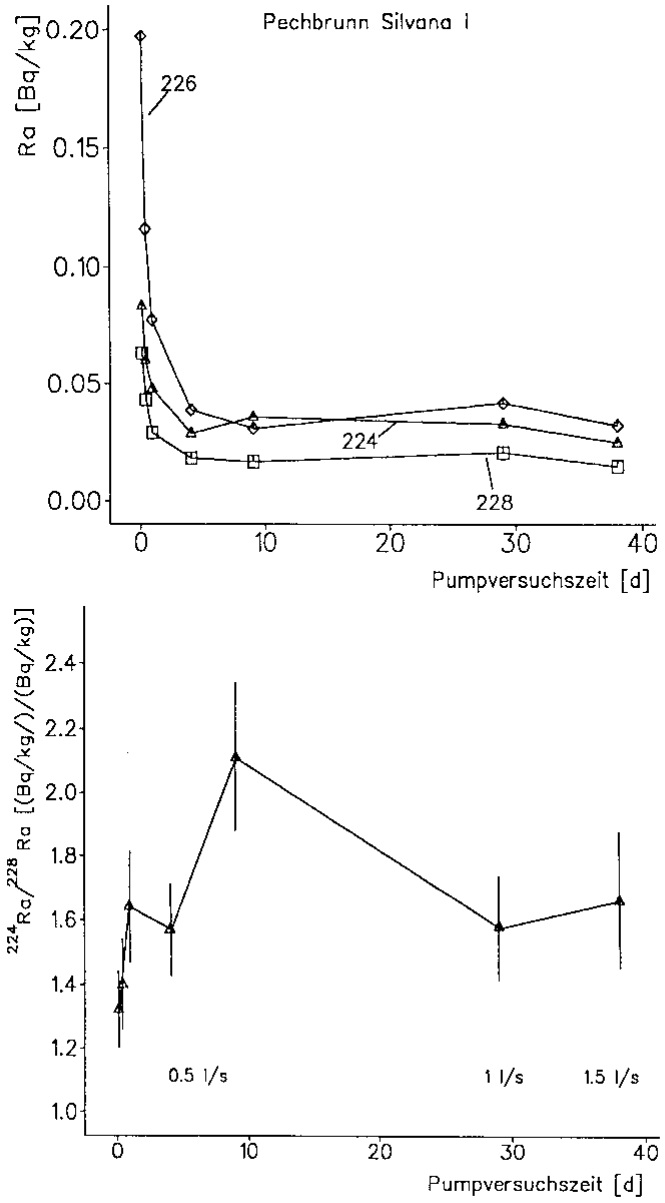


Abb. 20: $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Silvana I.

5.4.1.2 Pechbrunn Silvana II

Die Bohrung Silvana II wurde 1991 in Pechbrunn in ca. 40 m Entfernung von Silvana I niedergebracht. Die Endteufe dieser Bohrung liegt bei 60 m, wobei die obersten ca. 20 m abgesperrt sind. Der Pumpversuch begann am 05.10.1991 und endete am 15.01.1992, dauerte also insgesamt 14 Wochen. Der Pumpversuch umfasste 2 verschiedene Pumpstufen, wobei die Förderrate zunächst bei 0,75 l/s, dann bei 1 l/s lag. Im Verlauf dieses Pumpversuches wurden 5 Grundwasserproben zur Radium-Aktivitätsbestimmung, 1 Probe zur Radon-Aktivitätsbestimmung, 2 Proben zur Tritiumgehaltsbestimmung und eine Probe zur Kohlenstoffisotopen-Bestimmung entnommen.

Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen:

Die einzelnen Ergebnisse sind Tab. 17 zu entnehmen.

Die Gehalte an Tritium (^{3}H) betrugen 2,0±0,7 TU (07.10.1991) und 2,4±1,8 TU (27.11.1991). Sie zeigen damit ein Mischsystem zwischen einem "alten" und einem "jungen" Grundwasser an, wobei der geringere Teil "junges" Wasser ist.

Die Tatsache, dass sich der ^{3}H-Gehalt im Verlauf des Pumpversuches nicht ändert, lässt darauf schließen, dass die "junge" Komponente über die Bohrung selbst aus einem höher gelegenen Bereich in den Grundwasserleiter mit dem "alten" Grundwasser gelangt.

Der Kohlenstoff-13-Gehalt (^{13}C) von –3,37 deutet auf ein sehr altes Grundwasser hin, dessen Kohlenstoff einem starken Austausch mit dem des Gesteins unterlag.

Dieser Wert wird auch durch das Ergebnis der Kohlenstoff-14-Gehaltsbestimmung (^{14}C) bestätigt. ^{14}C war nicht nachweisbar (< 3 pMC). Damit kann für die alte Grundwasserkomponente von einem Alter von einigen 10000 Jahren ausgegangen werden.

Die Radium- und Radon-Isotopengehaltsbestimmungen ergaben insgesamt niedrigere Aktivitäten als bei Silvana I (vgl. Tab. 18). Die Gehalte an ^{226}Ra bewegten sich zwischen 8±0,1 und 4,6±0,5 mBq/kg, die von ^{228}Ra lagen bei 6,7±1,1 bis 16,0±2,4 mBq/kg und die von ^{224}Ra bei 13,7±1,8 bis 30,9±4,5 mBq/kg.

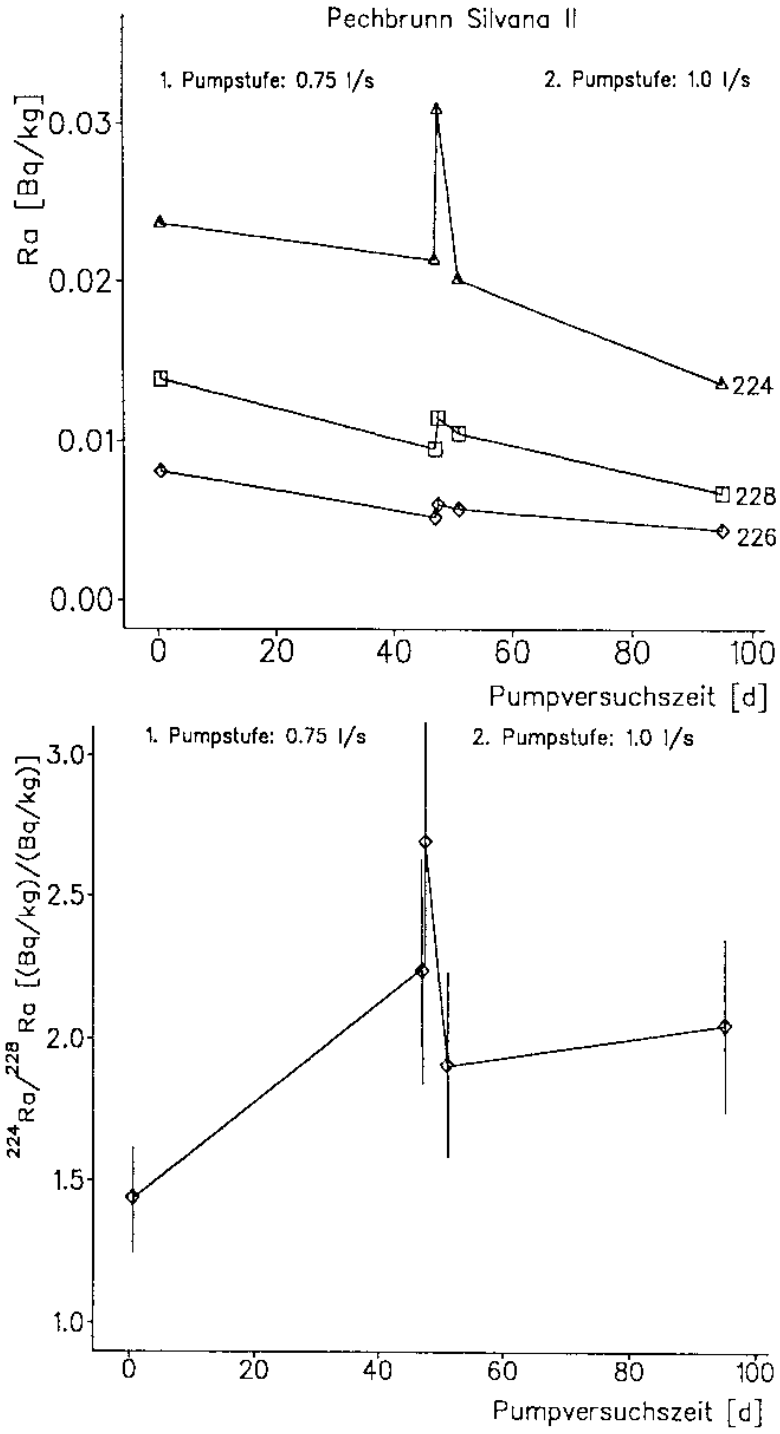


Abb. 21: Ra-Aktivitäten (oben) und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Silvana II.

Die Aktivitäten aller drei gemessenen Radiumisotope sanken im Verlauf der ersten Pumpstufe zunächst leicht, stiegen dann bei Erhöhung der Pumprate leicht an um anschließend wieder zu sinken (Vgl. Abb. 21). Die erste Beprobung konnte erst 5 Stunden nach Beginn des Pumpversuchs durchgeführt werden. Es ist zu vermuten, dass die ^{224}Ra-Aktivität bei Beginn des Pumpversuchs deutlich höher lag als am ersten Beprobungszeitpunkt, so dass -ähnlich wie nach der Erhöhung der Pumprate- ein stärkeres Abfallen der Aktivität gegeben war, als es hier zu sehen ist.

Das ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis stieg in der ersten Pumpphase leicht an. Bei Erhöhung der Pumprate stieg es stärker an und fiel im weiteren Verlauf des Pumpversuchs wieder ab.

Da die ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse immer oberhalb des Aktivitätsgleichgewichts liegen, muss davon ausgegangen werden, dass es eine Anreicherung von ^{228}Th auf den Gesteinsoberflächen gibt. Das Absinken der Aktivitäten und Ansteigen des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses entspricht dem in Kap.3.3.1.2 vorgestellten Mischmodell (Abb.6c), und besagt, dass bohrlochnah eine höhere Aktivität gegeben ist als bohrlochfern. Der plötzliche Anstieg der ^{224}Ra-Aktivität und des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses bei Beginn der zweiten Pumpstufe stellt die Reaktion auf eine plötzlich erhöhte Grundwasserfließgeschwindigkeit dar, wobei eine verstärkte "Entleerung" von Kleinkapillaren mit größerer Oberfläche und deshalb höheren ^{224}Ra-Aktivitäten erfolgt (Doppelporositätsmodell, Kapitel 3.3.1.3). Nach dieser "Entleerung" gehen die ^{224}Ra-Aktivitäten wieder zurück, da jetzt alle Kapillaren von bohrlochfernerem Grundwasser durchflossen werden. Der anschließende tendenzielle Anstieg des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses ist dann wieder eine Folge des weiteren Zuströmens bohrlochfernen niedriger aktiven Grundwassers.

5.4.1.3 Zusammenfassende Beurteilung der Grundwässer aus Silvana I und II

Die ^{226}Ra-Aktivität liegt im Grundwasser der Bohrung Silvana II niedriger als im Grundwasser der Bohrung Silvana I, wobei die Tendenz im Verlauf des Pumpversuchs sinkend ist und sich die ^{226}Ra-Aktivität demnach der von Silvana II annähert.

Die ^{224}Ra- und ^{228}Ra-Aktivitäten von Silvana I liegen in der 2. Pumpphase in einem ähnlichen Bereich wie die Aktivitäten von Silvana II. Auch die $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse scheinen sich ähnlich zu entwickeln.

Dies zeigt, dass die Grundwasserleiter, die durch die beiden Bohrungen erschlossen wurden, zwar primär unterschiedliche $^{238}U/^{232}Th$-Verhältnisse besitzen, dass aber die Möglichkeit einer Verbindung der beiden Grundwasserleiter durch hydraulische Veränderungen (Grundwasserentnahme) sehr wahrscheinlich ist.

Vermutlich stammt das in der zweiten Pumpphase zugemischte Grundwasser von Silvana I aus dem gleichen höhergelegenen Bereich wie das Grundwasser von Silvana II.

Die starke Abnahme der spez. el. Leitfähigkeit zu Beginn des Pumpversuchs an Silvana I deutet auf ein älteres Grundwasser vermutlich aus dem tieferen Teil des Grundwasserleiters hin, das relativ schnell erschöpft war. Das sich zumischende Grundwasser stammte dann aus einem darüberliegenden Bereich mit weniger hoher Mineralisation. Aus diesem Bereich stammt auch das Grundwasser des mit 60 m Endteufe flacheren Brunnens als Silvana I (125 m) Silvana II.

Die Entwicklung des Ra-Isotopenverhältnisses im Verlauf des Pumpversuchs an Silvana I auf das Ra-Isotopenverhältnis von Silvana II zu kann damit erklärt werden.

5.4.2 Pumpversuch in einer Tiefbohrung im Egergraben und vergleichende Untersuchung des Grundwassers aus einer Thermalquelle: Karlovy Vary (Karlsbad, ČR)

5.4.2.1 Einführung und Beschreibung der Probenahmestellen

Eine nähere geologische Beschreibung des Egergrabens ist Kapitel 5.1 zu entnehmen. Die Petrographie des Bohrkerns ist in Kapitel 7.1.1 beschrieben.

Im Bereich des Egergrabens, im Randbereich der Stadt Karlovy Vary, wurde ein PV an einer 1201,4 m tiefen Bohrung mit der Bezeichnung HJ-2 durchgeführt. Alle Wasserzutrittsstellen lagen im Granit im Tiefenbereich zwischen 390 und 420 m.

Der Pumpversuch sollte zeigen, inwieweit eine hydraulische Verbindung zwischen dem Grundwasser aus dem Grundgebirge und dem Grundwasser aus dem darüberliegenden Tertiär besteht. Eine Grundwasserabsenkung im Zuge des Abbaus der tertiären Braunkohle Anfang des 20. Jahrhunderts hatte die Sprudelquelle in Karlovy Vary zum Versiegen gebracht und damit einen Hinweis auf eine solche hydraulische Verbindung erbracht.

Die Bohrung HJ-2 steht von 0-65 m im Tertiär und von 65-1201,4 m in z.T. stark zersetztem bis völlig umgewandeltem (silifiziertem) Granit.

Die Fassung der Sprudelquelle erfolgt über eine ca. 40 m lange Schrägbohrung, die in einer großen Kluft endet, in der das Wasser aufsteigt.

Die starke Mineralisation der im Kernstadtbereich von Karlovy Vary austretenden Sprudelquelle führte früher bei ihrem Austritt an die Oberfläche zur Bildung einer dicken Sinterschicht. Diese Versinterung führte immer wieder zu einem Verschluss der Wasseraustrittsstellen. Durch das von unten nachsteigende Wasser wurde dieser "Sprudelsteinschild" schließlich unter so starken Druck gesetzt, dass er explosionsartig aufbrach. Um diese "wilden" Ausbrüche zu kanalisieren, wurden Bohrungen gezielt in den Kluftbereich abgeteuft. Außerdem wurden von "wilden" Ausbrüchen stammende Spalten durch Betoninjektionen zum großen Teil geschlossen.

5.4.2.2 Verlauf des Pumpversuchs in der Bohrung HJ-2

Der vom 09. bis 14.05.1990 stattfindende Pumpversuch an der Bohrung HJ-2 wurde bei zwei verschiedenen Pumpstufen, nämlich 0,09 und 0,12 l/s gefahren. Die Pumpe hing in 153 m Tiefe.

Zwei Stunden nach Beginn des Pumpversuchs hatte der Grundwasserspiegel nach einer Absenkung um 33,46 m einen quasistationären Gleichgewichtszustand erreicht.

Die Erhöhung der Pumprate erfolgte am 3. Pumpversuchstag. Hier war zwar schon nach einer Stunde der maximale Absenkungsbereich bei weiteren etwa 40 m erreicht, der Grundwasserspiegel schwankte jedoch während der folgenden 7 Stunden noch bis zu max. 5 m infolge des wiederholten Korrigierens der Pumprate.

Der Wiederanstieg bis zu einem Gleichgewichtszustand bei 22,4 m unterhalb des ursprünglichen Standes des Grundwasserspiegels erfolgte innerhalb einer einzigen Stunde.

Die schnelle Reaktionszeit des Grundwasserspiegels auf die Erhöhung der Pumpleistung, sowie auf das Abstellen der Pumpe deutet an, dass zunächst ein Kluftbereich mit niedriger Speicherkapazität leergepumpt wurde, wobei der Grundwasserspiegel relativ schnell absank. Anschließend wurde das Grundwasser aus einem Niveau abgepumpt, das eine bedeutend größere Speicherkapazität besitzt und deshalb das abgepumpte Grundwasser sofort durch neu hinzugeführtes ersetzt. In Folge blieb der Grundwasserspiegel bei gleich bleibender Pumprate dann auf einem

bestimmten Niveau, dem quasistationären Gleichgewichtsniveau. Auch der schnelle Wiederanstieg auf ein Niveau etwas unterhalb des ursprünglichen zeigt, dass dieser Grundwasserleiter sehr produktiv ist. Der weitere Anstieg auf das ursprüngliche Niveau erfolgte anschließend sehr langsam, da er durch Grundwasser aus dem wenig produktiven Bereich verursacht wird, welcher schon zu Beginn des Pumpversuches sehr schnell erschöpft war.

Die Wassertemperatur stieg im Lauf des Pumpversuchs um insgesamt 4°C an.

5.4.2.3 Chemische Zusammensetzung der Fluide

Die gemeinsam mit Frau Lodemann (GSF-Hydrologie, Neuherberg) durchgeführten Probenahmen für die wasserchemischen und isotopenhydrologischen Untersuchungen fanden am 4. und 5. Pumpversuchstag bei quasistationärem Zustand statt. Eine Grundwasserprobe für eine dritte Radium-Isotopenanalyse wurde am 6. Pumpversuchstag entnommen.

An den Fluid-Proben der Bohrung HJ-2, die am 12. und 13.05.1990 entnommen wurden, und an einer Fluid-Probe aus der Sprudelquelle, führte das Institut für Wasserchemie der TU München/Großhadern wasserchemische Analysen durch. Die einzelnen Ergebnisse sind aus Tab. 19 zu ersehen. Im Folgenden wird eine kurze Charakterisierung der Fluide gegeben:

Bohrung HJ-2:

Das Fluid aus der Bohrung HJ-2 wurde von Herrn Dr. Baumann (Inst. für Wasserchemie TU München/Großhadern) als "eisenhaltiger, fluoridhaltiger Natrium-Hydrogenkarbonat-Sulfat-Thermalsäuerling" charakterisiert. Die spezifische Leitfähigkeit von 4430 bzw. 5080 µS/cm deutete schon zum Zeitpunkt der Probenahme an, dass es sich hier um ein hochmineralisiertes Grundwasser handelte[7)]. Der leichte Anstieg der spezifischen Leitfähigkeit vom 12. zum 13.5.1990 ist i.W. auf den Anstieg der Na^+-, der Cl^- und der SO_4^{2-}-Konzentration zurückzuführen (Tab. 19).

Die Aussage des Bohrmeisters, dass der größte Grundwasserzufluss aus einem Bereich bei 400 m u. GOK stammt, wurde -eine normale geothermische Tiefenstufe von 3°C/100 m vorausgesetzt[8)]- durch die vor Ort gemessene Wassertemperatur von 22,5 bzw. 23,2°C unterstützt.

Der pH-Wert von 6,1 bzw. 6,2 ist für eine solches hochmineralisiertes Fluid aus einem granitischen Grundwasserleiter als normal zu betrachten.

Freier Sauerstoff konnte nicht nachgewiesen werden - was typisch ist für tiefere Grundwässer. Das Vorliegen eines reduzierenden Milieus konnte durch das niedrige Redoxpotential von 41 bzw. 137 mV und den damit zusammenhängenden mit 41,3 bzw.43,5 mg/l relativ hohen Gehalten an gelöstem Eisen bestätigt werden.

Der gemessene Gehalt an freiem Kohlendioxid stieg zwischen dem 4. und 6. Pumpversuchstag von 665 auf 2420 mg/l an.

Sprudelquelle (BJ 36):

Die Sprudelquelle von Karlovy Vary wurde von Herrn Dr. Baumann (s.o.) als "fluoridhaltige Natrium-Hydrogenkarbonat-Sulfat-Therme" definiert, wobei Chlorid mit 603 mg/l (18,97 Äquiv.-%) nahe an der Grenze für die wertbestimmenden Bestandteile lag.

Die spezifische Leitfähigkeit dieses Fluids ist mit ca. 8600 µS/cm bedeutend höher als die der Bohrung HJ-2.

Auch die Temperatur ist mit 72,7°C nicht mit der des Fluids aus der Sprudelquelle zu vergleichen. Bei einer normalen geothermischen Tiefenstufe muss dieses Fluid aus einer Tiefe von mehr als 2000 m stammen.

Der pH-Wert liegt mit 6,8 in einem für Grundwässer normalen Bereich.

Ebenso wie bei der Bohrung HJ-2 war auch bei diesem Tiefengrundwasser erwartungsgemäß kein freier Sauerstoff nachweisbar. Das Redoxpotential lag entsprechend bei 101 mV. Im Fluid der Sprudelquelle war im Gegensatz zu dem der Bohrung HJ-2 gelöstes Eisen mit 10,9 µg/l nur in sehr geringen Konzentrationen vorhanden.

Der bei der Probenahme bestimmte Gehalt an freiem Kohlendioxid war hier mit 148 mg/l bedeutend niedriger als bei dem Fluid der Bohrung HJ-2. Dies ist jedoch darauf zurückzuführen, dass ein beim Aufstieg teilentgastes Gas-/Wasser-Gemisch an der Entnahmestelle beprobt wurde.

5.4.2.4 Ergebnisse der Radium- und Radonisotopenuntersuchungen unter Berücksichtigung der isotopenhydrologischen Untersuchungen

Die isotopenhydrologischen Untersuchungen an den Fluidproben aus Karlovy Vary wurden von der GSF Neuherberg (Hydrologie) durchgeführt. Die einzelnen Ergebnisse sind Tab. 20a, die Ergebnisse der Radium-Aktivitätsbestimmungen Tab. 20b zu entnehmen.

Bohrung HJ-2:

Bei den an drei aufeinanderfolgenden Tagen entnommenen Proben zur Ra-Isotopenbestimmung war ein deutlicher Anstieg der Ra-Aktivitäten mit fortschreitender Pumpversuchsdauer zu beobachten. ^{226}Ra stieg von 0,257±0,020 auf 0,339±0,027 Bq/kg an, ^{228}Ra von 0,130±0,011 auf 0,197±0,016 Bq/kg und ^{224}Ra - von dem aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit allerdings nur die Proben der letzten beiden Entnahmetage gemessen werden konnten- von 0,148±0,012 auf 0,176±0,017 Bq/kg. Dieser Anstieg war eine Begleiterscheinung des unter 5.4.2.3 beschriebenen Anstiegs der Gesamtmineralisation.

Die ^{222}Rn-Gehalte von 15,3±1,2 bzw. 18,0±1,4 sind relativ niedrig. Dies liegt mit Sicherheit an der durch den hohen CO_2-Gehalt erfolgten Entgasung der Proben. Alternativ können diese Ergebnisse auch die Möglichkeit anzeigen, dass relativ wenig ^{226}Ra auf den Gesteinsoberflächen abgelagert wurde, welches ^{222}Rn ins Grundwasser abgeben könnte. Die Abwesenheit von freiem Sauerstoff im Fluid und das relativ niedrige Redoxpotential stützt diese Interpretationsvariante, da in einem solchen Milieu das Ausmaß einer Radium(-Mit)-Fällung gering ist.

Der niedrige ^{3}H-Gehalt wurde sehr wahrscheinlich über die Bohrung selbst eingetragen. Er ging im Verlauf des Pumpversuchs tendenziell zurück, während der Anstieg der Gesamtmineralisation auf einen erhöhten Anteil an (höher mineralisiertem) Tiefengrundwasser und einen erniedrigten Anteil an tritiumhaltigem oberflächennäherem Grundwasser hinweist.

Die ^{2}H- und ^{18}O-Werte blieben erwartungsgemäß gleich. Sie liegen auf der mittleren Niederschlagsgeraden im gleichen Bereich wie die anderen Mineralwässer des KTB-Umfeldes (FRITZ & LODEMANN, 1990; LODEMANN, 1993).

Die δ^{13}C-Ergebnisse zeigen, dass ein starker Austausch von Kohlenstoff zwischen dem Fluid aus der Bohrung HJ-2 und dem Gestein stattgefunden hat. Sie

liegen für beide Entnahmetage im gleichen Bereich. Da eine Entgasung der Probe vor oder während der Probenahme stattfand, ist der Gesamtfehler dieser Werte um einiges höher als der Messfehler anzunehmen.

Auch das $^{87}Sr/^{86}Sr$-Verhältnis von 0,713922±0,000018, das am Institut für Geochemie der Universität Tübingen bestimmt wurde, bestätigt, dass ein interaktiver Kontakt mit granitischem Gestein stattgefunden hat. Wegen dieser Ergebnisse und aufgrund des hohen (vulkanogenen) Kohlendioxidgehaltes ist zu erwarten, dass kein ^{14}C in diesem Fluid vorhanden ist (EICHINGER, 1982).

Das Ergebnis der $^{3}He/^{4}He$-Messung von $2{,}34*10^{-6}$ ±0,89% zeigt einen Einfluss von Mantelhelium. Der ^{4}He-Wert liegt normalerweise bei $4{,}5*10^{-8}$ Nml/g. In der Probe aus der Bohrung HJ-2 beträgt er $2{,}4*10^{-6}$ Nml/g. Es liegt also eine Übersättigung vor. Diese Übersättigung kann zwei Ursachen haben:

a) eine starke Produktion von ^{4}He durch α-Zerfall der Glieder aus der U- und Th-Reihe im Gestein und im Grundwasser, oder
b) eine Zufuhr von Mantelhelium aus der Entgasung des Erdmantels.

Wird ^{4}He im Krustenbereich produziert, wo in höherem Maße α-Zerfälle stattfinden als im U/Th-armen Mantel, so liegt das $^{3}He/^{4}He$-Verhältnis bei ca. 10^{-8}. Das $^{3}He/^{4}He$-Verhältnis des Erdmantels liegt bei $1{,}2*10^{-5}$ (vgl. WEISE, 1986).

Daraus kann abgeleitet werden, dass das Helium des Grundwassers aus der Bohrung HJ-2 einen Anteil von ca. 20% Mantelhelium hat (frdl. mündl. Mitt. St. Weise). Die Tatsache, dass der ^{20}Ne-Gehalt unterhalb des Löslichkeitsgehaltes liegt und damit eine Entgasung der Probe aufzeigt, macht diese Deutung plausibel. Die durch den hohen CO_2-Gehalt bedingte Entgasung des Wassers, welche diese Untersättigung möglicherweise verursachte, wird zu einer entsprechend hohen He-Untersättigung geführt haben. Wegen dieser Entgasung ist der ^{4}He-Wert allerdings anzuzweifeln.

Der Schwefel-34 Gehalt weist zusammen mit dem hohen SO_4^{2-}-Gehalt auf einen Austausch mit Pyrit (Pyritoxidation) hin. Da kein messbarer Gehalt an freiem Sauerstoff im Fluid war, kann eine Aufoxidierung der Sulfide u.a. eventuell über Radiolyse (vgl. 2.3.2) erfolgt sein.

Sprudelquelle (BJ-36):

Die Radium-Aktivitäten der Sprudelquelle waren mit 2,69±0,21 (^{226}Ra), 0,298±0,044 (^{228}Ra) und 0,545±0,044 (^{224}Ra) insgesamt bedeutend höher als die der Bohrung HJ-2. Die Gesamtmineralisation der Sprudelquelle ist ebenfalls höher als die der Bohrung HJ-2 (siehe 5.4.2.3). Dies kann jedoch nicht die einzige Ursache für die Radium-Gehalte der Sprudelquelle sein, da die Radium-Aktivitäten einerseits um einen größeren Faktor erhöht sind als die Gesamtmineralisation und andrerseits das ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis der Sprudelquelle ebenfalls bedeutend höher ist als das der Bohrung HJ-2. Insgesamt zeigen die Ergebnisse der Radium-Isotopenbestimmungen damit ein zur Bohrung HJ-2 genetisch unterschiedliches Fluid auf.

Das Ergebnis der ^{222}Rn-Messung von 10,0±0,8 Bq/kg ist ähnlich zu werten wie das der Bohrung HJ-2. Auch hier dürfte durch die starke Entgasung bei der Probenahme eine hohe Abreicherung an Radon stattgefunden haben. Der Vergleich mit dem im Jahr 1914 von GOCKEL gemessenen Wert von 0,1 ME entsprechend ca. 1,3 Bq/kg zeigt, dass Schwankungen gegeben sind, die wohl i.W. auf den Entgasungsvorgang beim Aufstieg des Fluids zurückzuführen sind (vgl. Kap. 5.4.2.5).

Sowohl die ^{18}O- als auch die ^{2}H-Gehalte waren im Fluid der Sprudelquelle mit -10,5 und -70,9 etwas leichter als im Fluid der Bohrung HJ-2. Sie lagen aber ebenfalls auf der mittleren Niederschlagsgeraden.

Tritium konnte in diesem Fluid nicht nachgewiesen werden. Es gibt demnach keinen Anteil an einem Fluid der Sprudelquelle der jünger ist als ca.100 Jahre (vgl. LODEMANNN, 1993). Der δ^{13}C-Gehalt betrug -1,58‰. Dieser Wert liegt im gleichen Bereich wie die in der Bohrung HJ-2 gemessenen Werte und deutet ebenfalls auf einen intensiven Wasser-/Gesteinskontakt bzw. auf ein hohes Grundwasseralter hin.

Auch hier liegen die ^{4}He- und ^{20}Ne-Gehalte unterhalb des Löslichkeitsgehaltes was wieder auf Entgasung des Wassers kurz vor oder während der Probenahme hinweist. Die Probe enthält Wasserstoff.

Deshalb kann auch hier nur das ^{3}He/^{4}He-Verhältnis ausgewertet werden, das mit $2{,}85*10^{-6}$ ±4,7% wieder auf einen Anteil an Mantelhelium schließen lässt.

Die Schwefelisotopie betreffend gilt hier das gleiche wie für die Bohrung HJ-2.

5.4.2.5 Ergebnisse der Gasanalysen

Bohrung HJ-2:

Durch den hohen CO_2-Gehalt des Fluids aus der Bohrung HJ-2 kam es schon beim Aufstieg des Fluids im Bohrloch zu einer starken Entgasung, die dazu führte, dass es in Schüben aus dem Entnahmeschlauch austrat. Aufgrund dieser Entgasung war am 12.05.1990 keine genaue quantitative Bestimmung der einzelnen Bestandteile der Gasphase möglich. Dies zeigte sich in den Analysewerten u.a. in einem viel zu niedrigen N_2-Gehalt (Tab. 21). Trotz dieser Untersättigung konnten sowohl Methan als auch Ethan nachgewiesen werden, was auf einen Kontakt des Fluids zu Kohlenwasserstoffen (Erdöl) hinweist.

Der N_2-Gehalt vom 13.05.1990 entsprach mit 16,85 Nml/kg in etwa dem erwarteten Sättigungswert. Auch der Ar-Gehalt lässt auf eine Gas-Sättigung schließen. Der nachgewiesene Wasserstoff wurde allerdings vermutlich entweder im Bohrloch (Verrohrung) oder im Probenahmegefäß (Stahlbehälter) gebildet oder gelangte durch Luftkontamination in den Probenahmebehälter. Die letztgenannte Möglichkeit ist auch die Ursache für den nachgewiesenen Sauerstoffgehalt.

In dieser Probe konnte ebenfalls wieder Methan bestimmt werden. Außerdem waren Propan und Ethen nachweisbar. Ethen ist in natürlichen Kohlenwasserstofflagerstätten nicht vorhanden. Da es nur bei hohen Drucken und Temperaturen entsteht, wurde es eventuell im Verlauf der Bohrung gebildet.

Den größten Anteil an der Gasphase machte das CO_2 aus, was schon anhand der Vor-Ort-Messungen zu sehen war.

Sprudelquelle (BJ-36):

Auch hier trat das Fluid wegen seines hohen Gasgehaltes in Schüben aus dem Entnahmerohr aus. Eine starke Untersättigung an N_2 und Ar in der gemessenen Probe bestätigt, dass eine Entgasung stattfand. Der CO_2-Gehalt ist zwar etwas höher als bei der Vor-Ort-Messung, doch ist davon auszugehen, dass es sich auch hier nur um einen Bruchteil des tatsächlich vorhandenen CO_2 handelt.

Methan wurde als einzige Kohlenwasserstoffverbindung nachgewiesen, was auf einen Kontakt zu Erdgas schließen lässt.

5.4.2.6 Zusammenfassung der Ergebnisse und daraus abgeleitete Folgerungen

Die vergleichenden Untersuchungen an Fluiden aus der Bohrung HJ-2 und aus der Sprudelquelle in Karlsbad erlauben folgende Diagnose: das Fluid der Bohrung HJ-2 ist ebenso wie das der Sprudelquelle hochmineralisiert und hat einen hohen CO_2-Gehalt. Die Fluide unterscheiden sich hydrochemisch kaum. Lediglich bzgl. der Temperatur weisen sie signifikante Unterschiede auf.

Anhand der konventionellen Isotopenmethoden konnte ebenfalls keine Unterscheidung bezüglich der Herkunft der beiden Fluide getroffen werden.

Sie unterschieden sich nur darin, dass das Fluid der Bohrung HJ-2 einen geringen im Verlauf des Pumpversuchs tendenziell abnehmenden Anteil an jungem tritiumhaltigem Grundwasser hat. Dieser kann auch über die Bohrung selbst in den Entnahmebereich gelangt sein.

Das völlig unterschiedliche $^{226}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnis war trotz umfangreicher hydrochemischer und isotopenhydrologischer Untersuchungen das einzige Indiz dafür, dass keine direkte Verbindung zwischen den beiden Fluiden besteht.

Das Fluid der Sprudelquelle weist mit ca. 5,4 bzw. 4,9 ein bedeutend höheres $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis auf, als es sich in der Bohrung HJ-2 mit ca. 1,7 bzw. 1,9 entwickelte.

Dieses hohe $^{226}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnis der Sprudelquelle kann folgende Ursachen haben:

1) Die erste Möglichkeit besteht in einem hohen Ausgangsverhältnis von $^{238}U/^{232}Th$ im Muttergestein, das dann ein ebenso hohes Aktivitätsverhältnis der Tochterisotope zur Folge hat.

2) Bei der zweiten Möglichkeit wird von einem normalen Aktivitäts-gleichgewicht und einer erhöhten Aktivität der Mutterisotope der Herkunftsregion des Fluids ausgegangen. Die Migrationszeit des Grundwassers von dieser "Inputstelle" bis zum Output ist jedoch so lang, dass das kurzlebige ^{228}Ra zum größten Teil zerfällt, bevor es zur Entnahmestelle (Sprudelquelle) gelangt. Für diese Theorie spricht, dass das Grundwasser aus der Sprudelquelle sehr alt ist, wie sowohl aus den Isotopendaten (Tab. 20a, b) als auch aus der erhöhten Mineralisation abgelesen werden kann. Allerdings ist das Fluid aus der Bohrung HJ-2 ebenfalls sehr alt.

Da es im benachbarten Jachymov (Joachimsthal) und in Johanngeorgenstadt größere Uranvorkommen gibt, ist es wahrscheinlich, dass der Haupteinzugsbereich des Grundwassers aus der Sprudelquelle von Karlovy Vary in ähnlich vererzten Bereichen des Granitplutons liegt.

Weiterhin entstammt das Fluid der Sprudelquelle entsprechend seiner Temperatur von 72,7°C und unter der Voraussetzung, dass ein normaler geothermischer Gradient von 3°/100m gegeben ist, einer Tiefe von mindestens ca. 2000 m. Eventuell kommt das Fluid sogar aus einer noch größeren Tiefe, da es sich beim Aufstieg etwas abkühlt, und die an der Austrittsstelle gemessene Temperatur somit nicht der ursprünglichen entspricht. Es besteht andrerseits aber auch die Möglichkeit, dass eine ganz lokale Temperaturanomalie gegeben ist, die infolge der Krustenbewegungen entstand, welche auch den Basaltvulkanismus des Duppauer Gebirges und den Egergrabeneinbruch verursachten. In diesem Fall kann das Fluid auch aus seichteren Tiefenbereichen stammen.

Ein hydraulischer Zusammenhang zwischen den Grundwässern, die im Braunkohletertiär zirkulieren und dem Fluid der Sprudelquelle wurde -wie oben erwähnt- schon Anfang des 20. Jahrhunderts festgestellt. Das höher gelegene Einzugsgebiet des Fluids der (artesischen) Sprudelquelle liegt also zumindest zum Teil im Bereich des Braunkohletagebaus westlich von Karlovy Vary.

Da das Fluid der Bohrung HJ-2 sowohl eine niedrigere Mineralisation und eine niedrigere Temperatur als auch eine andere Ra-Isotopenzusammensetzung zeigt, dürfte es ein anderes Einzugsgebiet als die Sprudelquelle haben. Dieses "alte" Fluid stammt aus einem Kluftsystem des Egergrabens, welches keinen sehr intensiven Austausch mit einem Fluid mit hoher ^{226}Ra-Aktivität bzw. mit Vererzungsbereichen mit erhöhten U-Gehalten pflegt.

5.4.3 Pumpversuch in Kellerhaus NE` Mantel (Oberpfalz)

Wenige km südwestlich von Weiden (bei Mantel) wurde im Buntsandstein und Rotliegend eine 150 m tiefe Bohrung zur Trinkwassergewinnung abgeteuft. Der Bohrpunkt liegt ca. 450 m ü. NN. Bei 116 m u. GOK wurde beim Abteufen ein Grundwasserzufluss festgestellt. Vom 14.10.1990 bis 19.10.1990 wurde das erschlossene Grundwasser mit einer Rate von 5.1 l/s abgepumpt. Die Pumpe hing in 90,9 m Tiefe, der Ruhewasserspiegel befand sich bei 20,4 m.

Während des Pumpversuchs wurden 4 Grundwasserproben zur Bestimmung der Radium-Aktivitäten und 3 Proben zur Bestimmung der ^{222}Rn-Aktivität entnommen.

Da unmittelbar nach dem Beginn des Pumpversuchs keine Probe entnommen werden konnte, war es nicht möglich festzustellen, ob das zunächst abgepumpte in unmittelbarer Bohrlochnähe befindliche Grundwasser eine andere Ra-Isotopie aufwies, als die nach ca. 10 Stunden Pumpversuch am 2. Pumpversuchstag entnommene erste Probe.

Die Radium-Aktivitäten aller entnommenen Proben unterscheiden sich für die einzelnen Isotope nur im Fehlerbereich. Sie liegen zwischen ca. 13 (^{228}Ra) und 24 (^{224}Ra) mBq/kg (vgl. Tab. 22a). Die ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse liegen oberhalb des Gleichgewichtswertes von 1. Sie schwanken ebenfalls nicht nachweislich. Für den letzten Pumpversuchstag existiert kein ^{224}Ra-Wert. So kann nur für den Zeitbereich in dem die drei ersten Proben entnommen wurden, ausgesagt werden, dass homogene Verhältnisse im Grundwasserleiter existierten und keine nachweisliche Vermischung unterschiedlicher Grundwässer stattfand.

Ebenfalls durchgeführte hydrochemische Untersuchungen wiesen das Grundwasser als schwach bis mittelstark mineralisiert, hart (Ca-HCO_3-dominiert) und sauerstoffhaltig aus.

Die Radongehalte betrugen ca. 12 bis 15 Bq/kg. Dies zeigt, dass im Grundwasserleiter trotz der Anwesenheit von Sauerstoff keine extremen Ra-Anreicherungen vorhanden sind (vgl. Redoxmodell, 3.3.1.5).

Auch die Tritiumgehalte blieben im Verlauf des 2. Pumpversuchstages mit ca. 13 bis 15 TU (vgl. Tab. 22b) konstant. Ob ein Mischwasser aus einer "alten" tritiumfreien und einer "jungen" tritiumhaltigen Komponente, oder ein Grundwasser mit einem Alter von ca. 20-30 Jahren gegeben ist, war nicht zu klären.

5.5 Pumpversuche im weiteren KTB-Umfeld

5.5.1 Pumpversuch im Oberen Buntsandstein (Rhöt) Unterfrankens: Wiesenfeld bei Karlstadt

Die Bohrung Wiesenfeld IV wurde einige km w' von Karlstadt ca. 35 m tief in den oberen Buntsandstein (Rhöt), der hier als tiefroter Tonstein ausgebildet ist, abgeteuft. Der Bohrpunkt liegt ca. 250 m ü. NN. Der Ruhewasserspiegel lag bei 5 m u. GOK. Eine Bohrung in nur wenigen m Entfernung von TB IV, die schon früher bepumpt worden war, erbrachte kaum Ergiebigkeiten.

Der Pumpversuch ergab laut Information der Fa. IGI Niedermeyer (Westheim), dass sich der Einzugsbereich des Grundwassers auf eine Fläche von 3-4 km^2 erstreckt, innerhalb der es eine Grundwasserneubildungsrate von 8 l/s gibt. Die nach THEISS und AGARWAL berechneten Transmissivitäten lagen mit $T=1{,}1\cdot10^{-2}$ bzw. $1{,}8\cdot10^{-3}$ m^2/s vergleichsweise hoch (vgl. STOBER, 1986: sm Simmozheim, $T=5{,}24\cdot10^{-4}$ m^2/s).

Der eigentliche Pumpversuch begann am 02.04.1991 und endete am 12.04.1991. Da jedoch vorher schon ca. 14 Tage lang klargepumpt wurde, und die Auswirkungen dieses hydraulischen Eingriffes von Interesse waren, wurden schon am 23.03.1991 eine erste Probe und am 27.03.1991 eine weitere Probe entnommen. Während des Pumpversuchs selbst wurden insgesamt 5 Probenahmen durchgeführt, wobei 3 Entnahmen auf den ersten Pumpversuchstag verteilt wurden. Es wurde während der gesamten Pumpversuchsdauer nur eine Pumpstufe mit einer Pumprate von 20 l/s gefahren.

5.5.1.1 Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen und der hydrochemischen Untersuchungen

Die vor Ort gemessene Temperatur des Grundwassers von 10,3 bis 10,7°C liegt bei einer geothermischen Tiefenstufe von 3°C/100m und einer normalen oberflächennahen Grundwassertemperatur zwischen 7 und 9°C, im obersten zu erwartenden Bereich. Demnach entstammt das entnommene Grundwasser aus dem untersten Bereich der Bohrung (30-35m) und/oder steigt aus tieferen Bereichen auf.

Die spez. Leitfähigkeit war für ein "junges" Grundwasser relativ hoch. Die Ursache dafür sind vermutlich leicht anlösbare Evaporiteinlagerungen, die im Rhöt stellenweise auftreten.

Der pH-Wert lag mit 6,8 (02.04.1991) bzw. 7,0 (12.04.1991) in einem für Grundwässer üblichen Bereich.

Die Säurekapazität bis pH 4,3 betrug ca. 1 Stunde nach Beginn des Pumpversuchs 6,9 mmol/l. Ca. 3 Stunden nach Beginn des Pumpversuchs war sie auf 6,2 gesunken. Auf diesem Wert war sie auch noch ca. 9 Stunden nach Beginn des Pumpversuchs.

Von Mitarbeitern der Firma IGI Niedermeyer (Westheim) wurde am Ende des Pumpversuchs eine Säurekapazität von 5,85 mmol/l bestimmt. Diese Werte entsprechen einem HCO_3^--Gehalt zwischen ca. 420 und 360 mg/l.

Der Sauerstoffgehalt von ca. 5-6 mg/l zeigte ein oberflächennahes oxidierendes Milieu an (Tab. 23a).

Die hydrochemischen Untersuchungen (Tab. 23b) bestätigen, mit relativ hohen Calcium- und Sulfatgehalten (143 und 114 mg/l), dass die Grundwasserinhaltsstoffe genetisch an Evaporite gebunden sind. Der erhöhte Nitratgehalt gibt -genau wie das Tritium- einen Hinweis auf eine kurze Verweilzeit des Grundwassers

5.5.1.2 Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen

Die während des ersten Pumpversuchstages entnommenen Grundwasserproben zeigen ^{3}H-Werte von 31,1±3,3 bis 34,7±2,9 TU und sind damit innerhalb der Messgenauigkeit als gleich anzusehen. Diese Werte weisen auf ein "junges" Grundwasser hin, das eine Verweilzeit von ca. 10 Jahren hat. Auch die δ^{13}C-Werte deuten mit -15,3 bzw. -15,2 ‰ darauf hin, dass bisher kein nennenswerter Austausch von Kohlenstoff-Isotopen zwischen Grundwasser und Aquifergestein stattgefunden hat (Tab. 23a).

5.5.1.3 Ergebnisse der Radium-Untersuchungen und Interpretation

Die Radium-Aktivität ist mit Werten zwischen 3,2±0,3 mBq/kg für das ^{226}Ra, 4,2±1 bis 5,5±1,4 mBq/kg und 5,0±1,7 bis 10,9±2,1 Bq/kg als niedrig zu betrachten (Tab. 23c).

Wie Abb. 22 zeigt, gab es sowohl beim eigentlichen Pumpversuch, als auch in der Klarpumpphase jeweils einen tendenziellen Rückgang der Gesamtaktivität, i.W. der Aktivität des ^{224}Ra. Auf der gleichen Abbildung ist parallel deutlich ein Absinken des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses zu beobachten. Die stärkste Änderung ist - wie bei

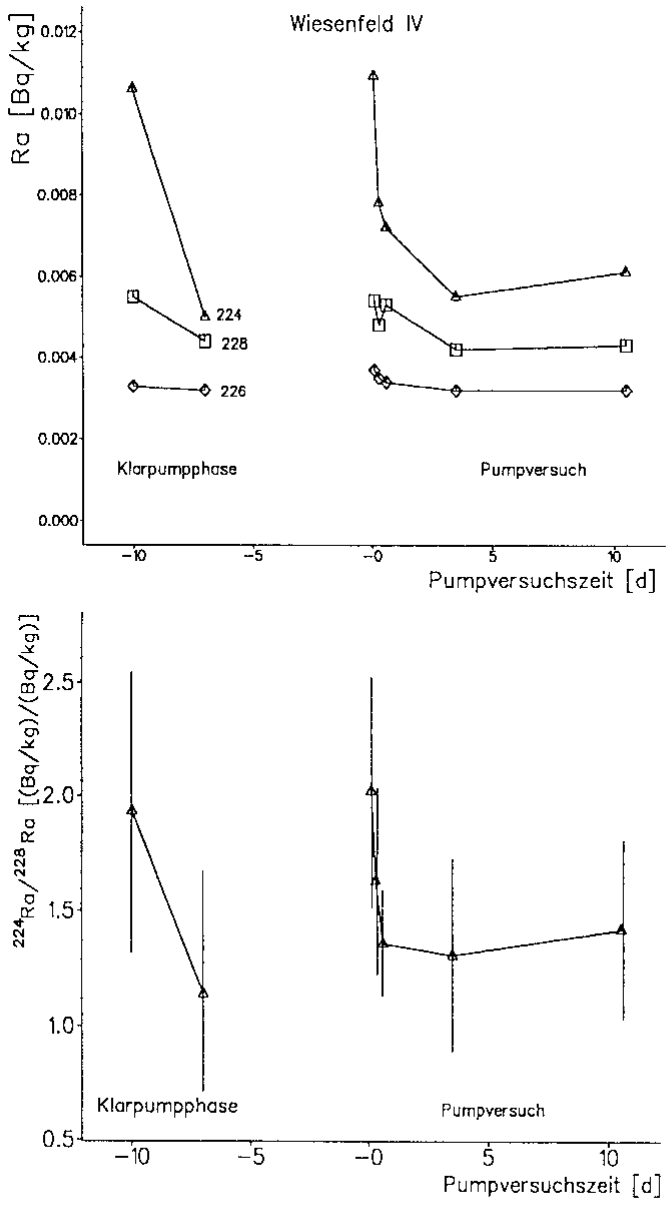


Abb. 22: Ra-Aktivitäten (oben) und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Wiesenfeld IV.

Silvana I - am ersten Pumpversuchstag zu beobachten. In der übrigen Zeit änderten sich weder die Gesamtaktivität noch das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis wesentlich. Das $^{222}Rn/^{226}Ra$-Verhältnis stieg im Verlauf des ersten Pumpversuchstages dagegen an.

Da das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis immer größer als 1 ist, kann davon ausgegangen werden, dass hier schon über einen längeren Zeitraum Grundwasser mit höheren als die vor Ort produzierten ^{228}Ra-Aktivitäten durchfloss. Das vom Zerfall des ^{228}Ra stammende ^{228}Th ist daher auf den Oberflächen des Grundwasserleiters angereichert. Es produziert volumenbezogen zwar weniger ^{224}Ra als das anstehende Muttergestein. Da es aber auf den grundwasserdurchströmten Oberflächen sitzt, hat das ^{224}Ra eine Startposition von der aus es besser ins Grundwasser gelangen kann als das restliche im Muttergestein produzierte ^{224}Ra.

Die Veränderung des $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisses im Verlauf des Pumpversuchs ist folgendermaßen zu interpretieren:

Durch die aus dem Pumpversuch resultierende erhöhte Fließgeschwindigkeit wurde das in den Großkapillaren vorhandene Grundwasser zunächst abgepumpt, und dann das Grundwasser aus den Kleinkapillaren aktiviert. Dessen Radium-Aktivitäten sind aufgrund der größeren Oberflächen erhöht, weshalb es kurz nach Beginn des Klarpumpens und später wieder kurz nach Pumpversuchsbeginn erhöhte ^{224}Ra-Aktivitäten und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse gab (Doppelporositätsmodell, Kap. 3.3.1.3).

Anschließend wurden alle Kapillaren wieder von nachfließendem Grundwasser aus größeren Entfernungen durchströmt, weshalb sowohl die ^{224}Ra-Aktivitäten als auch die $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse wieder sanken.

Nach den ersten ca. 8 Stunden des Pumpversuches war ein bestimmtes Mischungsverhältnis erreicht, das bis zum Ende des Pumpversuchs mehr oder weniger konstant blieb.

Die ^{222}Rn-Aktivät steigt innerhalb des ersten Pumpversuchstages leicht von ca. 23 auf ca. 27 Bq/kg an. Dies kann ebenfalls mit der erhöhten Fließgeschwindigkeit des Grundwassers zusammenhängen, die bewirkt, dass mehr ^{222}Rn (auch aus den Kleinkapillaren) auf dem Weg zum Bohrloch "überlebt".

An einer Gesteinsprobe aus ca. 30 m Teufe wurden ^{226}Ra mit 36,6±6,2 Bq/kg, ^{228}Ra mit 46,6±5,6 Bq/kg und ^{228}Th mit 57,9±6,9 Bq/kg bestimmt. Demnach ist primär ein erhöhtes ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis im Gestein gegeben, das sich auch in dem entsprechenden Verhältnis des Grundwassers widerspiegelt. Der gegenüber ^{228}Ra erhöhte ^{228}Th-Wert ist sekundär auf den Gesteinsoberflächen vorhanden und bestätigt die oben beschriebene Akkumulation von ^{228}Th auf den Gesteinsoberflächen.

5.5.2 Pumpversuch im unteren Keuper/Benker Sandstein Oberfrankens: Neuhaidhof bei Creussen

Die Bohrstelle liegt in ca. 500 m ü. NN, in der Nähe der Ortschaft Neuhaidhof bei Creussen (Oberfranken, zwischen Pegnitz und Bayreuth) im Benker Sandstein (unterer Gipskeuper). Dieser ist als rot und gelber bzw. grün und gelber, z.T. poröser, z.T. völlig zersetzter, mittelkörniger Quarzsandstein mit unregelmäßig verteilten, i.W. rot- und graugefärbten Ton(stein)einlagen ausgebildet.

Wegen der z.T. starken Zersetzung des Gesteins besteht die Möglichkeit, dass sich das Grundwasser nicht nur auf Klüften, sondern auch im Porenraum bewegt.

Eine schon bestehende ältere Bohrung wurde überbohrt und vertieft. Die neue Endteufe der Bohrung mit der Bezeichnung "Neuhaidhof C" beträgt 201 m. Das Sperrohr reicht bis 107,5 m u. GOK, bis zur Endteufe ist ein Filterrohr von 44 cm Durchmesser eingebaut. Der Pumpversuch fand allerdings noch im Bohrloch ohne Filterrohr statt.

Die erste Probenahme erfolgte während eines 14-tägigen Schockpumpens vor Beginn des eigentlichen Pumpversuchs. Dafür wurde die Pumpe ca. 90 min. lang bei einer Pumprate von 36-40 l/s eingeschaltet, nach ca. 30 Minuten erfolgte die Probenahme.

Der Pumpversuch wurde mit einer Pumprate von ca. 30 l/s gefahren. Der RWSP befand sich bei 10,47 m, nach einer Stunde Pumpversuch war der Wasserspiegel auf 87,35 m und nach 4 Stunden auf 96,5 m abgesunken.

5.5.2.1 Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen und Wasserchemie

Die Temperatur des entnommenen Grundwassers lag bei Pumpversuchsbeginn am 15.07.1991 zwischen 12,8 und 13,7°C. Sie bewegte sich damit in einem für die gegebene Entnahmetiefe zu erwartenden Bereich.

Die spez. el. Leitfähigkeit von 238-241 µS/cm als Maß für die Gesamtmineralisation des Grundwassers ist nicht sehr hoch, was bei einem Sandstein-Grundwasserleiter in dem betroffenen Tiefenbereich ebenfalls zu erwarten ist.

Die pH-Werte liegen mit 6,6 bis 6,8, die HCO_3^-- und CO_2-Werte mit 18,9 bis 20 mg/l und ca. 69 bis 79 mg/l in einem normalen Bereich.

Der gemessene Sauerstoffgehalt von 8,0 bis 9,5 mg/l ist vermutlich auf ein undichtes Aufsatzrohr zurückzuführen. Tatsächlich dürfte kein Sauerstoff im beprobten Grundwasser vorhanden sein.

Nach RIETZLER (1979) handelt es sich bei den Grundwässern des Benker Sandsteins -benannt nach ihren Hauptkomponenten- zum größten Teil um Ca-Mg-HCO_3-Wässer mit geringen Gehalten an aggressiver Kohlensäure.

5.5.2.2 Ergebnisse der Tritiumuntersuchungen

Die Ergebnisse der Tritium-Untersuchungen von <1 bzw. <1,5 TU zeigen, dass kein Anteil an Grundwasser vorhanden ist, der jünger ist als ca. 35 Jahre (Tab. 24a).

5.5.2.3 Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen

Die Radium-Aktivitäten des Grundwassers aus der Bohrung Neuhaidhof C liegen für die drei Isotope ^{226}Ra, ^{228}Ra und ^{224}Ra bei ca. 13 bis ca. 21 mBq/kg (Tab. 24b). Diese Werte sind als niedrig zu bezeichnen.

Die Radon-Aktivitäten liegen mit ca. 20 bis 30 Bq/kg ebenfalls in einem niedrigen Bereich.

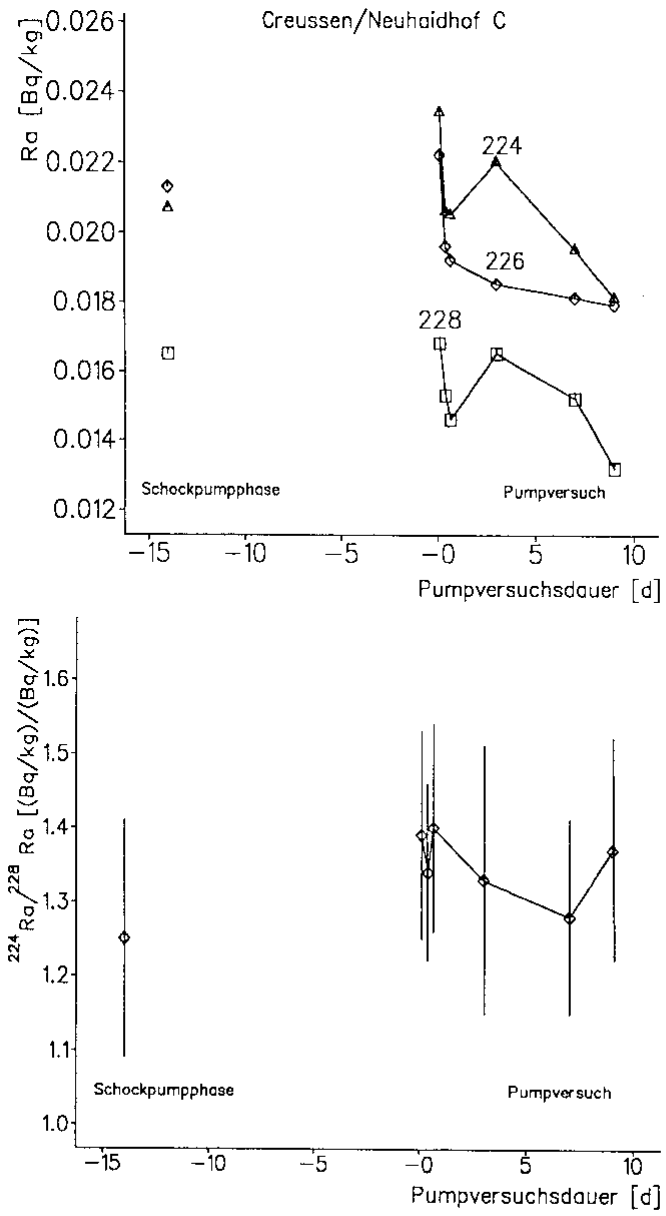


Abb. 23: Ra-Aktivitäten (oben) und ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Creußen/Neuhaidhof C.

Wie aus Abb. 23 zu ersehen ist, änderten sich die Ra-Aktivitäten der einzelnen Isotope, und ihre Aktivitätsverhältnisse im Verlauf des Pumpversuchs nur im Bereich der Messgenauigkeit.

Ein Einfluss der innerhalb des ersten Pumpversuchstages von 31,0 auf 28,5 l/s sinkenden Pumprate auf die Radium-Aktivitäten und - Isotopenverhältnisse ist nicht festzustellen.

Dieser Verlauf erlaubt die Rückschlüsse, dass

- homogene Verhältnisse bezüglich der Ra-Isotopenproduktion im Grundwasserleiter gegeben sind und
- das entnommenen Grundwasser immer aus dem Radium-isotopisch gleichen System stammt und somit
- keine Vermischung unterschiedlicher Grundwässer festzustellen ist.

5.5.3 Pumpversuch in einem Grundwasserleiter des mittleren Keuper: Thermalbohrung Bayreuth/Oberfranken

In Bayreuth wurde eine Thermalwasserbohrung bis zu einer Tiefe von 1122 m niedergebracht. Die Bohrstelle liegt etwa 400 m ü. NN. Das erschlossene Grundwasser wurde auf seine Isotopen- und Gasgehalte untersucht. Im November 1990 und von April bis Juni 1991 fanden Pumpversuche an der Bohrung statt. Im Verlauf dieser Pumpversuche wurden mehrere Grundwasserproben entnommen.

An zwei der entnommenen Grundwasserproben wurden die Gehalte von Tritium gemessen, an einer Probe der Gehalt an ^{18}O. An dem im Wasser gelösten anorganischen Kohlenstoff (DIC) wurden ^{14}C und ^{13}C bestimmt. Des Weiteren wurden Gasproben zur Messung von Argon-39 (^{39}Ar) und Krypton-85 (^{85}Kr) entnommen.

Die Aktivität der Radiumisotope ^{226}Ra, ^{228}Ra und ^{224}Ra ist an insgesamt 5 Proben, die des Radonisotopes ^{222}Rn an 3 Proben gemessen worden.

5.5.3.1 Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen

Die Ergebnisse sind Tab. 25 zu entnehmen.

^{3}H war in keiner Wasserprobe nachweisbar. Dies weist darauf hin, dass kein Grundwasseranteil vorhanden ist, der aus Niederschlägen stammt, die nach 1953 fielen. Es war also kein Anteil eines "jungen" Grundwassers nachweisbar.

Der ^{85}Kr-Gehalt von 0,096 dpm/ml Kr weist ebenfalls darauf hin, dass während des Pumpversuchs am 11.06.1991 bei einer Pumprate von 16 l/s kein oberflächennahes Grundwasser in dem geförderten Grundwasser nachzuweisen war.

Der Gehalt an ^{39}Ar von 50±8% modern ist durch die unterirdische Produktion des Isotopes gekennzeichnet. Dieser Rückschluss muss aufgrund der ^{14}C-Ergebnisse (s.u.) gezogen werden, die auf einen nur geringen Anteil an jungem Wasser schließen lassen. Der hohe ^{39}Ar-Gehalt zeigt somit einen Kontakt zu U-/Th-haltigem Gestein - vermutlich aus dem unterlagernden Grundgebirgsbereich- auf.

Der an der Grundwasserprobe vom November 1990 gemessene ^{14}C-Gehalt lag bei 4±2 pMC bei einem ^{13}C-Gehalt von -15,4‰. Wenn von einem ^{14}C-Anfangsgehalt von ca. 60 pMC ausgegangen wird, ergibt sich in Abhängigkeit vom Grundwassermischungsmodell (Chemiemischungsmodell, Einfaches Isotopenmischungsmodell) ein Grundwasseralter im Bereich von etwa 15 000 und 25 000 Jahren.

Der δ^{13}C-Wert lag bei der Messung der Grundwasserprobe vom Juni 1991 mit -15,3 im gleichen Bereich wie im November 1990. Dieser ^{13}C-Gehalt ist typisch für weiche Sandsteinwässer und zeigt eine nur mäßige Veränderung der Kohlenstoffisotope des im Grundwasser gelösten anorganischen Kohlenstoffes aufgrund der Lösung von Gesteinskarbonat an.

Das Grundwasser der Probenahme vom Juni 1991 wies deutlich höhere HCO_3^-- und CO_2-Gehalte auf als das der Probenahme vom November 1990. Dies weist auf die Vermischung zweier Grundwasserkomponenten hin. Da der quantitative Anteil dieser Komponenten nicht bekannt ist, lässt sich das genaue Alter des Thermalwassers nicht bestimmen.

Es ist anzunehmen, dass, falls es sich um ein Mischwassersystem handelt, ein Teil des Grundwassers ^{14}C-frei ist und ein Grundwasseralter von mehr als 20 000 Jahren aufweist.

Aus der Bestimmung eines ^{18}O-Gehaltes von -10,44‰, lässt sich ablesen, dass es sich hier um ein Grundwasser handelt, das ein Mischwasser sein kann aus einer im Pleistozän (Kaltzeit) und einer im Holozän (Warmzeit) gebildeten Komponente. Für eine nähere Aussage fehlen Messungen der ^{18}O-Gehalte von im Bereich der Bohrung gelegenen Grundwässern.

Das $^{3}He/^{4}He$-Verhältnis des Grundwassers ist deutlich durch radiogenes Helium gekennzeichnet. Lediglich einige Prozent Mantelhelium strömen zu. Der gemessene ^{4}He-Exzess unterstützt die auf der Analyse des ^{14}C beruhende Angabe über das Alter des Grundwassers.

5.5.3.2 Ergebnisse der Gasgehaltsbestimmungen

Im November 1990 und im Juni 1991 wurde jeweils eine Grundwasserprobe zur Gasgehaltsbestimmung entnommen. Die Ergebnisse sind Tab. 25c zu entnehmen.

Die im November 1990 entnommenen Wasserproben hatten einen Gesamtgasgehalt von 22,9 bzw. ohne CO_2 von 18,9 Nml/kg.

Im Juni 1991 betrug der Gesamtgasgehalt 69,0 bzw. ohne CO_2 27,6 Nml/kg. Diese Gehalte sind als niedrig anzusehen.

Der überwiegende Anteil der im Wasser gelösten Gase ist Stickstoff (N_2) mit 19,5 bzw. 25,6 Nml/kg H_2O. Dieses N_2-Gas dürfte zum größten Teil aus der Atmosphäre kommen. Ein geringer Anteil kann auch aus anderen Quellen, z.B. aus Erdgas- und/oder Erdöllagerstätten eindiffundiert sein.

Bei der Bildung des Grundwassers können in Abhängigkeit von der herrschenden Temperatur bis zu etwa 23 Nml/kg H_2O N_2-Gas aus der Atmosphäre im Wasser gelöst werden, wobei dann eine starke Luftübersättigung angenommen wird. Der darüberliegende N_2–Anteil sollte anderer Herkunft sein als aus der Atmosphäre.

Die Argongehalte (Ar-Gehalte) der Proben liegen bei 0,4 Nml/kg bzw. bei 0,5 Nml/kg. Die Gehalte weisen auf eine leichte Luftübersättigung hin.

Der hohe Kohlenstoffdioxidgehalt der Probe vom 11.06.1991 ist auf die Zersetzung von Hydrogenkarbonat durch die bei der Extraktion im Labor zugeführte Säure zurückzuführen und ist als Summe der im Wasser gelösten anorganischen Kohlenstoffkomponenten anzusehen.

Sehr niedrig liegen die Gehalte an Kohlenwasserstoffen. Nachweisbar waren nur Methan mit 0,003 bzw. 0,02 Nml/kg H_2O und Ethan im Bereich der Nachweisgrenze (0,0001 Nml/kg H_2O, nur im November 1990).

In der Probe vom Juni 1991 wurde Sauerstoff (O_2) mit einem Gehalt von 1,5 Nml/kg H_2O bestimmt. In einem Tiefenwasser sollte O_2 nicht nachweisbar sein. Der Gehalt könnte auf eine Kontamination während der Probenahme zurückzuführen sein.

5.5.3.3 Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen

Die Radium- und Radongehalte sind als relativ niedrig anzusehen. Die Ra-Gehalte liegen im gleichen Bereich wie die Durchschnittswerte für Grundwasser in der BRD (40 mBq/l).

Sie ändern sich im Laufe der verschiedenen Pumpversuche zwischen November 1990 und Juni 1991 nur im Bereich der Analysengenauigkeit. Bei den $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnissen sind keine Variationen festzustellen. Sie sind mit 0,84 bis 0,89 gegenüber dem Gleichgewichtswert von 1 erniedrigt. Dies ist die Folge einer mittleren Fließzeit von ca. 15 bis 20 Stunden vom Entstehungsort zum Entnahmeort. Das Grundwasser entstammte demnach -zumindest beim ersten Pumpversuch- einem homogenen Grundwasserkörper. Inwieweit die aufgrund der variierenden HCO_3^-- und CO_2-Gehalte aufgestellte These eines Mischsystems (s.o.) zutrifft, konnte nicht geklärt werden, da im Verlauf des 2. Pumpversuchs nur eine einzelne Probe zur Radium-Aktivitätsbestimmung entnommen werden konnte.

5.5.4 Pumpversuch im mittleren Keuper/Burgsandstein: Eckersdorf/Oberfranken

Bei Eckersdorf, das nur wenige km östlich von Bayreuth liegt, wurde eine 220 m tiefe Bohrung zur Trinkwassergewinnung niedergebracht. Die Bohrstelle liegt ca. 400 m ü. NN.

Die Bohrung steht im Burgsandstein, dessen mittel- bis grobkörnigen Sandsteine grünlich und rötlich gefärbt sind. Mit großer Wahrscheinlichkeit ist eine Wasserwegsamkeit nur über Klüfte gegeben. Eine Wasserzutrittsstelle wurde in 130 m u. GOK beobachtet, eine weitere wurde wegen Spülverlustes in 170 m u. GOK vermutet. Die Bohrung ist bis 102 m u. GOK mit Sperrrohr und bis 105 m u. GOK mit Vollrohr ausgebaut, ab 105 m u. GOK ist sie mit einem Durchmesser von 30 cm verfiltert. Die Filterstrecke ist in 135-141 und 171-177 m u. GOK durch Vollverrohrung unterbrochen, ab 216 m u. GOK ist ein Sumpfrohr eingebaut. Die Pumpe hing während des Pumpversuchs in 140 m Tiefe. Der Pumpversuch begann am 07.10.1991 um 8.00 h mit einer Pumprate von 3 l/s. Ab dem 08.10.1991 um 9.00 h wurde der Pumpversuch mit einer Rate von 5,5 l/s und ab dem 09.10.1991 um 12.00 h mit einer Rate von 7.5 l/s gefahren. Während der ersten Pumpphase fiel der Grundwasserspiegel von einem Ruhewasserspiegel bei 38,4 m auf 77,5 m ab. Im Verlauf der zweiten Pumpphase wurde

er auf 105,6 m, und im Verlauf der dritten Pumpphase auf 128 bis 129 m abgesenkt. Der Pumpversuch endete am 11.10.1991.

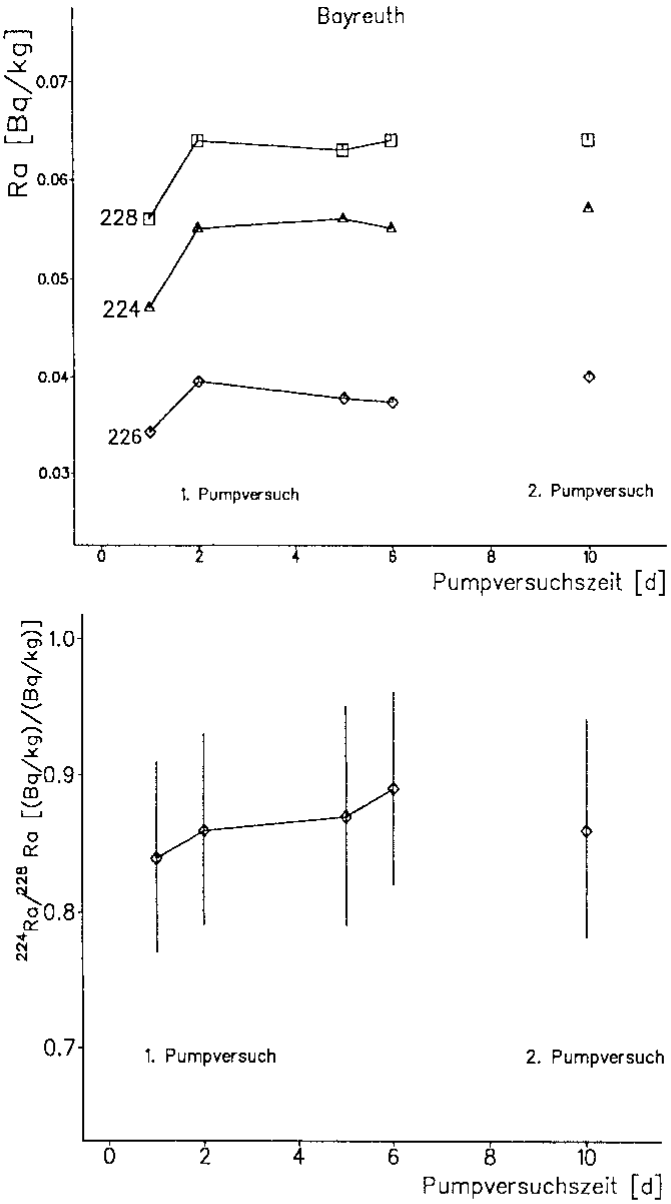


Abb. 24: Ra-Aktivitäten (oben) und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Thermalbohrung Bayreuth.

5.5.4.1 Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen

Die Temperatur der entnommenen Wasserproben war von Pumpversuchsbeginn an mit 17,0 bis 17,2°C leicht erhöht. Da die Hauptzutrittsstellen des Grundwassers bei 130 bzw. 170 m liegen, hätte die Temperatur bei einer normalen geothermischen Tiefenstufe bei max. 13 bzw. 16°C liegen dürfen. Hier ist also entweder eine Wärmeanomalie gegeben, oder es handelt sich um aufsteigendes Grundwasser aus etwas größeren Tiefen. Da der Grundwasserspiegel während des Pumpversuchs bis auf 129 m absank, ist zu vermuten, dass der größte Teil des Grundwassers aus dem Zuflussbereich bei 170 m stammt, was auch die hohe Temperatur eher rechtfertigt.

Die relativ niedrige spez. el. Leitfähigkeit von 149-157 µS/cm ist typisch für einen Sandstein-Grundwasserleiter mit nur wenigen leicht löslichen Mineralstoffen.

Der pH-Wert liegt mit 7,3 bis 7,5 in einem normalen Bereich.

5.5.4.2 Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen

Die einzelnen Ergebnisse sind Tab. 26 a zu entnehmen.

Die Tritium-Messungen aller Proben ergaben Werte unter 1 TU, d.h. es war kein Anteil an Grundwasser nachweisbar, der jünger ist als ca. 35 Jahre.

Der $\delta^{18}O$-Wert liegt mit -10.6 in einem typischen Bereich für pleistozäne Grundwässer des Keupersandsteins (vgl. GEYH et al., 1986). Das δ-Wertepaar von ^{2}H und ^{18}O liegt auf der mittleren Niederschlagsgeraden.

Der $\delta^{13}C$-Wert von -18,7 zeigt, dass kein nachweisbarer Austausch zwischen Grundwasser und Gestein stattgefunden hat. Dies war wegen der niedrigen Gesamtmineralisation auch zu erwarten. Die ^{14}C-Bestimmung ergab einen Gehalt von 5±2 pMC. Dies deutet auf ein Grundwasseralter, das nach einer groben Schätzung ca. 20000 Jahre oder mehr betragen dürfte.

5.5.4.3 Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen

Die einzelnen Ergebnisse sind Tab. 26b zu entnehmen.

Die Aktivität von ^{222}Rn betrug bei der ersten Messung zu Beginn des Pumpversuchs 9,8±0,8, bei der zweiten 9,0±0,7 , sank bei der dritten auf 5,8±0,6 ab und stieg dann bis zum Ende des Pumpversuchs wieder auf 9,5±0,8 Bq/kg an.

Diese Aktivitäten sind als sehr niedrig anzusehen. Sie lassen auf relativ geringe Anreicherungen von ^{226}Ra auf den Gesteinsoberflächen schließen.

Dass es sich hier i.W. um Radon aus diesen Anreicherungen handelt, ist aus den sehr niedrigen ^{226}Ra-Aktivitäten des Grundwassers von ca.7 mBq/kg rückzuschließen. Ein mit ca. 1,5 bis 2,0 erhöhtes ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnis lässt auf eine Akkumulation von ^{228}Th im Grundwasserleiter schließen.

In Abb. 25 ist der Verlauf der Ra-Aktivitäten der einzelnen Isotope, sowie der Isotopenverhältnisse dargestellt. Die einzelnen Messwerte und auch die ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse variieren zwar nur im Bereich der Messgenauigkeit, jedoch ist bei Erhöhung der Pumprate am 08.10.1991 ein tendenzielles Absinken des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses zu beobachten. Dies könnte auf die erhöhte Entnahme und die damit verbundene längere mittlere Fließzeit des Grundwassers zurückzuführen sein. Bei einer weiteren Erhöhung der Pumprate ist diese Reaktion nicht zu beobachten. Das könnte bedeuten, dass das betroffene Grundwassersystem so ergiebig ist, dass die mittlere Fließzeit trotz der Erhöhung gleich bleibt. Der zweimalige Anstieg der Pumprate bewirkte also trotz der starken Spiegelabsenkung keine echte Veränderung in den Radium-Aktivitäten und -Isotopenverhältnissen. Dies -und eine niedrige Variation des ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses- lässt auf einen sehr homogenen Grundwasserleiter mit gleichbleibender Grundwasserqualität schließen.

5.5.5 Pumpversuch im Muschelkalk und Rotliegenden der Bohrung Treuchtlingen T2

Am 28. und 29.01.1992 wurde in einer Bohrung in Treuchtlingen ein dreistufiger Pumpversuch durchgeführt. Die Bohrung endet 812 m u. GOK im Rotliegend. Sie war zur Zeit des Pumpversuchs zwischen 456 und 661 m verfiltert. Sandiger Muschelkalk und Rotliegend stellen die Hauptaquifere dar.

Der Ruhewasserspiegel lag bei 91,0 m. Im Verlauf der ersten Pumpphase, die am 28.01.1992 von 8.00 bis 18.00 h mit 3,5 l/s gefahren wurde, gab es eine Wasserspiegelabsenkung von ca. 43 m. In der zweiten Pumpphase, die vom 28.01.1992, 18.00 h, bis zum 29.01.1992, 4.00 h, gefahren wurde, sank der Wasserspiegel bei einer Pumprate von 6,0 l/s um weitere 88,75 m. Die anschließend beginnende dritte Pumpphase wurde mit 7,3 l/s gefahren. Bis zu deren Ende am 29.01.1992 um 14.00 h gab es mit 114,25 m die größte Wasserspiegelabsenkung. Diese Daten ergaben nach

JACOB (halblog.) einen Mittelwert für die Transmissivität von $5.2 \cdot 10^{-5}$ (freundl. mündl. Mitt. F. Cammerer/HYDRODATA).

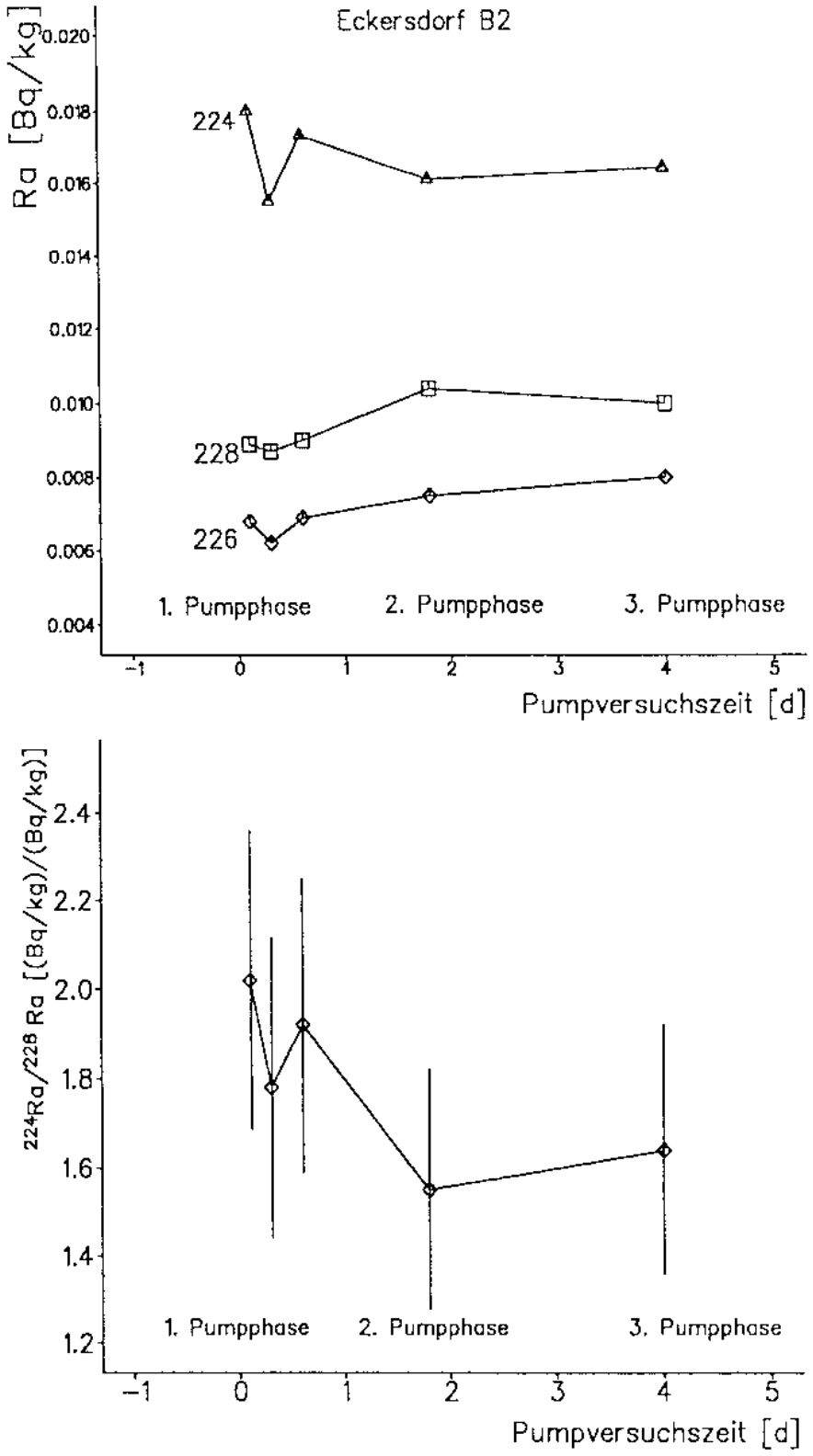


Abb. 25: Ra-Aktivitäten (oben) und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Eckersdorf.

5.5.5.1 Ergebnisse der Radium-Aktivitätsbestimmungen

Die jeweils am Beginn und am Ende einer Pumpphase entnommenen Grundwasserproben zeigten Radium-Aktivitäten von ca. 50 bis ca. 260 mBq/kg (vgl. Tab. 27, Abb. 26). Die höchsten Aktivitäten besaß die zu Beginn des Pumpversuchs entnommene Grundwasserprobe, was in einem erhöhten Mineralstoffgehalt (erhöhte Leitfähigkeit) dieser Probe begründet liegt.

Die $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse waren gegenüber dem Gleichgewichtswert von 1 leicht erniedrigt. Sie änderten sich im Verlauf des Pumpversuchs nur im Bereich der Messgenauigkeit. Dies bedeutet, dass

- ein homogener Grundwasserleiter gegeben ist (es findet keine Vermischung unterschiedlicher Grundwässer statt),
- eine mittlere Fließzeit des Grundwassers von ca. 16 bis 20 Stunden gegeben ist.

5.6 Pumpversuche in Baden-Württemberg

5.6.1 Drei horizontierte Pumpversuche in einer Opalinuston-Bohrung in Württemberg (Geisingen)

Im Rahmen eines Forschungsprojektes des Geologischen Landesamtes Baden-Württemberg (Freiburg), wurden vom 28.-30.10.1991 an der Grundwassermessstelle (GWM) KB13 bei Geisingen im Opalinuston drei Kurzpumpversuche in verschiedenen Tiefenbereichen (6 - 9m, 12 - 15m, 15 - 18m u. GOK) vorgenommen (vgl. HEKEL, 1992). Die GWM erschließt in diesen Bereichen verschiedene Grundwasserleiter. Jeweils zu Beginn, nach 2-3 Stunden und am Ende von jedem Pumpversuch wurden Grundwasserproben zur Isotopenuntersuchung entnommen.

An den während der drei Pumpversuche in Geisingen entnommenen Wasserproben wurden jeweils 2 Tritium-, Sauerstoff-18- und Deuterium-Bestimmungen sowie eine Kohlenstoff-13- und eine Kohlenstoff-14-Bestimmung vorgenommen. Weiterhin wurden jeweils 3 Proben pro Pumpversuch zur Radium- und 2 Proben zur Radonbestimmung entnommen.

Zur Auswertung der Kohlenstoff-Isotopenuntersuchungen an den Grundwasserproben wurden die Ergebnisse der Kohlenstoff-13-Bestimmungen an Gesteinsproben aus derselben Bohrung herangezogen.

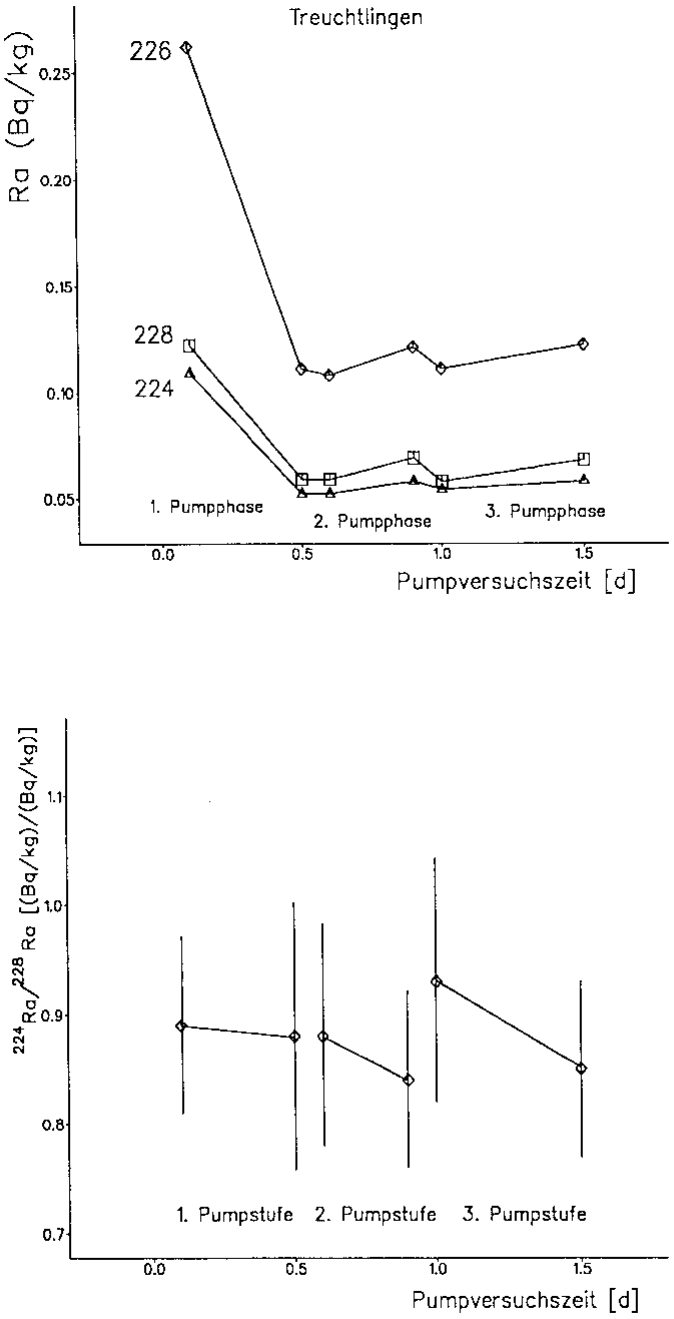


Abb. 26: Ra-Aktivitäten (oben) und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse (unten) im Verlauf des Pumpversuchs an der Bohrung Treuchtlingen.

Ergänzend zu den ^{3}H-Gehalts-Bestimmungen des Grundwassers dieser Entnahmestelle wurden auch ^{3}H-Gehalte von Grundwasser aus zwei benachbarten Entnahmestellen, KB13a und KB14 bestimmt.

5.6.1.1 Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen

Die einzelnen Ergebnisse sind Tab. 28a zu entnehmen.

Die Temperaturen der Grundwässer aus den verschiedenen Entnahmetiefen lagen bei 9 bis 10°C.

Die spez. el. Leitfähigkeit fiel im obersten Entnahmebereich im Verlauf des Pumpversuchs von 1140 auf 880 um 260 µS/cm, im mittleren Entnahmebereich fiel sie um etwa 180 µS/cm, wogegen sie im untersten Entnahmebereich um etwa 100 µS/cm anstieg.

Der pH-Wert stieg vom obersten Entnahmebereich von 6,9 auf 7,5 im untersten Entnahmebereich.

Die Säurekapazität war für die Grundwässer aus den unteren beiden Entnahmebereichen ähnlich, während sie für den oberen Bereich vergleichsweise niedriger lag. Entsprechend war die Basenkapazität dafür in diesem Bereich etwas höher als in den unteren beiden Entnahmebereichen.

Insgesamt wurden durch diese Ergebnisse drei unterschiedliche Grundwassertypen für die drei verschiedenen Entnahmebereiche belegt.

5.6.1.2 Ergebnisse der Isotopenuntersuchungen

In den Grundwässern der Entnahmestellen KB13, KB13a und KB14 bei Geisingen war kein oder nur ein geringer Anteil an ^{3}H-haltigem Grundwasser (max. 3 TU) nachweisbar (Tab. 28b).

Das tritiumhaltige Wasser dieser Entnahmestellen dürfte aus dem oberhalb 4 m u. GOK liegenden Bereichen stammen. Bei KB13a war in einer Tiefe von 4 bis 5 m u. GOK nach einer mehrstündigen Abpumpzeit kein ^{3}H-haltiges Grundwasser nachweisbar.

Die Proben aus dem Tiefenbereich 12 - 15 m zeigten mit -10,03 bzw. -10,13 $\delta^{18}O$-‰ und -70,7 bzw. -70,9 $\delta^{2}H$-‰ sehr "leichte" Werte für die stabilen Isotope des Wassermoleküles an.

Die Grundwasserproben aus den oberen beiden Intervallen (6 - 9 m bzw. 12 - 15 m) dieser GWM lagen mit -9,80 und -9,77 bzw. -9,88 und -9,82 δ^{18}O-‰ und -69,6 bzw. -69,3 und -68,9 δ^{2}H-‰ ebenfalls in einem sehr leichten Bereich. Dies deutet auf einen Anteil an im Pleistozän gebildetem Grundwasser hin.

Das Grundwasseralter betreffend lässt sich für diese Proben aussagen, dass kein nachweisbarer Isotopenaustausch mit dem Gestein stattgefunden hat, da die Wertepaare im Bereich der sog. mittleren Niederschlagsgeraden ($\delta^{2}H=8\cdot\delta^{18}O+10$) liegen.

^{14}C-Gehalte waren an den beiden aus den unteren Tiefenintervallen (9-12 m und 15-18 m) entnommenen Grundwasserproben nicht nachweisbar. Im oberen Intervall (6 - 9 m) wurde ein ^{14}C-Gehalt von 22±1 pMC gemessen.

Der gemessene ^{13}C-Gehalt der Probe aus dem Bereich 6 - 9 m betrug -12,7 δ^{13}C-‰. Dieser Wert weist darauf hin, dass keine nachweisliche Veränderung des im Grundwasser gelösten anorganischen Kohlenstoffes aufgrund eines Kohlenstoff-Isotopenaustauschs mit dem Gesteinskarbonat stattfand.

Der ^{14}C-Gehalt von 22 pMC weist auf "altes" Grundwasser mit einem Alter im Bereich von mehreren 1000 Jahren hin. Es liegen entsprechend dem ^{3}H-Gehalt von 3 TU etwa 10% eines "jungen" Grundwassers vor. Der ^{14}C-Gehalt der "alten" Komponente ist somit kleiner als 22 pMC. Er dürfte zwischen 15 und 20 pMC liegen. Das daraus abgeschätzte Grundwasseralter liegt nicht über 10 000 Jahren. Eine Angabe über das Minimalalter erfordert weitere Untersuchungen, da trotz des nicht erkennbaren Kohlenstoff-Isotopenaustausches die Möglichkeit eines solchen besteht. Ist ein Kohlenstoff-Isotopenaustausch aufgetreten, dann hat sich auch der ^{14}C-Gehalt erniedrigt. Somit kann der niedrige ^{14}C-Gehalt ein zu hohes Grundwasseralter vortäuschen.

Die ^{13}C-Gehalte der beiden Proben aus den Tiefenbereichen 12 – 15 m und 15 - 18 m betrugen –9,59 bzw. –9,37 δ^{13}C-‰. Das Karbonat der Gesteinsproben aus der Bohrung Geisingen KB13 zeigt δ^{13}C-Werte um 0 δ^{13}C-‰ (Tab. 28c). Wenn für ein "junges" Grundwasser ein ^{13}C-Gehalt von ca. -12 bis -13 δ^{13}C-‰ angenommen wird, so ist im Bereich zwischen 12 und 18 m der Bohrung KB13 ein Kohlenstoff-Austausch von ca. 25% gegeben. Dies würde zusammen mit dem nicht vorhandenen ^{14}C auf ein Grundwasseralter von mehreren 10 000 Jahren deuten.

Hier gilt aber, wie schon oben erwähnt, dass im Falle eines durch die Untersuchungen nicht belegten höheren Kohlenstoff-Isotopenaustausches trotzdem ein solcher stattgefunden haben konnte.

Aus den hier vorliegenden Ergebnissen der ^{14}C- und ^{13}C-Untersuchungen ist zu schließen, dass es sich doch um "alte" Grundwässer handelt, die nicht am aktuellen Wasserkreislauf teilnehmen.

Die ^{13}C-Gehalte der untersuchten Gesteinsproben lagen zwischen -2,21 und +1,76 $\delta^{13}C$-‰.

Insgesamt liegen die Werte sowohl innerhalb eines Profils als auch der einzelnen Proben untereinander in einem engen Variationsbereich. Es sind hier demnach relativ homogene Verhältnisse gegeben.

Dasselbe gilt für die ^{18}O-Gehalte. Sie bewegen sich mit Werten zwischen –8,33 und -5,33 $\delta^{18}O$-‰ ebenfalls in einem engen Bereich.

Es lässt sich kein Unterschied zwischen den auf den Klüften und am Gesamtgestein gemessenen Werten feststellen.

Die Karbonate des Gesteins und der Klüfte dürften somit gleicher genetischer Herkunft sein.

5.6.1.3 Ergebnisse der Radium und Radon-Aktivitätsbestimmungen

Die ^{222}Rn-Aktivitäten der untersuchten Grundwasserproben liegen mit 2,7±0,3 bis 6,6±0,5 Bq/kg in einem eng begrenzten Variationsbereich. Sie sind insgesamt als niedrig zu bezeichnen.

Es fällt auf, dass die Radon-Aktivitäten der entnommenen Grundwasserproben jeweils zu Beginn des Pumpintervalls niedriger sind als am Ende. Da dieser Effekt regelmäßig auftritt (und wegen des geringen Gasgehalts des Grundwassers) kann davon ausgegangen werden, dass er nicht auf eine Entgasung während der Probenahme zurückzuführen ist.

Vermutlich ist die niedrigere ^{222}Rn-Aktivität zu Beginn der Pumpversuche durch eine Entgasung aus dem Grundwasserleiter ins Bohrloch bedingt. Dadurch hat das Grundwasser in unmittelbarer Bohrlochumgebung einen erniedrigten Gesamtgasgehalt und deshalb auch einen erniedrigten Radongehalt. Im Verlauf des Pumpversuchs wird dann Grundwasser aus größerer Entfernung hinzugeführt, das noch den natürlichen Gasgehalt und damit auch einen höheren Radongehalt besitzt.

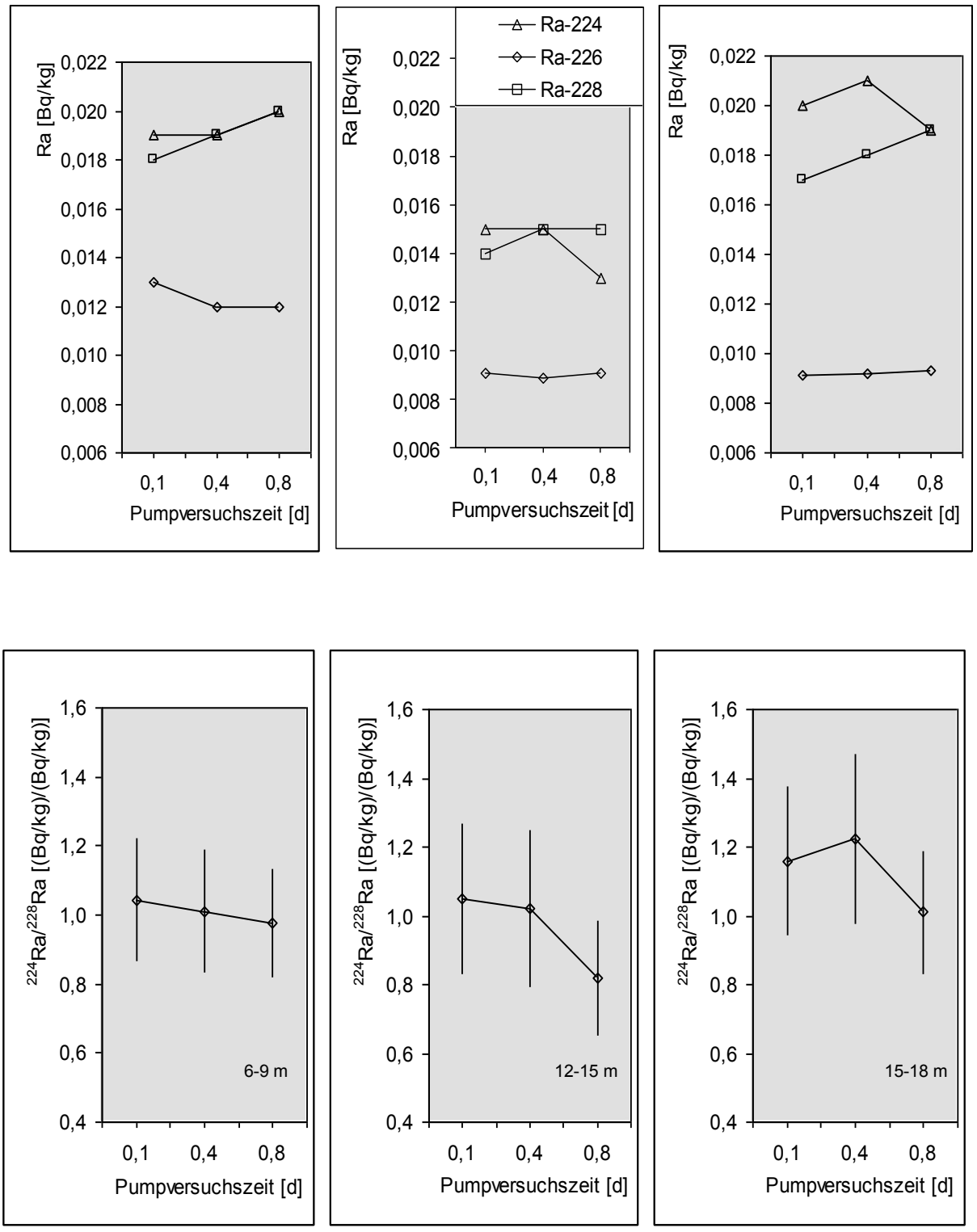


Abb. 27: Ra-Aktivitäten (oben) und $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse (unten) im Verlauf der Pumpversuche an der Bohrung Geisingen.

Den Aufbau des Grundwasserleiters betreffend ist aus diesen Ergebnissen zu folgern, dass es wohl kaum eine vertikale Entgasungsmöglichkeit in Form von Klüften gibt.

Umgekehrt sind die ^{222}Rn-Ergebnisse eine Bestätigung dessen, was schon eine Befahrung des Bohrlochs mit der Unterwasserkamera zeigte, dass das Grundwasser sich horizontal auf Schichtfugen oder auf Entlastungsklüften bewegt.

Die Radium-Aktivitäten des hier untersuchten Grundwassers betragen mit wenigen Millibequerel etwa ein Tausendstel der Radonaktivitäten (Tab. 28d), woran zu erkennen ist, dass nur ein Bruchteil des Radons im Grundwasser und der größte Teil im Gestein produziert wird. Die Tatsache, dass kein echter Anstieg oder Rückgang des Radongehaltes mit der Tiefe zu beobachten ist, deutet wiederum an, dass sein Mutterisotop relativ homogen im gesamten untersuchten Gesteinskomplex verteilt sein muss.

Insgesamt sind die Radium- und Radon-Aktivitäten als niedrig zu bezeichnen.

Während der einzelnen Pumpphasen traten bei keinem der gemessenen Radium-Isotope Schwankungen auf, die außerhalb der Messgenauigkeit lagen (vgl. Tab. 28, Abb. 27). Innerhalb der Messgenauigkeit ist ein tendenzieller Rückgang des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses mit der Pumpversuchsdauer zu beobachten. Dieses Verhältnis liegt nur bei der ersten Probe aus dem tiefsten Entnahmebereich nicht entsprechend der Tendenz. Es ist jedoch aufgrund des ^{3}H-Wertes dieser Probe davon auszugehen, dass es sich hier um Mischwasser aus Grundwasser der oberen Bereiche und dem eigentlichen Grundwasser dieser Entnahmetiefe handelt, weshalb der Wert auch zwischen denen des oberen und denen des unteren Entnahmebereiches liegt.

Die sinkende Tendenz des ^{224}Ra/^{228}Ra-Verhältnisses ist auf die kurze Halbwertszeit des ^{224}Ra zurückzuführen, die bewirkt, dass der Radiumgehalt des Grundwassers bei einer Beschleunigung der Fließgeschwindigkeit auf dem Weg von Punkt A nach Punkt B um einen der Fließzeit entsprechenden Wert sinkt. Damit bestätigt diese sinkende Tendenz wiederum die Homogenität des Grundwasserleiters.

Die Ergebnisse der Radium-Untersuchungen sind folgendermaßen zu interpretieren:

a) In allen drei durch die Pumpversuche erfassten Untersuchungsbereichen sind die Radionuklidgehalte im Grundwasserleiter homogen verteilt;

b) Es wird im Verlauf der jeweiligen Pumpversuche immer derselbe Grundwassertypus gefördert. Es werden keine Ra-isotopisch unterschiedlich markierten

Grundwässer zusammengemischt;

c) Das Grundwasser hatte keine lange Fließzeit, da das $^{224}Ra/^{228}Ra$-Verhältnis im Rahmen der Messgenauigkeit immer bei 1 lag.

Die Ergebnisse der Radium-Aktivitätsbestimmungen bestätigen entsprechend diesen Folgerungen, dass sich das untersuchte Grundwasser i.W. auf weitflächigen Schichtfugen bewegt, zwischen denen kein "Laekage" eine Verbindung schafft.

6. UNTERSUCHUNGEN AN GESTEINSPROBEN

Die Untersuchung der Gesteinsproben erfolgte am Institut für Geochemie der Universität Tübingen.

6.1 Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA)

Bei der hier angewandten wellenlängendispersiven RFA werden durch eine Röntgenröhre Strahlen erzeugt, welche auf Tabletten gelenkt werden und diese mit einem bestimmten Brechungswinkel durchlaufen. Sie werden durch einen Kollimator parallelisiert, treffen auf einen Analysator und werden von dort auf einen Detektor - z.B. ein Geiger-Müller Zählrohr - gelenkt. (Für kürzere Wellenlängen und damit größere Energien kann zusätzlich noch ein Szintillationszähler eingesetzt werden.) Die Impulse werden elektronisch gezählt. Die benutzte Apparatur arbeitet mit Rhodium als Anodenmaterial, bei einer Spannug von 40 kV und einer 46 mA starken Anregungsquelle also mit einer Leistung von 1,84 kW.

6.2 Probenahme

Das Probenmaterial wurde zum einen Teil verschiedenen Abschnitten der Bohrung Karlsbad HJ-2 entnommen, in denen Zutrittsstellen für Grundwasser vermutet wurden. Zum anderen Teil wurden relativ junge Ausfällprodukte (Eisen- und Manganhydroxidschlämme) von Grundwasserzutrittsstellen in Stollen des Südschwarzwaldes und des ehemaligen Uranbergbaus in Thüringen beprobt.

6.3 Präparation

Die Eisen- und Manganhydroxidproben wurden getrocknet, die Bohrkernproben zu feinem Gesteinsmehl verarbeitet. Aus dem Gesteinsmehl wurden Schmelztabletten hergestellt, indem 1,5 g Probenmaterial mit 7,5 g Flussmittel versetzt wurde, 3 Minuten durch Rühren homogenisiert und dann in einen Platintiegel gegeben wurde. Anschließend sind die Proben bei 1100°C im Muffelofen 10 Min. lang eingeschmolzen worden.

Nach 10 Min. Schmelzzeit wurde die Schmelze in eine vorher mit dem Bunsenbrenner erhitzte Pt-Gussform gegeben, dann gleich mit dem Gebläse gekühlt und durch vorsichtiges Umdrehen der Form herausgenommen.

6.4 Messung und Auswertung

Der quantitative und qualitative Gehalt an Oxiden in der Probe wurde mittels Röntgenfluoreszenzanalyse bestimmt. Mit der oben beschriebenen Schmelztablette steht die Gesteinsprobe in verglaster und durch das Flußmittel verdünnter Form zur Verfügung und kann entsprechend 6.1. analysiert werden.

7. Ergebnisse und Diskussion der Gesteinsuntersuchungen

Die einzelnen Ergebnisse der Gesteinsuntersuchungen sind den Tab. 29 bis 36 des Anhangs B zu entnehmen.

7.1 Bohrkern aus der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

7.1.1 Petrographische Beschreibung der bearbeiteten Bohrkernabschnitte der Bohrung HJ-2 im Egergraben

Der Bohrkern stammt aus einer westlich von Karlovy Vary in der Nähe von der Stadt Sokolov gelegenen 1201,4 m tiefen Bohrung mit der Bezeichnung HJ-2. Ca. 50-60 m mächtige tertiäre Sedimente überlagern in diesem Bereich des Egergrabens den ca. 1000 km^2 weit reichenden Granitpluton von Karlovy Vary. In unmittelbarer westlicher Nachbarschaft der Bohrung HJ-2 liegen die tertiären Braunkohlereviere des Egergrabens. Östlich von Karlovy Vary beginnen die Basalte des Duppauer Gebirges, die den Granitpluton auch stellenweise durchschlagen (vgl. 5.4.2.1).

Der Bereich, in den die Bohrung HJ-2 abgeteuft wurde, unterlag - wie der ganze übrige Egergraben - einer starken postkristallinen Tektonik. Die daraus folgende Beanspruchung des Gesteins ist am Bohrkern deutlich sichtbar.

Beprobt und untersucht wurden Bereiche des Bohrkerns, in denen eine verstärkte Grundwasserzirkulation gegeben war, also solche mit starker Zerklüftung und Alteration sowie bekannt starkem Grundwasserzutritt.

Alle Proben stammten aus dem Bereich des Granitplutons. Dieser bildet die südliche Fortsetzung des Eibenstock-Granits. Der Eibenstockgranit wird schon von Credner (1883) als ein Granit beschrieben, der stellenweise stark alteriert bzw. als Greisen ausgebildet ist. Auch die im folgenden beschriebenen Gesteinsproben zeigen eine starke Alteration.

Aus den Proben wurden insgesamt 15 Dünnschliffe hergestellt. Weiterhin wurden 16 Proben einer RFA-Analyse, einer $\delta^{18}O$-Bestimmung und einer Radium-Aktivitätsbestimmung unterzogen und 4 Proben mit Salzsäure behandelt, in welcher der gelöste Uran- und Radiumgehalt bestimmt wurde.

Hier wird zunächst ein beschreibender Überblick des Bereiches mit der stärksten Grundwasserführung -nämlich zwischen ca. 340 und ca. 460 m u. GOK- gegeben. Anschließend folgt die stichwortartige Beschreibung der beprobten Bohrkernabschnitte, sowie die Beschreibung der Dünnschliffe.

Im oberen Bereich des bearbeiteten Bohrkernabschnittes gibt es wechselnde Partien aus mehr oder weniger alteriertem grobkörnigem porphyrischen Granit, der stellenweise bis zu sandigem Grus zerlegt ist. Darunter folgen ein hellgrauer, etwas festerer, mittel-bis-grobkörniger, biotitischer Granit und ein feinkörniger leukokratischer Granit, welche nach unten in eine breckzienartig zerbröckelte Form übergehen.

Der tiefste Teil dieses Bohrkernabschnitts besteht aus stark umgewandeltem, silifiziertem und hämatitisiertem quarzitischem Granit.

392-396m:

stark kaolinisierter feinkörniger aplitischer Granit mit großen rosa/roten Feldspäten; breckzióse Struktur; pegmatitartige Einschlüsse oder Intrusionen; Kluftfläche mit braunen und schwarzen Belägen: Eisen- und Mangan-Oxihydroxide; teilweise auch Grünfärbung; feinkörniger Bereich durchsetzt mit feinen grünen, auf Alterationsprozesse zurückzuführende, Mineralien; stark abgrusend

404-406,5 m:

extrem stark alterierter Granit, Breckzie; starke Kaolinisierung der Feldspäte; z.T. auch große rötliche Feldspäte; leicht gewellte rötliche Eisenhydroxid-Kluftfüllungen; teilweise bis zu 4 cm mächtige grünliche Kluftfülungen, teilweise imprägnatorische Grünfärbung von bestimmten Bereichen

406,5-407,2 m:

quarzitisch-breckzióse Strukturen mit rötlichbraunen und grünlichen bis gelblichen Verfärbungen; schlierig boudinöse Strukturen; vermutlich quarzitisierte Eisenhydroxidklüfte: einzelne Feldspatkristalle; reine Quarzite

407,2-412 m:

episyenitartige Strukturen; starke postkristalline Beanspruchung; zerbrochene rosa gefärbte Feldspäte; grüne Minerale; schwarze Kluftfüllungen; nach unten hin (ab 410,2 m) Klüfte verstärkt mit Pyrit besetzt; auch winzig Porenhohlräume mit kleinen, mm-großen, Pyritkristallen (idiomorph aufgewachsen); teilweise offene Klüfte; granitische Breckzie, quarzitisch gebunden, dunkelgrün gefärbte Quarzite

424-425,7 m:

von rötlichen Feldspäten durchsetzte Breckzie, weinrote Kluftfüllungen, feinfiedrig zerklüftet; alle Klüfte mit weinrotem, quarzitischen Material verfüllt; stellenweise stark zersetzte, grünlich gefärbte Bereiche

425,7-431 m:

granitische Breckzie mit granitischer Kluftfüllung; rötliche Feldspäte, grüne Minerale, schwarze, schlierenartige ca. 5 cm breite Einschlüsse; bei 429 m stärker beanspruchte Zone mit grusig zersetzem stark rot gefärbtem Gestein; Quarzkristalle in Eisenhydroxidgrundmasse

431-434,3 m (Störungszone im Bereich 425,7-435 m):

rötlicher, durch viele verheilte Klüftchen "marmorierter" Quarzit; Kluftfläche mit Harnischstriemenbildung (Bewegungsfläche); Kluftfläche mit bis zu mm-starkem Pyrit-Überzug

434,3-435 m:

wie Bereich 425,7-431 m

460-463 m:

Quarzit mit stark poröser Struktur (schwammartig). Auf Kluftflächen und in Porenhohlräumen drusenartige Beläge aus idiomorphen Quarzen; dominierend: weinrote Färbung; untergeordnet: grüne Bereiche

7.1.1.1 Beschreibung der Dünnschliffe

393,7-393,8 m:

Das Schliffbild zeigt i.W. Quarzkristalle mit Stresserscheinungen, Kalifeldspäte mit Perthitstruktur, sowie teilweise alterierte (chloritisierte) Biotite. Auf Abb. 28 ist einer dieser Biotite skizziert. Durch diesen mit Erzkörnern übersäten Biotit läuft eine kleine Bruchstruktur, die nur durch die Bruchstelle am Kristall und durch die Parallelverschiebung der einen Hälfte des Kristalles erkennbar ist.

Eine interessante Erscheinung stellen die Erzkörner dar, die innerhalb dieses Schliffes immer an die Biotite gebunden sind.

395,9-396,0 m:

Hier treten Muskovite z.T. schliffparallel und z.T. senkrecht zum Schliff auf. Große Quarzkristalle und große Kalifeldspäte mit Perthitstruktur dominieren. Innerhalb der Feldspäte treten kleine Nester aus Hellglimmer und Quarzkriställchen auf. Hier handelt es sich vermutlich um Produkte der Serizitisierung der Feldspäte. Bei manchen Kalifeldspäten sind deutlich Mikroklin-Zwillingsgitter zu sehen. Auf einem Quarzkristall ist ein kleinerer Biotit aufgewachsen. Die Skizze auf Abb. 28 zeigt Kalifeldspatkristalle mit deutlicher Perthitstruktur, die von Quarzen durchwachsen sind.

406,5-406,6 m:

Was schon am Handstück (Bohrkern) zu erkennen war, bestätigt sich hier im Schliffbild: das Gestein wurde in diesem Bereich stärker beansprucht als im darüberliegenden.

Ca. zwei Drittel des Schliffbildes werden von gestressten Quarzen, perthitischen Kalifeldspäten, Hellglimmern und chloritisierten Biotiten eingenommen. Die Quarze sind in Form von fast nicht mehr erkennbaren (Krypto-) Kristallen bis zu großen Pflasterquarzen vertreten; z.T. "schwimmen" größere Kristalle in einer feinen Matrix (Skizze in Abb. 28). Die Biotite

kommen meist randlich an Aggregaten größerer Erzkörner oder in der Mitte der Aggregate vor.

Das restliche Drittel des Schliffbildes wird von großflächig auftretenden Eisenoxihydroxiden bedeckt, in die wiederum Quarze eingebettet sind. Die Skizze in Abb. 28 stellt einen randlich mit Eisenoxihydroxiden belegten kleinen Riss dar, auf den winzige Quarzkristalle drusenartig aufwachsen. Auch ähnlich strukturierte kleine Porenhohlräume kommen vor.

408,5-408,6 m:

Hier treten dominierend bis zu 1 cm große Kalifeldspatkristalle auf, die z.T. verzwillingt sind. Sie sind stark beansprucht und im Begriff sich zu zersetzen, was daran zu erkennen ist, dass sie völlig von perthitischen Entmischungsstrukturen übersät sind. Im größten Kalifeldspatkristall dieses Schliffes ist eine mehr oder weniger rechteckige Pore zu sehen, die von feinen Quarzkriställchen und Hellglimmerblättchen ausgefüllt ist. Auch einzelne größere Quarzkörner und Muskovitblättchen sind in diesen Kristall eingewachsen. Vereinzelt sind im Bereich dieses großen Korns deutlich die quadratischen Umrisse von Pyritkörnern zu erkennen. Zusammen mit den Hellglimmern treten weitere Erzkörner auf, die sich aber wegen ihrer unregelmäßigen Abgrenzung nicht zuordnen lassen. Rund um den Kalifeldspat zieht sich ein alterierter Anwachssaum.

Auffällig ist hier auch ein großer Quarzkristall mit Stressmerkmalen, wie z.B. einem Riss, welcher durch kleine Quarzkristalle verheilt ist. Aber auch Bereiche aus feinstkörniger Quarzmatrix, in die größere Quarzkristalle und Hellglimmer eingelagert sind, sind zu erkennen.

Die Skizze auf Abb. 28 zeigt Hellglimmer, die durch eine kleine mit vielen Erzkörnern besetzte Kluft zerbrochen wurden.

Zirkone sind ebenfalls vorhanden.

Die Erzkörner befinden sich in denselben Bereichen wie die neugebildeten Hellglimmer, also in Zonen stärkerer Zersetzung des ursprünglichen Gesteins.

409,3-409,5 m:

Auch hier sind bei den größeren Mineralkörnern die Folgen einer starken Beanspruchung deutlich zu sehen: Die perthitischen Feldspäte sind vielfach zerbrochen, Quarze mit Stressmarken sind ebenfalls in mehrere Teile zerlegt.

Offene Poren deuten die völlige Zersetzung von Mineralen an.

Auch Neubildungen aus feinsten Quarzkriställchen und Glimmern deuten auf die Zersetzung von Kalifeldspäten.

Auch hydrothermale Bildungen sind wieder zu beobachten: Chloritisierte Glimmer sind von idiomorphen und unregelmäßig geformten Erzkörnchen übersät. Feinverteilte Schlieren von Eisenoxihydroxiden überziehen imprägnationsartig die Mineralkörner.

Einzelne Zirkone sind deutlich zu erkennen.

409,5-409,6 m:

Insgesamt sind keine großen Unterschiede zum eben beschriebenen darüberliegenden Bohrkernabschnitt zu beobachten. Auffallend ist ein großer perthitischer Kalifeldspat, der einen weiten Bereich des Schliffes einnimmt. Wie in den oben beschriebenen Schliffen sind auch hier winzige Quarzneubildungen zusammen mit Hellglimmern vorhanden. Die Erzkörner sind wieder vielfach an (neugebildete) Hellglimmer gebunden. Die Eisenoxihydroxide treten in diesem Schliff etwas zurück.

410,4-410,5 m:

Das Schliffbild wird weiträumig von roten Eisenoxidbändern und einzelnen Eisenoxidschlieren bestimmt, die pflasterartig verteilte große und kleine Quarzkristalle umgeben. Idiomorph in Mikroklüfte eingelagerte Pyritkörner treten auf. Risse sind mit kleinkristallinem Quarz verheilt. Poren treten häufiger auf als bei den darüber entnommenen Proben. Zum Teil wird auch der feinkristalline Quarz von Eisenoxiden durchtränkt.

In die Bereiche, in denen die kleineren Quarzkristalle auftreten, sind idiomorphe Pyritkörner eigebettet.

In Abb. 28 sind drei Skizzen von verschiedenen Ausschnitten aus diesem

Schliff abgebildet. Die erste stellt ein zerbrochenes Quarzkorn dar, das in eine Matrix aus kleineren Quarzkörnern eingebettet ist, und von einer Schliere aus winzigsten mit Eisenoxid durchtränkten Quarzkörnern umgeben ist.

Auf der zweiten Skizze ist der Umriss eines größeren Mineralkorns zu sehen, der völlig von kleinen Quarzkörnern ausgefüllt ist. Die Umrisse werden durch eine Eisenoxidschicht nachgezeichnet. Außerhalb dieses Korns sind ebenfalls Quarzkristalle zu sehen, die aber im Schnitt etwas größer sind, als die im Innenraum. Ein völlig zersetzter Kalifeldspat wurde vor dem jetzt sichtbaren Stadium von Eisenoxiden umlagert, welche aus in dieser "Schwächezone" migrierenden Fluiden ausgeschieden wurden. Dadurch wurde die Form des Umrisses des ehemaligen Kristalls erhalten.

Eine weitere Skizze stellt einen stark von Eisenoxiden dominierten Ausschnitt dar. Grünliche (chloritisierte) Biotite und Quarze mit Stresserscheinungen, die ebenfalls von einem grünlichen Schleier durchsetzt sind, sind darin eingelagert. Porenhohlräume nehmen den Rest des Schliffausschnitts ein.

Das Gestein besteht hier im Wesentlichen aus Quarz und Eisenoxihydroxiden. Es treten keine Feldspäte mehr auf, sie scheinen völlig zersetzt zu sein.

Porenhohlräume deuten ebenfalls darauf hin. Hier scheint ein Bereich vorzuliegen, in dem auch rezent noch größere Stoffumsetzungen auftreten.

Vermutlich ist dies der Bereich in dem rezent die bedeutendsten Grundwasserzirkulationen auftreten.

411,5-411,6 m:

Der Schliff wird von einer mit Quarz verheilten Kluft durchzogen, wobei die Quarzkörner ihre Längserstreckung senkrecht zum Kluftverlauf haben, also zur Kluftmitte hin orientiert sind. Sie sind auf einen Bereich mit mikrokristallinem Quarz aufgewachsen, in den einzelne kleine Hellglimmernester eingelagert sind.

Weiterhin zeigt der Schliff eckige größere Quarzkristalle, die in pflasterartiger Anordnung zueinander stehen. Der ganze Schliffbereich ist von vielen kleinen Erzkörnern übersät. Nur vereinzelt sind dagegen rot gefärbte Eisenoxidkörner vorhanden.

424,0-424,1 m:

Dominiert wird das Schliffbild auch hier von Quarzkristallen in unterschiedlichen Größen. Breite Bruchstellen in einem Kalifeldspatkristall sind z.B. mit Quarz verheilt (siehe Skizze in Abb. 28). Im Bereich, in dem auch feinkristalline Quarzkörner auftreten, sind im Durchlicht braune Eisenhydroxidschlieren zu sehen. Im restlichen Schliffbereich treten Eisenhydroxide diffus verteilt auf. Gelegentlich sind sie pseudomorph nach Pyrit, was auf Pyritoxidation hinweist. Ein größerer Feldspatkristall und mehrere kleinere, die starke Zersetzungserscheinungen zeigen, treten zusammen mit Biotit und Chlorit auf. An die Glimmer sind wiederum Erzkörner gebunden, die in die gleiche räumliche Richtung orientiert sind.

426,4-426,5 m:

Dieser Schliff ist völlig frei von Feldspäten. Hier dominieren Quarze und Eisenhydroxide völlig. Eine Eisenhydroxidschliere, in die idiomorphe Quarzkörner eingebettet sind, nimmt einen großen Bereich des Schliffbildes ein. Auffällig ist hier ein Erzkorn, das ein Länge von ca. 3 mm hat. Die Zersetzung von Mineralen und die Neubildung von Quarzen und auch einzelnen Dolomiten führte zu einer insgesamt stark porösen Struktur.

428.3-428.4 m:

In diesem Schliff fällt sofort ein die Hälfte des Schliffbildes ausfüllender Kalifeldspat auf, der von roten Eisenoxiden umsäumt ist.

Die andere Hälfte des Schliffes ist durch meist große Quarzkristalle dominiert. Zwischen diesen sitzt feinkristalliner Quarz, der wiederum von einem Eisenhydroxidsaum umgeben ist. Die Eisenoxide sind in allen "Schwächezonen", wie z.B. Nahtstellen, zu beobachten. Teilweise kann man hier auch ein drusenartiges Zuwachsen von Porenhohlräumen durch feine Quarzkristalle beobachten. Die Skizze in Abb. 28 zeigt einen Ausschnitt aus einem mit Quarz verheilten Riss in einem Kalifeldspat. In diesem Kalifeldspat treten auch Neubildungen in Form von kleinen Hellglimmerblättchen auf. Weiterhin sind Chlorit und eisenoxidhaltiger rotgefärbter Dolomit zu sehen.

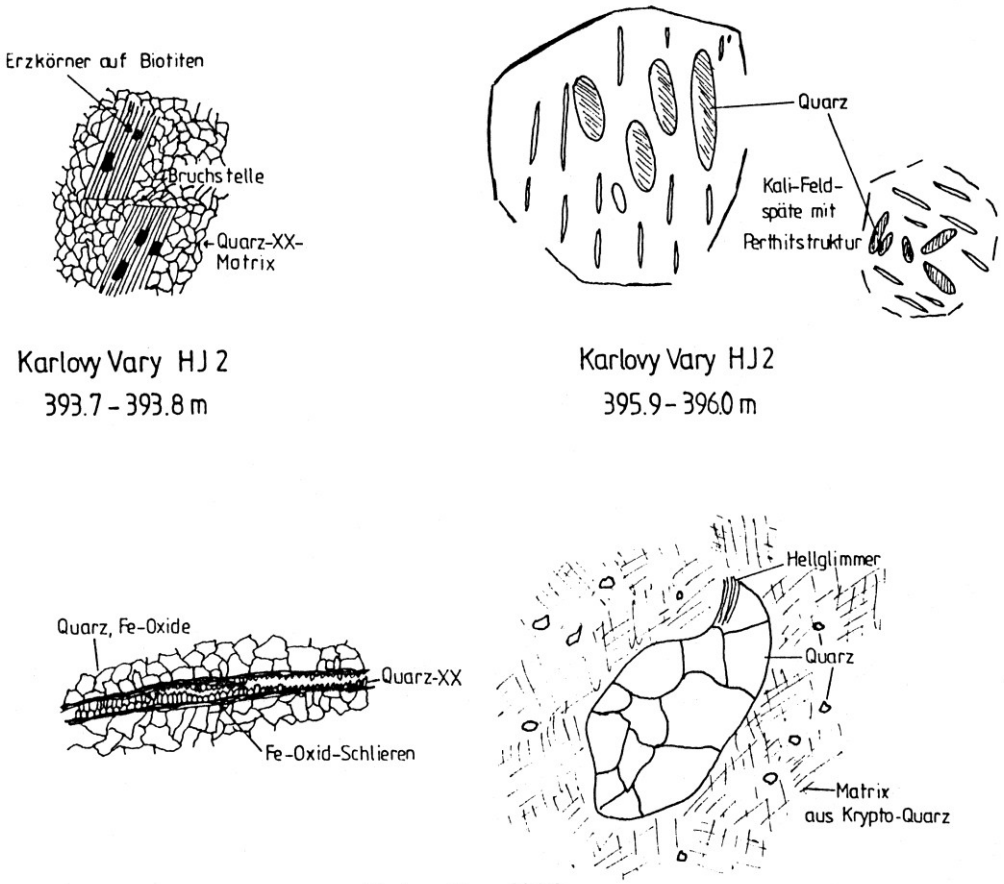
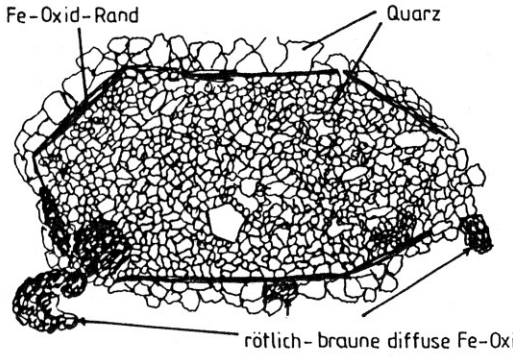
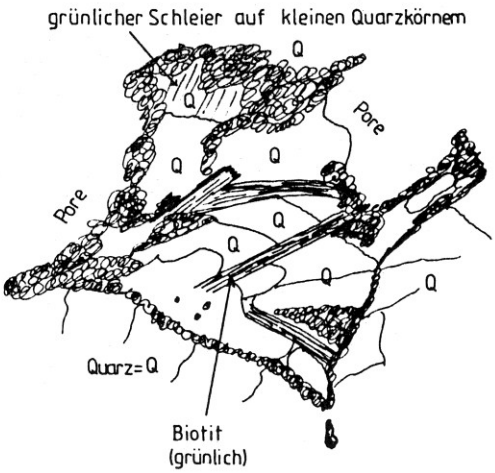
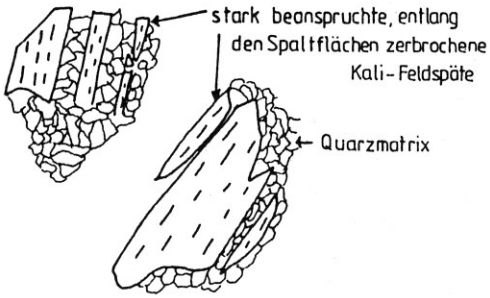


Abb. 28: Detail-Skizzen von Dünnschliffen des Bohrkerns der Bohrung Karlovy Vary HJ-2.

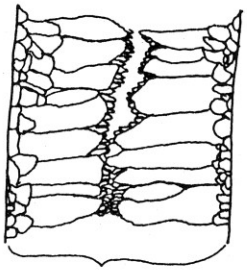




Karlovy Vary HJ 2
410.4-410.5 m

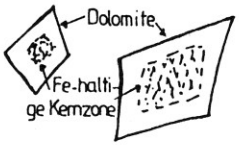


Karlovy Vary HJ 2
424.0-424.1 m

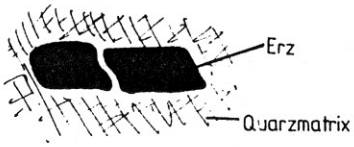


Quarzverheilter Riß in Kali-Feldspat

Karlovy Vary HJ 2
428.3-428.4 m



Karlovy Vary HJ 2
428.4-428.5 m



Karlovy Vary HJ 2
461.6-461.7 m

Fortsetzung Abb. 28: Detail-Skizzen von Dünnschliffen des Bohrkerns der Bohrung Karlovy Vary HJ-2.

428,4-428,5 m:

Dieser Schliff unterscheidet sich vom vorhergehenden nur durch die auffallend idiomorph ausgebildeten Dolomitneubildungen, die einen roten, eisenoxidhaltigen Kernbereich zeigen.

432,4-432,5 m:

Das Bild dieses quarz- und eisenoxiddominierten Schliffes wird lediglich durch gelegentlich auftretende kleine Hellglimmerblättchen aufgelockert. Die Quarze treten wieder in vielen unterschiedlichen Größen auf, die schlierenartig von Eisenoxiden durchzogen werden.

461,5-461,6 m:

Quarzkörner in verschiedenen Größen werden von Eisenoxidschlieren durchsetzt. Größere Quarze zeigen einen Zonarbau, der durch kleine auf den einzelnen Zonengrenzen sitzende Erzkörner angedeutet wird. Alle hier auftretenden Klüftchen sind mit kleinen Quarzkörnern verheilt. Kleine Porenzwischenräume werden ebenfalls durch hineinwachsende Quarze umrandet.

Die vereinzelt vorkommenden Dolomite sind hier nicht idiomorph ausgebildet. Erzkörner mit gerundeten und eckigen Kanten sind über den gesamten Schliff verstreut (siehe auch Skizze in Abb. 28)

462,1-462,5 m:

Traubenartig angeordnete Quarzkonglomerate einer bestimmten Größe "schwimmen" in anderen Quarzkörnern unterschiedlicher Größe. Ebenfalls unterschiedlich groß und unregelmäßig geformt sind die Poren in diesem Schliff. Die Hohlräume sind umrandet von winzigen hypidiomorphen Quarzkristallen, die drusenartig hineinragen.

Zusammenfassende Beschreibung des Bohrkerns und der Schliffe:

Generell ist im gesamten bearbeiteten Bereich des Bohrkerns (ca. 392-463 m u. GOK) eine starke tektonische Beanspruchung mit nachfolgendem Stofftransport zu erkennen. Diese Tatsachen lassen sich aus einer schon makroskopisch sichtbaren Zersetzung von Mineralen und der mikroskopisch erkennbaren Bildung neuer Minerale, einer starken "Durchtränkung" mit Eisenoxiden und der Bildung hydrothermaler Erze ableiten.

Im Einzelnen sind Streßerscheinungen bei Quarzen und Zersetzungserscheinungen oder das völlige Fehlen von leichter zersetzbaren Mineralen, wie z.B. den Feldspäten, zu nennen. Die vorhandenen Kalifeldspäte zeigen durchwegs perthitische Strukturen. In sich zersetzenden Bereichen sind Quarz- und Hellglimmerneubildungen zu beobachten. Weitere neugebildete Minerale sind Dolomite, die z.T. idiomorph auftreten und fast immer die rote Farbe des Eisenoxids im Kern zeigen. Die Biotite sind immer schwach bis völlig chloritisiert.

Während die hydrothermal gebildeten Erzkörnchen, die im gesamten betrachteten Bereich auftreten, unter reduzierten Bedingungen gebildet werden mussten, muss das Eisenoxid schon mit sauerstoffhaltigen Fluiden transportiert und ausgefällt worden sein. Die tieferliegenden Bereiche des Bohrkerns zeigen eine stärkere Durchtränkung mit Eisenoxiden und eine fortgeschrittenere Quarzitisierung, sowie das häufigere Auftreten von Dolomiten.

Genese:

Dieses Gestein entsprach ursprünglich in etwa dem Eibenstockgranit. Dieser ist -wie oben erwähnt- in manchen Gebieten als Greisen ausgebildet. Während der starken und häufigen Bewegungsphasen im Tertiär, bei denen der Egergraben einsank und das Duppauer Basaltgebirge entstand, wurde der Granit mehrmals stark tektonisch beansprucht. Migrierende Fluide mit gegenüber Grundwasser erhöhten Temperaturen bewirkten bei dem mechanisch schon stark beanspruchten Gestein Stoffumsetzungen in größerem Ausmaß. Dabei wurden größtenteils sulfidische Erze gebildet. Später gelangten niedriger temperierte Grundwässer in das stark zerklüftete und poröse Gestein. Wieder kam es zu Stoffumsetzungen, wobei die Oxidation der Eisenerze eine große Rolle spielte.

Die im Zuge von Krustenteilbewegungen auftretende Beanspruchung dieses Gesteins bewirkte sowohl eine bessere Wasserwegsamkeit und damit eine Zufuhr von Fluiden als auch eine schnellere Zersetzung der durch den Bewegungsdruck schon angegriffenen Minerale.

Die migrierenden Fluide bewirkten eine Stoffzufuhr, die zusammen mit den aus der Zersetzung der Mineralien freigesetzten Stoffen die Grundlage zur Neubildung von Mineralien schuf.

Die Zersetzungserscheinungen bedingten auch eine teilweise in-situ-Umwandlung des Granits in Arkose- bzw. Sandstein-ähnliche Formen, wobei in den tiefergelegenen Bereichen eine sekundäre Silifizierung stattfand, so dass dort quarzitische Erscheinungsformen zu sehen sind.

7.1.1.2 Ergebnisse der Röntgenfluoreszenzanalyse und der Kristallwasser-bestimmung nach der Penfield-Methode

Die Oxide der Hauptelemente der Proben aus Karlovy Vary sind SiO_2-dominiert (Tab. 29). Dies war aufgrund der hohen Quarzgehalte in den Dünnschliffen zu erwarten. Die SiO_2-Gehalte schwanken - abgesehen von der Probe aus 426,4m - in den Proben aus den untersuchten Bereichen von 393,7 bis 428,9 m zwischen ca. 70 und ca. 88%. In der Probe aus 426,4 m und in denen aus den drei tiefstgelegenen Untersuchungsbereichen liegt der Gehalt bei mehr als 98%.

Wo die SiO_2-Gehalte relativ niedrig sind, sind die Al_2O_3- und K_2O-Gehalte entsprechend hoch. Die höchsten Gehalte dieser Oxide wurden in der Probe aus 404,5 m, die auch den niedrigsten SiO_2-Gehalt aufweist, gemessen.

Fe_2O_3 tritt erst ab 404,5 m in durch die RFA nachweisbaren Gehalten auf. Diese Gehalte schwanken - mit Ausnahme der dunklen Probe aus 428,3m - zwischen ca. 1 und 3%. In der dunklen Probe, aus 428,3 m wurde der Fe_2O_3-Gehalt mit 9,6% bestimmt.

CaO, MgO und Na_2O sind entweder nur in geringen Gehalten vorhanden, oder nicht nachweisbar.

Betrachtet man die Entwicklung der einzelnen Oxide mit der Tiefe (vgl. Abb. 29), so stellt sich die Abreicherung aller übrigen Oxide gegenüber SiO_2 unterhalb von 430 m u.

GOK deutlich dar. Auch im darüber liegenden Bereich ist diese gegenläufige Tendenz besonders zwischen SiO_2 und Al_2O_3, MgO, CaO sowie Na_2O_3 deutlich zu verfolgen.

Die Gehalte der einzelnen Spurenelemente sind für die einzelnen Entnahmetiefen sehr unterschiedlich. Besonders beim Zirkongehalt gibt es in 309 m Tiefe einen Extremwert von fast 6000 ppm. Bei der Betrachtung der Entwicklung der Spurenelementgehalte mit der Tiefe fällt eine relativ parallele Entwicklung zwischen Rb, Sr, Ba, Nb, Y, Zr und V auf. Cr und Zn entwickeln sich gegenläufig zu diesen.

Eine einigermaßen deutliche positive Korrelation ist allerdings nur zwischen Rb und Zr gegeben (Abb. 30).

Die Gehalte an Kristallwasser der Bohrkernproben, die nach der Penfield-Methode bestimmt wurden, sind mit Werten zwischen ca. 0,02 und ca. 2,5 Gewichts-% (Tab. 29) ebenfalls sehr unterschiedlich. Sie liegen z.T. relativ weit vom Mittelwert für Granite von 0,53 Gew.-% (vgl. z.B. MÖLLER, 1986 u. WEDEPOHL, 1969) entfernt.

Eine relative Erhöhung wie sie bei den Proben aus ca. 393 bis 411 m und 428 bis 429 m gegeben ist, deutet auf eine Alteration der Granite hin. Bestimmte Minerale alterieren unter Aufnahme von Wasser ins Kristallgitter. Bei den Proben mit niedrigeren Kristallwassergehalten als 0,53 Gew.-% handelt es sich um diejenigen, die SiO_2-Gehalte von mehr als 95 Gew.-% haben. Hier sind keine Minerale mehr vorhanden, die bei der Alteration Wasser in die Kristallstruktur aufnehmen.

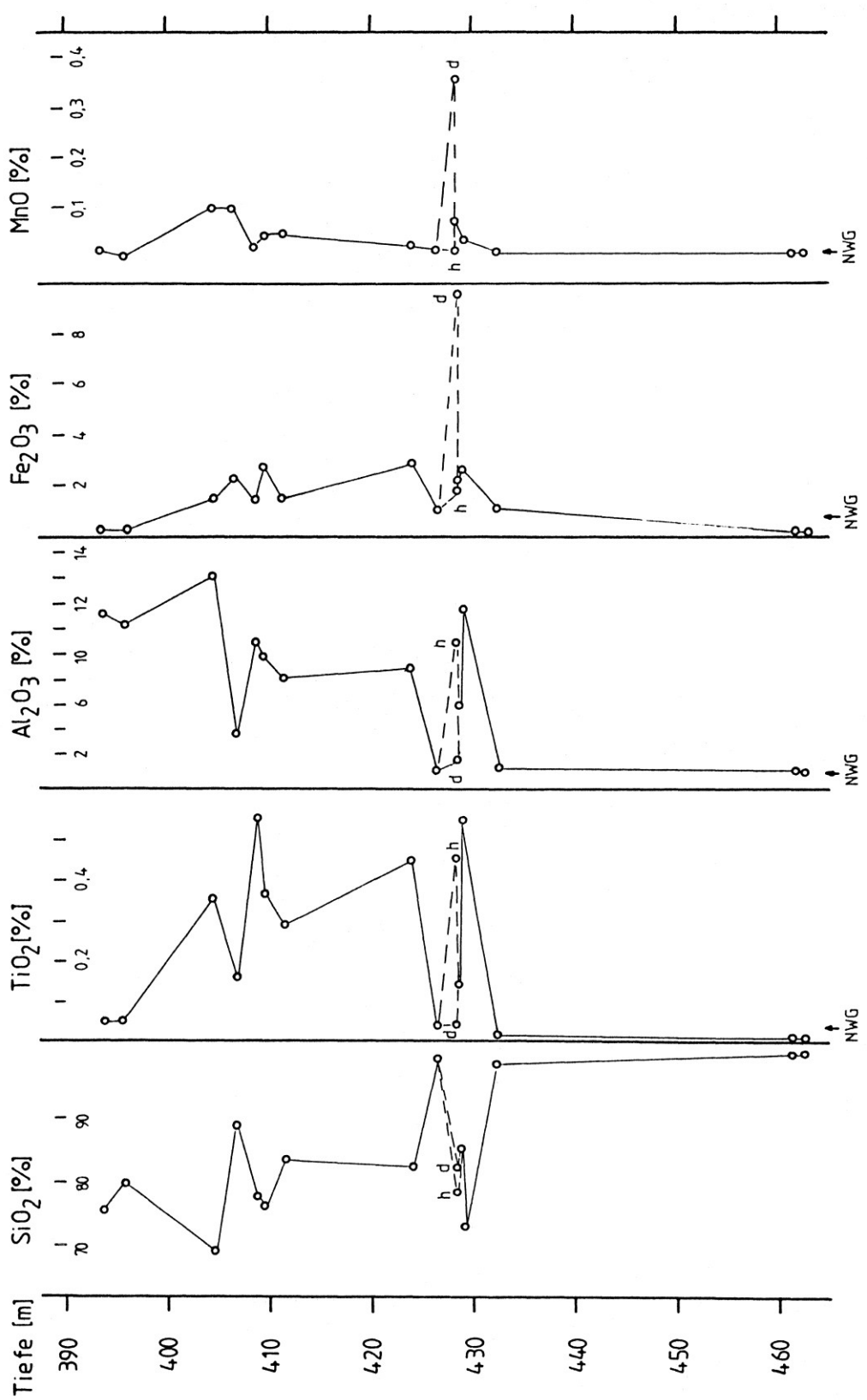
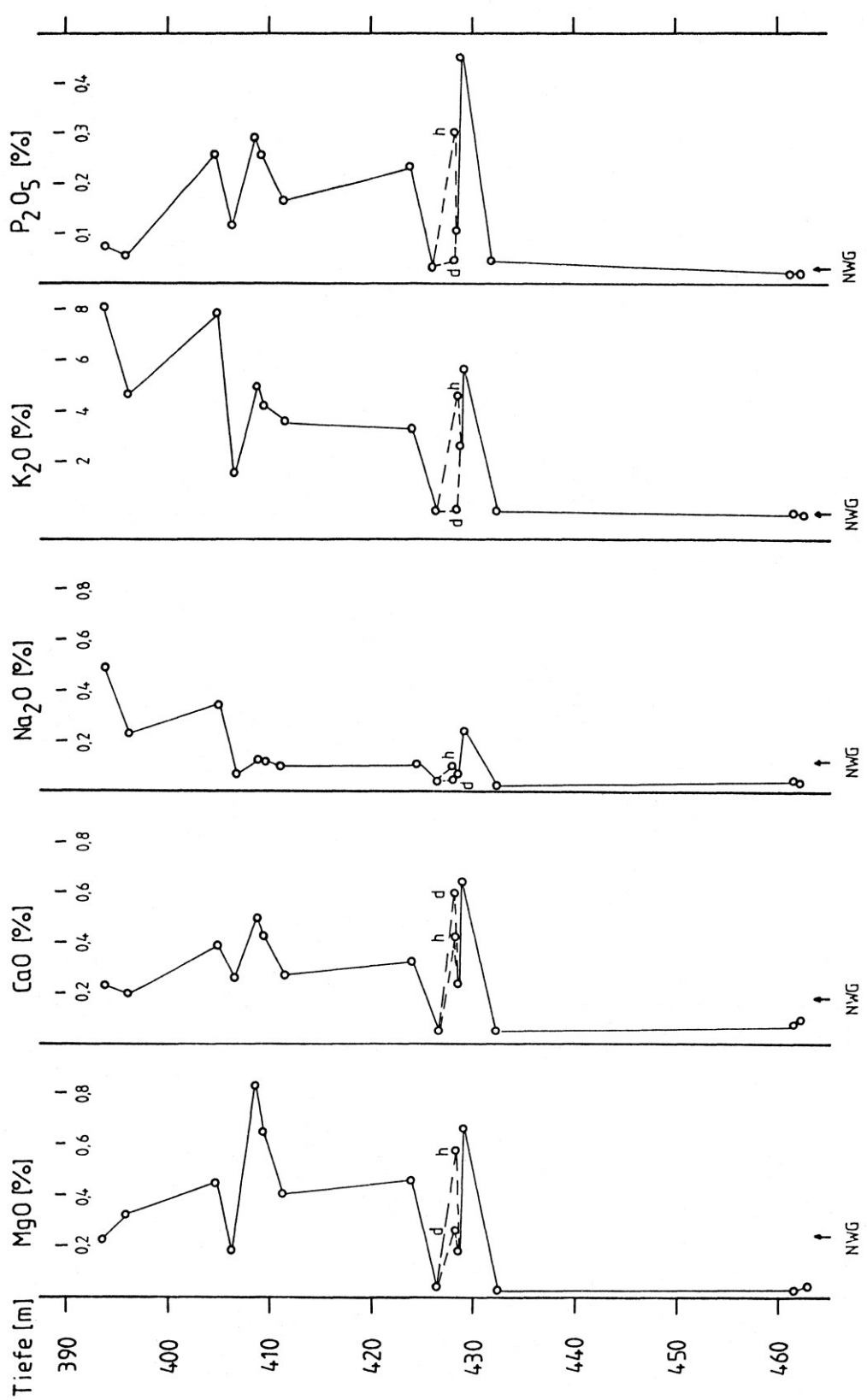
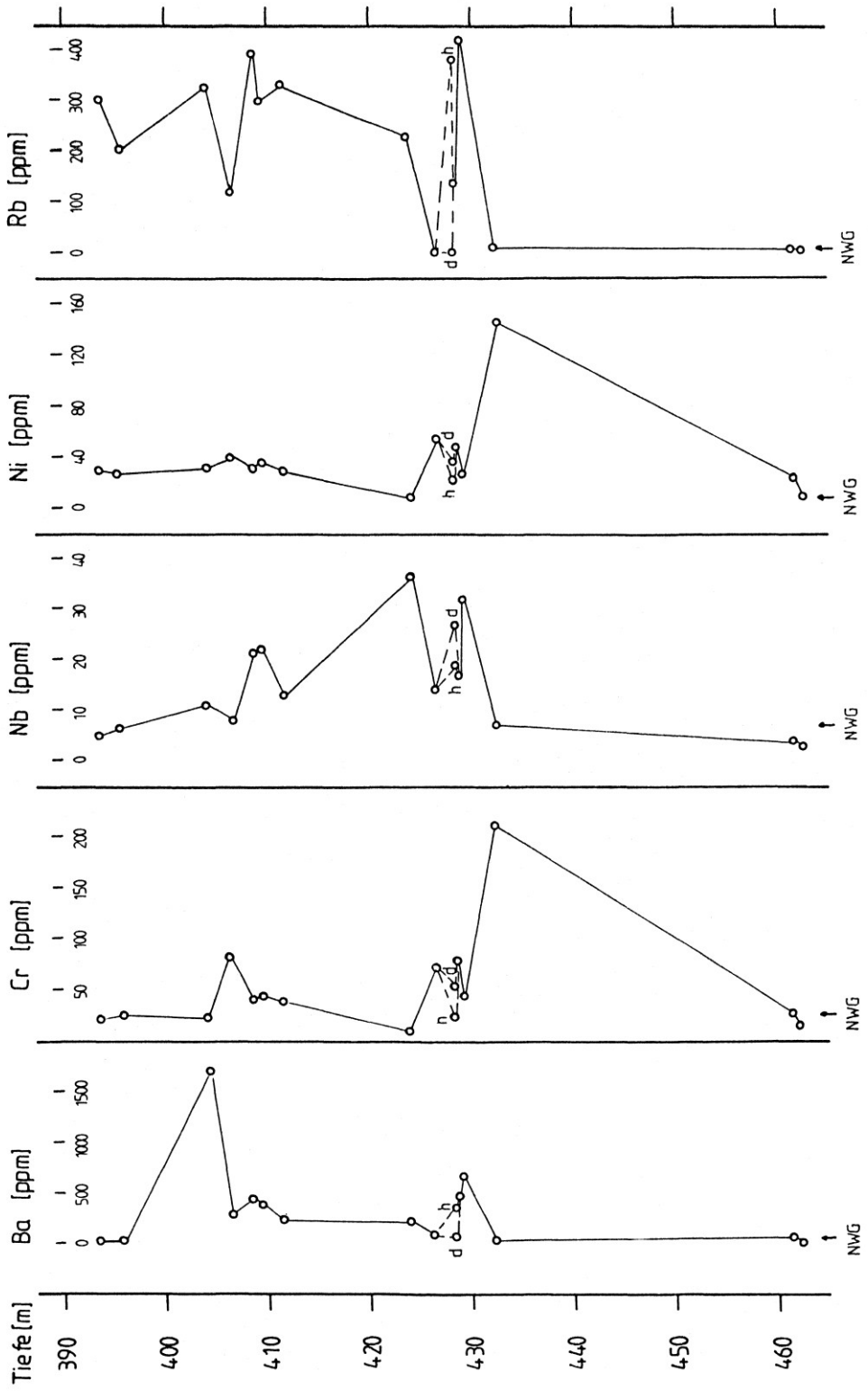


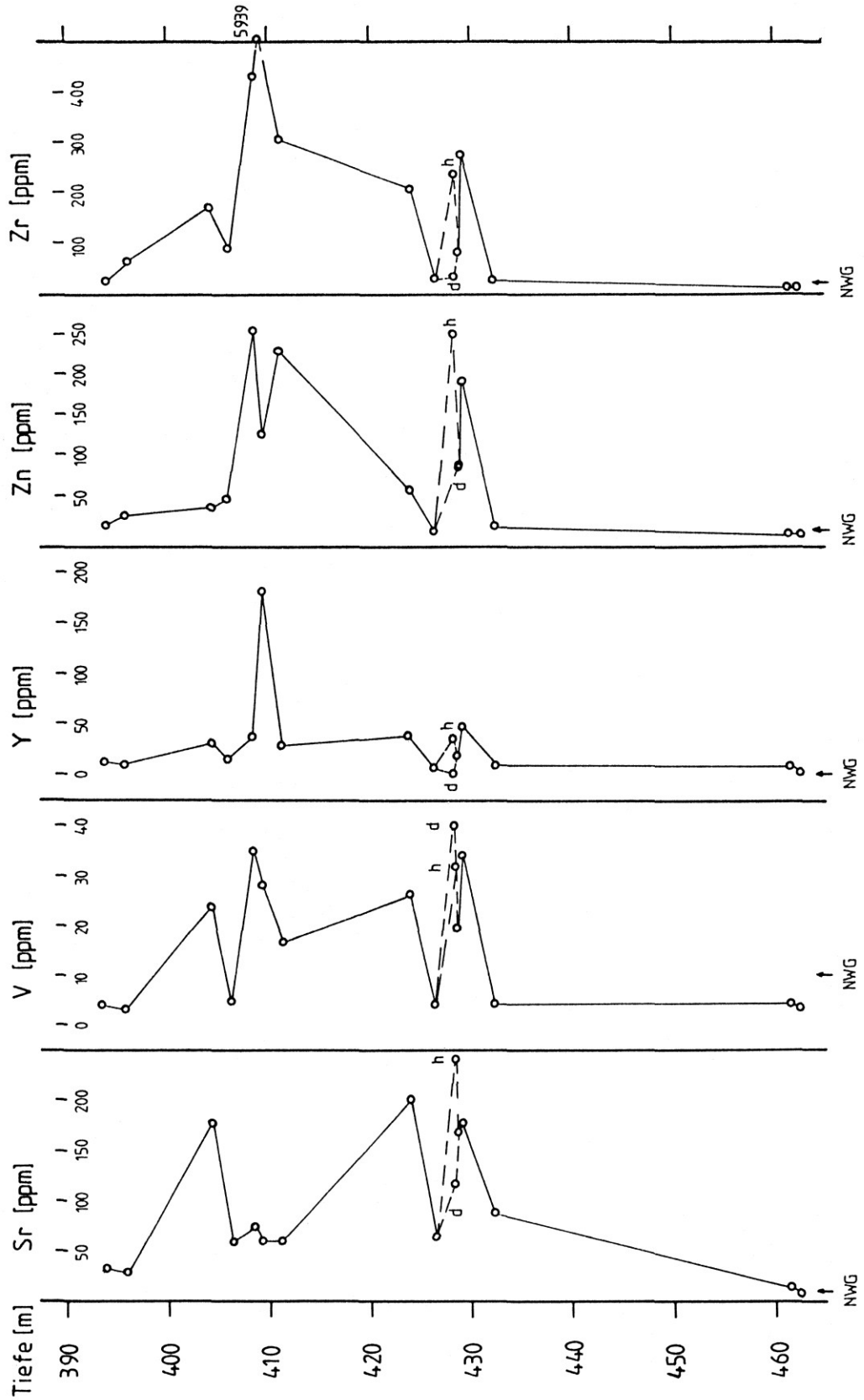
Abb. 29: Entsprechend der RFA-Analyse erhaltene Oxid- und Elementgehalte des Gesteins der Bohrung HJ-2 gegen die Tiefe aufgetragen.



Fortsetzung Abb. 29: Entsprechend der RFA-Analyse erhaltene Oxid- und Elementgehalte des Gesteins der Bohrung HJ-2 gegen die Tiefe aufgetragen.



Fortsetzung Abb. 29: Entsprechend der RFA-Analyse erhaltene Oxid- und Elementgehalte des Gesteins der Bohrung HJ-2 gegen die Tiefe aufgetragen.



Fortsetzung Abb. 29: Entsprechend der RFA-Analyse erhaltene Oxid- und Elementgehalte des Gesteins der Bohrung HJ-2 gegen die Tiefe aufgetragen.

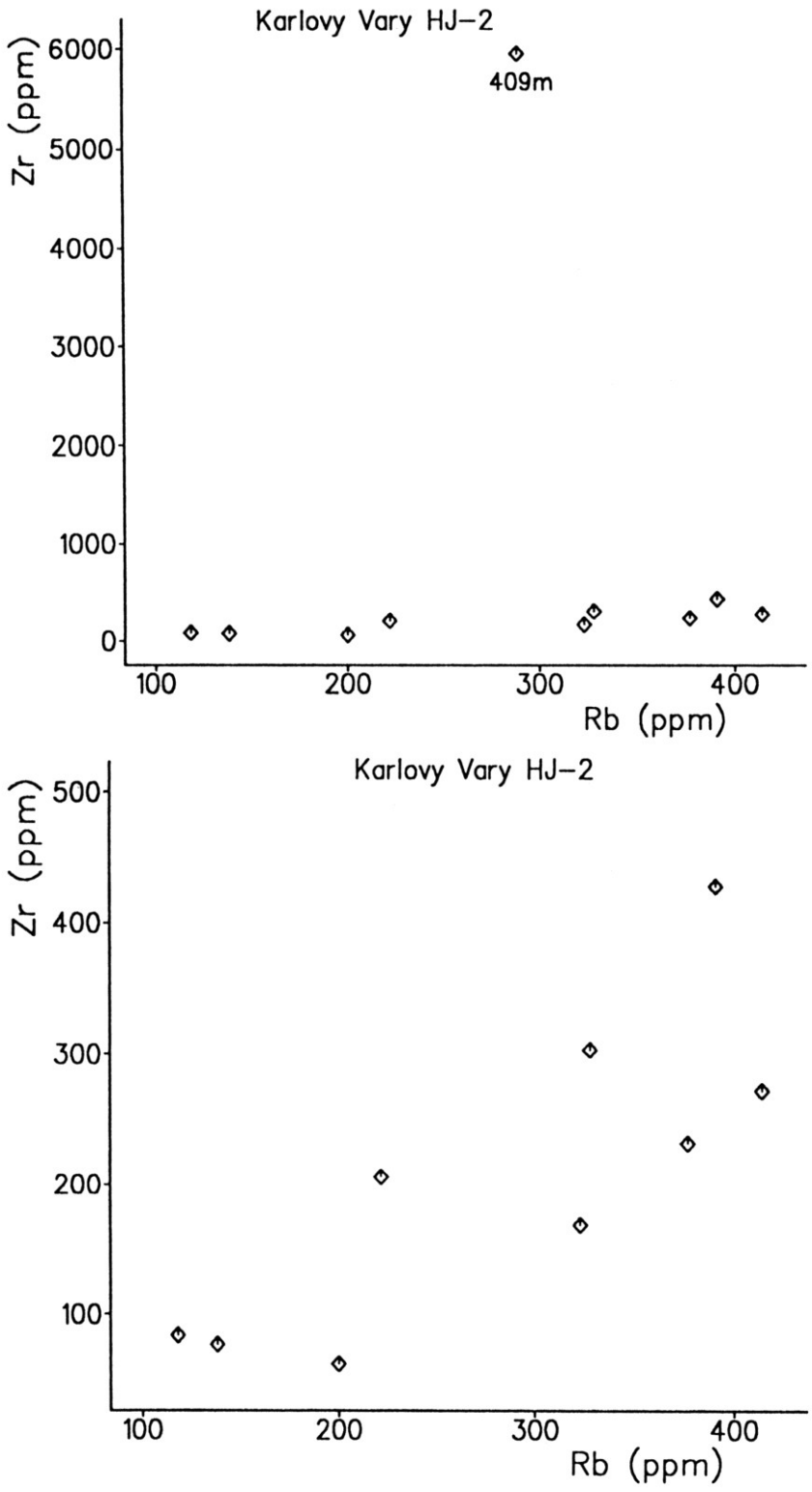


Abb. 30: Korrelation der Zr-Gehalte ausgewählter Proben des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 mit den Rb-Gehalten.

7.1.1.3 Diskussion der Ergebnisse der Dünnschliff- und der Röntgenfloureszenzanalyse unter Berücksichtigung des Grundwasserchemismus

Die oben beschriebenen Ergebnisse zeigen, dass der Granit im Bereich der Bohrung Karlovy Vary HJ-2 starken Alterationsprozessen unterlag.

Bei der Silikatverwitterung reagieren Minerale mit einer Lösung, mit der sie nicht im Equilibrium sind. Die gelösten Komponenten reagieren wiederum miteinander und mit den an den Gesteinsoberflächen ausgefällten stabilen und metastabilen Spezies.

Wenn Minerale in Lösung gehen, findet eine relative Abreicherung an Erdalkalien, Alkalien und Silizium gegenüber Aluminium statt (vgl. VOIGT, 1990). Geht man von einer gewissen Konstanz des pH-Wertes (≈ 6,2, vgl. Kap. 5.4.2.3) der heute im Bereich der Bohrung HJ-2 zirkulierenden Fluide aus, so ist schon über einen längeren Zeitraum im Gestein aus Karlovy Vary eine bessere Löslichkeit für Silizium vorhanden als für Aluminium. Statt Aluminium geht Eisen in Lösung. Das hier analysierte Eisen setzt sich - was sowohl makroskopisch als auch im Dünnschliff zu sehen war - aus dem des (sekundären) Oxids und aus dem des oxidierten Sulfids (Pyrit, hydrothermale Vererzung) zusammen. Wie groß der Anteil ist, der genetisch aus hydrothermalen Eisenerzen herzuleiten ist, kann nicht bestimmt werden. Die in den Dünnschliffen beobachtbare Pseudomorphose von Pyrit nach Eisenoxid zeigt diese Entstehungsart der Eisenoxide aber deutlich auf.

Die Oxidation von Eisensulfid in einem Milieu ohne freien Sauerstoff kann z.B. durch Radiolyse beim Zerfall von Radionukliden erfolgt sein.

Die bei der Grundwasseruntersuchung beobachtete CO_2-Zufuhr (letzte Exhalationsphase des tertiären Vulkanismus; Duppauer Gebirge) begünstigt die Silikatverwitterung. Die sich bildenden Hydrogenkarbonate gewährleisten den Abtransport der Alkali- und Erdalkalielemente, da deren Löslichkeitsprodukt mit den Hydrogenkarbonationen bedeutend größer ist als das der Kieselsäure (H_4SiO_4). Da nun die Kieselsäure im Gegensatz zu den Erdalkaliionen kaum abtransportiert wird, fällt sie unter entsprechenden hydrogeochemischen Bedingungen wieder aus der Lösung aus, was u.a. die hohen SiO_2-Gehalte erklärt:

Die gelöste monomere Kieselsäure oder ihre anionische Spezies $[H_3SiO_4]^-$ können polymerisieren und auf Oberflächen von stabilen Oxiden (z.B. Al_2O_3 o. Fe_2O_3) oder anderen Feststoffen sorbiert werden. Eine Desorption könnte nur bei entsprechend niedrigem pH-Wert stattfinden, da es sich hier um eine spezifische Sorption handelt, d.h. dass teilweise kovalente Bindungen mit Gitterkationen gebildet werden (vgl. YARIV & CROSS, 1979). Dies ist vermutlich die Ursache für die vielen kryptokristallinen Quarzkristalle, die besonders in den Schliffen aus dem unteren Teil des untersuchten Bohrkernbereichs zu sehen waren, sowie für die drusenartigen Aufwachsungen von Quarzkriställchen auf primärem Quarz und auf Eisenoxiden.

Weiterhin bedingt die Reaktion

$$OH^- + CO_2 \leftrightarrow HCO_3^-$$

die Neutralisierung der Lösung durch die Bindung der im Protolyseprozeß entstehenden freien Hydroxylionen.

Auch die in Kap. 7.1.3 dsikutierten hohen ^{18}O-Werte, welche infolge eines Fraktionierungsprozesses bei der Hydrolyse zustande kommen, können dadurch erklärt werden.

Es ist zu vermuten, dass diese Prozesse schon seit Beginn der CO_2-Exhalation in der Endphase des tertiären Vulkanismus, der u.a. das Duppauer Gebirge bildete, ablaufen. Dies erklärt auch den stark alterierten Zustand der Granite.

Die drei tiefstgelegenen Proben aus den Bereichen ab 432,4 m bestehen also fast nur aus sekundären Quarzen und Eisenoxiden, die durch die oben beschriebenen Prozesse in situ oder - vermutlich in geringerem Maße - aus "importierten" Stoffen gebildet wurden, während die Erdalkalien, Alkalien und schließlich auch das Aluminium durch Fluide abtransportiert wurden.

Die tiefenabhängig unterschiedliche Alterierung des Gesteins ist möglicherweise durch die unterschiedliche Nähe zur CO_2-Quelle zu erklären. Die weggeführten Erdalkalien sind entsprechend in den Fluiden in erhöhter Konzentration vorhanden.

Es ist zu vermuten, dass im Bereich der Sprudelquelle in Karlovy Vary die

entsprechenden Prozesse in größerer Tiefe und mit höheren CO_2-Konzentrationen ablaufen, was sowohl die dort gegebene höhere Temperatur, als auch den höheren Mineralisationsgrad des Fluids erklärt.

Im Vergleich mit durchschnittlichen Elementgehalten des Eibenstockgranites ist eine starke Anreicherung von SiO_2 und von bestimmten Spurenelementen zu vermerken. Nach WERNER & BRÄUER (1970) liegen die durchschnittlichen SiO_2-Gehalte des Eibenstockgranites bei ca. 40 Gew.-%. Die Proben aus Karlovy Vary HJ-2 sind demgegenüber durchschnittlich um mehr als 100% angereichert. Die Al_2O_3-Gehalte liegen normalerweise bei 20 Gew.-% und sind damit in Karlovy Vary um 4 bis 19% abgereichert. Der im Schnitt bei 3-4 Gew.-% liegende Fe_2O_3-Gehalt ist abgesehen von der dunklen Probe aus 428 m, wo er stark erhöht ist, ebenfalls leicht erniedrigt. Weiterhin wurden von den obigen Autoren in den Proben aus Karlovy Vary nicht nachweisbare FeO-Gehalte von ca. 15% beschrieben. Auch der K_2O-Gehalt ist von einem dort festgehaltenen Durchschnittswert von ca. 10 Gew.-% um ca. 2-9 Gew.-% erniedrigt.

Eine Anreicherung gegenüber den Clarke-Werten für den Eibenstockgranit ist dagegen bei den meisten Proben für die Elemente Ba, Cr, Ni, Sr, V und Y gegeben. Lediglich in den beiden tiefsten Entnahmebereichen (ca. 460 m) sind auch diese zum größten Teil nicht mehr nachweisbar.

Dieser Vergleich bestätigt die schon oben getroffene Feststellung, dass die Alkalien und Erdalkalien zum größten Teil über Fluide aus dem Gestein weggeführt wurden. Er zeigt aber durch die erhöhten Spurenelementgehalte auch auf, dass der untersuchte Bohrkern aus einer Vererzungszone innerhalb des Granitmassivs stammt.

7.1.2 Bestimmung der ^{226}Ra- ^{228}Ra- und ^{230}Th-Aktivitäten an Gesteinsproben der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Der Aktivitätsbereich des Radium-Isotopes ^{226}Ra in den Gesteinsproben reicht von ca. 40 bis ca. 2650 Bq/kg (Tab. 30). Die hohen Aktivitäten sind eindeutig an das Auftreten von Zirkonen gebunden, was man an den Aktivitäten des Tiefenbereichs um 409 m erkennen kann, in dem auch mikroskopisch und mittels RFA Zirkone bestimmt wurden (Abb. 31).

Der Aktivitätsbereich des ^{228}Ra ist mit einem Maximalwert von ca. 103 Bq/kg bedeutend niedriger als der des ^{226}Ra.

^{228}Ra scheint demnach homogener im Gestein verteilt zu sein als ^{226}Ra. Das Tochterisotop von ^{228}Ra, ^{228}Th, ist in allen Proben mehr oder weniger im Gleichgewicht mit seinem Mutterisotop.

Wenn man von den zirkonreichen Zonen (408,8 m, 409,3 m, 411,4 m und 426,4 m) absieht, so kann man einen tendenziellen Anstieg der Aktivitäten beider untersuchten Ra-Isotope mit einem Anstieg der Spurenelemente Rb, Sr und - mit Einschränkung, da nur bei ^{228}Ra - Ba erkennen (Abb. 32 bis 34).

Dies liegt darin begründet, dass Ra sich geochemisch deutlich ähnlich wie Rb, Sr und Ba verhält.

Die $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse der untersuchten Gesteinsproben liegen zwischen ca. 1 und ca. 28. Die Maxima decken sich mit den Maxima der ^{226}Ra-Aktivitäten in den Bereichen 408 bis 411 und 426 m (Abb. 31).

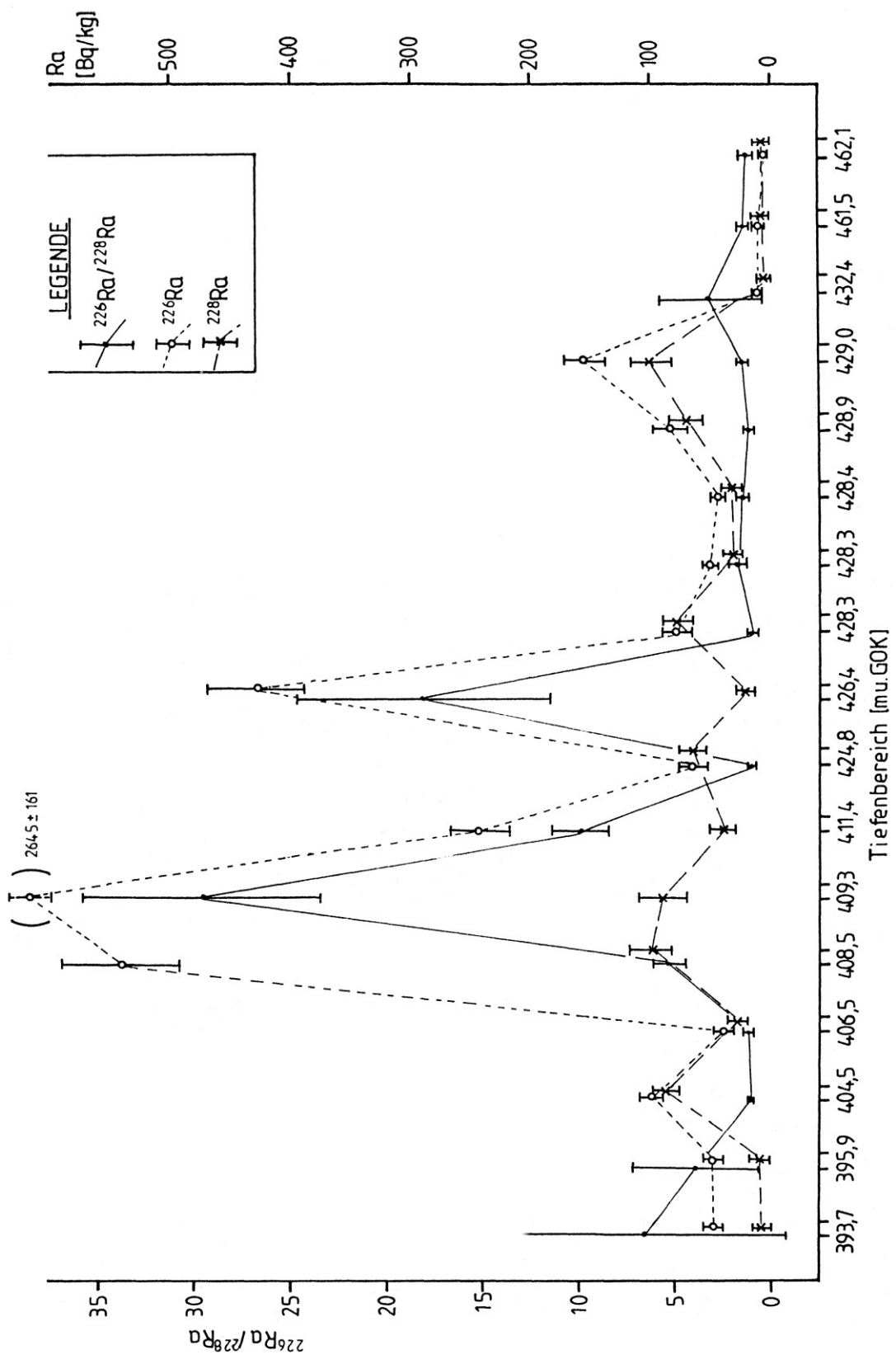


Abb. 31: Variation der Radium-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 mit der Tiefe.

7.1.3 Bestimmung der $\delta^{18}O$-Werte an Gesteinsproben der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Die Messung von $\delta^{18}O$ am Gesamtgestein ergab mit ca. 11 bis ca. 20‰ relativ hohe Werte für alle Proben der Bohrung Karlovy Vary HJ-2 (Tab. 31). Besonders die Werte der Proben aus dem unteren Teil des untersuchten Bereichs sind als sehr hoch zu bezeichnen. Sie liegen über dem $\delta^{18}O$-Wert von 15‰ für reinen primären Quarz und deuten darauf hin, dass das entsprechende Gestein i.W. aus sekundären Quarzen besteht, welche $\delta\ ^{18}O$-Werte bis zu 35‰ haben können.

Granitische Gesteine liegen zwischen etwa 7 und 12 $\delta^{18}O$-‰. Eine Isotopenfraktionierung, welche die Quarze weiter in den positiven Bereich verschiebt, findet bei der Hydratation der Ionen statt. Die Tendenz von Silikatmineralen ^{18}O anzureichern liegt in ihrer chemischen Zusammensetzung begründet. Wo Si-O-Si-Verbindungen dominieren, sind die höchsten ^{18}O-Werte zu finden (vgl. z.B. FAURE, 1986).

Korrelationen von Oxidgehalten mit ^{18}O-Werten zeigen einen deutlichen Zusammenhang z.B. zwischen dem SiO_2-Gehalt des Gesteins und seinem $\delta^{18}O$-Wert. Mit steigendem SiO_2-Gehalt steigt der $\delta^{18}O$-Wert (Abb. 35). Dies bestätigt das oben beschriebene Faktum, dass die ^{18}O-Gehalte mit steigendem SiO_2-Gehalt positiver werden.

Eine negative Korrelation ist zwischen den ^{18}O-Werten und den Al_2O_3- und K_2O-Gehalten gegeben (Abb. 36).

Die übrigen Oxide sind nicht deutlich mit den ^{18}O-Werten korrelierbar.

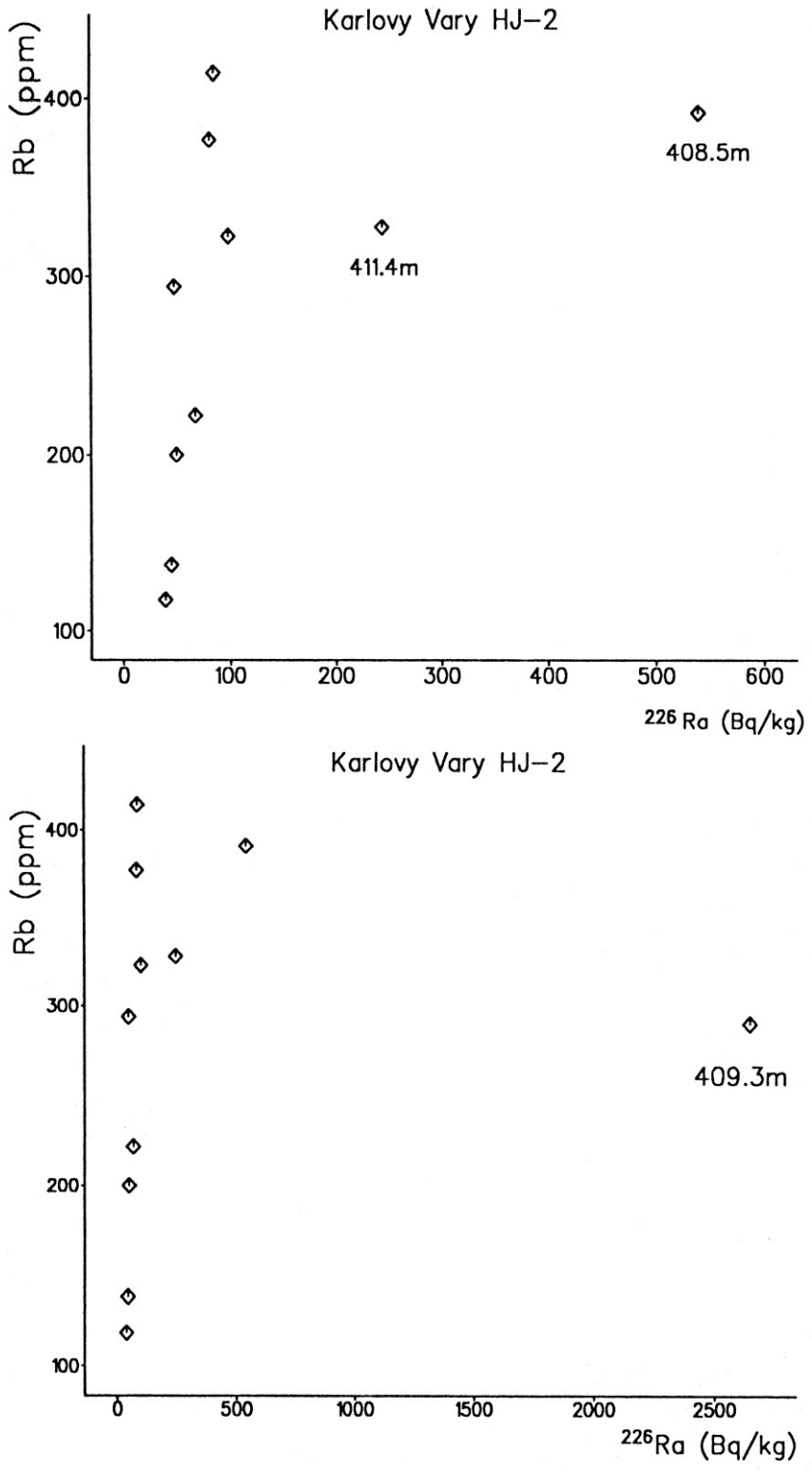


Abb. 32: Korrelation der Rb-Gehalte mit den Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 für 2 verschiedene Konzentrationsbereiche.

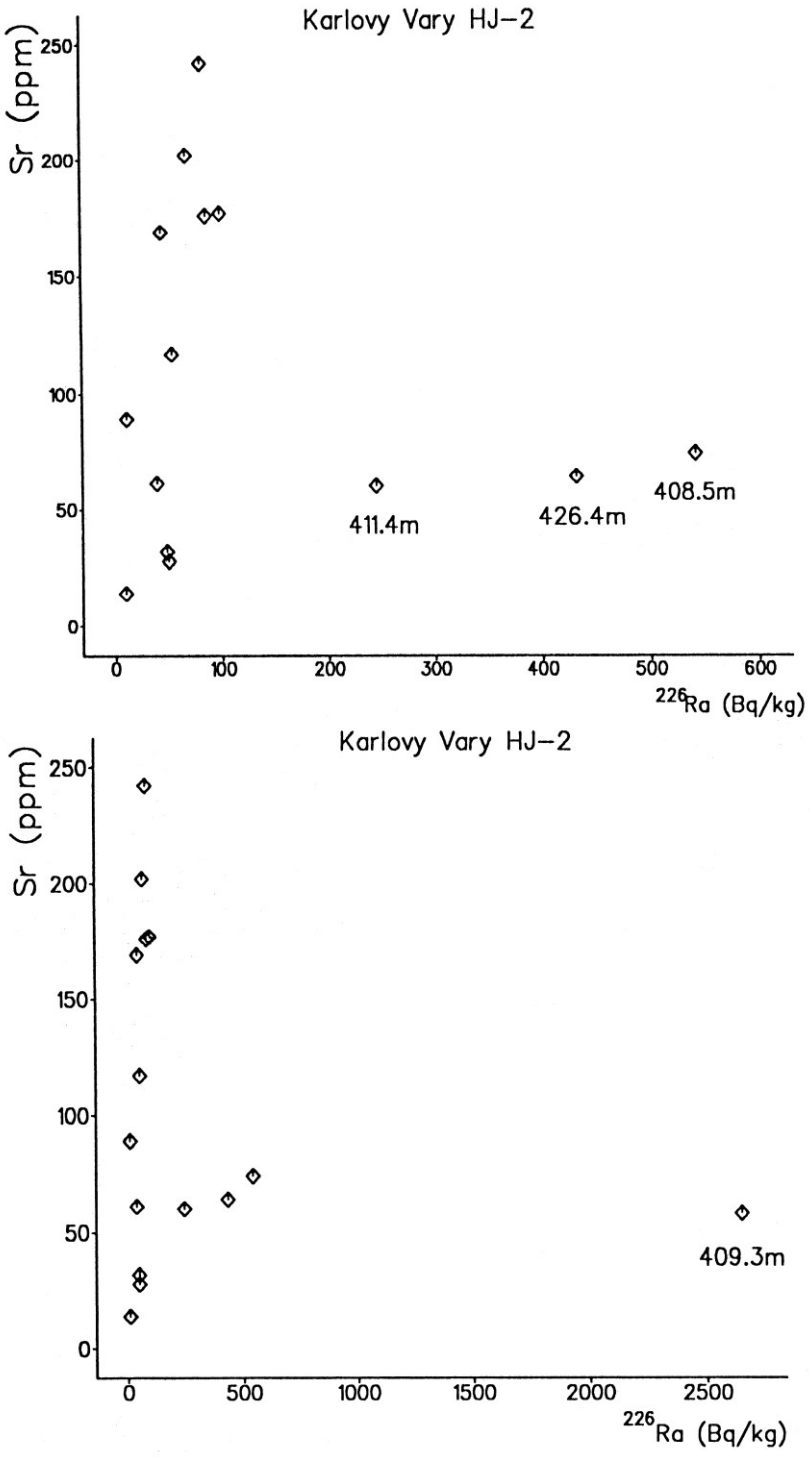


Abb. 33: Korrelation der Sr-Gehalte mit den Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 für 2 verschiedene Konzentrationsbereiche.

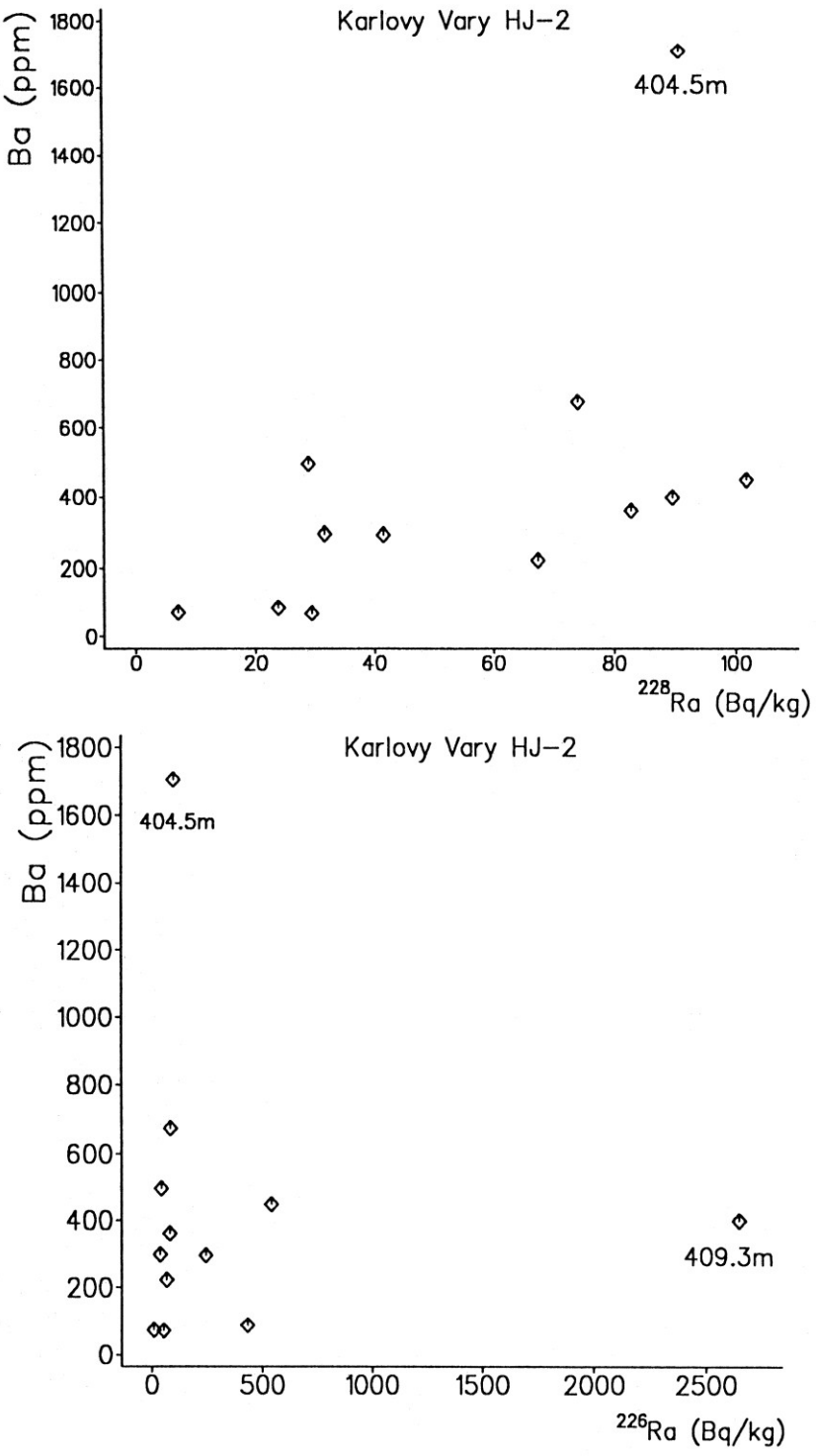


Abb. 34: Korrelation der Ba-Gehalte mit den Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2 für 2 verschiedene Konzentrationsbereiche.

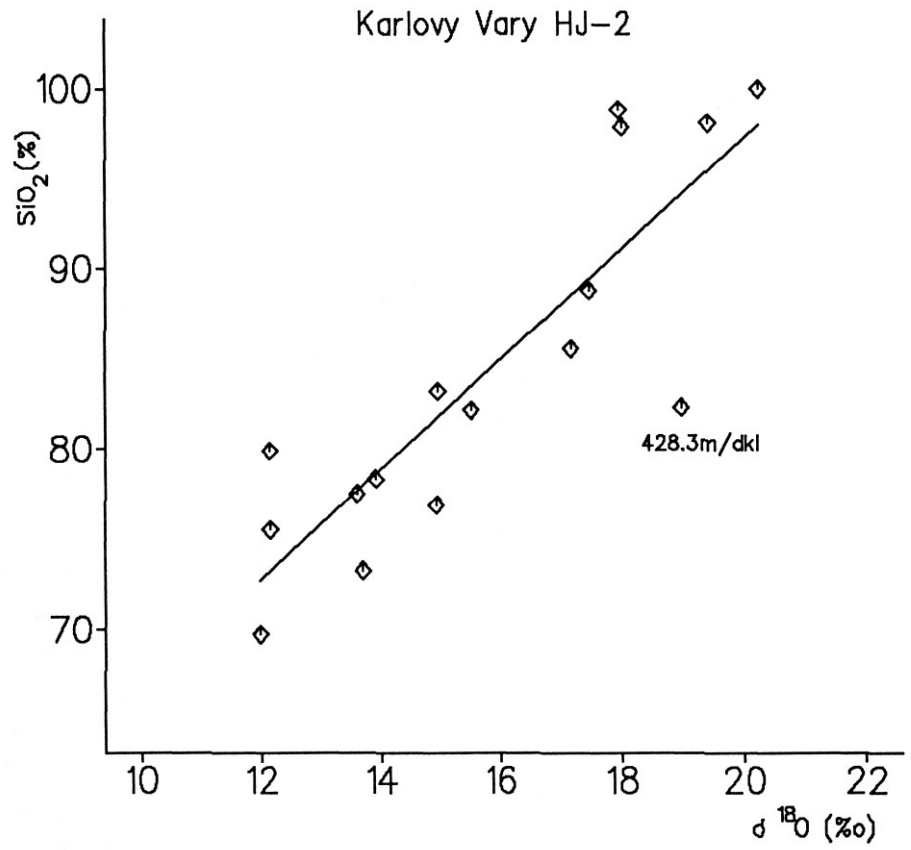


Abb. 35: Korrelation der $\delta^{18}O$-Werte mit den SiO_2-Gehalten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2.

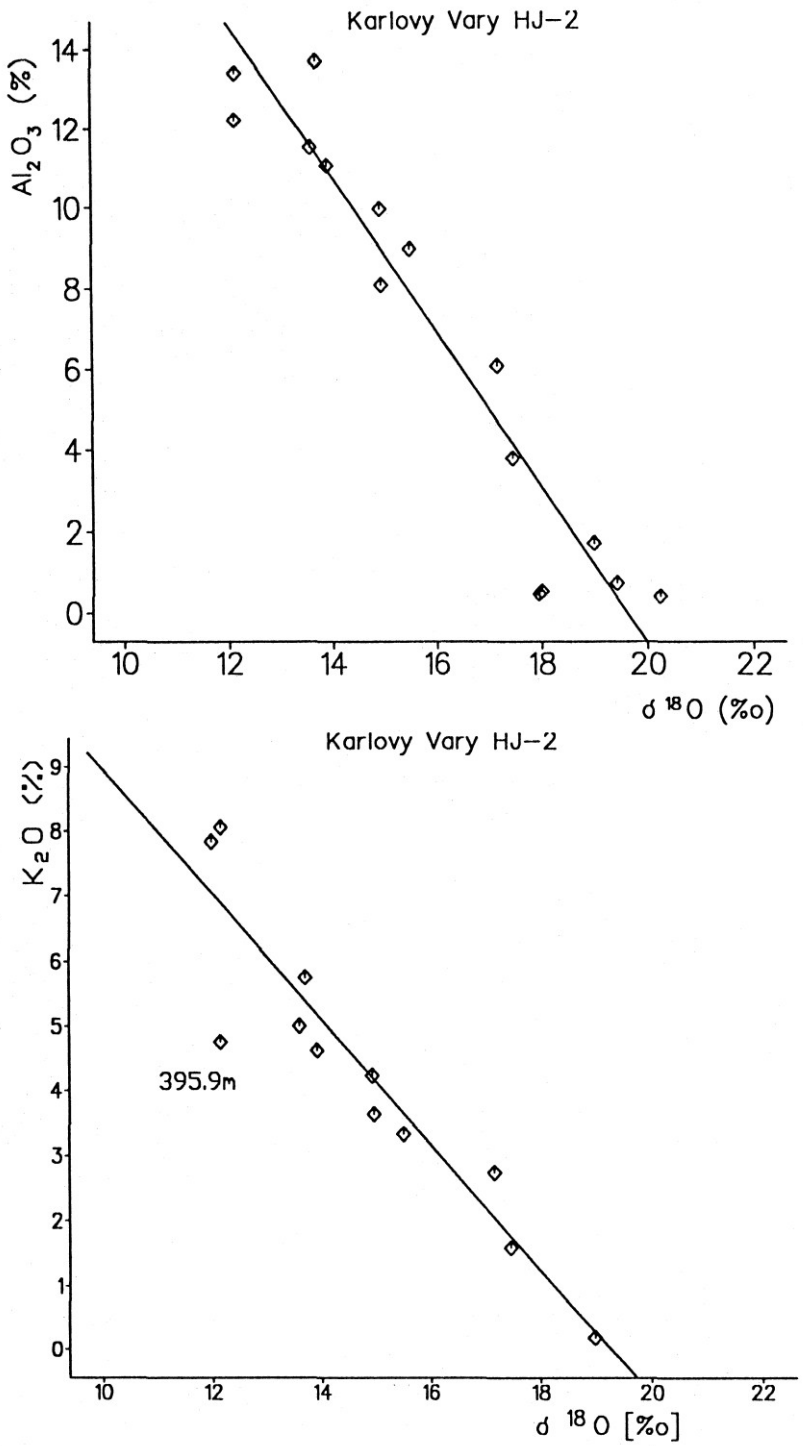


Abb. 36: Korrelation der $\delta^{18}O$-Werte mit den Al_2O_3- und K_2O-Gehalten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2.

7.1.4 Vergleichende Interpretation der geochemischen, isotopen-geochemischen und radiometrischen Ergebnisse

Trägt man die ^{226}Ra-Aktivität gegen die ^{18}O-Werte auf, so ist keine Korrelation ersichtlich. Bei ^{228}Ra ist dagegen eine relativ gute negative Korrelation gegeben. Lediglich die Werte der Gesteinsproben aus den Entnahmestellen 393,7 und 395,9 m liegen außerhalb des Korrelationsbereiches. Diese beiden Proben sind sowohl relativ an ^{228}Ra als auch an δ^{18}O abgereichert (Abb. 37). De facto ist in diesem Bereich jedoch noch eine größere Bandbreite an Bestandteilen des ursprünglichen Granits vorhanden (vor allem Feldspäte) die diesen scheinbaren "Verdünnungseffekt" für das Radium verursacht.

Durch die stärkere Alteration und das damit verbundene Verschwinden der Feldspäte ist in den Proben unterhalb 395,9 m eine relative Anreicherung z.B. an Schwermineralen gegeben, die Radium enthalten.

Für diese Proben gilt, dass steigende ^{18}O-Werte bei fallenden ^{228}Ra-Werten auf eine Abreicherung von ^{288}Ra mit steigendem SiO_2-Gehalt schließen lassen, da die ^{18}O-Werte auch mit dem SiO_2-Gehalt ansteigen (Abb. 38).

Die ^{228}Ra-Abnahme mit steigendem SiO_2-Gehalt belegt – was zu erwarten war -, dass ^{228}Ra bzw. sein Mutterisotop ^{232}Th kaum in Verbindung mit Quarz auftritt. Umgekehrt korrelieren K_2O und Al_2O_3 positiv mit ^{228}Ra (Abb. 39). Dies kann bedeuten, dass in den Bereichen, in denen die Silikatverwitterung noch nicht so weit fortgeschritten ist, auch die ^{232}Th- und damit die ^{228}Ra-Gehalte konserviert wurden.

Die Konzentrationen der Spurenelemente Sr, Rb und Ba lassen sich relativ gut miteinander korrelieren. Zirkon dagegen scheint eher zufällig und punktuell aufzutreten.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Gesteinsproben aus Karlovy Vary HJ-2 drei unterschiedlich alterierten geochemischen Bereichen zuzuordnen sind, nämlich:

- dem Bereich oberhalb 400 m u. GOK mit starken in situ entstandenen Zersetzungserscheinungen aber geringerem Abtransport von Elementen, und
- dem Bereich unterhalb 400 m u. GOK, in dem nicht nur eine starke Alteration stattgefunden hat, sondern wo es Stoffumwandlungen und eine Abreicherung an bestimmten Elementen gegeben hat. Im Bereich um 409 m gibt es ein schon zur Zeit der

Bildung der hydrothermalen Vererzungszonen entstandenes Kluftsystem, das noch heute als Grundwasserleiter fungiert;

- dem am tiefsten gelegenen untersuchten Bereich - zwischen 432 und 462 m – der wiederum durch seine monotone Quarz/Fe-Oxid-Ausbildung charakterisiert werden kann, die mit einer Abreicherung an allen anderen gemessenen Haupt- und Spurenelementen einhergeht.

7.2 Gesteinsoberflächen

7.2.1 Bestimmung der ^{238}U-Gehalte, der ^{234}U/^{238}U- und ^{230}Th/^{234}U-Verhältnisse, sowie der ^{226}Ra- und ^{228}Ra-Aktivitäten und der ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnisse an ausgewählten Gesteinsproben aus der Bohrung Karlovy Vary HJ-2

Eine Ergänzung der radiolometrischen Untersuchungen an Grundwasserproben der Bohrung Karlovy HJ-2 stellte die Bestimmung des ^{238}U-Gehaltes und der ^{234}U/^{238}U- und ^{230}Th/^{234}U-Verhältnisse am Leaching-Fluid von vier Gesteinsproben dar. Gleichzeitig wurden an diesem Leaching-Fluid auch die Aktivitäten von ^{226}Ra, ^{228}Ra und das ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis bestimmt. Die unten beschriebene Präparationsmethode sollte die Lösung des leicht gebundenen Urans aus den Gesteinsproben bewirken, um die langsamer stattfindenden Lösungsprozesse der natürlichen Fluide zu simulieren.

7.2.1.1 Präparation und Leaching

Aus den Tiefenbereichen 395,9 bis 396,0 m, 404,5 bis 404,6 m, 409,3 bis 409,5 m und 461,5 bis 461,6 m wurden Gesteinsproben entnommen und auf einen Korndurchmesser von unter 2 mm zerkleinert. So präpariert wurden sie jeweils in 70 ml 0,1n HCl ca. 4h lang gerührt. Danach wurden sie zentrifugiert und die überstehende Flüssigkeit in PE-Behältern zur Messung gegeben. Die Bestimmung der ^{234}U/^{238}U- und ^{230}Th/^{234}U-Verhältnisse wurde dankenswerterweise von Herrn Prof. H.R. von Gunten am Paul Scherrer Institut in Würenlingen (CH) durchgeführt.

Das Leaching Fluid zur Radium-Aktivitätsbestimmung wurde mit $BaCl_2$ und H_2SO_4 versetzt und als $Ba(Ra)SO_4$ ausgefällt. Dieses wurde mittels γ-Spektrometrie gemessen.

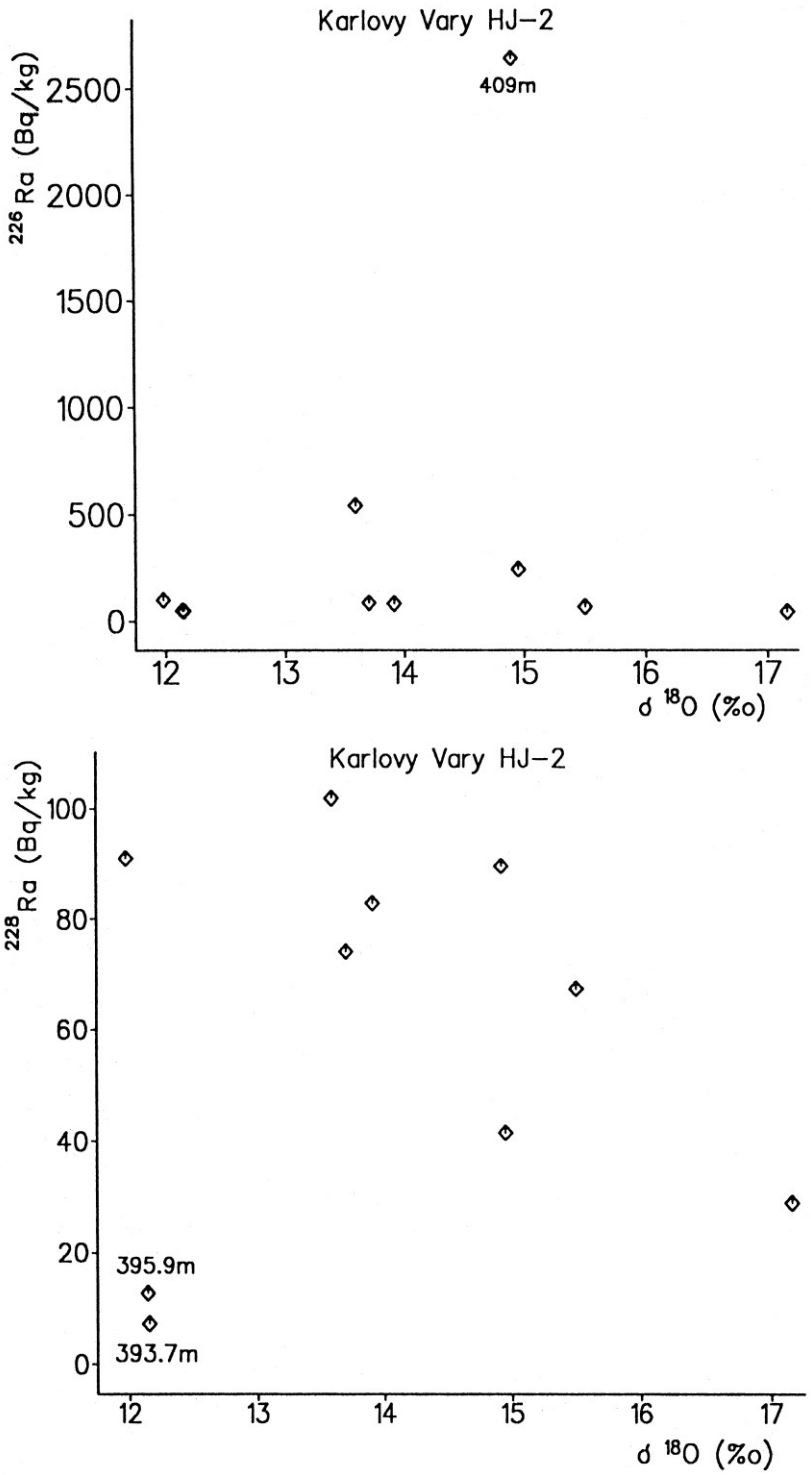


Abb. 37: Korrelation der $\delta^{18}O$-Werte mit den Radium-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2.

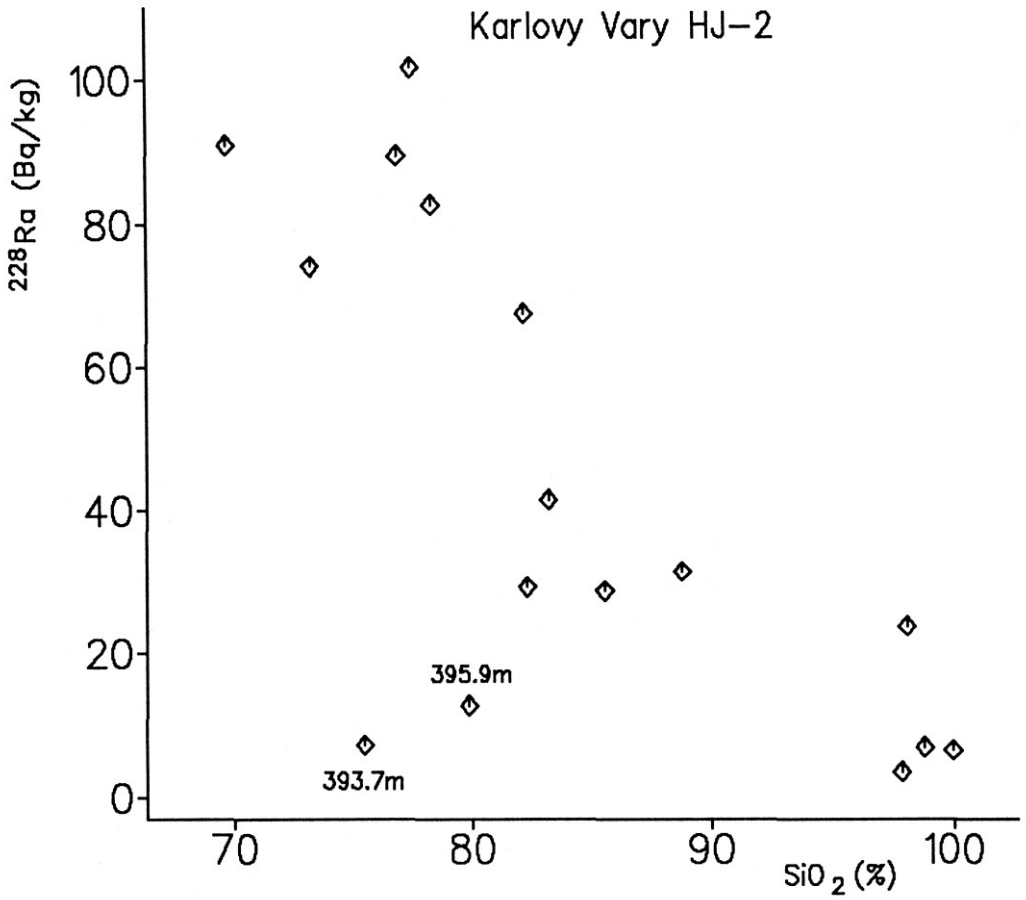


Abb. 38: Korrelation der SiO_2-Gehalte mit den ^{228}Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2.

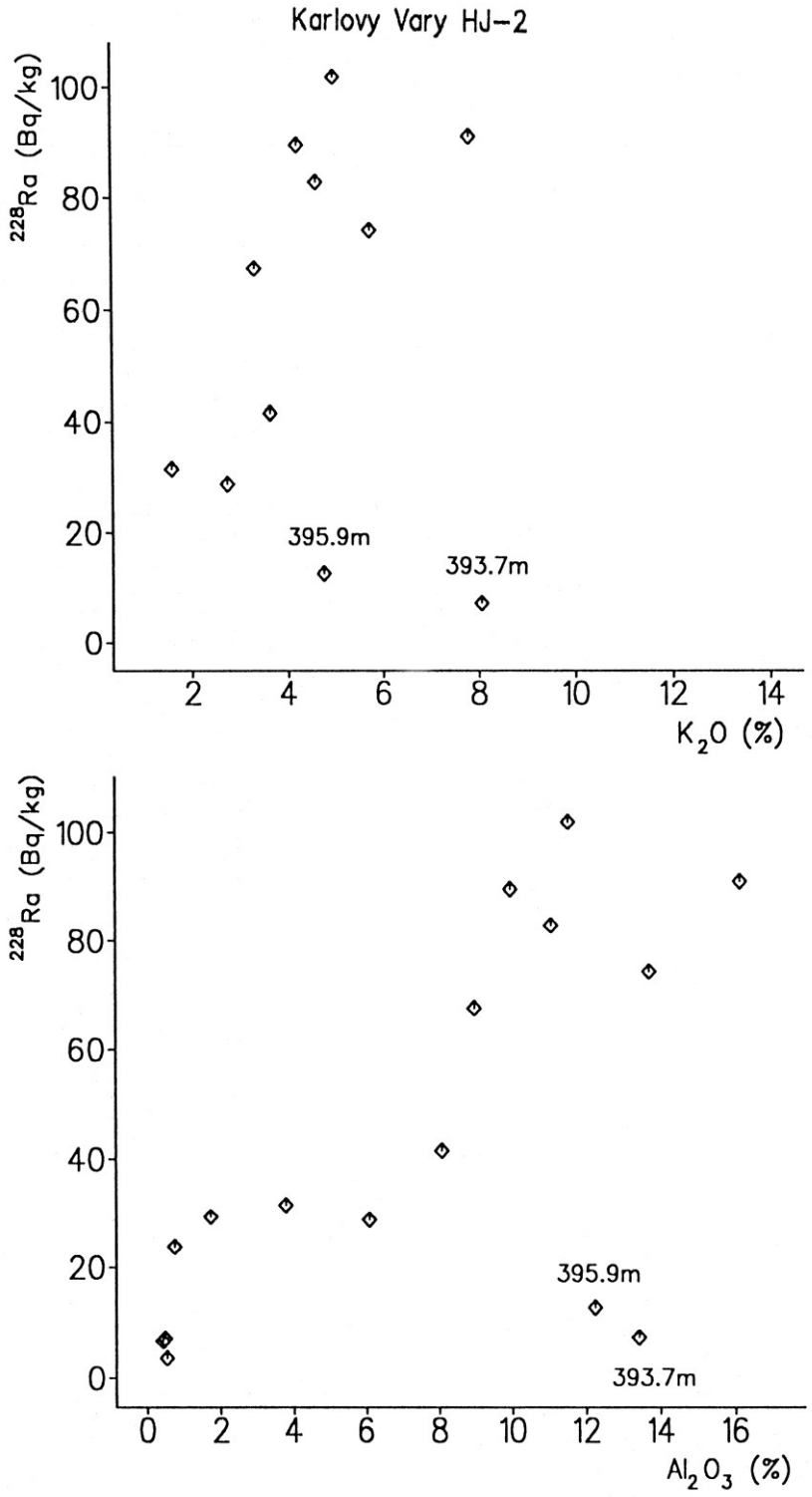


Abb. 39: Korrelation der K_2O- und der Al_2O_3-Gehalte mit den ^{228}Ra-Aktivitäten des Bohrkerns Karlovy Vary HJ-2.

7.2.1.2 Diskussion und Interpretation der Ergebnisse

Die **^{238}U-Gehalte**, die durch dieses Leaching-Verfahren pro Gramm Gesteinsprobe in Lösung gingen, liegen zwischen 0,1±0,015 µg/g im Tiefenbereich 461 m und 5,55±0,25 µg/g im Tiefenbereich 409,3 m (Tab. 32a).

Sie lassen sich gut mit den Radium-Aktivitäten der entsprechenden Tiefenbereiche korrelieren. Die höchsten Urangehalte wurden im Tiefenbereich 409,3 m gelöst, wo auch der höchste Zirkongehalt und die höchsten Radium-Aktivitäten gemessen wurden.

Auffallend ist auch die starke Abreicherung an Uran bei der Probe aus 461 m Tiefe.

Es gibt zwar in der Literatur keine Beispiele von Leaching-Tests an dem untersuchten Gestein, jedoch sind sehr viele Messungen des Gesamturangehaltes in benachbarten Regionen (vgl. z.B. JUST, 1985) durchgeführt worden. Diese belegen, dass die Urangehalte des Granitmassivs, zu dem auch der Karlsbader Pluton gehört, etwas weiter nördlich im Erzgebirge zwischen 1 und 16 ppm betragen. Die Spannbreite ist also -ebenso wie in den vorliegenden Messungen- relativ groß. Der Clarke-Wert für den Urangehalt des Eibenstockgranits wird von WERNER & BRÄUER (1970) mit 6,4 ppm angegeben. Der Zirkon ist, wie die Dünnschliff- und die RFA-Analysen gezeigt haben, der wesentliche Uranträger.

Das **^{234}U/^{238}U-Verhältnis** liegt für Gesteinsproben aus einem mehr oder weniger geschlossenen System normalerweise bei 1. Ist dieses Verhältnis, wie im vorliegenden Fall in den Teufenbereichen 395,9 bis 396,0 m, 404,5 bis 404,6 m und 461,5 bis 461,6 m, wo es ca. 1,4 beträgt, leicht erhöht, so liegt das u.a. daran, dass die Zerfallsprodukte von ^{238}U leichter löslich sind als das Mutterisotop selbst. Die Ursache dafür ist zum einen darin zu suchen, dass sie nicht primär in ein Kristallgitter eingebaut wurden, wie das ^{238}U, zum andern im α-Zerfall des ^{238}U und dem damit verbundenen Rückstoß (vgl. z.B. FLEISCHER, 1982). Auch nach CHERDYNTSEV (1970) ist die Ursache im sogenannten Szilard-Chalmers-Effekt zu suchen, d.h. in der schwächeren Bindung von ^{234}U.

Erhöhte ^{234}U/^{238}U-Verhältnisse der gleichen Größenordnung wie bei den obengenannten Karlsbader Proben wurden z.B. von KRAEMER & KHARAKA (1986) in salinaren Geothermalwässern gemessen, in einem Milieu, das dem der Grundwässer

Karlovy Varys vergleichbar ist.

Cherdyntsev (1970) nahm an Zirkonen Leaching-Tests vor, und stellte fest, dass mit fortschreitender Zeit eine Erhöhung des ursprünglich bei 1 liegenden $^{234}U/^{238}U$-Aktivitäts-Verhältnisses bis auf 1,8 stattfand.

SHENG & KURODA (1986a, 1986b) führten Leaching-Tests an einem Carnotit durch, wobei sie für das Leaching-Fluid in Abhängigkeit von der verwendeten Säure auf $^{234}U/^{238}U$-Aktivitäts-Verhältnisse bis zu fast 300 kamen.

Das $^{234}U/^{238}U$-Aktivitäts-Verhältnis der Gesamtprobe lag aber tatsächlich bei 1.

Das mit ca.11,9 stark erhöhte $^{234}U/^{238}U$-Verhältnis im Leaching Fluid der Gesteinsprobe aus 409,3 bis 409,5 m der Bohrung Karlovy Vary HJ-2 ist ebenfalls mit den hier beschriebenen Effekten zu erklären (Tab. 32a).

Die Ursache für eine so hohe Anreicherung liegt auch im insgesamt höheren Urangehalt der Probe. Dadurch ist mehr ^{234}U für ein Leaching verfügbar, das aufgrund von α-Recoil besser verfügbar ist als ^{238}U.

Die $^{230}Th/^{234}U$-Verhältnisse dieser Leaching-Proben sind mehr oder weniger invers zu den $^{234}U/^{238}U$-Verhältnissen. Sie liegen bei allen Entnahmestellen unter 1. Dies ist dadurch zu erklären, dass Thorium unter den gegebenen Leaching-Bedingungen noch nicht in einem so hohen Grad löslich ist wie Uran.

Das $^{230}Th/^{234}U$-Verhältnis der Probe aus 409,3 m Tiefe war hier am niedrigsten. Dies liegt an der schon oben beschriebenen im Verhältnis viel besseren Löslichkeit von ^{234}U.

Die Radium-Aktivitäten und -Isotopenverhältnisse des Leaching Fluids der entsprechenden Proben zeigen für die einzelnen Tiefenbereiche eine zu den Urangehalten und -verhältnissen parallele Entwicklung. Die $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse entsprechen innerhalb der Messgenauigkeit denen der Gesteinsproben (Tab.32b).

7.2.2 Leaching-tests an Gesteinsproben aus Sibyllenbad

An den Gesteinsoberflächen von Bohrkernproben der Brunnen Sibyllenbad A und E wurden Leaching Tests durchgeführt. Die Oberflächen wurden mit konzentrierter HCl behandelt, welche anschließend auf die Isotope ^{226}Ra und ^{228}Ra untersucht wurde.

Die in Tab.33 aufgeführten Ergebnisse dieses Leaching Tests sind unter dem Vorbehalt zu beurteilen, dass die Fe-Hydroxide und mit ihnen das Radium möglicherweise nicht vollständig von den Gesteinsoberflächen gelöst wurden. Für die Bestimmung, inwieweit das Radium auf den Gesteinsoberflächen aus dem rezent vorbeifließenden Grundwasser stammt, sind jedoch nur die $^{226}Ra/^{228}Ra$-Verhältnisse von Interesse.

Das Grundwasser der Bohrung E hat sehr ähnliche Ra-Isotopenverhältnisse wie alle Leaching-Flüssigkeiten aus dem Bohrkern derselben Bohrung. Dies läßt darauf schließen, dass das Radium auf den Kluftoberflächen von einem Grundwasser stammt, das immer dieselbe Ra-isotopische Zusammensetzung hat, und das diesen gesamten Teufenbereich speist.

Bei Bohrung E liegen durchgehend höhere Isotopenverhältnissse für die Leaching-Flüssigkeit als für das Grundwasser vor. Entweder handelt es sich hier überwiegend um ältere Ablagerungen, in denen das ^{228}Ra schon durch Zerfall abgereichert wurde, oder das gemessene Grundwasser durchfließt andere als die beprobten Gesteinsbereiche.

Die Absolutwerte von den Gesteinsproben sind weniger interessant als die Radium-Isotopenverhältnisse. Es ist schwierig, die absolute Ra-Aktivität festzustellen, da die Oberflächenbeläge schlecht vom Gestein zu trennen waren und eine genaue Einwaage deshalb nicht möglich war. Außerdem gab es mittels der hier angewandten HCl-Leaching-Methode keine quantitative Lösung des Radiums aus dem Gestein.

7.3 Radiumgehaltsbestimmungen an verschiedenen Gesamtgesteinsproben

An Gesamtgesteinsproben aus verschiedenen Untersuchungsgebieten wurden die ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th-Aktivitäten bestimmt. Die einzelnen Ergebnisse sind Tab. 34 zu entnehmen.

Die verschiedenen Gesteinsarten zeigen mit ca. 5 bis ca. 150 Bq/kg sehr unterschiedliche ^{226}Ra-Aktivitäten. Der Kreidesandstein aus Neubrandenburg stellt eine Besonderheit dar. Er hat nicht nur mit die niedrigsten gemessenen Aktivitäten aufzuweisen, sondern mit ca. 5 Bq/kg auch etwa die gleiche ^{226}Ra-Aktivität wie das Fluid, von dem er durchflossen wird (vgl. Tab. 9).

Ähnlich niedrige Aktivitäten zeigte der relativ junge Ca-Stalagmit.

Die Gesteinsprobe aus dem Südschwarzwald (Albtalgranit) wies mit je ca. 150 Bq/kg für ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th die höchsten gemessenen Aktivitäten auf. Die drei Isotope befinden sich im Aktivitätsgleichgewicht.

Der Lederschiefer aus dem Uranbergbaubetrieb Drosen zeigte mit ca. 120 Bq/kg ebenfalls erhöhte Aktivitäten und mit ca. 1,9 ein deutlich erhöhtes ^{226}Ra/^{228}Ra-Verhältnis.

Alle anderen Gesteinsproben lagen mit ca. 20 bis 60 Bq/kg für die einzelnen Isotope in einem mittleren Aktivitätsbereich.

8. GEOCHEMISCHE UND RADIOMETRISCHE UNTERSUCHUNGEN AN EISEN- UND MANGAN-OXIHYDROXIDEN

Um mehr über das Ausmaß der mit der Eisen- und Manganhydroxidausfällung verbundenen Ra-Fixierung zu erfahren wurden an 6 Proben aus solchen Eisen- und Manganhydroxidbildungen folgende Untersuchungen durchgeführt:

- Bestimmung der Radionuklide ^{226}Ra, ^{228}Ra und ^{228}Th der unbehandelten "Rohproben" (an 6 Proben) (Tab. 35);
- Bestimmung der Radionuklide ^{226}Ra, ^{228}Ra und ^{228}Th nach sequenzieller Extraktion der Metallionen in 4 Schritten (an 4 Proben);
- Röntgenbeugungsanalyse (an 5 Proben);
- Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen (REM) verbunden mit energiedispersiver Röntgenanalyse EDX (an 2 Proben);
- Röntgenfluoreszenzanalyse zur Bestimmung der Hauptelemente (an 2 Proben).

Bei insgesamt sechs bearbeiteten Proben handelte es sich um fünf rostrote Eisenhydroxid-dominierte Proben und eine schwarze Manganoxidhydroxidprobe. Die Manganoxidhydroxidprobe und zwei Eisenhydroxidproben stammten aus einem Stollen des Schluchseewerkes, zwei Eisenhydroxidproben aus einem alten Bergwerksstollen im Münstertal und eine Eisenhydroxidprobe aus dem Bergwerk Drosen. Ein Teil des Probenmaterials wurde zunächst getrocknet und seine Ra-Isotopenzusammensetzung gammaspektrometrisch gemessen. Wie aus Tab. 35 zu erkennen ist, sind die Ra-Gehalte der Proben sehr unterschiedlich. Dies ist zwar primär auf den erhöhten Radionuklidgehalt des Gesteins und des Grundwassers zurückzuführen, zu einem nicht unbedeutenden Teil jedoch auch auf die übrigen Inhaltsstoffe, die aus dem Grundwasser ausgefällt wurden (vgl. Kap. 2.3.5.4).

Weiterhin wurde die mineralogische Zusammensetzung mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse an zwei Proben bestimmt. Durch induzierte Neutronenaktivierungsanalyse wurden diese auch auf bestimmte Spurenelemente hin untersucht.

Von den getrockneten Hydroxiden aller 5 Proben wurden elektronenmikroskopische Aufnahmen gemacht.

Die gleichzeitige Bestimmung der Ra-Isotopenzusammensetzung von Gesteinsproben aus dem Grundwasserleiter ermöglichte es, ein Maß dafür zu erhalten, wie stark sich das Ra in den Fe-Hydroxiden gegenüber diesem anreichern kann.

8.1 Sequentielle Extraktion der Eisen- und Manganoxihydroxide

8.1.1 Präparationsverfahren

Die chemische Extraktion zur Bestimmung von Schwermetallbindungsformen in Böden nach ZEIEN & BRÜMMER (1989) schien für die vorliegende Problemstellung angemessen. Sie wurde in etwas abgewandelter Form durchgeführt.

Die nach ZEIEN & BRÜMMER, 1989, erste Extraktionsstufe -zur Extraktion mobiler Schwermetalle- wurde nicht durchgeführt, da man davon ausgehen kann, dass eine Mobilität von Radium aus Fe-Hydroxiden nur in sehr geringem, nicht nachweisbarem Maß stattfindet. Dies zeigten eigene frühere Versuche mit schwachen Säuren. Es war außerdem nicht zu erwarten, dass durch diese Extraktion noch merkliche Konzentrationen an Radium frei würden, da die mobilen Radium-Ionen mit größter Wahrscheinlichkeit schon am Entnahmeort abgeführt wurden.

Deshalb wurde hier als erster Extraktionsschritt die Extraktion leicht nachlieferbaren Radiums durchgeführt. Dieser Schritt simuliert die Lösung von Radium durch Ionenaustausch aufgrund eines Überschußangebotes an anderen Ionen im Grundwasser bzw. in einem stark mineralisierten Fluid.

Die Hydroxid-Proben wurden mit 1M Ammoniumacetat versetzt, welches mit 50%-iger Essigsäure auf den pH-Wert 6,0 eingestellt worden war. Sie wurden nach 24-stündiger Schüttelzeit 15 Minuten lang bei 2500 U/min zentrifugiert. Anschließend wurde die in der Hydroxidprobe verbliebene Restlösung mit 1M Ammoniumacetat 10 Minuten lang geschüttelt, wieder zentrifugiert und die Hydroxidproben zur Messung der Radium-Isotope gebracht.

Das in Oberflächennähe schwach elektrostatisch gebundene sowie besonders das in Calciumkarbonat gebundene Radium sollte mit diesem Verfahren gelöst werden.

Als zweite Extraktionsstufe zur Lösung von Radium aus Mn-Hydroxiden wurden

die Hydroxidproben mit 0,1M Hydroxylammoniumchlorid und 1M Ammoniumacetat versetzt. Das Gemisch aus den beiden Substanzen wurde mittels HCl auf den pH-Wert 6 eingestellt. Nach 30 Minuten Schüttelzeit, Zentrifugieren, wiederholtem Aufschlämmen mit Ammoniumacetat, Schütteln und Zentrifugieren wurde die Festprobe auf ihren Radium-Isotopengehalt untersucht.

Mittels dieses Verfahrens war eine etwas stärkere Komplexierung angestrebt, die besonders das Radium aus den Mangan-Oxiden lösen sollte. Übertragen auf die Natur könnten solche Lösungsprozesse ebenfalls wieder in stark mineralisierten Fluiden auftreten. Anthropogen könnten ähnliche Reaktionen über die Zufuhr von stark mineralisierten Sickerwässern verursacht werden.

Bei der dritten Extraktionsstufe zur Herauslösung von Radium aus organischen Substanzen wurde die Probe mit 0,025M NH_4-EDTA (pH 4,6) versetzt und 90 Minuten geschüttelt. Nach dem Zentrifugieren und Abfiltrieren wurde die Feststoffprobe mit 100%-iger Essigsäure behandelt um die Restlösung zu erhalten.

EDTA ist ein starker Komplexbildner für zwei- und höherwertige Kationen. Mit diesem Lösungsschritt wurden die Folgen der Einwirkung von natürlichen organ. Substanzen wie Huminstoffen (i.W. deren Carboxylgruppen) simuliert.

Beim vierten Extraktionsschritt zur Lösung von Radium aus schlecht kristallinen Fe-Oxidhydroxiden wurden die Proben nach 4-stündigem Schütteln in 0,2M Ammoniumoxalat wiederum zentrifugiert, filtriert und die Restlösung mit Ammoniumoxalat behandelt.

Hier wurden ein schwächerer Komplexbildner und gleichzeitig ein Reduktionsmittel -bei niedrigerem pH-Wert- eingesetzt, um z.B. Huminsäureeinflüsse bewerten zu können.

Da bei dem letzten Schritt auch das Eisen gelöst wird, war hier die höchste Lösungsrate von Radium zu erwarten.

8.1.2 Ergebnisse der sequentiellen Extraktion

Die Ergebnisse sind der Tab. 35 zu entnehmen.

Die sequentielle Extraktion erbrachte nicht die gewünschten Ergebnisse. Dies lag i.W. daran, dass die Ausbeute an Radium in den Lösungen durch die Eigenschaft des Radiums an Oberflächen adsorbiert zu werden nur sehr gering war. Wie die sich ändernden

Isotopenverhältnisse in Tab. 35 zeigen, können aus den so gewonnenen Daten keine genauen Rückschlüsse gezogen werden. Es deutet sich zwar tendenziell an, dass bei den letzten beiden Extraktionsschritten am meisten Ra in Lösung ging, jedoch können die erhöhten Radiumgehalte in der Lösung auch dadurch begründet sein, daß weniger Ra an den Gefäßoberflächen sorbiert wurde.

Dadurch kann immerhin die Aussage getroffen werden, dass in einem Milieu, wie es beim 3. und 4. Extraktionsschritt gegeben war, relativ mehr Radium in Lösung geht als in einem Milieu, wie es durch die ersten beiden Extraktionsschritte gegeben war.

Dies deutet an, dass der größte Teil des Radiums an organisches Material und an schlecht kristalline Eisenhydroxide gebunden ist. Dasselbe ist -jedoch unter den obigen Vorbehalten- auch für die mangandominierte Probe (1) zu schließen.

Insofern unterscheiden sich diese Ergebnisse von denen, die Bassot et al. (2000) bei der Untersuchung von Rückständen aus der Uranaufbereitung (Tailings) erhielten. Sie gingen davon aus, dass 70% des Radiums an kristalline Fe-Oxihydroxide gebunden seien, wobei die Hälfte in kristalliner Form fixiert sei.

8.2 Röntgenaufnahmen

Von Herrn Prof. Giovanoli (Elektronenmikroskopie Univ. Bern) wurden freundlicherweise Röntgenuntersuchungen an fünf Fe-/Mn-Oxidhydroxid-Proben durchgeführt.

Für die Röntgenaufnahmen wurden die getrockneten Proben mit Bedacrylharz auf einem Objektträger auf Scotch-Band Nr. 810 angerieben und eintrocknen lassen. Danach wurde in einer GUINIER-DE WOLFF-Kamera von NONIUS-ENRAF (Delft) Mark IV mit FeK_{α_1}-Strahlung 7 bis 10 Stunden lang belichtet.

Die Röntgenaufnahmen (Abb. 40) lassen erkennen, dass kaum kristalline Formen von Eisenhydroxiden in den Proben vorhanden sein können. Die Filmbahnen sind fast blank. Die Probe EF480m (1) erzeugt einen sehr breiten und schwachen Reflex bei 7 Å und einen etwas stärkeren und schärferen Reflex bei 2.45 Å. Da als Element im Mikroröntgenspektrum fast nur Mangan auftrat, handelt es sich um ein 7Å-Phyllomanganat mit äußerst dünnen Blättchen. Ein scharfer Reflex (mit Q bezeichnet) stammt von Quarz.

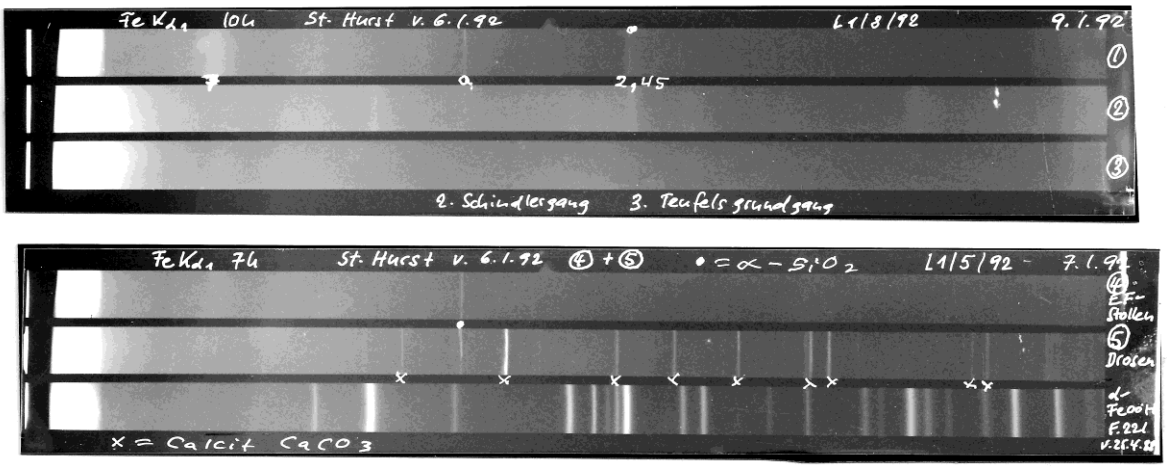


Abb. 40: Röntgenaufnahmen von 5 Fe-/Mn-Oxidhydroxid-Proben.

Der ebenfalls fast blanke Filmstreifen der Probe (2) aus dem Münstertal zeigt ein paar rudimentäre (schwache und breite) Reflexe, die als α-FeOOH identifiziert werden konnten. Die starke Schwärzung des Films unterhalb 4 theta = 30° deutet auf einen hohen Anteil an amorpher Substanz. Auf der Densitometerkurve (Abb.41) ist zu Vergleichszwecken das Beugungsdiagramm eines kristallinen α-FeOOH aufgetragen.

Die übrigen Proben zeigen entweder ein völlig blankes Diagramm oder lediglich Linien von Quarz oder Calcit.

Das unterste Diagramm wurde zu Vergleichszwecken beigefügt und zeigt ein Laborpräparat von feinteiligem α-Fe-OOH.

8.3 Elektronenmikroskopische Aufnahmen verbunden mit energiedispersiver Röntgenanalyse EDX

8.3.1 Präparation und Messung

An den beiden Proben (3/Drosen) und (4/EF) wurden zusammen mit Herrn Dr. Ehrlicher (Radiochemie Garching) rasterelektronenmikroskopische (REM o. Auflicht-EM) Aufnahmen gemacht.

Die getrockneten Proben wurden auf einen Float-Glass-Objektträger gegeben, der mit einem elektrisch leitfähigen Kleber versehen war. Anschließend wurden sie mit Gold bedampft. Die Proben wurden unter dem Mikroskop betrachtet, von charakteristischen Einzelobjekten wurde auch eine Aufnahme gemacht. An einzelnen Objekten wurde eine

energiedispersive Röntgenanalyse (EDX) durchgeführt.

Dieselben und drei weiteren Proben (EF 480m, Schindlergang, Teufelsgrundgang) wurden von Herrn Prof. Giovanoli (Elektronenmikroskopie Univ. Bern) freundlicherweise mittels Transmissionenelektronenmikroskopie (TEM o. Durchlicht-EM) untersucht. Auch diese Untersuchungen wurden durch EDX ergänzt.

Zur Präparation der Proben wurden die Suspensionen mit bidest. H_2O verdünnt und auf ein Objektträgernetz getropft, das mit einer Kohlefolie belegt war. Nach dem Eintrocknen sind diese Objektträger in einem HITACHI H-600-2 - Elektronenmikroskop betrachtet und photographiert worden. Die Beschleunigungsspannung betrug 100 kV. Durch Umschalten des Strahlengangs wurden außerdem einige Partikel daraufhin geprüft, ob es sich um kristalline Verbindungen handelt.

Ziel dieser Untersuchungen war es, die Oberflächenstrukturen der Oxidhydroxide, sowie ihren Grad der Kristallisation zu untersuchen.

8.3.2 Ergebnisse der Elektronenmikroskopie und der EDX

Abb. 42 und 43 zeigen Photographien von Fe-Oxidhydroxiden aus Drosen und aus dem Südschwarzwald, die mit dem REM gemacht wurden und die EDX-Kurven einzelner Objekte. Auffällig sind die kugel- und stengelartigen Strukturen bei den Oxidhydroxiden. Bei den selten auftretenden kristallinen Substanzen handelte es sich nicht um Fe-/Mn-Oxide, sondern um Calcit oder Babingtonit (Ca-Silikat).

Die Strukturen der Oxidhydroxide deuten auf eine mikrobielle Bildung hin. Die EDX-Analysen bestätigen, daß Fe und Mn die Hauptkomponenten der Proben darstellen. Untergeordnet treten aber immer auch Si und Ca auf.

Dieselben Ergebnisse der EDX-Aufnahmen wurden an den in Bern untersuchten Proben erzielt.

Die Röntgenaufnahmen erlauben aber bei den mit Durchlicht-EM gemachten Aufnahmen eine genauere Differenzierung als bei der Auflicht-EM. Die kugel- und stengelartigen Gebilde sind auch hier deutlich zu sehen. Zusätzlich konnte z.B. bei 5000 bis 15000-fachen Vergrößerungen bei verschiedenen Proben eine schleierähnlich Feinstruktur ausgemacht werden (Abb. 44). Diese "Schleier" haben eventuell eine größere Oberfläche als die "Stengel" und "Kugeln".

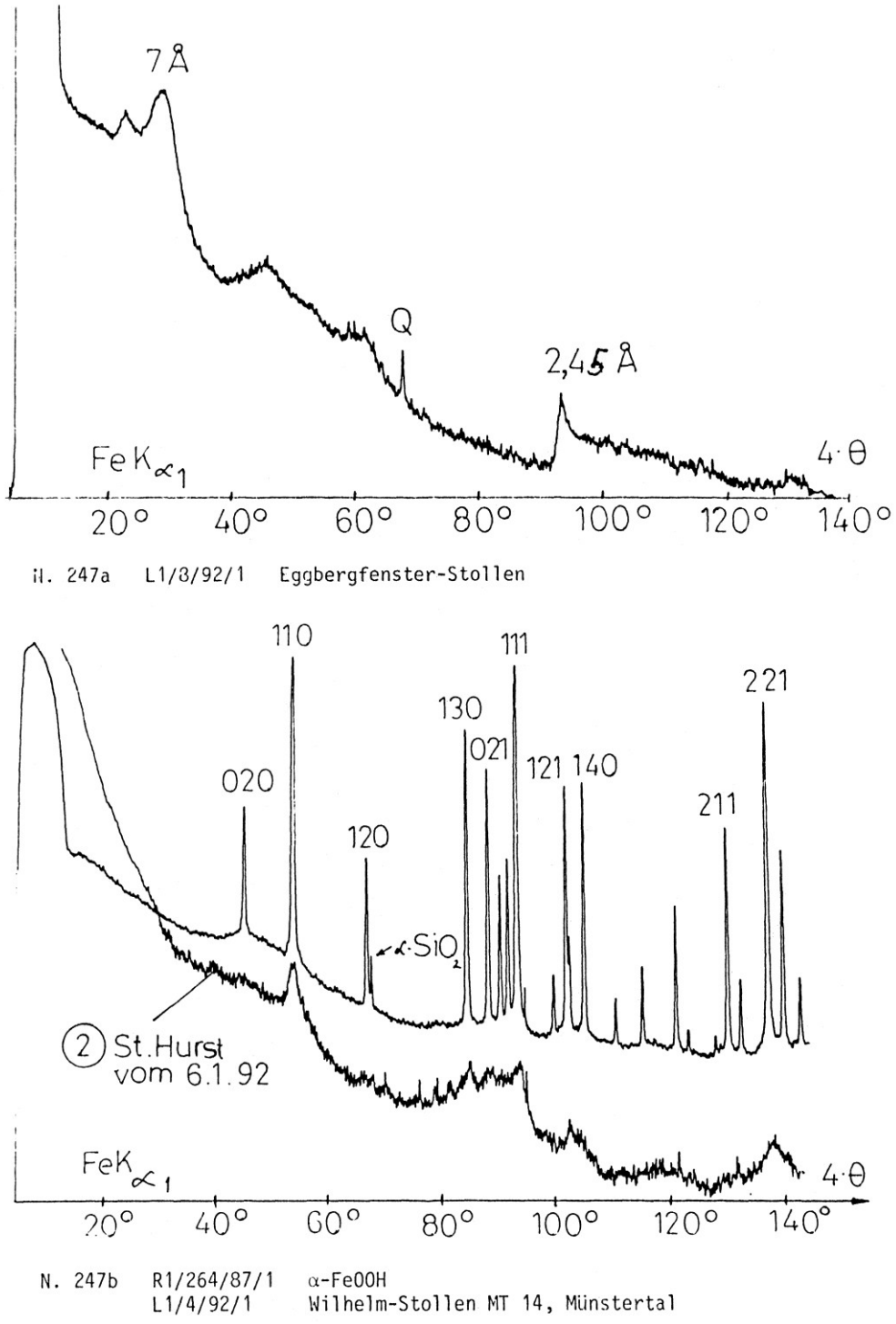


Abb. 41: Densitometerkurve von 2 Fe-/Mn-Oxihydroxidproben. Zum Vergleich ist unten die Kurve eines reinen α-Fe-OOH beigefügt.

Auch eine Abgrenzung der verschiedenen Formen untereinander ist mit der Durchlicht-EM besser möglich. Was in den Auflicht-Aufnahmen wie ein homogener Körper aus "Stengeln" und "Kugeln" aussah, zeigt sich hier bei 150000-facher Vergrößerung als lockeres Agglomerat aus diesen beiden Formen. Dadurch erhält man einen besseren Einblick in die tatsächliche Dimension der (adsorptionsbereiten) Oberflächen.

Laut Prof. Giovanoli handelt es sich bei den "Schleiern" der Probe (1) um die ultradünnen Blättchen des röntgenographisch nachgewiesenen 7Å-Phyllomanganats. Hier konnte Prof. Giovanoli "Leichen" von Manganbakterien namens Metallogenium manganooxidans identifizieren.

Die Probe aus dem Schindlergang (2) besteht i.w. aus amorphem Ferrihydrit. Nädelchen von α-FeOOH sind nur vereinzelt zu finden.

Partikel der Probe (3/Teufelsgrundgang) werden von Prof. Giovanoli dem Eisenbakterium Gallionella ferruginea zugeschrieben.

8.4 Röntgenfluoreszenzanalysen

Die einzelnen Ergebnisse der Röntgenfluoreszenzanalysen sind Tab.36 zu entnehmen.

Fe-Oxide dominieren in allen Proben. Mangan ist -besonders in Probe (1) ebenfalls stark vertreten. Von den übrigen Oxiden ist SiO_2 immer am stärksten vertreten.

Auffällig ist der hohe Arsengehalt in der Probe aus dem Eggbergfensterstollen (4). Insgesamt betätigen damit die Röntgenfluoreszenzanalysen die schon in den obigen Analysen festgestellte Zusammensetzung der Fe-/Mn-Hydroxide.

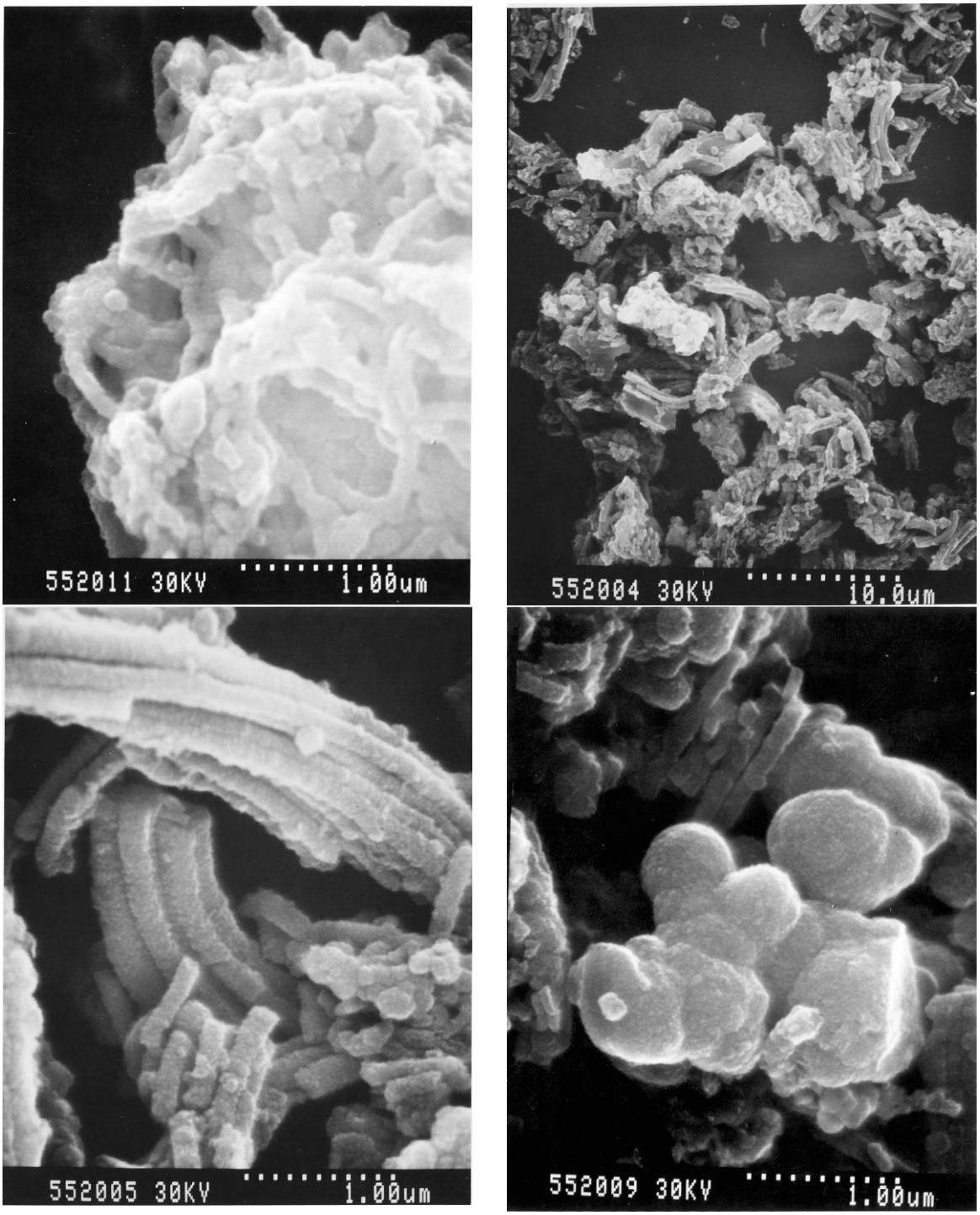
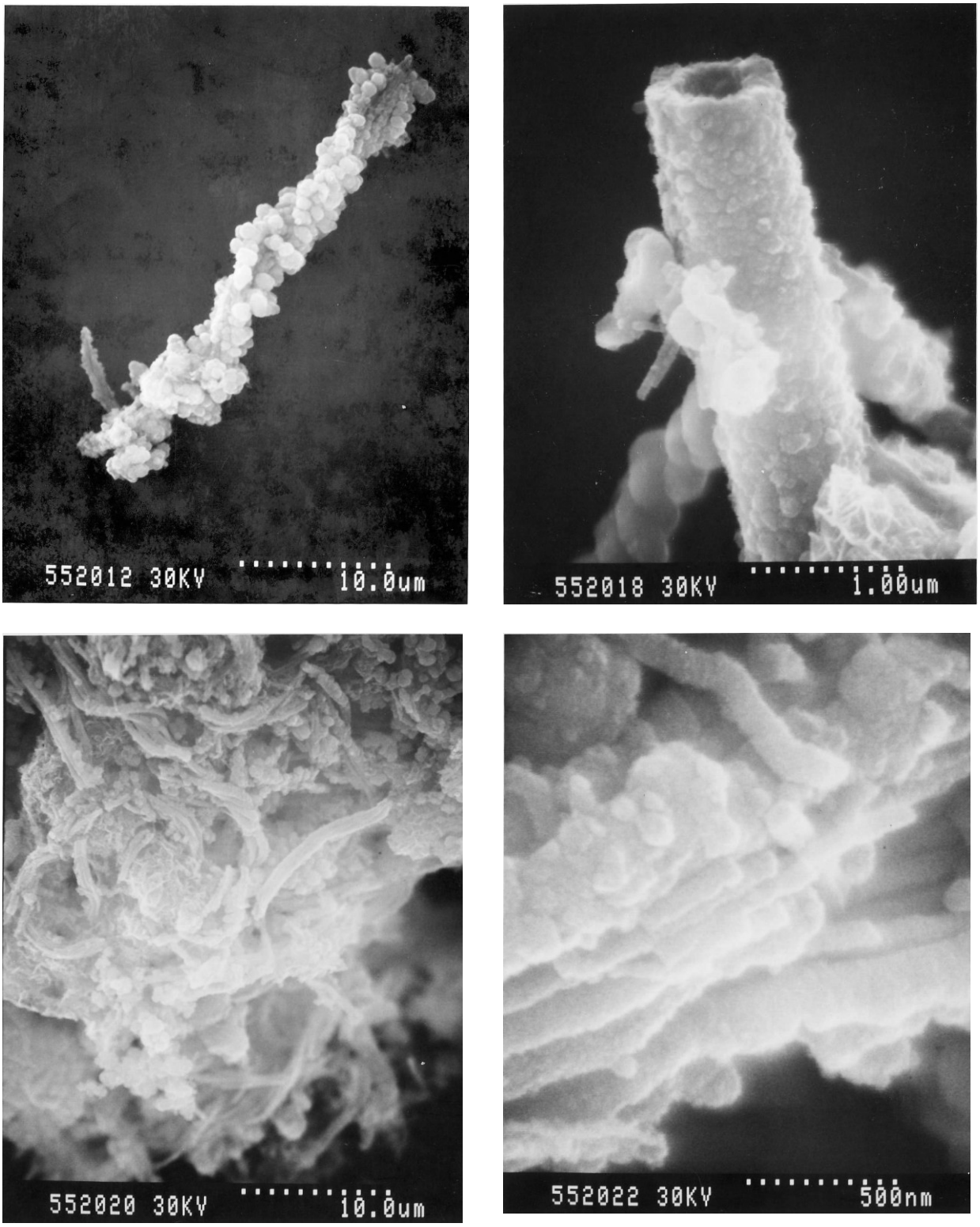


Abb. 42: Kopien von REM-Aufnahmen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus Drosen.



Fortsetzung Abb. 42: Kopien von REM-Aufnahmen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus dem Südschwarzwald.

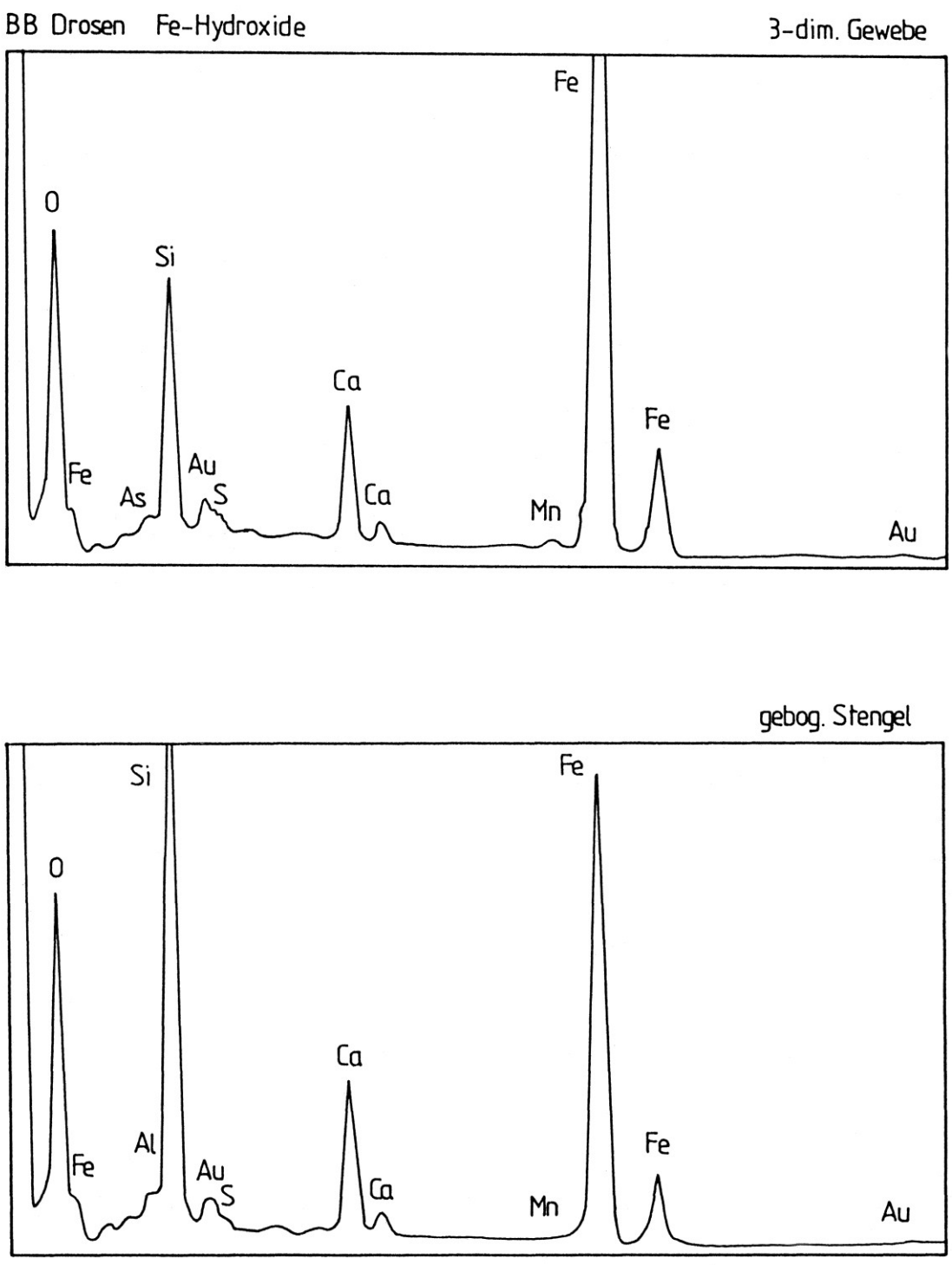
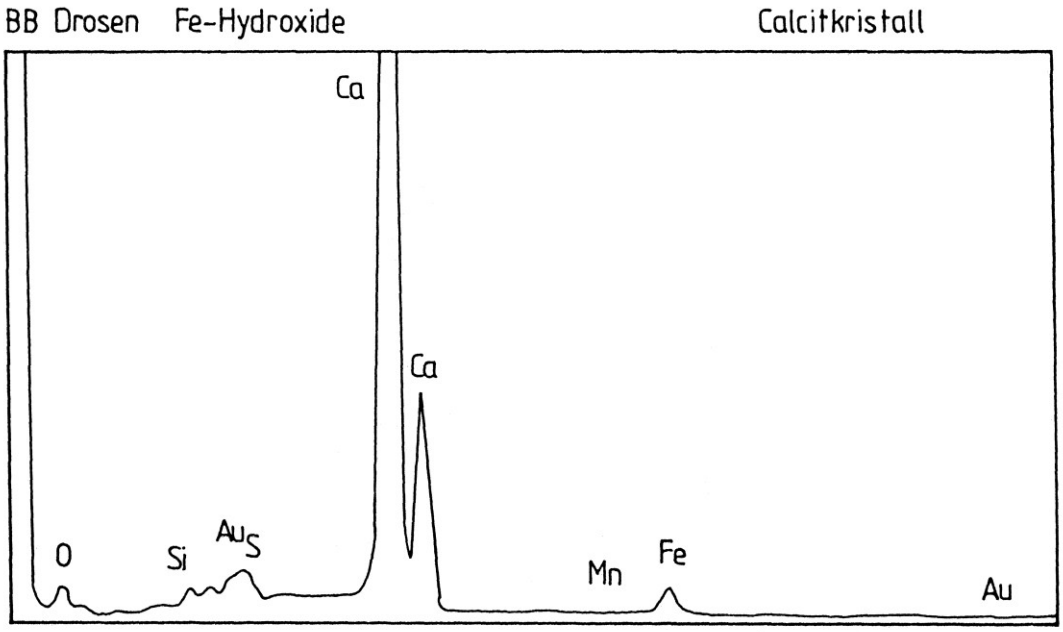
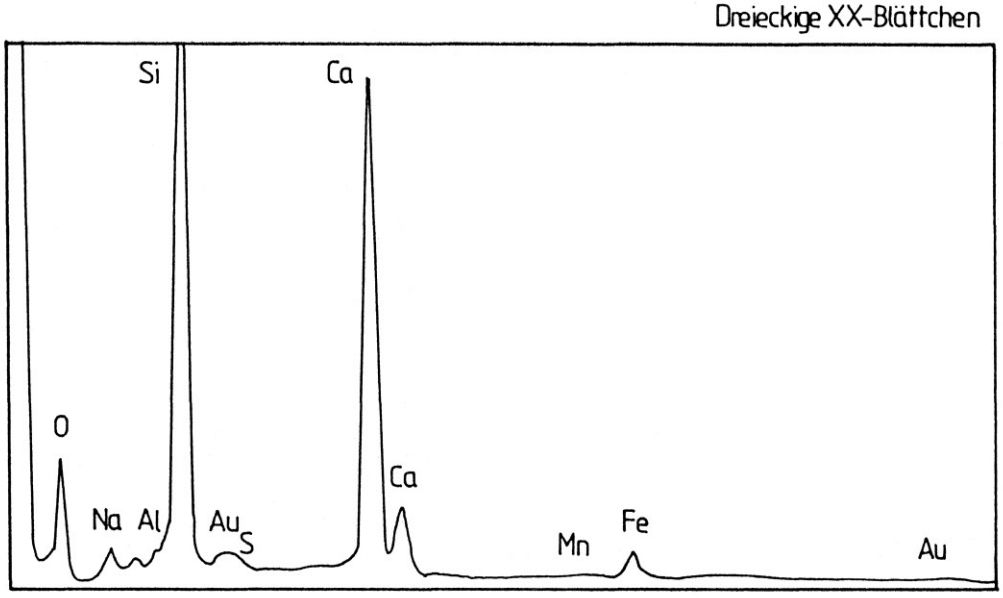
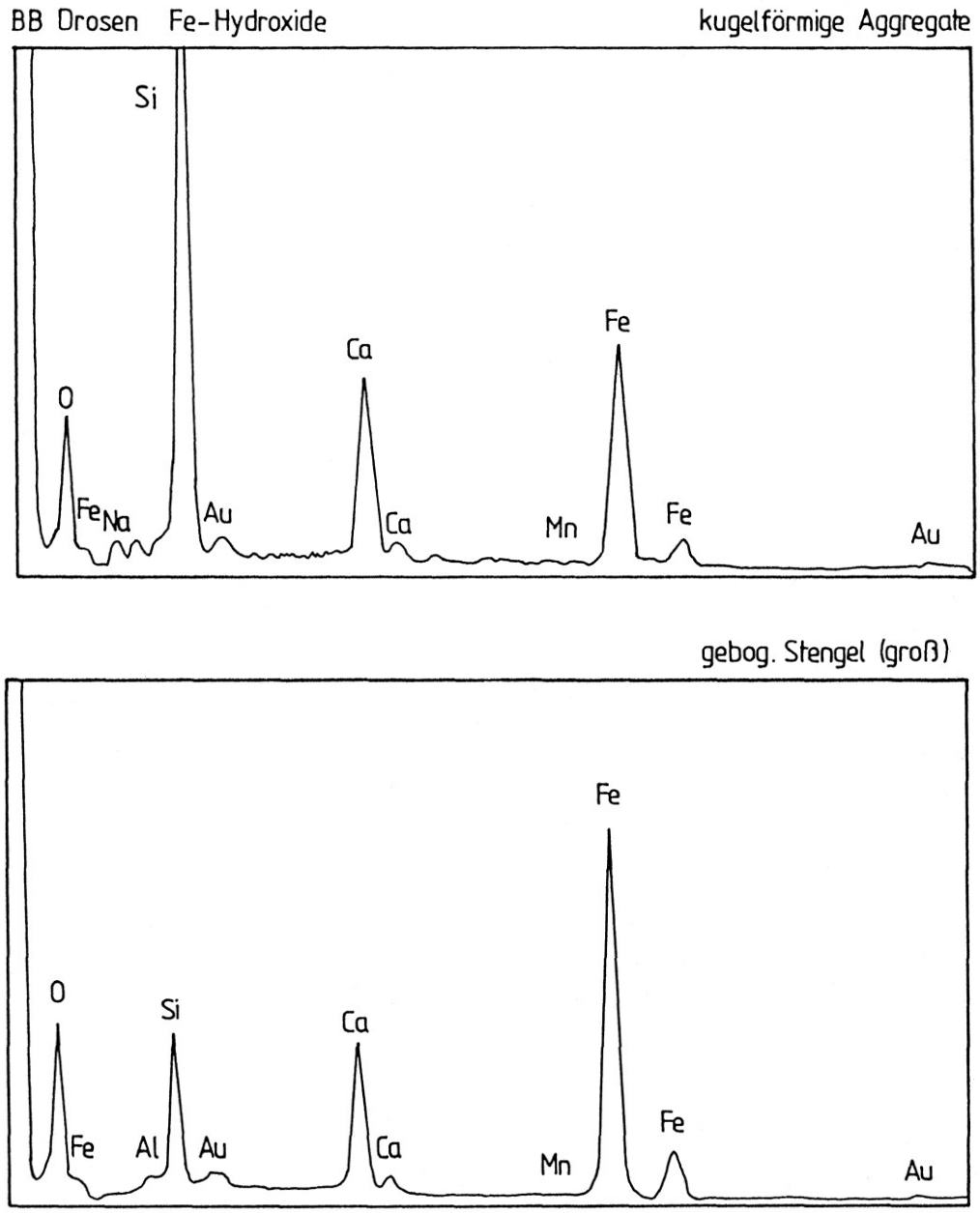


Abb. 43: Halbquantitative Analysen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus Drosen durch EDX.

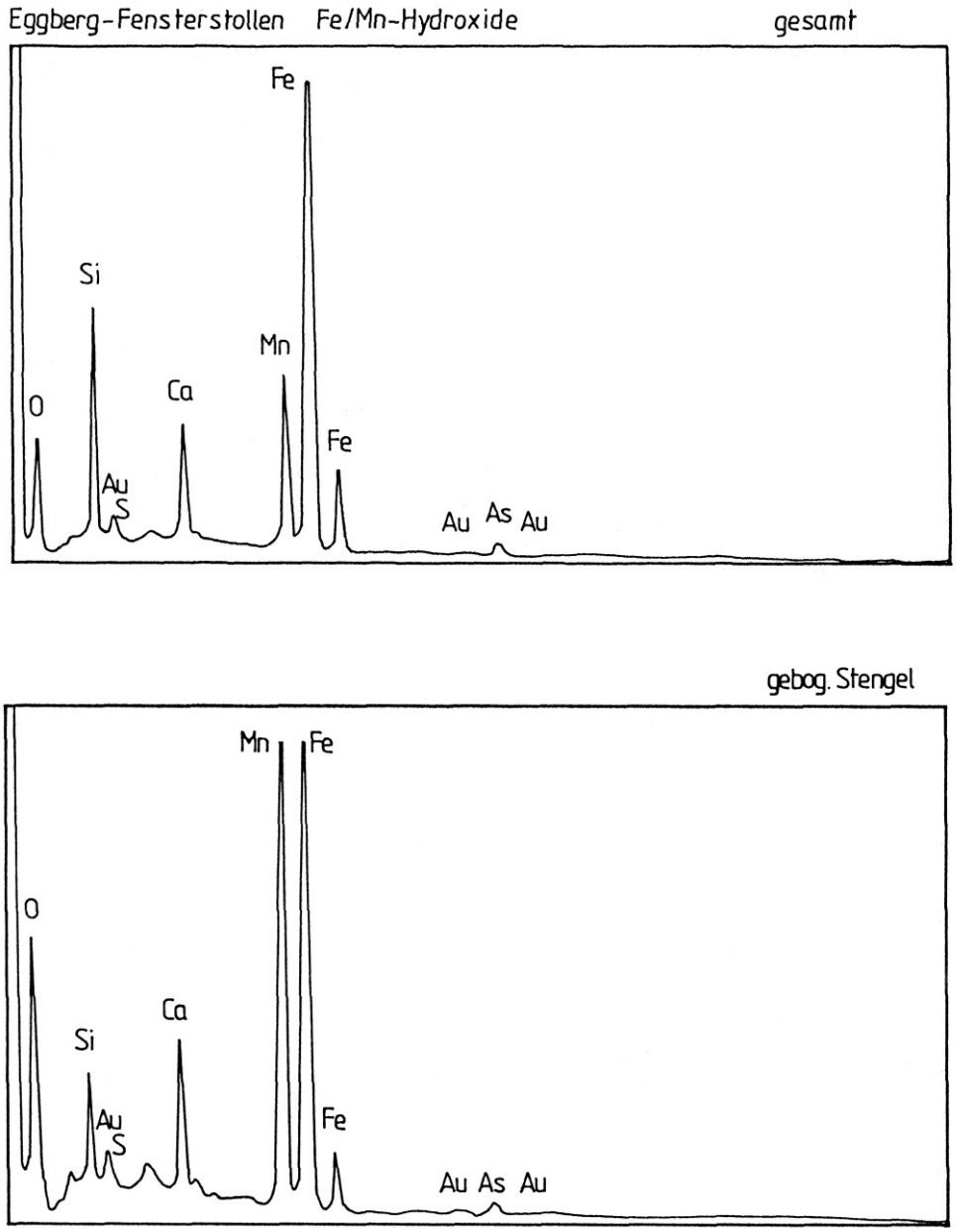




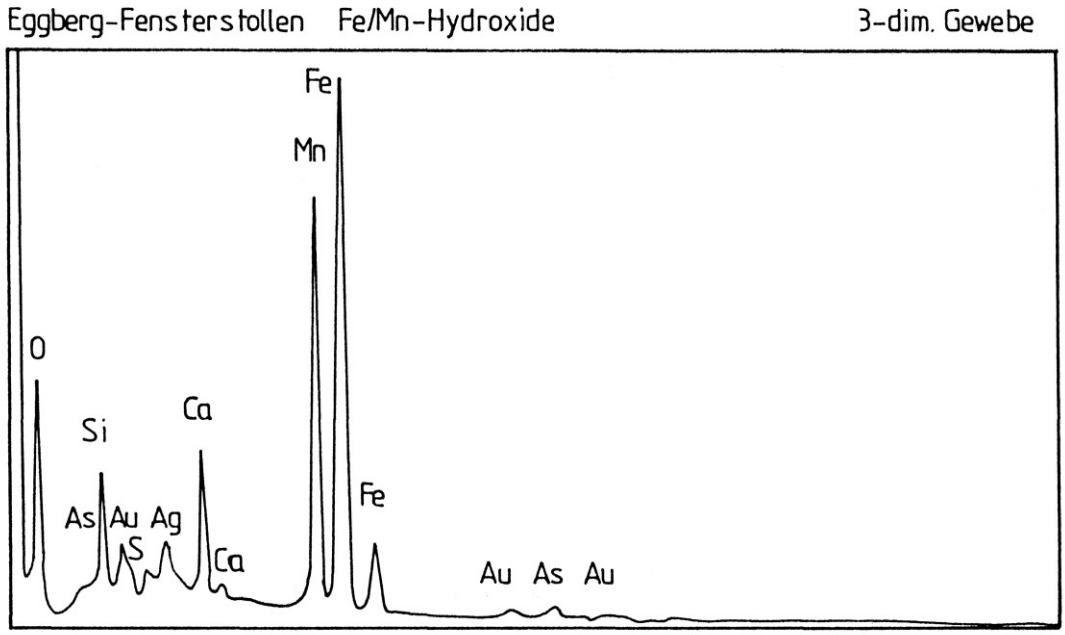
Fortsetzung Abb. 43: Halbquantitative Analysen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus Drosen durch EDX.

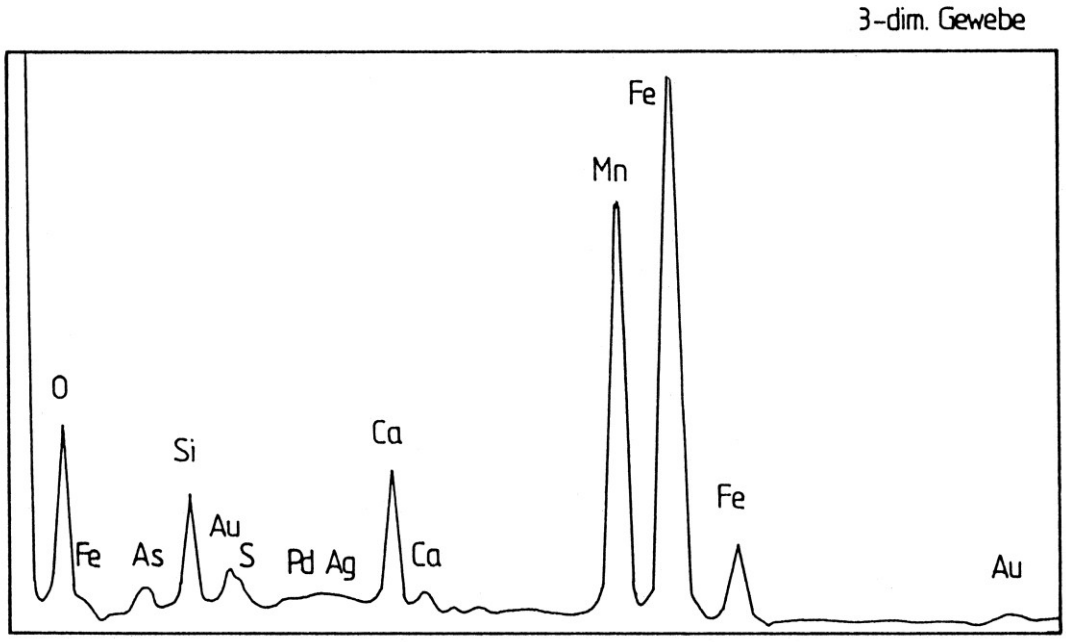


Fortsetzung Abb. 43: Halbquantitative Analysen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus Drosen durch EDX.



Fortsetzung Abb. 43: Halbquantitative Analysen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus dem Südschwarzwald durch EDX.





Fortsetzung Abb. 43: Halbquantitative Analysen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus dem Südschwarzwald durch EDX.

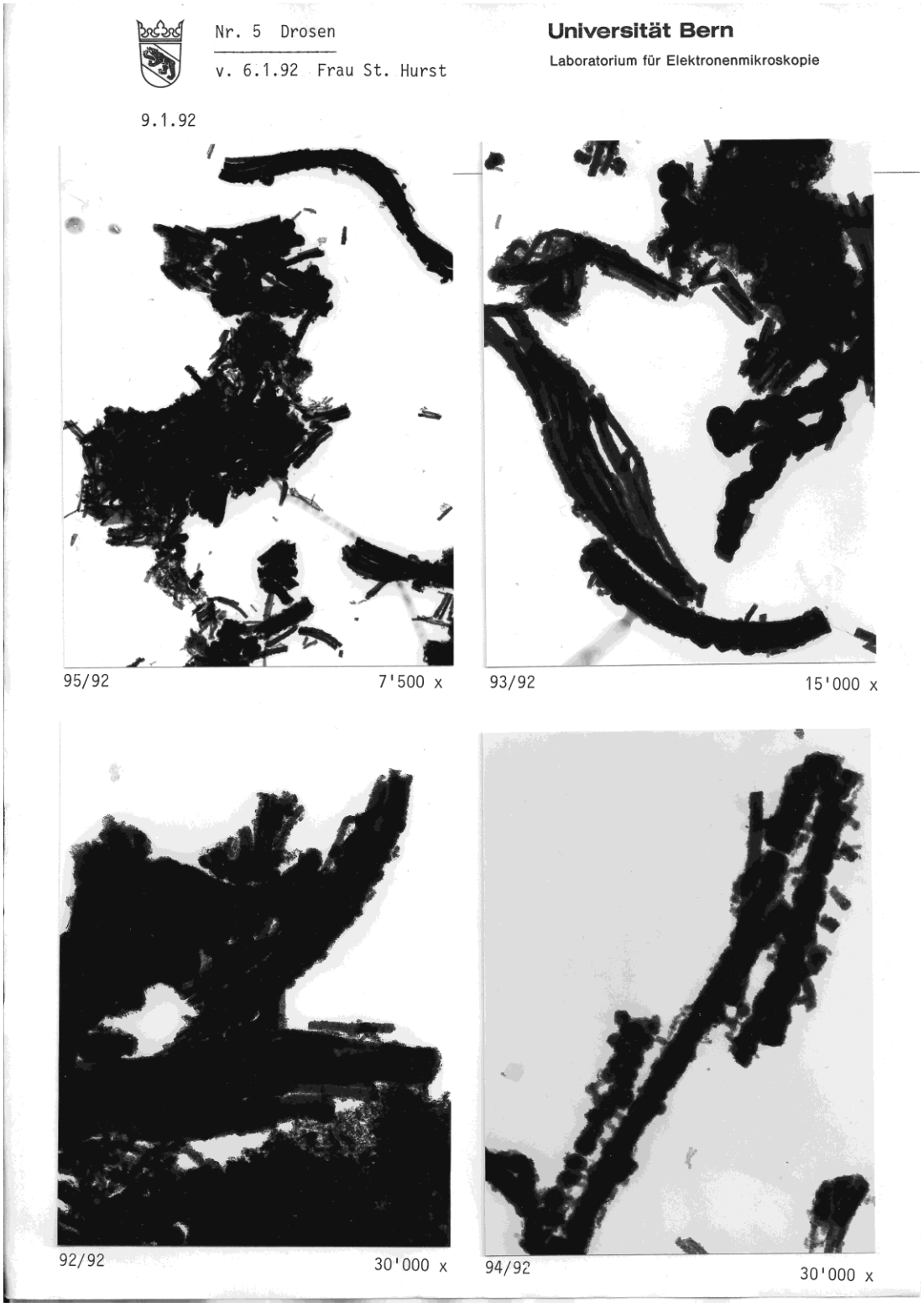


Abb. 44a: TEM-Aufnahmen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus Drosen.

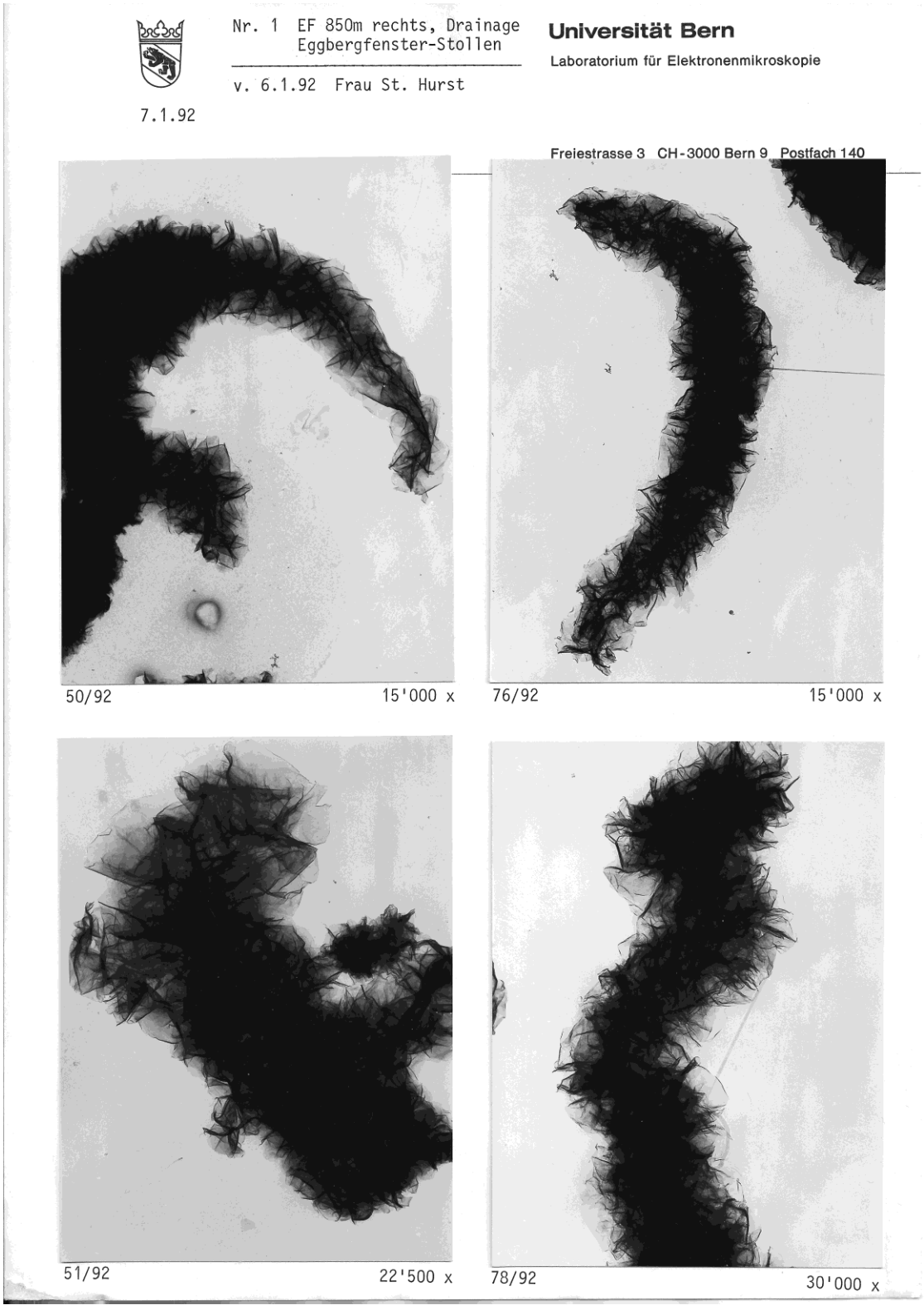


Abb. 44b: TEM-Aufnahmen von Fe-/Mn-Oxihydroxiden aus dem Südschwarzwald.

8.5 Zusammenfassende Diskussion der Ergebnisse der Eisen- und Manganoxihydroxid-Untersuchungen

Die untersuchten Fe-/Mn-Oxihydroxidproben zeigten primär sehr unterschiedliche Radium-Isotopengehalte. Unterschiedliche Untersuchungen auf ihre geochemische Zusammensetzung ergab, daß es sich entweder um Fe- oder (in einem Fall) um Mn-dominierte Substanzen mit bestimmten Anteilen an SiO_2, CaO und – in geringerem Maß - andere Oxide handelt. Einige Spurenstoffe wie As, Sr, Ba und Zn sind in bestimmten Proben angereichert.

Die Fe-/Mn-Oxidhydroxide sind zum größten Teil amorph. Lediglich in zwei Fällen konnten geringe Anteile an kristallinem Fe-Oxid nachgewiesen werden. Die Genese der amorphen Substanz ist vermutlich hauptsächlich auf Mikroorganismen zurückzuführen. Die durch die Mikroorganismen geschaffenen Formen haben sehr große Oberflächen, was die Fe-/Mn-Oxidhydroxide prädestiniert bestimmte Spurenstoffe, wie Radium, zu adsorbieren.

Die Art der Bindung des Radiums an die untersuchten Substanzen war leider nicht eindeutig bestimmbar. Es ist jedoch davon auszugehen, dass verschiedene Arten der Sorption gegeben sind, wobei lockere Formen der Anlagerung eine zweitrangige Rolle spielen.

9. Kurze Gesamtzusammenfassung der Arbeit

Zielsetzung der Arbeit war vorrangig die Entwicklung bzw. Weiterentwicklung von Methoden zur verbesserten Interpretation der hydraulischen Gegebenheiten in einem Grundwasserleiter mit Hilfe der Bestimmung von Radiumisotopenverhältnissen im Verlauf von Pumpversuchen. Daneben wurden $^{222}Rn/^{226}Ra$-Verhältnisse betrachtet und interpretiert. Des Weiteren wurden Gesteinsuntersuchungen durchgeführt sowie Untersuchungen an Gesteinsoberflächen (Sekundärminerale) um Aussagen über das Löslichkeitsverhalten bzw. die Mobilität von Radium im Grundwasser zu erhalten. Die Grundwasser- und Gesteinsproben stammten vor allem aus dem Umfeld der kontinentalen Tiefbohrung (KTB Oberpfalz) sowie aus der Vorbohrung zur KTB, aber auch aus benachbarten Bundesländern und der Tschechischen Republik (Egergraben). Im Ergebnis zeigte sich, dass sich die Untersuchung der Isotopenverhältnisse zur vertiefenden Aquiferdiagnose gut eignet. Die geochemischen Untersuchungen erlaubten einen Einblick in das Löslichkeitsverhalten der untersuchten Radionuklide.

DANK

Für ihre Anregung, Betreuung und Unterstützung in Form von organisatorischer und technischer Hilfestellung und von produktiven Diskussionen schulde ich besonders Herrn Dr. Lorenz Eichinger sowie dem viel zu früh verstorbenen Herrn Dr. Markus Forster (Fa. Hydroisotop) Dank. Ganz besonders zu Dank verpflichtet bin ich auch Herrn Prof. Dr. Muharrem Satir (Lehrstuhl für Geochemie, Univ. Tübingen), der den geochemischen Teil der Arbeit betreute, sowie seinen Mitarbeitern, die mir alle erdenkliche Unterstützung zukommen ließen.
Herrn Prof. Dr. B. Merkel (TU BA Freiberg) danke ich für viele gute Anregungen, für die Bereitschaft die Arbeit zu betreuen und die Ermutigung die Dissertation nach langer Ruhephase doch noch zu Ende zu bringen.
Ebenso danke ich Herrn Dr. F. Buheitel für die Messung von unzähligen Radium- und Radonproben und der Fa. Hydroisotop für die Messung und Zur-Verfügung-Stellung der isotopenhydrologischen Daten, sowie allen damaligen Mitarbeitern für ihren unterstützenden Beitrag zu dieser Arbeit.
Der geochemisch untersuchte Bohrkern wurde dankenswerterweise vom Zentralinstitut für Geologie in Prag zu Verfügung gestellt. Für Organisation und Vermittlung, sowie für die Ermöglichung der Wasserprobenahme herzlichen Dank an Herrn Dr. B. Vylita von "Terra Test", Karlovy Vary.
Für die Vermittlung von Pumpversuchen und die Ermöglichung von Probenahmen im Rahmen derselben möchte ich Herrn Dr. G. Koschel, Bayerisches Landesamt für Wasserwirtschaft, Herrn Dr. U. Hekel (zum Zeitpunkt der Untersuchungen Doktorand beim Geologischen Landesamt Freiburg) und allen Wasserversorgern danken.
Herrn Prof. Giovanoli (Universität Bern) danke ich herzlich für die TEM- und REM-Aufnahmen und Herrn Prof. von Gunten (PSI Würenlingen) für die Uran-Analysen.
Weiterhin gilt mein Dank allen weiteren bereits in den einzelnen Kapiteln erwähnten Personen, die diese Arbeit durch Zur-Verfügung-Stellung von Probenmaterial, durch Messung von Proben und durch Überlassung von Daten, sowie durch inhaltliche Anregungen unterstützt haben.
Herrn Perl und Frau Bubnova (TU BA Freiberg) danke ich für die Unterstützung bei der Aktualisierung der Abbildungen und den formalen Korrekturen des Textes.
Dank gilt auch der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die einen Teil der Arbeit im Rahmen des Projektes zum KTB-Umfeldprogramm förderte.
Nicht zuletzt danke ich meinem Mann und meinem Sohn für ihre Hilfe und ihr Verständnis.

LITERATURVERZEICHNIS

Ames, L.L., McGarrah, J.E., Walker, A.B. & Salter, P.F. (1983): Uranium and radium sorption on amorphous ferric oxyhydroxide. – Chemical Geology, 40, S. 135-148

Andrews, J.N. & Wood, D.F. (1972): Mechanism of release in rock matrices and entry into groundwater. –Trans. Inst. Min. Metall., B81, S. 198-209

Anonym (1984): Long-term radiological aspects of management of wastes from uranium mining and milling. – NEA experts report, Nuclear Energy Agency /OECD, Paris, 112 S.

Bard, A. J., Parsons, R. & Jordan, J. (1985): Standard Potentials in aqueous solution – Monographs in electroanalytical chemistry and electrochemistry, New York

Bassot, S., Stammose, D., Mallet, C., Ferreun, J.M., Lefebre, C. (2000) Study of the radium sorption/desorption on goethite. – In: Proceedings of the10th international congress of the international radiation protection association, IRPA-10: 10, Hiroshima (Japan) 14-19 May 2000No P-4b-258

Benes, P., Obdrzalek, M. & Cejchanova, M. (1982): The physicochemical forms of traces of radium in aqueous solutions containing chlorides, sulfates and carbonates – Radiochem. Radioanal. Letters, 50, 227

Benes, P., Obdrzalek, M. & Cejchanova, M. (1986): Adsorption characteristic of traces of radium on membrane filters, glass and polyethylene. – Journal of radioanalytical and nuclear chemistry, articles, Vol. 102, No. 2, S. 443-453

Bernstein K.-H., Blüher, H.-J., Bolduan, H., Brause, H., Douffet, H., Hirschmann, G., Hoth, K., Lorenz, W., Mibus, P. Mucke, C. & Scheumann, K.-H. (1972): Erleuterung zur Geologischen Übersichtskarte der Bezirke Dresden, Karl-Marx-Stadt, Leipzig 1:400000. – VEB Geologische Forschung und Erkundung Halle, Bergakademie Freiberg, Sektion Geowissenschaften, Freiberg, 78 S.

Biehler, D. (1995): Kluftgrundwässer im kristallinen Grundgebirge des Schwarzwaldes – Ergebnisse von Untersuchungen in Stollen. In: Tübinger Geowissenschaftliche Arbeiten (TGA), C22, Tübingen

Bourdet, D., Ayoub, J.A., Whittle, T.M., Pirard, Y.M. & Kniazeff, V. (1983): Interpreting well tests in fractured reservoirs. – World Oil, October 1983, 7 S.

Brdicka, R. (1985): Grundlagen der physikalischen Chemie. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 900 S.

Bröcker, B. (1989): dtv-Atlas zur Atomphysik, Tafeln und Texte. Deutscher Taschenbuch-Verlag, München, 254 S.

Buheitel, F. (1992): The determination of low levels of radium isotopes and radon by delayed coincidence liquid scintillation spectrometry. – Liquid Scintillation Spectrometry 1992, J. E. Noakes, F. Schönhuber, H.A. Pollach (eds.), Radiocarbon 1993, pp. 83-88

Cember, H. (1983): Introduction to health physics. New York, Oxford, 517 S.

Cherdyntsev, V.V. (1971): Uranium-234. – Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem, 1971, Übersetzung der Veröffentlichung in: Atomizdat, Moskva 1969, 234 S.

Chung, Y. (1987): Ra-226 in the Western Indian Ocean. – Earth and Planetary Science Letters, 85, 11-27

Clifford, D., Vijjeswarapu, W. & Subramonian, S. (1981): Evaluating various adsorbents and membranes for removing radium from groundwater. – Journal AWWA, Research and Technology, July 1981, 94-104

Condomines, M., Gourdin, E.., Gataniou, D., Seidel, J.-L. (2012): Geochemical behavior of radium isotopes and Radon in a coastal thermal system (Balaruc-les-Bains, South of France). - Geochimica et Cosmochimica Acta **98** (2012) 160-176

Cornell, R.M. & Giovanoli, R. (1990): Transformation of akaganeite into goethite and hematite in alkaline media. – Clays and Clay Minerals, Vol. 38, No. 5, 469-476

Cornell, R.M. & Giavanoli, R. (1991): Transformation of akaganeite into goethite and hematite the presence of Mn. – Clays and Clay Minerals, Vol. 39, No. 2, 144-150

Cornell, R.M. & Giavanoli, R. & Schneider, W. (1989a): Review of the hydrolysis of iron(III) and the crystallization of amorphous iron(III) hydroxide hydrate. –J. Chem. Tech. Biotechnol., 46, 115-134

Cornell, R.M. & Giavanoli, R. & Schneider, W. (1989b): Phase transformations in the ferrihydrite/cysteine system. – Polyhedron, Vol. 8, No. 23, 2829-2836

Cornell, R.M., Giovanoli, R. & Schneider, W. (1990): Effect of cysteine and manganese on the crystallization of noncrystalline iron(III) hydroxide at pH 8. – Clays and Clay Minerals, Vol. 38, No. 1, 21-28

Credner, H. (1883): Erläuterungen zur geologischen Specialkarte des Königreiches Sachsen. Herausgegeben vom k. Finanz-Ministerium, Sektion Schneeberg, Blatt 136, von K.Delmer, Leipzig, 7-22

Curie, M. (1902): Atomic weight of radium (*Sur le poids atomique du radium*). – Compt. Rend., 135, 161-163

Curie, M., Curie, P. & Bemont, G. (1898): Another new radio-active element (*Sur une nouvelle substance fortement radio-active, contenue dans la Pechblende*). – Compt. Rend., 127, 1215-1217

Eichinger, L. (1982): Bestimmung des Alters von Grundwässer des fränkischen Albvorlandes. – Dissertation, GSF-Bericht R 291, 194 S.

Emmermann, R. & Lauterjung, J. (1997): The German continental deep drilling program KTB: Overview and major results. – Journal of Geophysical Research, Vol. 102, No B8, pp. 18.179-18,201

Faure, G. (1986): Principles of isotope geology. John Wiley & Sons, Toronto, 589 S.

Fleischer, R.L. (1982): Alpha recoil damage and solution effects in minerals: uranium isotopic disequilibrium and radon release. – Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 46, 2191-2201

Freeze, R. A. & Cherry, J. A. (1979): Groundwater. - Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs, NJ

Fritz, P. & Lodemann, M. (1990): Die salinaren Tiefenwässer der KTB-Tiefbohrung. – Die Geowissenschaften, 8. Jahrgang, 9, 273-278

Gans, I., Fusban, H.U., Wollenhaupt, H., Kiefer, J., Glöbel, B., Berlich, J. & Porstendörfer, J. (1987): Radium-226 und andere natürliche Radionuklide im Trinkwasser und in Getränken der Bundesrepublik Deutschland. – Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes, Wa-Bo-Lu-Hefte, 4, 66 S.

Garrels, R.M. & Christ, C.L. (1965): Solutions, minerals and equilibria. Jones and Bartlett Publishers, Boston, 450 S.

Gellermann, R., Fröhlich, K. & Jordan, H. (1987): Groundwater studies with uranium series disequilibrium. – International Symposium on Groundwater Monitoring and Management, 23-28 March 1987, Dresden, GDR, Hrsg.: Institut f. Wasserwirtschaft, Berlin, 21 S.

Geyer, O.F., Gwinner, M.P. (1986): Geologie von Baden Wüttemberg. – E.Schweizerbartsche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart, 472 S.

Geyh, M.A., Andres, G. & Backhaus, G. (1986): Flächenhafte Neubildung des Grundwassers im Sandsteinkeuper durch die “leaky” Trennschicht des Feuerletten im Gebiet nördlich von Nürnberg. Isotopenfallstudie mit zweidimensionalem Hydraulikmodell. – Geologisches Jahrbuch, Reihe C, Heft 47, Hannover, 55 S.

GLA, 1994: Informationen 6/94, - Geologisches Landesamt Baden-Württemberg (Hrsg.)

Gmelin (1977): Verbindungen mit Edelgasen und Wasserstoff sowie System Uran-Sauerstoff. – Gmelin Handbook of Inorganic and Organometallic Chemistry, 8th edition, ISBN 978-3-540-93344-1

Gockel, A. (1914): Die Radioaktivität von Boden und Quellen. – Sammlung Vieweg, Tagesfragen aus den Gebieten der Naturwissenschaften und der Technik, Heft 5, Braunschweig, 108 S.

Haunschild, H. & Jerz, H. (Red.) (1981): Erläuterungen zur Geologischen Karte von Bayern 1:500000. –Hrsg: Bayerisches Geologisches Landesamt, 168 S., München

Hekel, U. (1994): Hydrogeologische Erkundung toniger Festgesteine am Beispiel des Opalinustons (Unteres Aalenium). In: Tübinger Geowissenschaftliche Arbeiten (TGA) Reihe C: Hydro-, Ingenieur- und Umweltgeologie, C18, Tübingen

Hoehn, E. & von Gunten, H.R. (1989): Radon in groundwater: A tool to assess infiltration from surface waters to aquifers.. – Water Resources Research, Vol. 25, No. 8, 1795-1803

Hollemann, A.F. (1985): Lehrbuch der anorganischen Chemie (Hollemann-Wiberg). – Berlin, New York; de Gruyter, 1451 S.

Hölting, B. (1989): Hydrogeologie. Einführung in die allgemeine und Angewandte Hydrogeologie. – Enke Verlag, Stuttgart, 396 S.

Hurst, S., Eichinger, L., Forster, M., Buheitl, F. (1991) Radium- und Radonuntersuchungen an Grundwässern der KTB-VB. In: Emmermann R, Lauterjung J. (eds) Forschungsergebnisse im Rahmen des DFG-Schwerpunktprogramms "KTB", 1986-1990. KTB Report. 91-1: 437-447

Hütter, L.A. (1979): Laborbücher Chemie. Wasser und Wasseruntersuchung. – Diesterweg & Salle, Frankfurt a.M., Sauerländer, Aarau, Frankfurt a.M., Salzburg, 344 S.

IAEA (1984): The behavior of radium in waterways and aquifers – Final report of the co-ordinated research programme on source, distribution, movement and deposition of radium in inland waterways and aquifers, sponsored by the International Atomic Energy Agency from 1976 to 1980

IAEA (1990): The environmental behavior of radium: Revised edition. – Technical Reports Series no. 476

IAEA (2014): The Environmental Behaviour of Radium: Revised Edition. - Technical Reports Series 476

Iwasaki, I. & Matsuda, F. (1951): Geochemical investigations of strongly radioactive springs- J. Chem. Soc. Japan, Pure Chem. Sect., 72, 97

Iyengar, M. A. R. (1984): Distribution in nature. – In: IAEA TECDOC 301: The behavior of radium in waterways and aquifers, Wien, 59-86

Just, G. (1985): Trace element studies in granitic rock sequences, southern part of the GDR – On the existence of a-type granitic melts. – Gerlands Beiträge zur Geophysik, 94, Leipzig, 381-408

Kessels, W., Zoth, G. & Kück, J. (1990): Erste Ergebnisse eines Absenk- und Injektionstestes in der KTB-Oberpfalz VB. – KTB-Report 90-5, Hannover, 235-283

Kobal, I. & Williams, A.R. (1984): Analytical Methods. – In: IAEA TECDOC 301: The behaviour of radium in waterways and aquifers, Wien, 23-26

Koch, U. &Tauchert, D. (1986): Ermittlung von Radon-Verweilzeiten an natürlichen Bad Brambacher Wässern. – Z. Physiother., Jg. 38, 387-396

Kraemer & Kharaka (1986): Uranium geochemistry in geopressured-geothermal aquifers of the U.S. Gulf Coast. – Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 50, 1233-1238

Krest, J.M. & Harvey, J.W. (2003): Using natural distributions of short-lived radium isotopes to quantify groundwater discharge and recharge. – Limnology and Oceanography 48(1), 290-298

Krishnaswami & Seidemann (1988): Comparative study of ^{222}Rn, ^{40}Ar, ^{39}Ar and ^{37}Ar leakage from rocks and minerals: Implications for the role of nanopores in gas transport through natural silicates. – Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol.52, 655-658

Krohe, A., Eisbacher, G.H. (1988): Oblique crustal detachment in the Variscan Schwarzwald, southwestern Germany. – Geologische Rundschau, 77/1, 25-43

KTB-VB 87-1: Projektleitung Kontinentales Tiefbohrprogramm (1987): Vorträge der Bereiche Geowissenschaften, Operative Geologie und Technik der Projektleitung beim KTB-Kolloquium Seeheim. 164 Seiten; Hannover.

KTB-VB 91-4: Grundlagenforschung und Bohrlochgeophysik (Bericht 12). Forschung und Entwicklung Projektgruppe Kontinentales Tiefbohrprogramm der BRD am Niedersächsischen Landesamt für Bodenforschung - EFA-LOG-Rekonstruktion kristalliner Lithologie anhand von bohrlochgeophysikalischen Messungen für die Bohrungen URACH 3 und KTB-Oberpfalz VB 1991. 213 S.; E. Schweizerbart' sche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart

Ku, T.-L. & Luo, S. (2008): Ocean circulation/Mixing studies with decay-series isotopes.- In: U-Th Series nuclides in aquatic systems. S. Krishnaswami, J. Kirk Cochran (eds.). Radioactivity in the environment, Vol. 13, M.S.Baxter (series editor), Elsevier

Kurbatov, I. (1932): Adsorption of thorium X by ferric hydroxide at different pH. – J.Phys. Chem., 36, 1241-1247

Langguth, H.-R. & Voigt, R. (1980): Hydrogeologische Methoden. – Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 486 S.

Langmuir, D. & Riese, C. (1985): The thermodynamic properties of radium. – Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol.49, 1593-1601

Lieber, W. (1979): Mineralogie in Stichwortworten. – Verlag Ferdinand Hirt, Kiel, 246 S.

Lieser, K.H., Ament, A., Hill, R., Singh R.N., Stingl, U. & Thybusch, B. (1990): Colloids in groundwater and their influence on migration of trace elements and radionuclides. –

Radiochimica Acta, 49, 83-100

Lodemann, M. (1993): Salinare Fluide in der KTB-VB: Isotopengeochemische Untersuchungen im Rahmen des kontinentalen Tiefbohrprogramms der Bundesrepublik Deutschland. GSF-Bericht, Band 19, 164 S.

Lodemann, M. & Fritz, P. (1990): Isotopenhydrologische Untersuchungen im Rahmen der Hydraulik- und Fluidtests in der KTB-Vorbohrung. Erste Ergebnisse. – KTB-Report 90-5, Hannover, 235-283

Marcos, G. & Bush, K. (1982): Thermodynamic calculations and phase diagrams in evaluating tailings-soil-water interactions. – Symposium on Uranium Mill Tailings Management, Fort Collins, Colorado, December 9-10, 1982, 5, 259-274

Metz, R. (1980): Geologische Landeskunde des Hotzenwaldes, mit Exkursionen, besonders in dessen alten Bergbaugebieten. – Moritz Schauenburg Verlag, Lahr, 1117 S.

Möller, P. (1986): Anorganische Geochemie. – Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 326 S.

Pekdeger, A., Sommer-von Jarmerstedt, C. & Woith, H. (1990): Zwischenbericht über erste Ergebnisse der Hydrochemie (Pumpversuch vom 07.04.90-11.04.90) an der KTB-VB. – KTB-Report, 90-5, 473-481

Philipsborn, H. von, (1990/I): Radon und Radonmessung. Teil I: Eigenschaften, Meßgrößen und Methoden. – Die Geowissenschaften, 8. Jahrgang, Nr.8, 220-228

Philipsborn, H. von, (1990/II): Radon und Radonmessung. Teil II: Geräte, Verfahren, Vorkommen und Verbreitung. – Die Geowissenschaften, 8. Jahrgang, Nr.10, 324-338

Porcelli, D. (2008): Investigating groundwater processes using U- and Th-Series Nuclides. - In: U-Th Series nuclides in aquatic systems. S. Krishnaswami, J. Kirk Cochran (eds.). Radioactivity in the environment, Vol. 13, M.S.Baxter (series editor), Elsevier

Quentin, K.-E. (1970): Die Heil- und Mineralquellen Nordbayerns. Geologica Bavarica, Nr. 62, München, 312 S.

Reid, D.F., Moore, W.S. & Sackett, W.M. (1979): Temporal variation of Ra-228 in the near-surface Gulf of Mexico. – Earth and Planetary Science Letters, 43, 227-236

Rietzler, J. (1979): Zur Hydrogeologie des Raumes südöstlich von Nürnberg unter besonderer Berücksichtigung der Gradabteilungsblätter 6533 Röthenbach, 6633 Feucht und 6733 Allersberg. –Dissertationsschrift vorgelegt an der Ludwig-Maximilians-Universität München, Juni 1979, 183 S.

Scheffer, F. (1989): Lehrbuch der Bodenkunde. – (Scheffer/Schachtschabel), Stuttgart, Enke, 491 S.

Shannon, R.D. (1976): Revised Effective Ionic Radii and Systematic Studies of Interatomic Distances in Halides and Chalocogenides – Acta Cryst. A32(5), 751-767

Sheng, Z.Z. & Kuroda, P.K. (1986a): Isotope Fractionation of Uranium: Extremly High Enrichments of ^{234}U in the Acid-Residues of a Colorado Carnotite. – Radiochimica Acta 39, 131-138

Sheng, Z.Z. & Kuroda, P.K. (1986b): Further Studies on the Separation of Acid-Residues with Extremly High $^{234}U/^{238}U$ Ratios from a Colorado Carnotite. – Radiochimica Acta 40, 95-102

Sigmund, J., Hacker, W., Keyssner, S., Kohl, J., Müller, H., Röhr, C., Stroh, A. & Tapfer, M. (1990): Tiefbohrung KTB-Oberpfalz VB 1a und 1b, Ergebnisse der Geowissenschaftlichen Bohrungsbearbeitung im KTB-Feldlabor (Windischeschenbach), Teufenbereich von 3500 bis 4000,1m: B.Geologie. – KTB-Report, 90-2, B1-B142

Somayajulu, B.L.K. & Rengarajan, R. (1987): Ra-228 in the Dead Sea. – Earth and Planetary Science Letters, 85, 54-58

Spitz, K. (1985): Dispersion in porösen Medien: Einfluß von Inhomogenitäten und Dichteunterschieden. – Mitteilungen Universität Stuttgart, Instituf für Wasserbau, Heft 60, 131 S. Stuttgart

Stettner, G. (1990): KTB-Umfeldgeologie. Das geologische Umfeld der Kontinentalen Tiefbohrung in der Oberpfalz. Ein Überblick mit Exkursionshinweisen. – Geologische Landesamt Bayern (Hrsg.), München, 31 S.

Stober, I. (1986): Strömungsverhalten in Festgesteinsaquiferen mit Hilfe von Pump- und Injektionsversuchen. –Geol. J.b., Reihe C, Heft 42, Hannover, 204 S.

Suk, M., Blizkovsky, M., Buday, T., Chlupak, I Cicha, I. Dudek, A., Dvorak, J., Elias, M., Holub, V., Ibrmajer, J., Kodym, O., Kukal, Z., Malkovsky, M., Mencik, E., Müller, V., Tyracek, J., Vejnar, Z., Zeman, A. (1984): Geological history of the territory of the Czech Socialist Republic. – Geological Survey Prague (Josef Svoboda, ed.), 396 S.

Tjutjunowa, F. (1976): Physiko-chemische Prozesse in Grundwässern. – VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 146 S.

Van der Loeff, M. M. R & Geibert, W (2008): U- and Th-series nuclides in the oceans.- In: U-Th Series nuclides in aquatic systems. S. Krishnaswami, J. Kirk Cochran (eds.). Radioactivity in the environment, Vol. 13, M.S.Baxter (series editor), Elsevier

Vdovenko, V.M. & Dubasov, Yu.V. (1975): Analytical chemistry of radium. – John Wiley and Sons, New York/Toronto, 198 S.

Voigt, H.-J. (1990): Hydrogeochemie. – VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 310 S.

Vovk, I.F. (1987): Radiolytic oxidation of sulphides and geochemical behavior of sulphur isotopes in uranium deposits. – Proceeding: Studies on Sulphur Isotope Variations in Nature. IAEA, Wien, 85-103

Vylita, B. (1990): S geologem po Karlovych Varech. – Selbstverlag, ISBN 80-7075-019-7, Prag, 170 S.

Wedepohl, K.H. (ed.), (1986): Handbook of Geochemistry I. – Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 442 S.

Weise, S. (1986): Heliumisotopen-Gehalte im Grundwasser – Messung und Interpretation. Dissertationsschrift, München, 151 S.

Werner, C.-D. & Bräuer, H. (1970): Geochemie granitoider Gesteine im Erzgebirge und Thüringer Wald. – Freiberger Forschungshefte, C259 Mineralogie-Lagerstättenlehre, VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 139 S.

Wiegand, J., Feige, S. (2002): Origin of radium in high-mineralised waters, Section IAEA, IAEA-TECDOC-1271, IAEA, Wien

Wimmenauer, W. (1984): Das prävariskische Metamorphikum im Schwarzwald. – Fortschritte der Mineralogie, 62, 2, 69-86

Yariv, S. & Cross, H. (1979): Geochemistry of colloid systems. – Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 450 S.

Zeien, H. & Brümmer, G.W. (1989): Chemische Extraktion zur Bestimmung von Schwermetallbindungsformen in Böden. – Mitteilgn. Dtsch. Bodenkundl. Gesellsch., 59/1, 505-510

Zukin, G.J., Hammond, D.E., Ku, T.-L., Elders, W.A. (1987): Uranium-Thorium series radionuclides in brines and reservoir rocks from two deep geothermal boreholes in the Salton Sea Geothermal Field, southeastern California. – Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 51, 2719-2731

Verzeichnis der verwendeten Karten

Geologische Karte des KTB-Umfeldes Oberpfalz 1:10000 -
Redaktion: G. Hirschmann, Hrsg.: Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung, Bayerisches Geologisches Landesamt.

- Blatt 1 *Waldeck*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner, B. Schröder
  Mit Beiträgen von: M. Siegling
- Blatt 2 *Grötschenreuth*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: M. Sirch
- Blatt 3 *Friedenfels*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: G. Troll
- Blatt 4 *Muckenhtal*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
- Blatt 5 *Erbendorf*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: R. Burger, E. Harzer, M. Sirch
- Blatt 6 *Krummennaab*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: R. Burger, J. Rohrmüller, G. Troll
- Blatt 7 *Windischeschenbach*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
- Blatt 8 *Kirchendemenreuth*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: G. Feik, U. Kraus
- Blatt 9 *Wurz*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: G. Feik, G. Fischer, U. Krauss, J. Schröder
- Blatt 10 *Neustadt an der Waldnaab*
  Wissenschaftliche Bearbeitung: G. Stettner
  Mit Beiträgen von: G. Eichenseer, G. Fischer, E. Haberfelner, U. Kraus

Geologische Karte der Zentralen Nordschweiz 1:100000 mit angrenzenden Gebieten von Baden-Württemberg - Geologische Spezialkarte Nr. 121. Bearbeitet von A. Isler, F. Pasquier und M. Huber, Hrsg.: Nationale Genossenschaft für die Lagerung Radioaktiver Abfälle (NAGRA) und der Schweizerischen Geologischen Kommission, Bern, 1984

Geologische Karte von Bayern 1:500000. - Wissenschaftliche Bearbeitung: W. Bauberger, K. Berger, K. Doben, U. Emmert, O. Ganss, W. Grottenthaler, H. Häußler, H. Haunschild, G. von Horstig, H. Jerz, R. Meyer, H. Mielke, W.-D. Ott, H. Schmidt-Kaler, J. Schwarzmeier, K. Schwerd, G. Stettner, R. Streit, H. J. Unger, Wi. Weinelt, R. Hüttner. München 1981

Geologische Schulkarte von Südwestdeutschland - Hrsg. Badisches Geologisches Landesamt und Geologische Abteilung des Württembergischen Statistischen Landesamtes. Stuttgart 1951

Geologische Übersichtskarte. Bezirke Dresden, Karl-Marx-Stadt, Leipzig 1:400000 - Bearbeiter: H. Brause, H. Douffet, L. Eißmann, D. Hennig, G. Hirschmann, VEB Geologische Forschung und Erkundung Halle, Betriebsteil Freiberg. Hrsg.: Zentrales Geologisches Institut Berlin, Wissenschaftliches Zentrum des Ministeriums für Geologie; Potsdam 1975

Regional Geology of Czechoslovakia. Geological Atlas 1:1000000 Chief Editor: Odolen Kodym. Published by the Geological Survey of Czechoslovakia in cooperation with the Central Office of Geodesy and Cartography, Prague 1967

Karlsruher Nuklidkarte.- W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, Gersbach und Sohn Verlag, Karlsruhe, 1974.

Topographische Übersichtskarte 1:200000
- CC 6326 *Bamberg*
- CC 6334 *Bayreuth*
- CC 7126 *Nürnberg*
- CC 7134 *Regensburg*

Hrsg.: Bayerisches Landesvermessungsamt, München, 1990

Geologische Karte des KTB-Umfeldes 1:50 000, 1991, Hrsg.: Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung, Bayerisches Geologisches Landesamt

Karlsruher Nuklidkarte.- Joseph Magill, Gerda Pfennig, Raymond Dreher, Zsolt Sóti; JRC-ITU, 8. Ausgabe, 2012

ANHANG A: Fußnoten

[1]) ^{223}Ra entsteht zu 98.6% aus dem α-Zerfall von ^{227}Th und zu 1.4% aus dem ß-Zerfall von ^{223}Fr. Die anderen drei Radium-Isotope entstehen dagegen jeweils zu 100% aus dem α-Zerfall der angegebenen Mutterisotope (vgl. ANONYM, 1984).

[2])Alle Radium- und Radonaktivitäten von Fluidproben sind in der Einheit Bq/kg bzw. mBq/kg angegeben. Die der Literatur entnommenen Werte wurden der Übersicht wegen ebenfalls in *Bq/kg* bzw. *Bq/l* (da hier nicht immer nachvollziehbar war ob, ein l Probe einem kg entsprach) umgerechnet. Bei Radon-Proben aus der freien Entgasung von Fluiden gilt die Einheit *Bq/l Gas*. Die Bq-Einheit von Radon das aus der Aufbereitung von Wasserproben stammt, wird ebenfalls auf das Gewicht der Probe in kg bezogen.

Umrechnung:

1 Bq (Bequerel)	entspricht 1 Zerfall pro Sekunde im zeitlichen Mittel
1 Ci (Curie)	entspricht 37 GBq (Gigabequerel),
- " -	entspricht der Aktivität von 1 g Radium
1 nCi	entspricht 37 Bq
1 Bq	entspricht 27 pCi
1 Mache-Einheit	entspricht 0.364 nCi
1 nCi	entspricht 2.75 Mache-Einheiten
1 Mache-Einheit	entspricht 13.468 Bq
1 Bq	entspricht 0.07425 Mache-Einheiten

Die Anzahl N der Kerne nimmt beim radioaktiven Zerfall exponentiell mit der Zeit ab. Das Zerfallsgesetz für radioaktive Quellen beschreibt den Zusammenhang zwischen der Anzahl N und der Zeit t (vgl. z.B. BRÖCKER, 1989).
Wenn lambda die Umwandlungskonstante mit der Einheit 1/s ist, dann ist die Anzahl der Umwandlungen pro Sekunde und damit die Anzahl von Bequerels (Zerfällen pro Sekunde) eine Ansammlung von N Atomen, ausgedrückt durch lambda N. Besteht die radioaktive Quelle aus einer großen Anzahl N von Atomen, dann zerfallen im statistischen Mittel während des Zeitintervalls dt die Anzahl N lambda dt von Kernen. Um diese Zahl nimmt N im Zeitintervall dt ab (daher ein Minuszeichen).

Die Halbwertszeit $t_{\frac{1}{2}}$ bezeichnet den Zeitraum, in dem etwa die Hälfte der ursprünglich vorhandenen Kerne zerfallen.
τ ist die Lebensdauer des Nuklids und reziprok zu lambda.

$$N_t = N_0 * e^{-t/\tau}$$

N_t = Anzahl der Kerne nach der Zeit t
N_0 = Anzahl der Kerne zur Zeit t=0
τ = Lebensdauer des Nuklids = 1.443 mal die Halbwertszeit $t_{\frac{1}{2}}$
$t_{\frac{1}{2}}$ = 1/lambda

Wenn man von einem Gewicht des Radionuklids von 1 g ausgeht, dann kann die Anzahl der Atome durch die Formel

$$N = \frac{6.03*10^{23} \text{ Atome/mol}}{\text{A g/mol}}$$

ermittelt werden. A ist das Atomgewicht des Isotops.
$6.03*10^{23}$ ist die Avogadro-Konstante[3].

Die Aktivität pro Gewichtseinheit oder die spezifische Aktivität SA ist damit (CEMBER, 1983):

$$SA = \text{lambda } N = \frac{\text{lambda}*6.03*10^{23}}{A} \text{ Bq/g}$$

[3] Gleiche Volumina enthalten bei gleichem Druck und gleicher Temperatur die gleiche Anzahl von Molekülen; also hat auch die Proportionalitätskonstante für alle idealen Gase den gleichen Wert: pV = RT, R=universelle Gaskonstante, T=273.15 K, p=1atm (=101325 Pa), $V=(22.41383\pm70*10^{-5})dm^3*mol^{-1}$=>R=1.9859cal/k*mol

[4] Der Verteilungskoeffizient $K = c_f/c_l$, wobei c_f die Konzentration des Gases in der Flüssigkeit und c_l die Konzentration des Gases in der Luft ist.
K=0.25 bedeutet z.B., daß 100 Bq Rn/kg in der Gasphase sind wenn 25 Bq Rn/kg in der Flüssigphase sind.

[5] Die Begriffe *Aquifer* und *Grundwasserleiter* sind nicht als bedeutungsgleich anzusehen.
Nach *Hölting* (1989) handelt es sich bei diesen Begriffen nicht um Synonyma, weshalb auf den in der englischen Literatur verwendeten Begriff Aquifer -entsprechend der Neufassung der DIN 4049- hier verzichtet wurde. Der Begriff *Aquifergestein* wird jedoch synonym für "Gestein des Grundwasserleiters" gebraucht.

[6] Da es keine einheitliche Verwendung der Termini *Grundwasser* und *Fluid* in der Literatur gibt, werden in dieser Arbeit beide Begriffe nebeneinander verwendet. In der hydraulischen Fachliteratur, wo nicht nur die Eigenschaften von Grundwasser zur Sprache kommen, wird bevorzugt der neutralere Begriff *Fluid* verwendet. In der hydrogeologischen Fachliteratur -so auch hier- wird dieser Begriff für Grundwässer mit erhöhter Mineralisation (>≈2000mg/l) verwendet, um die mit steigender Mineralisation sich stärker ändernden physikalischen Eigenschaften der Grundwässer zu berücksichtigen.

[7] Die elektrische Leitfähigkeit eines Wassers hängt unmittelbar mit dessen Ionengehalt zusammen, d.h. sie ist abhängig von Konzentration und Dissoziationsgrad der gelösten Elektrolyte, deren elektrochemischer Wertigkeit, von der Ionenbeweglichkeit und der Temperatur (vgl. z.B. HÜTTER, 1979). Ihr Zahlenwert in der Einheit µS/cm entspricht angenähert dem gelösten Feststoffgehalt in mg/l (vgl. z.B. HÖLTING, 1989).

[8] Im Schnitt beträgt die normale *geothermische Tiefenstufe* 3°C pro 100 m, d.h., daß die Temperatur der Erdkruste -und damit auch des Grundwassers- sich mit steigender Tiefe um diesen Wert erhöht. Bei sog. durch unterschiedliche gesteinsspezifische Wärmeflüsse bedingte *Temperaturanomalien* ist dieser normale Faktor erhöht oder erniedrigt.

9) Das Verhältnis der Radium-Isotope ^{224}Ra und ^{228}Ra zueinander wurde mittels Teilen der jeweiligen Meßergebnisse ($^{224}Ra/^{228}Ra$), die Berechnung des Fehlers dieses Verhältnisses mittels der Fehlerfortpflanzung bestimmt. Die entsprechende Formel für die Fehlerfortpflanzung lautet

$$\text{Delta } f = k * \sqrt{\left(\frac{\text{Delta } ^{224}Ra}{^{228}Ra}\right)^2 + \left(\frac{^{224}Ra}{(^{228}Ra)^2} \text{ Delta } ^{228}Ra\right)^2}$$

wobei f= Fehler $^{224}Ra/^{228}Ra$

k= Vertrauensintervall, hier 2σ

Bei sich ändernden Ra-Aktivitäten im Verlauf von Pumpversuchen wurden jeweils der absolute und der relative Fehler berechnet. Sie sind in den Tabellen durch Schrägstriche voneinander getrennt. In den Abbildungen sind immer die relativen Fehler angegeben.

ANHANG B: Tabellen

Tab. 1: Die drei natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen. (Nach ANONYM, 1984 und KARLSRUHER NUKLIDKARTE, 1974, verändert)

Nuklid	Historischer Name	Halbwertszeit	Zerfallsart α	ß	τ
^{238}U	Uranium I	$4.51*10^9$ a	x		
^{234}Th	Uranium X_1	24.1 d		x	x
^{234}Pa	Uranium X_2	1.17 m		x	x
^{234}U	Uranium II	$2.47*10^5$ a	x		x
^{230}Th	Ionium	$8*10^4$ a	x		x
^{226}Ra	Radium	1602 a	x		x
^{222}Rn	Emanation Radon (Rn)	3.823 d	x		x
^{218}Po ┐	Radium A	3.05 m	x	x	
^{214}Pb |	Radium B	26.8 m		x	x
^{218}At	Astatin	2 s	x		
^{214}Bi ┐	Radium C	19.7 m	x	x	x
^{214}Po |	Radium C'	164 µs	x		x
^{210}Tl	Radium C''	1.3 m		x	x
^{210}Pb	Radium D	21 a	x	x	x
^{210}Bi ┐	Radium E	5.01 d	x	x	
^{210}Po |	Radium F	138.4 d	x		x
^{206}Tl	Radium E''	4.19 m		x	
^{206}Pb	Radium G	stabil			

Fortsetzung Tab. 1:

Nuklid	Historischer Name	Halbwertszeit	Zerfallsart α	ß	τ
^{235}U	Actinouranium	$7.1*10^{8}$ a	x		x
^{231}Th	Uranium Y	25.5 h		x	x
^{231}Pa	Protoactinium	$3.25*10^{4}$ a	x		x
^{227}Ac	Actinium	21.6 a	x	x	x
^{227}Th	Radioactinium	18.2 d	x		x
^{223}Fr	Aktinium K	22 m	x	x	x
^{223}Ra	Aktinium X	11.43 d	x		x
^{219}Rn	Emanation Actinon (An)	4.0 s	x		x
^{215}Po	Actinium A	1.78 ms	x	x	
^{211}Pb	Actinium B	36.1 m		x	x
^{215}At	Astatin	0.1 ms	x		
^{211}Bi	Actinium C	2.15 m	x	x	x
^{211}Po	Actinium C'	0.52 s	x		x
^{207}Tl	Actinium C''	4.79 m		x	x
^{207}Pb	Actinium D	stabil			

Fortsetzung Tab. 1:

Nuklid	Historischer Name	Halbwertszeit	Zerfallsart α	ß	τ
^{232}Th	Thorium	$1.41*10^{10}$ a	x		
^{228}Ra	Mesothorium I	6.7 a		x	
^{228}Ac	Mesothorium II	6.13 h		x	x
^{228}Th	Radiothorium	1.91 a	x		x
^{224}Ra	Thorium X	3.64 d	x		x
^{220}Rn	Emanation Thoron (Tn)	55 s	x		x
^{216}Po	Thorium A	0.15 s	x		
^{212}Pb	Thorium B	10.64 h		x	x
^{212}Bi	Thorium C	60.6 m	x	x	x
^{212}Po	Thorium C'	304 ns	x		
^{208}Tl	Thorium C''	3.10 m		x	x
^{208}Pb	Thorium D	stabil			

Tab. 2: Chemisch-physikalische Daten von Radium (Nach HOLLEMANN, 1985 u. Handbook of Chemistry and Physics, 56th Edition, 1975-76, ergänzt)

Aussehen d. Metalls: silberweiß-metallisch
Molgewicht: 226.0254
Kristallgitter: kubisch-raumzentriert
Dichte: 5.5 g/cm^3
Schmelzpunkt: 700 °C
Siedepunkt: 1140°C
Sbl.-Enthalpie: +159kJ/mol
Atomradius: 2.23 Å
Ionenradius E^{2+}: 1.37 Å*)
Elektronegativität: 0.97
Normalpot. E/E^{2+}: -2916 V
1. Ionisierungsenergie: 5.277 eV
2. Ionisierungsenergie: 10.144 eV
ECl_2-Enthalpie EH_2: -859.1 kJ/mol
EO-Enthalpie EH_2: -523 kJ/mol
Hydrat.-Enthalpie E^{2+}: -1231 kJ/mol
Basenstärke der Hydroxide: größer als bei Ba
Löslichkeit der Hydroxide: größer als bei Ba
Löslichkeit der Sulfate: kleiner als bei Ba
Löslichkeit der Karbonate: kleiner als bei Ba
Beständigkeit der Karbonate: größer als bei Ba
Beständigkeit der Nitrate: größer als bei Ba
Löslichkeit in kaltem Wasser:
Andere Lösungsmittel:

*) Nach SHANNON (1976) beträgt der Ionenradius von Radium 1.48 bzw. 1.70 Å.

Fortsetzung Tab. 2:

Molgewicht von $RaBr_2$: 385.82
Dichte von $RaBr_2$: 5.79
Schmelzpunkt von $RaBr_2$: 728°C
Siedepunkt von $RaBr_2$: subl. 900°C
Molgewicht von $RaCl_2$: 296.9
Dichte von $RaBr_2$: 4.91
Schmelzpunkt von $RaBr_2$: 1000°C
Molgewicht von $RaCl_2*2H_2O$: 332.94
" " $RaBr_2*2H_2O$: 421.85
" " $RaCO_3$: 286.01
" " $Ra(IO_3)_2$: 575.81
" " $Ra(NO_3)_2$: 350.01
" " $RaSO_4$: 322.06

spez. Aktivität von ^{226}Ra: $3.7 * 10^{10}$ Bq/g
spez. Aktivität von ^{228}Ra: $1.01 * 10^{12}$ Bq/g
spez. Aktivität von ^{224}Ra: $5.92 * 10^{14}$ Bq/g
spez. Aktivität von ^{223}Ra: $1.89 * 10^{14}$ Bq/g
Halbwertszeit $t_{1/2}$ von ^{226}Ra: 1620 a
Halbwertszeit $t_{1/2}$ von ^{228}Ra: 5.7 a
Halbwertszeit $t_{1/2}$ von ^{224}Ra: 3.6 d
Halbwertszeit $t_{1/2}$ von ^{223}Ra: 10.4 d

Tab. 3: Thermodynamische Daten für verschiedene Ra-Spezies nach LANGMUIR & RIESE, 1985 (bei 25°C und 1 bar), und BARD et al. (Hrsg.)

LANGMUIR & RIESE, 1985:			
$RaOH^+$:	log K (assoc) =	0.5	Delta H^0 (assoc) = 1.1
$RaCl^+$:	log K (assoc) =	-0.1	Delta H^0 (assoc) = 0.5
$RaCO_3^0$:	log K (assoc) =	2.5	Delta H^0 (assoc) = 1.07
$RaSO_4^0$:	log K (assoc) =	2.75	Delta H^0 (assoc) = 1.3
$RaCO_3$(c):	log Ksp =	-8.3	Delta H^0 (dissoc) = -2.8
$RaSO_4$(c):	log Ksp =	-10.26	Delta H^0 (dissoc) = -9.4
(kcal/mol)			

BARD et al. (Hrsg)

Formel	Zustand	Delta H kJ/mol	Delta G kJ/mol	S°/J mol^{-1} K^{-1}
Ra	gasförmig	159	130	176.36
	fest	0	0	71
Ra^+	gasförmig	674.54		
Ra^{2+}	gasförmig	1659.80		
	wässrig*)	-527.6	-561.5	54
RaO	fest	-523		
$RaCl_2$	fest			139
	wässrig	-861.9	-823.8	167
$RaCl_2*2H_2O$	fest	-1464	-1302.9	213
$Ra(IO_3)_2$	fest	-1026.8	-868.6	272
$RaSO_4$	fest	-1471.1	-1365.6	138
	wässrig	-1436.8	-1306.2	75
$Ra(NO)_3$	fest	-992	-796.2	222
	wässrig	-942.2	-784.1	347

Potentiale: $Ra^{2+} + 2e^- \rightarrow Ra$ -0.59 mV/K

$RaO + 2H^+ + 2e^- \rightarrow$ E° = -1.39 V

$Ra^{2+} + 2e^- \rightarrow Ra$ E° = -2.916 V

+2 0

Ra^{2+} -2.916 V -> Ra

RaO -1.319 V -> Ra

*) wässrig= in wässriger 1 molarer Lösung

Tab. 4: Physikalische Daten von Radon (Nach HOLLEMANN, 1985):

Synonyme: Niton, Radium-Emanation
Molgewicht: 222.00
Kristallgitter: kubisch-flächenzentriert
Dichte: 9.73 g/l (Gas)
Dichte: 4.4 (flüssig)
Dichte: 4.0 (fest)
Schmelzpunkt: -71.1°C*)
Siedepunkt: -62.1°C*)
Ionisierungsenergie: 10.747 eV
kritische Temperatur: 104.5°C
kritischer Druck: 63 bar
kritische Dichte: 1.2 g/cm^3
spez. Aktivität von ^{222}Rn: $5.73*10^{14}$ Bq/g
Halbwertszeit $t_{\frac{1}{2}}$ von ^{222}Rn: 3.8 d

*) Radon geht bei -62.1°C vom gasförmigen in den flüssigen Zustand über und ist dann 4.4 mal schwerer als H_2O. Bei -71.1°C verfestigt es sich zu einer brillierend gelb-orangen phosphoriszierenden Masse.

Tab. 5: Umwandlungsprodukte des amorphen Eisen(III)-Hydroxides in einer $NaHCO_3$- bzw. einer NH_4Cl/NH_3-Pufferlösung bei Anwesenheit von Cystein und Mn. Nach CORNELL et al., 1990.
pH=8, Temp. = 70°C

Cystein (M)	Mol % Mn	Produkte bei $NaHCO_3$-Puffer
0	0	i.w. Hämatit, in Spuren Goethit
10^{-3}	0	Hämatit
$2*10^{-3}$	0	Goethit
0	9	Hämatit, etw. Goethit, Rhodochrosit
0	33	Hämatit, Rhodochrosit, Manganit
$2*10^{-3}$	9-50	Hämatit, Rhodochrosit, Manganit
$4*10^{-3}$	9-50	Goethit, Rhodochrosit, Manganit
		Produkte bei NH_4Cl/NH_3-Puffer
0	0	90% Hämatit, 10% Goethit
0	9	70% Hämatit, 30% Goethit
$2*10^{-3}$	9	80% Hämatit, 20% Goethit
$2*10^{-3}$	23-33	Goethit, Hausmannit

Tab. 6: *Freundlich*- und *Freundlich-ähnliche* Konstanten für die Adsorption von Radium an Eisenhydroxide. Aus: AMES et al. (1983).

Lösungstyp	Temperatur °C	$x/m=KC^n$ K	n	r	S_y*x (ln-Einheiten)
NaCl	25	0.099773	0.775948	0.9996	±0.0609
NaCl	60	0.152836	0.910189	0.9990	±0.1491
		$x/m=LC_I^m$ K	n	r	S_y*x (ln-Einheiten)
NaCl	25	0.770547	0.945511	0.9986	±0.1225
NaCl	60	0.139857	0.917793	0.9977	±0.2224

Tab. 7: Zerfall des ^{224}Ra nach der Formel $N_t=N_0*e^{-t/\tau}$ 2) , wenn keine Nachbildung von ^{224}Ra durch Mutterisotope erfolgt.

Zeit(d)	Zeit(h)	N_0=100	N_0=90	N_0=80	N_0=70	No=60	No=50	No=40	No=30	No=20
0.000	0	100.000	90.000	80.000	70.000	60.000	50.000	40.000	30.000	20.000
0.042	1	99.201	89.281	79.361	69.441	59.521	49.601	39.680	29.760	19.840
0.083	2	98.409	88.568	78.727	68.886	59.045	49.204	39.363	29.523	19.682
0.125	3	97.622	87.860	78.098	68.336	58.573	48.811	39.049	29.287	19.524
0.167	4	96.843	87.158	77.474	67.790	58.106	48.421	38.737	29.053	19.369
0.208	5	96.069	86.462	76.855	67.248	57.641	48.034	38.428	28.821	19.214
0.250	6	95.301	85.771	76.241	66.711	57.181	47.651	38.121	28.590	19.060
0.292	7	94.540	85.086	75.632	66.178	56.724	47.270	37.816	28.362	18.908
0.333	8	93.785	84.406	75.028	65.649	56.271	46.892	37.514	28.135	18.757
0.375	9	93.036	83.732	74.429	65.125	55.821	46.518	37.214	27.911	18.607
0.417	10	92.292	83.063	73.834	64.605	55.375	46.146	36.917	27.688	18.458
0.458	11	91.555	82.400	73.244	64.089	54.933	45.778	36.622	27.467	18.311
0.500	12	90.824	81.741	72.659	63.577	54.494	45.412	36.329	27.247	18.165
0.542	13	90.098	81.088	72.078	63.069	54.059	45.049	36.039	27.029	18.020
0.583	14	89.378	80.441	71.503	62.565	53.627	44.689	35.751	26.814	17.876
0.625	15	88.664	79.798	70.931	62.065	53.199	44.332	35.466	26.599	17.733
0.667	16	87.956	79.160	70.365	61.569	52.774	43.978	35.182	26.387	17.591
0.708	17	87.253	78.528	69.803	61.077	52.352	43.627	34.901	26.176	17.451
0.750	18	86.556	77.901	69.245	60.589	51.934	43.278	34.623	25.967	17.311
0.792	19	85.865	77.278	68.692	60.105	51.519	42.932	34.346	25.759	17.173
0.833	20	85.179	76.661	68.143	59.625	51.107	42.589	34.072	25.554	17.036
0.875	21	84.498	76.049	67.599	59.149	50.699	42.249	33.799	25.350	16.900
0.917	22	83.823	75.441	67.059	58.676	50.294	41.912	33.529	25.147	16.765
0.958	23	83.154	74.838	66.523	58.208	49.892	41.577	33.261	24.946	16.631
1.000	24	82.489	74.240	65.992	57.743	49.494	41.245	32.996	24.747	16.498
1.042	25	81.830	73.647	65.464	57.281	49.098	40.915	32.732	24.549	16.366
1.083	26	81.177	73.059	64.941	56.824	48.706	40.588	32.471	24.353	16.235
1.167	28	79.885	71.896	63.908	55.919	47.931	39.942	31.954	23.965	15.977
1.250	30	78.614	70.752	62.891	55.030	47.168	39.307	31.445	23.584	15.723
1.417	34	76.131	68.518	60.905	53.292	45.679	38.066	30.453	22.839	15.226
1.583	38	73.728	66.355	58.982	51.609	44.237	36.864	29.491	22.118	14.746
1.750	42	71.400	64.260	57.120	49.980	42.840	35.700	28.560	21.420	14.280

Tab. 7: Fortsetzung

Zeit(d)	Zeit(h)	N_0=100	N_0=90	N_0=80	N_0=70	No=60	No=50	No=40	No=30	No=20
2.000	48	68.045	61.241	54.436	47.632	40.827	34.023	27.218	20.414	13.609
2.167	52	65.897	59.307	52.717	46.128	39.538	32.948	26.359	19.769	13.179
2.333	56	63.816	57.434	51.053	44.671	38.290	31.908	25.526	19.145	12.763
2.500	60	61.801	55.621	49.441	43.261	37.081	30.901	24.720	18.540	12.360
2.708	65	59.372	53.434	47.497	41.560	35.623	29.686	23.749	17.811	11.874
2.917	70	57.038	51.334	45.630	39.926	34.223	28.519	22.815	17.111	11.408
3.125	75	54.795	49.316	43.836	38.357	32.877	27.398	21.918	16.439	10.959
3.333	80	52.641	47.377	42.113	36.849	31.585	26.321	21.057	15.792	10.528
3.542	85	50.572	45.515	40.458	35.400	30.343	25.286	20.229	15.172	10.114
3.750	90	48.584	43.726	38.867	34.009	29.150	24.292	19.434	14.575	9.717
3.958	95	46.674	42.007	37.339	32.672	28.004	23.337	18.670	14.002	9.335
4.167	100	44.839	40.355	35.871	31.388	26.904	22.420	17.936	13.452	8.968
4.583	110	41.383	37.245	33.107	28.968	24.830	20.692	16.553	12.415	8.277
5.000	120	38.194	34.374	30.555	26.736	22.916	19.097	15.277	11.458	7.639
5.417	130	35.250	31.725	28.200	24.675	21.150	17.625	14.100	10.575	7.050
5.833	140	32.533	29.280	26.026	22.773	19.520	16.266	13.013	9.760	6.507
6.250	150	30.025	27.023	24.020	21.018	18.015	15.013	12.010	9.008	6.005
6.667	160	27.711	24.940	22.169	19.398	16.627	13.856	11.084	8.313	5.542
7.500	180	23.604	21.244	18.883	16.523	14.162	11.802	9.442	7.081	4.721
8.333	200	20.106	18.095	16.085	14.074	12.063	10.053	8.042	6.032	4.021
9.167	220	17.126	15.413	13.701	11.988	10.275	8.563	6.850	5.138	3.425
10.000	240	14.588	13.129	11.670	10.211	8.753	7.294	5.835	4.376	2.918
10.833	260	12.426	11.183	9.940	8.698	7.455	6.213	4.970	3.728	2.485
11.667	280	10.584	9.526	8.467	7.409	6.350	5.292	4.234	3.175	2.117
12.500	300	9.015	8.114	7.212	6.311	5.409	4.508	3.606	2.705	1.803
14.583	350	6.037	5.433	4.829	4.226	3.622	3.018	2.415	1.811	1.207
16.667	400	4.042	3.638	3.234	2.830	2.425	2.021	1.617	1.213	0.808
18.750	450	2.707	2.436	2.165	1.895	1.624	1.353	1.083	0.812	0.541
20.833	500	1.813	1.631	1.450	1.269	1.088	0.906	0.725	0.544	0.363
25.000	600	0.813	0.731	0.650	0.569	0.488	0.406	0.325	0.244	0.163
29.167	700	0.364	0.328	0.292	0.255	0.219	0.182	0.146	0.109	0.073
33.333	800	0.163	0.147	0.131	0.114	0.098	0.082	0.065	0.049	0.033
37.500	900	0.073	0.066	0.059	0.051	0.044	0.037	0.029	0.022	0.015

Tab. 8: $^{224}Ra/^{228}Ra$-Isotopenverhältnisse nach der Zeit t, bei einem $^{224}Ra/^{228}Ra$-Startverhältnis von 1. Dieses Verhältnis ist nur abhängig von der Zeit, nicht vom Anfangsgehalt und da es dem prozentualen Anteil der verbliebenen ^{224}Ra-Atome nach der Zeit t entspricht, kann es für alle Anfangsverhältnisse angewandt werden. Es wird berechnet nach: $Q_{A(t)} = A_t/A_0$, wobei Q_A dem Ausgangs-Isotopenverhältnis, A_t der Aktivität zum Zeitpunkt t und A_0 der Aktivität zum Ausgangs-Zeitpunkt entspricht.

t(d)	t(h)	$^{224}Ra/^{228}Ra$	t(d)	t(h)	$^{224}Ra/^{228}Ra$	t(d)	t(h)	$^{224}Ra/^{228}Ra$
0.000	0.000	1.000	1.000	24.000	0.825	6.250	150.000	0.300
0.042	1.000	0.992	1.042	25.000	0.818	6.667	160.000	0.277
0.083	2.000	0.984	1.083	26.000	0.812	7.500	180.000	0.236
0.125	3.000	0.976	1.167	28.000	0.799	8.333	200.000	0.201
0.167	4.000	0.968	1.250	30.000	0.786	9.167	220.000	0.171
0.208	5.000	0.961	1.417	34.000	0.761	10.000	240.000	0.146
0.250	6.000	0.953	1.583	38.000	0.737	10.833	260.000	0.124
0.292	7.000	0.945	1.750	42.000	0.714	11.667	280.000	0.106
0.333	8.000	0.938	2.000	48.000	0.680	12.500	300.000	0.090
0.375	9.000	0.930	2.167	52.000	0.659	14.583	350.000	0.060
0.417	10.000	0.923	2.333	56.000	0.638	16.667	400.000	0.040
0.458	11.000	0.916	2.500	60.000	0.618	18.750	450.000	0.027
0.500	12.000	0.908	2.708	65.000	0.594	20.833	500.000	0.018
0.542	13.000	0.901	2.917	70.000	0.570	25.000	600.000	0.008
0.583	14.000	0.894	3.125	75.000	0.548	29.167	700.000	0.004
0.625	15.000	0.887	3.333	80.000	0.526	33.333	800.000	0.002
0.667	16.000	0.880	3.542	85.000	0.506	37.500	900.000	0.001
0.708	17.000	0.873	3.750	90.000	0.486			
0.750	18.000	0.866	3.958	95.000	0.467			
0.792	19.000	0.859	4.167	100.000	0.448			
0.833	20.000	0.852	4.583	110.000	0.414			
0.875	21.000	0.845	5.000	120.000	0.382			
0.917	22.000	0.838	5.417	130.000	0.352			
0.958	23.000	0.832	5.833	140.000	0.325			

Tab. 9a: Ergebnisübersicht der radiometrischen und isotopenhydrologischen Untersuchungen aller entnommenen Grundwasserproben

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H$-2	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		%mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
RegensburgThurn&Taxis	03.09.1990	0,197	0,043		3,80	1,70	-81,2	-1,41	<3	
Pechbrunn Silvana I 1	26.03.1990	0,197	0,063	0,083		1,3				
Pechbrunn Silvana I 2	26.03.1990	0,116	0,043	0,06	23,8					
Pechbrunn Silvana I 3	26.03.1990	0,077	0,029	0,048	56	1,3				
Pechbrunn Silvana I 4	30.03.1990	0,039	0,018	0,029	43	1,4				
Pechbrunn Silvana I 5	04.04.1990	0,031	0,017	0,035	18,7					
Pechbrunn Silvana I 6	24.04.1990	0,041	0,021	0,033	71	<1,0				
Pechbrunn Silvana I 7	03.05.1990	0,032	0,015	0,025						
Pechbrunn Silvana alt A	24.03.1988	0,007	0,017	0,013		12,3				-3
Pechbrunn Silvana alt B	02.10.1985				615					
Pechbrunn Silvana alt C	15.01.1986									
Pechbrunn Silvana alt O	22.03.1990	0,017	0,011	0,017	488	12,2				
Pechbrunn Silvana alt 1	26.03.1990	0,017	0,011	0,019		8,2				
Pechbrunn Silvana alt 2	26.03.1990	0,017	0,011	0,057	343	11,2				
Pechbrunn Silvana alt 3	26.03.1990	0,017	0,011	0,018	520	9,8				
Pechbrunn Silvana alt 4	30.03.1990	0,017	0,011	0,018	459	11,4				
Pechbrunn Silvana alt 5	04.04.1990	0,016	0,01	0,02	287					
Pechbrunn Silvana alt 6	24.04.1990	0,017	0,011	0,019	222	8,2				
Pechbrunn Silvana alt 7	03.05.1990	0,016	0,01	0,011						
Pechbrunn Silvana alt 8	29.06.1990	0,018	0,011	0,056	121	8,8	-69,7	-9,99		
Pechbrunn St. Linus A	24.03.1988	0,026	0,026	0,031		19				-3,2
Pechbrunn St. Linus B	02.10.1985	0,019	0,019		709					
Pechbrunn St. Linus C	15.01.1986	0,008			3,3					
Pechbrunn St. Linus O	22.03.1990	0,041	0,047	0,051	490	21,9				
Pechbrunn St. Linus 1	04.04.1990	0,039	0,052	0,039	271					
Pechbrunn St. Linus 2	24.04.1990	0,043	0,047	0,055	192	18,2				
Pechbrunn St. Linus 3	03.05.1990	0,048	0,052	0,07						
Pechbrunn St. Linus 4	29.06.1990	0,039	0,04	0,043	359	22,8	-69,9	-10,2		
Pechbrunn neu	03.08.1990	0,029	0,019	0,033		<1,0				
Pechbrunn Silvana II 1	07.10.1991	0,008	0,014	0,024	75					
Pechbrunn Silvana II 2	23.11.1991	0,005	0,009	0,021						
Pechbrunn Silvana II 3	23.11.1991	0,006	0,011	0,031						
Pechbrunn Silvana II 4	27.11.1991	0,006	0,01	0,02						
Pechbrunn Silvana II 5	10.01.1991	0,004	0,007	0,014						

Fortsetzung Tab. 9a:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H$-2	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		% mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Karlsbad HJ 2 A	12.05.1990	0,257	0,13		15,3	4,1	-69,2	-10,5		-2,3
Karlsbad HJ 2 B	13.05.1990	0,317	0,178	0,148	18	3	-68,5	-10,11		-1,7
Karlsbad HJ 2 C	14.05.1990	0,339	0,197	0,176						
Karlsbad BJ 36	13.05.1990	2,69	0,498	0,545	10	0,4	-70,9	-10,5		-1,6
Cham Brunnen 4	07.06.1990	0,013	0,01	0,011	2,8	22,8	-71,8	-10,11	55	-21,8
Cham Brunnen 1	06.06.1990				11,8	13,6	-68,9	-9,84	51	-22,7
Erzgebirge Sadisdorf3	26.07.1990	0,002	0,005	0,004						
Erzgebirge Bielatal S	26.07.1990	0,004	0,009	0,013		19,7				
Dammfuß Schneckenstein	27.07.1990	0,32	0,02	0,024		23,1				
Menzenschwand 240m 1	06.06.1990	0,116								
Menzenschwand 240m2	06.06.1990	0,136	0,008	0,012	54					
Menzenschwand 240m	17.10.1990				78,1					
Menzenschwand 0mWas	22.10.1990				56,8					
Menzenschwand 0mWer	22.10.1990				8,2					
Menzenschwand 240mRol	22.10.1990				3,2					
Blickweiler	20.06.1989	0,03	0,027	0,031	9,6					
Straubing Thermalwasser	19.08.1990	0,049		0,028	3,9	<1	-81,5	-11,6		-3,8
Straubing Thermalwasser	27.09.1990	0,052	0,041							
Kellerhaus 1	15.10.1990	0,015	0,021	0,023	12	13		-9,71		
Kellerhaus 2	15.10.1990	0,014	0,018	0,024	14,9	16,2		-9,7		
Kellerhaus 3	15.10.1990	0,013	0,019	0,021	14,8	14,8		-9,75		
Kellerhaus 4	19.10.1990	0,012	0,013			13,2		-9,74		
Südschwarzwald EF 1	26.11.1990	0,111	0,008	0,012	932	30,5				
Südschwarzwald EF 6	26.11.1990	0,005	0,002	0,002	140	44,9				
Südschwarzwald DF 1	26.11.1990	0,001	0,001	0,001	94,5	28,1				
Südschwarzwald MF 2	26.11.1990	0,006	0,007	0,011	529	27,3				
Südschwarzwald IF 4	27.11.1990	0,02	0,034	0,026	530	32,9				
Südschwarzwald IF 5	27.11.1990	0,001	0,002	0,001	206	23				
Südschwarzwald MT 2	27.11.1990	0,015	0,011	0,007		4				
Ohlsbach	09.05.1977									
Kehl Marlen 1	12.11.1990	0,115	0,162	0,174	5,2	0,3	-71,9	-10,14		
Kehl Marlen 2	12.11.1990	0,028	0,025	0,022	13,5	0,6	-57,1	-8,32		
Kehl Marlen 3	12.11.1990	0,01	0,018	0,019	10,1	3,1	-58,9	-8,38		-14
Kehl Marlen 4	12.11.1990	0,004	0,009	0,012	6,8	31,6	-68,8	-9,62		
Kehl Marlen 5	12.11.1990	0,005	0,01	0,013	6,7	34,2	-69,7	-9,75		

Fortsetzung Tab. 9a:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H-2$	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		% mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Bad Säckingen Frid	27.04.1988	1,87	0,94	0,55		4,8	-65,6	-8,49	5	-12,2
Bad Säckingen Bad	27.04.1988	0,023	0,004	0,006		29,3	-66,5	-9,19	28	-13,6
Bayreuth 1	19.11.1990	0,034	0,056	0,047						
Bayreuth 2	20.11.1990	0,039	0,064	0,055						
Bayreuth 3	23.11.1990	0,038	0,063	0,056	17,6	<1		-10,44		-15,4
Bayreuth 4	24.11.1990	0,037	0,064	0,055						
Bayreuth 5	11.06.1991	0,04	0,064	0,057	19,8					
Geinberg	12.06.1990	0,084	0,016	0,021	10,5	1,4	-78,7	-10,73		
Altheim Thermalquelle	11.06.1990	0,014	0,016	0,022	5,3	1,2	-82,7	-10,2		
KTB-VB 3450 m	07.11.1988	1,09	1,02							
KTB-VB 3985 m	12.05.1989	2,74	16,7							
KTB-VB 3930 m	13.05.1989	2,54	17,6							
KTB-VB 3985 m	12.05.1989	2,74	16,7							
KTB-VB 3930 m	17.05.1989	2,64	17,4	11,2						
KTB-VB Pumpversuch 1 a	10.04.1990	1,9	12,2	9,2						
KTB-VB Pumpversuch 1 b	10.04.1990	2,2	11,4	9,7						
KTB-VB Pumpversuch 1 c	11.04.1990	2,4	8,5	7						
KTB Sampler	12.04.1990	2,14	6,9	5,82						
KTB Sampler	12.04.1990	2,22	9,96	5,38						
KTB-VB Pumpversuch 2 a	30.09.1991	1,93	5,47	2,63						
KTB-VB Pumpversuch 2 b	02.10.1991	1,9	5,02	1,9						
KTB-VB Pumpversuch 2 c	07.10.1991	1,88	4,56	1,75						
KTB-VB Pumpversuch 2 d	27.11.1991	2,21	3,31	2,57						
KTB-VB Pumpversuch 2 e	17.12.1991	2,38	3,46	2,87						
Sibyllenbad A 1	12.08.1986	0,13	0,22	0,28	270					
Sibyllenbad A 2/4	15.11.1988	0,24	0,29	0,216						
Sibyllenbad T 11	15.11.1988	0,213	0,03	0,02		12,1				-20,1
Sibyllenbad T 15	27.03.1987	0,47	0,045	0,059	4000					
Sibyllenbad T 17	16.06.1989	0,456	0,044	0,041	3754	6,6				-18,4
Sibyllenbad C 1	06.11.1986	0,45	0,94	0,64	188,7					
Sibyllenbad C 2	16.06.1987	0,48	0,94	0,629						
Sibyllenbad D	14.07.1987				520					
Sibyllenbad B	12.03.1987				296,7					
Sibyllenbad E 1	15.10.1987	0,56	0,85	0,77	44,4					

Fortsetzung Tab. 9a:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H$-2	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		% mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Sibyllenbad E 3	16.06.1989	0,328	0,54	0,52	119					-4,9
Sibyllenbad E 4	15.11.1988	0,07	0,11	0,11	468	13,5				
Sibyllenbad F 1	02.02.1988				699,2					
Sibyllenbad F 2	23.03.1988	0,055	0,021	0,02	362,6	2,5				
Sibyllenbad G 1	21.06.1988				260,6					
Sibyllenbad G 2	20.07.1988				70,9					
Sibyllenbad G 3	01.09.1988	0,028	0,035	0,072	53	13,9				-7,4
Sibyllenbad G 4	05.09.1988	0,058	0,079	0,105	85					-6,4
Sibyllenbad Muglbach	16.06.1987	0,008		0,004						
Sibyllenbad M 51	11.12.1970				176,5					
Sibyllenbad M 52	17.12.1970				189,1					
Sibyllenbad M 53	05.05.1982				133,2					
Sibyllenbad M 54					240,5					
Sibyllenbad M 55	16.06.1987	0,126	0,242	0,123						
Sibyllenbad M 56	23.06.1989	0,42	1,08	1,01	270	<1				-5,6
Sibyllenbad M 57	23.06.1989	0,389	0,73	0,74	344	2,2				-5,3
Weiden Geo 1	29.05.1989	0,025	0,01	0,015						
Weiden Geo 2	29.05.1989	0,058	0,02	0,036						
Weiden Geo 3	10.10.1989	0,002	0,002	0,002	10,6	0,4				
Weiden Geo 4	10.10.1989	0,004	0,005	0,004	10,6	0,6				
Weiden Geo 5	06.09.1989	0,007	0,003	0,008	4,4					
Weiden Geo 6	06.09.1989	0,005	0,004	0,006	4,4					
Weiden Geo 7	06.12.1989	0,008	0,007	0,005	18	0	-72,5	-10,28		-10
Weiden Geo 625	10.10.1989	0,062								
Weiden Geo 850	10.10.1989	0,044								
Weiden Geo 1040	10.10.1989	0,041								
Weiden Geo 1215	10.10.1989	0,131								
Weiden Brunnen 17	05.09.1989	0,024	0,028	0,039	28					
Weiden Brunnen 22	05.09.1989	0,07	0,03	0,036	67					
Kondrau Antonienquelle 1	05.10.1988	0,128	0,233	0,338		1,1				-2,8
Kondrau Antonienquelle 2	15.01.1986	0,17	0,23		208					
Kondrau Bayernquelle 1	20.09.1967				78,4					
Kondrau Bayernquelle 2	18.01.1988	0,064	0,075		166					
Kondrau Prinz Ludwig 1	20.09.1967				148					
Kondrau Prinz Ludwig 4	29.11.1988	0,082		0,084						

Fortsetzung Tab. 9a:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H$-2	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		% mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Kondrau Neubohrung 1	15.06.1989	0,52	0,86	0,76	215	<1				-4,4
Kondrau Neubohrung 2	22.06.1989	0,52	0,87	0,76	345	<1				-4,8
Kondrau Neubohrung 3	18.07.1989	0,51	0,86	0,76	349					
Wiesau König Otto 1	08.07.1957				63,3					
Wiesau König Otto 3	02.06.1987	0,029	0,018		164					
Wiesau König Otto 4	13.11.1985	0,006	0,005							
Wiesau Neue Otto 1	25.07.1957				63,3					
Wiesau Neue Otto 2	13.11.1985	0,006	0,02		75					
Mitterteich Hösl 2	20.10.1989	0,003	0,004	0,006	17,5	<1	-65,9	-9,34	52,4	-14,2
Mitterteich M 2	06.09.1989	0,004	0,004	0,003	61	1,70				
Bad Alexandersbad 1					269,4					
Bad Alexandersbad 2					289,7					
Bad Alexandersbad 3	18.08.1989	0,14	0,333	0,4	48					
Krummennaab Porz 2	26.07.1989	0,005	0,012	0,015	21,6	23,7				-3,8
Höllensprudel 1	24.05.1983				2					
llensprudel 2	22.05.1989	0,001	0,002	0,005	7,9					
Höllensprudel Prinzenquelle 1	24.05.1983				5,7					
Falkenberg Sauerbrunnen	23.06.1989				515					
Falkenberg HB 4 A 1	08.11.1988	0,057	0,032	0,054	784	22,3				-24,3
Falkenberg HB 4 A 3	08.11.1988	0,056	0,034	0,054		21,1				-24,3
Falkenberg S 3	08.09.1988	0,84	0,504	0,49	1168					
Erbendorf Rotliegend 1	09.11.1988	0,032	0,024	0,052						
Poppenreuth 3	16.11.1988	0,003	0,003	0,002	115					
Hirschau Brunnen 11	25.02.1988	0,055	0,034	0,036						
Hirschau Brunnen 21	25.02.1988	0,075	0,029	0,032		31				
Neumarkt Gl Br	26.09.1988	0,147	0,073	0,062						
Neumarkt Gl 91	04.01.1991	0,164	0,082	0,075	4,6		-70,9	-9,94		
Neumarkt Lammbräu	04.08.1989	0,123	0,084	0,075						
Neumarkt Lammbräu	14.10.1991									
Bad Steben Marienquelle 1	16.08.1989	0,025	0,05	0,058	5,2					
Bad Steben Neu W 1	16.08.1989	0,129	0,043	0,028	68					
Bad Steben Tempelquelle	16.08.1989	0,143	0,006	0,006	1645					
Bad Steben Jean Paul Quelle	20.09.1989	0,168	0,031	0,023	13					
Weiherhammer Q 2	08.09.1989	0,007	0,008	0,011	27					
Schierling Hausbrunnen	12.06.1990	0,045	0,08	0,077	4		-78,8	-10,63		-13,4

Fortsetzung Tab. 9a:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H-2$	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		% mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Riehen 2	01.02.1989	0,79	0,142	0,158		<1	-70,3	-9,52	<3	-10,1
Riehen 1	02.03.1989	2,89	0,62	0,389		<1	-69,9	-9,56	<3	-12,2
Hechts B1/70	05.05.1986	0,002	0,009			42,6	-64,3	-9,24	82	-14,7
Hechts B1/120	05.05.1986	0,06	0,37		40	22,7	-62	-9,07		
Schönm. B2/70	06.05.1986	<0,008	<0,03			3,9	-64,5	-9,29	22	-15,4
Schönm. B2/120	06.05.1986	<0,013	<0,09			<1	-64,4	-9,32		
Kunkle B4/120	07.05.1986	<0,005	0,007		1,7	26,7	-77,2	-11,09		
Etters B5/70 A	07.05.1986	<0,003	<0,015			32,8				
Etters B5/70 B	07.05.1986	0,009	0,008		65	33,3	-69,5	-9,96	65	-16,7
Etters B5/120	07.05.1986	<0,003	<0,015			33,4	-71,7	-10,24		
Geschas B6/50	06.05.1986	0,017	<0,013			46,5	-64,5	-9,29	67	-15,6
Wiesenfeld 4 a	23.03.1991	0,003	0,005	0,011						
Wiesenfeld 4 b	26.03.1991	0,003	0,004	0,005						
Wiesenfeld 4 1	02.04.1991	0,004	0,005	0,011	23					
Wiesenfeld 4 2	02.04.1991	0,003	0,005	0,008	27,4					
Wiesenfeld 4 3	02.04.1991	0,003	0,005	0,007	26,4					
Wiesenfeld 4 4	05.04.1991	0,003	0,004	0,005						
Wiesenfeld 4 5	12.04.1991	0,003	0,004	0,006						
Bruchsal GB 1	25.08.1989	23,5	12,4	9,3	18	<1	-38,1	-3		
Bruchsal GB 1	11.09.1986	24,3	13,2	10,3	18	<1	-38,8	-2,96		-5,8
Bruchsal GB 1	26.10.1986	23,4	12,3	9,9		<1	-38,6	-2,93		-5,6
Bruchsal GB 2	25.03.1985					<1	-35,5	-2,99		-6,2
Waren GTWA 1	04.06.1991	3,73	2,36	1,9	6,6	<1	-32,2	-3,25	<3	-11,8
Neubrandenburg	04.06.1991	5,24	4,38	3,38	10	<1	-34,8	-3,87	<3	-11,6
Eckersdorf 1	07.10.1991	0,007	0,009	0,018	9,8					
Eckersdorf 2	07.10.1991	0,006	0,009	0,015	5,8					
Eckersdorf 3	07.10.1991	0,007	0,009	0,017	0					
Eckersdorf 4	08.10.1991	0,007	0,01	0,016						
Eckersdorf 5	11.10.1991	0,008	0,01	0,016	9,5					
Glattfelden 1	01.10.1991	0,002	0,002	0,002	8,1					
Glattfelden 2	17.02.1992	0,002	0,001	0,002	8,4					
Dylan/CR	10.06.1991	0,017	0,005	0,004	78					

Fortsetzung Tab. 9a:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	^{3}H	$\delta^{2}H$-2	$\delta^{18}O$	^{14}C	$\delta^{13}C$
		Bq/kg				TU	‰		% mod.	‰
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Creussen 1	01.07.1991	0,021	0,016	0,021	20,3					
Creussen 2	15.07.1991	0,022	0,017	0,023	23,5					
Creussen 3	15.07.1991	0,02	0,015	0,021	27,7					
Creussen 4	15.07.1991	0,019	0,015	0,02	23,2					
Creussen 5	17.07.1991	0,018	0,016	0,022						
Creussen 6	21.07.1991	0,018	0,015	0,019						
Creussen 7	23.07.1991	0,018	0,013	0,018	30					
Bad Waldsee 1	28.07.1991					3,2	-80,3	-11,35		
Bad Waldsee 2	04.08.1991	0,14	0,043	0,091	1,4	<1,0				
Bad Waldsee 3	09.08.1991					<1,0		-11,26	<3,0	-0,9
Wellenberg	04.08.1991				2,6					
Aqui-I	13.12.1990	0,002	0,004	0,004	11,7	<1,0	-86,2	-11,86	4,2	-4,8
Aqui-II	13.12.1990	0,003	0,003	0,003	8,1	<1,0	-90,9	-12,42	1,3	-4,5
Geißingen 6-9	28.10.1991	0,013	0,018	0,019	3,7					
Geisingen 6-9	28.10.1991	0,012	0,019	0,019						
Geisingen 6-9	28.10.1991	0,012	0,02	0,02	6,6					
Geisingen 12-15	30.10.1991	0,009	0,014	0,015	2,8					
Geisingen 12-15	30.10.1991	0,009	0,015	0,015						
Geisingen 12-15	30.10.1991	0,009	0,015	0,013	4,8					
Geisingen 15-18	29.10.1991	0,009	0,017	0,02	2,7					
Geisingen 15-18	29.10.1991	0,009	0,018	0,021						
Geisingen 15-18	29.10.1991	0,009	0,019	0,019	5,5					
Kochendorf	15.04.1991	6,25	2,55	3,1		<1,0	-58,1	-8,51	32,8	-7,6
Treuchtling 1	28.01.1992	0,262	0,122	0,109						
Treuchtling 2	28.01.1992	0,111	0,059	0,052						
Treuchtling 3	28.01.1992	0,108	0,059	0,052						
Treuchtling 4	29.01.1992	0,121	0,069	0,058						
Treuchtling 5	29.01.1992	0,111	0,058	0,054						
Treuchtling 6	29.01.1992	0,122	0,068	0,058						
Nakriobstudn	28.01.1991	0,004	0,005	0,005						
Nakri 41	28.01.1991	0,011	0,013	0,013						
Nakri 52	28.01.1991	0,011	0,021	0,011						
Mape K9	28.01.1991	0,096	0,071	0,036						
Nakri 79	28.01.1991	0,01	0,008	0,01						
Mape K1	28.01.1991	0,573	0,022	0,011						
Mydlovary B6	28.01.1991	0,02	0,009	0,014						

Tab. 9b: Vor-Ort-Messungen an den entnommenen Grundwasserproben. Leitf. = spez.el.Leitfäigkeit, T = Wassertemperatur, Redox-Pot. = Redoxpotential

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf. µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
RegensburgThurn&Taxis	03.09.1990	7,24	789	14,4	0	284
Pechbrunn Silvana I 1	26.03.1990	5,5	851	9,3		
Pechbrunn Silvana I 2	26.03.1990	5,33	751	9,9		
Pechbrunn Silvana I 3	26.03.1990	5,36	543	9,9	0	
Pechbrunn Silvana I 4	30.03.1990	5,14	383	9,8	0	
Pechbrunn Silvana I 5	04.04.1990	5,26	372	9,9	0	
Pechbrunn Silvana I 6	24.04.1990	4,71	332	9,7	0	
Pechbrunn Silvana I 7	03.05.1990	5,34	326	10,1		
Pechbrunn Silvana alt A	24.03.1988	5	246	8,7		352
Pechbrunn Silvana alt B	02.10.1985					
Pechbrunn Silvana alt C	15.01.1986					
Pechbrunn Silvana alt O	22.03.1990	4,98	222	8,9	0	
Pechbrunn Silvana alt 1	26.03.1990	4,9	245			
Pechbrunn Silvana alt 2	26.03.1990	4,91	228			
Pechbrunn Silvana alt 3	26.03.1990	4,93	251	8,7	0	
Pechbrunn Silvana alt 4	30.03.1990	5,05	227	8,7	0	
Pechbrunn Silvana alt 5	04.04.1990	5,05	246	8,7	0,4	
Pechbrunn Silvana alt 6	24.04.1990	4,93	226	9,9	0	
Pechbrunn Silvana alt 7	03.05.1990	5,48	250	9		
Pechbrunn Silvana alt 8	29.06.1990	4,41	170	9,2		
Pechbrunn St. Linus A	24.03.1988	4,88	160	8,5		311
Pechbrunn St. Linus B	02.10.1985					
Pechbrunn St. Linus C	15.01.1986					
Pechbrunn St. Linus O	22.03.1990	4,88	154	8,5	0	
Pechbrunn St. Linus 1	04.04.1990	5,04	128	8,4	0	
Pechbrunn St. Linus 2	24.04.1990	4,75	147	8,7	0	
Pechbrunn St. Linus 3	03.05.1990	5,44	177	8,9		
Pechbrunn St. Linus 4	29.06.1990	4,36	127	8,7		
Pechbrunn neu	03.08.1990					
Pechbrunn Silvana II 1	07.10.1991	5,18	297	9,8	0	127
Pechbrunn Silvana II 2	23.11.1991					
Pechbrunn Silvana II 3	23.11.1991					
Pechbrunn Silvana II 4	27.11.1991					
Pechbrunn Silvana II 5	10.01.1991					

Fortsetzung Tab. 9b:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf. µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
Karlsbad HJ 2 A	12.05.1990	6,1	4430	22,5	0	41
Karlsbad HJ 2 B	13.05.1990	6,2	5080	23,2	0	137
Karlsbad HJ 2 C	14.05.1990					
Karlsbad BJ 36	13.05.1990	6,75	8600	72,7	0	101
Cham Brunnen 4	07.06.1990	5,24	93	9,7	0,3	
Cham Brunnen 1	06.06.1990		97	10,2	2,7	
Erzgebirge Sadisdorf 3	26.07.1990					
Erzgebirge Bielatal S	26.07.1990	6,79	360	8,8	8	
Dammfuß Schneckenstein	27.07.1990					
Menzenschwand 240 m 1	06.06.1990					
Menzenschwand 240 m 2	06.06.1990					
Menzenschwand 240 m	17.10.1990					
Menzenschwand 0 m Was	22.10.1990					
Menzenschwand 0 m Wer	22.10.1990					
Menzenschwand 240 m Rol	22.10.1990					
Blickweiler	20.06.1989					
Straubing Thermalwasser	19.08.1990	7,45	1820	35,7		
Straubing Thermalwasser	27.09.1990					
Kellerhaus 1	15.10.1990	7,33	417	10,1	6	269
Kellerhaus 2	15.10.1990	7,56	415	10,1	5	310
Kellerhaus 3	15.10.1990	7,33	416	10,2	6	303
Kellerhaus 4	19.10.1990	7,36	433	8,8		
Südschwarzwald EF 1	26.11.1990	7,7	382	10,1	0,9	246
Südschwarzwald EF 6	26.11.1990	7,6	264	12,4	1,8	529
Südschwarzwald DF 1	26.11.1990	5,8	121	9,2	10,6	472
Südschwarzwald MF 2	26.11.1990	6,9	122	8,3	10,8	472
Südschwarzwald IF 4	27.11.1990	8,4	167	19	0,6	442
Südschwarzwald IF 5	27.11.1990	6,4	53	6,6	10,5	488
Südschwarzwald MT 2	27.11.1990	8	286	11,3	1,2	50
Ohlsbach	09.05.1977	6,5	18607	13,6	0,7	
Kehl Marlen 1	12.11.1990	6,3	3110	14,8	0,7	
Kehl Marlen 2	12.11.1990	7	1000	14,2	0,9	
Kehl Marlen 3	12.11.1990	7,4	1032	12,5	0,6	
Kehl Marlen 4	12.11.1990	7,2	794	12,1	0,6	
Kehl Marlen 5	12.11.1990	7,3	784	11,4	0,5	

Fortsetzung Tab. 9b:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf. µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
Bad Säckingen Frid	27.04.1988	6,61	11560	24,9	0	-16
Bad Säckingen Bad	27.04.1988	6,5	5920	29,4	0,6	380
Bayreuth 1	19.11.1990					
Bayreuth 2	20.11.1990					
Bayreuth 3	23.11.1990	7,52	272	31	1,8	
Bayreuth 4	24.11.1990					
Bayreuth 5	11.06.1991					
Geinberg	12.06.1990	7,64				
Altheim Thermalquelle	11.06.1990	8,7	1120			
KTB-VB 3450 m	07.11.1988					
KTB-VB 3985 m	12.05.1989					
KTB-VB 3930 m	13.05.1989					
KTB-VB 3985 m	12.05.1989					
KTB-VB 3930 m	17.05.1989					
KTB-VB Pumpversuch 1 a	10.04.1990					
KTB-VB Pumpversuch 1 b	10.04.1990					
KTB-VB Pumpversuch 1 c	11.04.1990					
KTB Sampler	12.04.1990					
KTB Sampler	12.04.1990					
KTB-VB Pumpversuch 2 a	30.09.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 b	02.10.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 c	07.10.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 d	27.11.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 e	17.12.1991					
Sibyllenbad A 1	12.08.1986	6,66	638	12,4	5,3	
Sibyllenbad A 2/4	15.11.1988	6,8	585	9,6		-40
Sibyllenbad T 11	15.11.1988	6,4	210	8,1	0,3	
Sibyllenbad T 15	27.03.1987					
Sibyllenbad T 17	16.06.1989					
Sibyllenbad C 1	06.11.1986	6,19	1930	11	1,6	
Sibyllenbad C 2	16.06.1987					
Sibyllenbad D	14.07.1987	6,62	784	12,1		
Sibyllenbad B	12.03.1987	6,89	896	10,6		
Sibyllenbad E 1	15.10.1987	6,06	2400	12,6		
Sibyllenbad E 3	16.06.1989					

Fortsetzung Tab. 9b:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf. µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
Sibyllenbad E 4	15.11.1988					
Sibyllenbad F 1	02.02.1988	6,05	2200	9		
Sibyllenbad F 2	23.03.1988	6,57	230	12,3		
Sibyllenbad G 1	21.06.1988	6,46	1515	10,3		
Sibyllenbad G 2	20.07.1988	7,22	1950	10,6		
Sibyllenbad G 3	01.09.1988	6,6	1664	10,8		120
Sibyllenbad G 4	05.09.1988					
Sibyllenbad Muglbach	16.06.1987					
Sibyllenbad M 51	11.12.1970	6,18	2530	8,7		
Sibyllenbad M 52	17.12.1970	6,2	2460	8,7		
Sibyllenbad M 53	05.05.1982	5,99	5582	11		44
Sibyllenbad M 54		6,08	5030	11		-80
Sibyllenbad M 55	16.06.1987					
Sibyllenbad M 56	23.06.1989					
Sibyllenbad M 57	23.06.1989					
Weiden Geo 1	29.05.1989					
Weiden Geo 2	29.05.1989					
Weiden Geo 3	10.10.1989					
Weiden Geo 4	10.10.1989					
Weiden Geo 5	06.09.1989					
Weiden Geo 6	06.09.1989					
Weiden Geo 7	06.12.1989	8,51	1066	22,7	0	56
Weiden Geo 625	10.10.1989					
Weiden Geo 850	10.10.1989					
Weiden Geo 1040	10.10.1989					
Weiden Geo 1215	10.10.1989					
Weiden Brunnen 17	05.09.1989					
Weiden Brunnen 22	05.09.1989					
Kondrau Antonienquelle 1	05.10.1988	5,93	991	11,9	0,1	292
Kondrau Antonienquelle 2	15.01.1986					
Kondrau Bayernquelle 1	20.09.1967	5,5		10,4		
Kondrau Bayernquelle 2	18.01.1988	6	439	9,8		332
Kondrau Prinz Ludwig 1	20.09.1967	5,8		9,8		
Kondrau Prinz Ludwig 4	29.11.1988					
Kondrau Neubohrung 1	15.06.1989	5,99	1470	12		

Fortsetzung Tab. 9b:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf.µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
Kondrau Neubohrung 2	22.06.1989					
Kondrau Neubohrung 3	18.07.1989					
Wiesau König Otto 1	08.07.1957	5,3		8,3		
Wiesau König Otto 3	02.06.1987	5,22			0,1	
Wiesau König Otto 4	13.11.1985					
Wiesau Neue Otto 1	25.07.1957	5,3		8,3		
Wiesau Neue Otto 2	13.11.1985					
Mitterteich Hösl 2	20.10.1989	6,1	278	11,4	0	408
Mitterteich M 2	06.09.1989					
Bad Alexandersbad 1						
Bad Alexandersbad 2						
Bad Alexandersbad 3	18.08.1989					
Krummennaab Porz 2	26.07.1989					
Höllensprudel 1	24.05.1983	5,76	1053	14,2	0	20
Höllensprudel 2	22.05.1989					
Höllensprudel Prinzenquelle 1	24.05.1983	5,83	953	11,9		74
Falkenberg Sauerbrunnen	23.06.1989					
Falkenberg HB 4 A 1	08.11.1988	6,07	239	10,9		
Falkenberg HB 4 A 3	08.11.1988	5,7	240			
Falkenberg S 3	08.09.1988	6,46	1366	8,9		240
Erbendorf Rotliegend 1	09.11.1988	8,3	220	7,3		
Poppenreuth 3	16.11.1988					215
Hirschau Brunnen 11	25.02.1988					
Hirschau Brunnen 21	25.02.1988					
Neumarkt Gl Br	26.09.1988					50
Neumarkt Gl 91	04.01.1991	7,23	382	11,8	0	
Neumarkt Lammbräu	04.08.1989					
Neumarkt Lammbräu	14.10.1991					
Bad Steben Marienquelle 1	16.08.1989					
Bad Steben Neu W 1	16.08.1989					
Bad Steben Tempelquelle	16.08.1989					
Bad Steben Jean Paul Quelle	20.09.1989					
Weiherhammer Q 2	08.09.1989					
Schierling Hausbrunnen	12.06.1990	7,36	496	10,4	0,1	

Fortsetzung Tab. 9b:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf. µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
Riehen 2	01.02.1989					
Riehen 1	02.03.1989					
Hechts B1/70	05.05.1986	7,9	387	14,3	8,4	
Hechts B1/120	05.05.1986	6,8	6600	15	0,2	
Schönm. B2/70	06.05.1986	7,77	1370	14,7	0	
Schönm. B2/120	06.05.1986	7,83	2090	15,4	0,3	
Kunkle B4/120	07.05.1986	8,33	143	10,7	0,8	
Etters B5/70 A	07.05.1986	6,8	118	9	9,3	
Etters B5/70 B	07.05.1986					
Etters B5/120	07.05.1986		101	8,7	9,7	
Geschas B6/50	06.05.1986	7,06	128	10,7	10,3	
Wiesenfeld 4 a	23.03.1991					
Wiesenfeld 4 b	26.03.1991					
Wiesenfeld 4 1	02.04.1991	6,84	877	10,7	6	
Wiesenfeld 4 2	02.04.1991	6,81	874	10,6	6,1	
Wiesenfeld 4 3	02.04.1991	6,83	850	10,3	6	
Wiesenfeld 4 4	05.04.1991					
Wiesenfeld 4 5	12.04.1991	7,05	929	9,9	6,7	
Bruchsal GB 1	25.08.1989					
Bruchsal GB 1	11.09.1986					
Bruchsal GB 1	26.10.1986					
Bruchsal GB 2	25.03.1985	6,2	120600	94	0	
Waren GTWA 1	04.06.1991	5,95	170000	60,4	0	
Neubrandenburg	04.06.1991	6,02	145000	53,4	0	
Eckersdorf 1	07.10.1991	7,32	157	17,1	6	430
Eckersdorf 2	07.10.1991	7,46	157	17,2		306
Eckersdorf 3	07.10.1991	7,28	149	17		
Eckersdorf 4	08.10.1991					
Eckersdorf 5	11.10.1991	6,7	120	16,1	8	
Glattfelden 1	01.10.1991					
Glattfelden 2	17.02.1992					
Dylan/CR	10.06.1991					

Fortsetzung Tab. 9b:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	pH-Wert	Leitf. µS/cm	T °C	O2 mg/l	Redox mV
1	2	3	4	5	6	7
Creussen 1	01.07.1991					
Creussen 2	15.07.1991	6,62	238	12,8	8	
Creussen 3	15.07.1991	6,69	243	13,1	9,9	
Creussen 4	15.07.1991	6,81	241	13,7	8,5	
Creussen 5	17.07.1991					
Creussen 6	21.07.1991					
Creussen 7	23.07.1991					
Bad Waldsee 1	28.07.1991	6,1	10200	51	0	
Bad Waldsee 2	04.08.1991					
Bad Waldsee 3	09.08.1991	6,9	2150	67,1	0	
Wellenberg	04.08.1991					
Aqui-I	13.12.1990	8,7	1160	23,2	0	
Aqui-II	13.12.1990	8,8	1080	21,5	0	
Geißingen 6-9	28.10.1991	6,93	1140	10,2	0	164
Geisingen 6-9	28.10.1991	6,94	901	9,4	0	171
Geisingen 6-9	28.10.1991	9,96	880	9,3	0	169
Geisingen 12-15	30.10.1991	7,17	1278	10	0	158
Geisingen 12-15	30.10.1991		1139	10,6	0	121
Geisingen 12-15	30.10.1991	7,14	1103	10	0	114
Geisingen 15-18	29.10.1991	7,55	1753		0	
Geisingen 15-18	29.10.1991				0	
Geisingen 15-18	29.10.1991	7,43	1842		0	
Kochendorf	15.04.1991	7	21200	20	0	
Treuchtling 1	28.01.1992					
Treuchtling 2	28.01.1992					
Treuchtling 3	28.01.1992					
Treuchtling 4	29.01.1992					
Treuchtling 5	29.01.1992					
Treuchtling 6	29.01.1992					
Nakriobstudn	28.01.1991					
Nakri 41	28.01.1991					
Nakri 52	28.01.1991					
Mape K9	28.01.1991					
Nakri 79	28.01.1991					
Mape K1	28.01.1991					
Mydlovary B6	28.01.1991					

Tab. 9c: Kationengehalte der untersuchten Grundwasserproben

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
RegensburgThurn&Taxis	03.09.1990									
Pechbrunn Silvana I 1	26.03.1990	21,6	4,52	<0,04	89,1	52,7	0,401	0,178	80,6	
Pechbrunn Silvana I 2	26.03.1990	20,2	3,57	<0,04	57,3	34	0,311	0,288	67,5	
Pechbrunn Silvana I 3	26.03.1990	18,9	2,78	<0,04	26,8	20,7	0,201	0,038	46,4	
Pechbrunn Silvana I 4	30.03.1990	17,9	2,08	<0,04	30,2	21,6	0,151	0,024	32	
Pechbrunn Silvana I 5	04.04.1990	17,4	2,28	<0,04	26,1	19			20,7	
Pechbrunn Silvana I 6	24.04.1990	16,2	1,71	<0,04	26,8	18,2	0,144	0,039	22,2	
Pechbrunn Silvana I 7	03.05.1990	16,7	1,94	<0,04	19,1	15,2			19,4	
Pechbrunn Silvana alt A	24.03.1988	11,9	1,5		19,3	10,8			15,3	
Pechbrunn Silvana alt B	02.10.1985									
Pechbrunn Silvana alt C	15.01.1986									
Pechbrunn Silvana alt O	22.03.1990	12,3	1,46	<0,04	19,6	11,2	0,13	0,013	12	
Pechbrunn Silvana alt 1	26.03.1990	12,7	1,59	<0,04	18,8	8,9	1,157	0,014	12,2	
Pechbrunn Silvana alt 2	26.03.1990	12,7	1,49	<0,04	18,2	8,4	0,175	0,015	12,2	
Pechbrunn Silvana alt 3	26.03.1990	12,6	1,49	<0,04	19,6	8,5	0,144	0,017	10,9	
Pechbrunn Silvana alt 4	30.03.1990	12,7	1,47	<0,04	19,8	10,1	0,129	0,018	10,7	
Pechbrunn Silvana alt 5	04.04.1990	12,5	1,44	<0,04	20	8,2			10	
Pechbrunn Silvana alt 6	24.04.1990	12,5	1,4	<0,04	19,6	9	0,164	0,023	10	
Pechbrunn Silvana alt 7	03.05.1990	12,5	1,43	<0,04	18,3	8,9				
Pechbrunn Silvana alt 8	29.06.1990	13,5	1,5		18	8,5	0,13	0,013	9,5	
Pechbrunn St. Linus A	24.03.1988	9,7	1,1		10,4	6,1			5,9	
Pechbrunn St. Linus B	02.10.1985									
Pechbrunn St. Linus C	15.01.1986									
Pechbrunn St. Linus O	22.03.1990	10,1	1,12	<0,04	11,2	6,8	0,096	0,014	4,3	
Pechbrunn St. Linus 1	04.04.1990	9,4	0,94	<0,04	11,2	6,7			4,1	
Pechbrunn St. Linus 2	24.04.1990	9,6	0,92	<0,04	12	5,7	0,088	0,009	3,94	
Pechbrunn St. Linus 3	03.05.1990	10,4	1,19	<0,04	11,5	4,6			4,7	
Pechbrunn St. Linus 4	29.06.1990	9,6	1		10	5,4	0,07	0,009	3,89	
Pechbrunn neu	03.08.1990									
Pechbrunn Silvana II 1	07.10.1991									
Pechbrunn Silvana II 2	23.11.1991									
Pechbrunn Silvana II 3	23.11.1991									
Pechbrunn Silvana II 4	27.11.1991									
Pechbrunn Silvana II 5	10.01.1991									

Fortsetzung Tab. 9c:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Karlsbad HJ 2 A	12.05.1990	1070	62	0,7	40,2	138	5,6	0,066	41,3	1,57
Karlsbad HJ 2 B	13.05.1990	1105	59	0,56	39	140	5,6	0,09	43,5	1,53
Karlsbad HJ 2 C	14.05.1990									
Karlsbad BJ 36	13.05.1990	1800	89	0,46	128	48,1	3,83	0,096	10,9	0,086
Cham Brunnen 4	07.06.1990	2,1	2,6		9,3	2	<0,05	0,016		0,064
Cham Brunnen 1	06.06.1990	2,8	1,8		14,5	1,4	<0,05	0,022	2	0,03
Erzgebirge Sadisdorf 3	26.07.1990									
Erzgebirge Bielatal S	26.07.1990			<0,05						
Dammfuß Schneckenstein	27.07.1990									
Menzenschwand 240m 1	06.06.1990									
Menzenschwand 240m 2	06.06.1990									
Menzenschwand 240m	17.10.1990									
Menzenschwand 0m Was	22.10.1990									
Menzenschwand 0m Wer	22.10.1990									
Menzenschwand 240m Rol	22.10.1990									
Blickweiler	20.06.1989									
Straubing Thermalwasser	19.08.1990	395	12	0,51	27	9,9				
Straubing Thermalwasser	27.09.1990									
Kellerhaus 1	15.10.1990	11	3		50	25,4	1,547	0,506	0,064	0,002
Kellerhaus 2	15.10.1990	11,5	3,5		50,5	24,9	1,526	0,61	0,074	0,005
Kellerhaus 3	15.10.1990	14	3,5		50,5	25,4	1,565	0,62	0,109	0,005
Kellerhaus 4	19.10.1990	12,8	2,5	<0,02	40,8	28,6			0,02	0
Südschwarzwald EF 1	26.11.1990									
Südschwarzwald EF 6	26.11.1990									
Südschwarzwald DF 1	26.11.1990									
Südschwarzwald MF 2	26.11.1990									
Südschwarzwald IF 4	27.11.1990									
Südschwarzwald IF 5	27.11.1990									
Südschwarzwald MT 2	27.11.1990									
Ohlsbach	09.05.1977	2891,3	252,6	1,79	593,7	34,4	20,5	0,09	1,83	0,055
Kehl Marlen 1	12.11.1990	421	28	0,6	166	41			4,6	0,56
Kehl Marlen 2	12.11.1990	93	6,8	0,3	93	20			1,4	0,33
Kehl Marlen 3	12.11.1990	120	5,5	0,2	63	16			0,45	0,46
Kehl Marlen 4	12.11.1990	51	3,9	0,5	88	15			0	0,33
Kehl Marlen 5	12.11.1990	53	4	0,15	95	13			0	0,26

Fortsetzung Tab. 9c:

Entnahmestelle	Entn.Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Bad Säckingen Frid	27.04.1988	2130	169	1,5	309	24,3			2,4	0,15
Bad Säckingen Bad	27.04.1988	1050	10	0	152	19,5			0	0
Bayreuth 1	19.11.1990									
Bayreuth 2	20.11.1990									
Bayreuth 3	23.11.1990	32,5	13,5		13,8	6				
Bayreuth 4	24.11.1990									
Bayreuth 5	11.06.1991									
Geinberg	12.06.1990	271	15	3	7,6	1,7			0,01	
Altheim Thermalquelle	11.06.1990	273	15,5	2	1,2	1			0,02	
KTB-VB 3450 m	07.11.1988									
KTB-VB 3985 m	12.05.1989	6880	220		16760	64	267			
KTB-VB 3930 m	13.05.1989	7010	230		17010	99	269			
KTB-VB 3985 m	12.05.1989	6300			16530	70	268			
KTB-VB 3930 m	17.05.1989	6520			16330	103	264			
KTB-VB Pumpversuch 1 a	10.04.1990									
KTB-VB Pumpversuch 1 b	10.04.1990									
KTB-VB Pumpversuch 1 c	11.04.1990									
KTB Sampler	12.04.1990									
KTB Sampler	12.04.1990									
KTB-VB Pumpversuch 2 a	30.09.1991									
KTB-VB Pumpversuch 2 b	02.10.1991									
KTB-VB Pumpversuch 2 c	07.10.1991									
KTB-VB Pumpversuch 2 d	27.11.1991									
KTB-VB Pumpversuch 2 e	17.12.1991									
Sibyllenbad A 1	12.08.1986	68,5	6,7	0,3	49,6	10,6			1,78	
Sibyllenbad A 2/4	15.11.1988	86,5	7,6		41	12,9			7,4	0,25
Sibyllenbad T 11	15.11.1988	8,5	1,8		6,5	2,6			0,015	0,14
Sibyllenbad T 15	27.03.1987									
Sibyllenbad T 17	16.06.1989									
Sibyllenbad C 1	06.11.1986	216,3	15,4	0,92	217,3	42,2			14,2	
Sibyllenbad C 2	16.06.1987									
Sibyllenbad D	14.07.1987	82,9	9,2	<0,04	65,2	15,3			21,2	
Sibyllenbad B	12.03.1987	125	8,47	<0,04	51,2	11,2			4,5	
Sibyllenbad E 1	15.10.1987	255	19,5	0,97	266,4	55			16	
Sibyllenbad E 3	16.06.1989									

Fortsetzung Tab. 9c:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Sibyllenbad E 4	15.11.1988									
Sibyllenbad F 1	02.02.1988	388,5	18,3	0,99	46,7	24,3			26,4	
Sibyllenbad F 2	23.03.1988	5,9	2,8	0,06	27,8	3,7			22,3	
Sibyllenbad G 1	21.06.1988	283	12,5		30,3	15,5			28,4	
Sibyllenbad G 2	20.07.1988	450	102,5		49,9	13,1			30	
Sibyllenbad G 3	01.09.1988	416	15,3		26,3	15,8			5,3	0,18
Sibyllenbad G 4	05.09.1988									
Sibyllenbad Muglbach	16.06.1987									
Sibyllenbad M 51	11.12.1970	570	in Na		71,1	45,6				
Sibyllenbad M 52	17.12.1970	570	in Na		120	in Ca				
Sibyllenbad M 53	05.05.1982	126	54		138,2	76,4			11,4	0,082
Sibyllenbad M 54		117,4	50,2	4,4	129,6	69,4	2,37		6,58	0,074
Sibyllenbad M 55	16.06.1987									
Sibyllenbad M 56	23.06.1989									
Sibyllenbad M 57	23.06.1989									
Weiden Geo 1	29.05.1989									
Weiden Geo 2	29.05.1989									
Weiden Geo 3	10.10.1989									
Weiden Geo 4	10.10.1989									
Weiden Geo 5	06.09.1989									
Weiden Geo 6	06.09.1989									
Weiden Geo 7	06.12.1989	235	2,14	0,07	10,9	4,2	1,02	0,023	0,34	
Weiden Geo 625	10.10.1989	640			100	9	0,8			
Weiden Geo 850	10.10.1989	780			90		0,6			
Weiden Geo 1040	10.10.1989	730			80		0,3			
Weiden Geo 1215	10.10.1989	740			90		0,3			
Weiden Brunnen 17	05.09.1989									
Weiden Brunnen 22	05.09.1989									
Kondrau Antonienquelle 1	05.10.1988	133,6	19		93,3	28,3			4,7	
Kondrau Antonienquelle 2	15.01.1986									
Kondrau Bayernquelle 1	20.09.1967	61,4	4,3		109,2	20,8	0,32		12,81	0,38
Kondrau Bayernquelle 2	18.01.1988	44,7	4,8		47,5	11,6			2,6	
Kondrau Prinz Ludwig 1	20.09.1967	130	15,2		89,8	28,8	0,45		2,65	0,12
KondrauPrinzLudwig 4	29.11.1988									
Kondrau Neubohrung 1	15.06.1989	100	15,2		192,1	30,3			5,2	

Fortsetzung Tab. 9c:

Entnahmestelle	Entn.Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Kondrau Neubohrung 2	22.06.1989									
Kondrau Neubohrung 3	18.07.1989									
Wiesau König Otto 1	08.07.1957	12,7	9,81	0,8	15,7	24,7			23,6	0,6
Wiesau König Otto 3	02.06.1987	24,9			43,2	33,1			15,6	
Wiesau König Otto 4	13.11.1985									
Wiesau Neue Otto 1	25.07.1957	33	11,5	7,04	49,3	35			38,35	1,45
Wiesau Neue Otto 2	13.11.1985									
Mitterteich Hösl 2	20.10.1989									
Mitterteich M 2	06.09.1989									
Bad Alexandersbad 1										
Bad Alexandersbad 2										
Bad Alexandersbad 3	18.08.1989									
Krummennaab Porz 2	26.07.1989									
Höllensprudel 1	24.05.1983	10,1	0,7	0,02	199,3	28,9	0,2	0,063	11,3	0,49
Höllensprudel 2	22.05.1989									
HöllensprudelPrinzenquelle1	24.05.1983	11,5	0,7	0,07	172	32,2	0,15		10,4	0,42
Falkenberg Sauerbrunnen	23.06.1989									
Falkenberg HB 4 A 1	08.11.1988	18,6	1,8		22,3	4,1			2,6	
Falkenberg HB 4 A 3	08.11.1988	18,2	1,9		24,3	4,2			0,5	
Falkenberg S 3	08.09.1988	238,5	6,3		84,1	5,2			3,3	
Erbendorf Rotliegend 1	09.11.1988	49,7	1,1		8,5	2,2			0,1	
Poppenreuth 3	16.11.1988	5,9	1,7		6,5	2,3			1,8	
Hirschau Brunnen 11	25.02.1988									
Hirschau Brunnen 21	25.02.1988									
Neumarkt Gl Br	26.09.1988									
Neumarkt Gl 91	04.01.1991			0,28					0,125	0,15
Neumarkt Lammbräu	04.08.1989									
Neumarkt Lammbräu	14.10.1991									
Bad Steben Marienquelle 1	16.08.1989									
Bad Steben Neu W 1	16.08.1989									
Bad Steben Tempelquelle	16.08.1989									
Bad Steben Jean Paul Quelle	20.09.1989									
Weiherhammer Q 2	08.09.1989									
Schierling Hausbrunnen	12.06.1990	5,4	1,3	0,05	67	34	0,44		0	0,04

Fortsetzung Tab. 9c:

Entnahmestelle	Entn.Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Riehen 2	01.02.1989									
Riehen 1	02.03.1989									
Hechts B1/70	05.05.1986	21,7	4	0,5	58,9	7			1,33	0,14
Hechts B1/120	05.05.1986	1287,4	1		545,1	1				
Schönm. B2/70	06.05.1986	137,5	0,9	<0,05	230,5	2,4			0,087	0,04
Schönm. B2/120	06.05.1986	190,5	13,3	<0,05	390,8	2,4			0,424	0,06
Kunkle B4/120	07.05.1986	3,5	2,1	<0,05	23,3	0,2			0,806	0,16
Etters B5/70 A	07.05.1986	4,4	0,6	0,05	21,6	2,1			0,56	0,17
Etters B5/70 B	07.05.1986									
Etters B5/120	07.05.1986	10,8			19,2					
Geschas B6/50	06.05.1986	6,7	1,8	0,05	18	4,6			2,92	0,04
Wiesenfeld 4 a	23.03.1991									
Wiesenfeld 4 b	26.03.1991									
Wiesenfeld 4 1	02.04.1991									
Wiesenfeld 4 2	02.04.1991									
Wiesenfeld 4 3	02.04.1991									
Wiesenfeld 4 4	05.04.1991									
Wiesenfeld 4 5	12.04.1991	6,5	1,8	0	143	28,6			0,008	0
Bruchsal GB 1	25.08.1989									
Bruchsal GB 1	11.09.1986									
Bruchsal GB 1	26.10.1986									
Bruchsal GB 2	25.03.1985	38150	3290	22,5	7775,5	322,9			65,49	25,62
Waren GTWA 1	04.06.1991	57650	264	30	2730	780	148	0,61	15,8	0,61
Neubrandenburg	04.06.1991	48850	243	26	2080	660	122	0,42	13,3	0,7
Eckersdorf 1	07.10.1991									
Eckersdorf 2	07.10.1991									
Eckersdorf 3	07.10.1991									
Eckersdorf 4	08.10.1991									
Eckersdorf 5	11.10.1991									
Glattfelden 1	01.10.1991									
Glattfelden 2	17.02.1992									
Dylan/CR	10.06.1991									
Creussen 1	01.07.1991									
Creussen 2	15.07.1991									
Creussen 3	15.07.1991									

Fortsetzung Tab. 9c:

Entnahmestelle	Entn.Dat.	mg/l								
		Na	K	NH_4	Ca	Mg	Sr	Ba	Fe	Mn
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Creussen 4	15.07.1991									
Creussen 5	17.07.1991									
Creussen 6	21.07.1991									
Creussen 7	23.07.1991									
Bad Waldsee 1	28.07.1991									
Bad Waldsee 2	04.08.1991									
Bad Waldsee 3	09.08.1991									
Wellenberg	04.08.1991									
Aqui-I	13.12.1990									
Aqui-II	13.12.1990	280		0,2	2,4	0,8				
Geißingen 6-9	28.10.1991									
Geisingen 6-9	28.10.1991									
Geisingen 6-9	28.10.1991									
Geisingen 12-15	30.10.1991									
Geisingen 12-15	30.10.1991									
Geisingen 12-15	30.10.1991									
Geisingen 15-18	29.10.1991									
Geisingen 15-18	29.10.1991									
Geisingen 15-18	29.10.1991									
Kochendorf	15.04.1991									
Treuchtling 1	28.01.1992									
Treuchtling 2	28.01.1992									
Treuchtling 3	28.01.1992									
Treuchtling 4	29.01.1992									
Treuchtling 5	29.01.1992									
Treuchtling 6	29.01.1992									
Nakriobstudn	28.01.1991									
Nakri 41	28.01.1991									
Nakri 52	28.01.1991									
Mape K9	28.01.1991									
Nakri 79	28.01.1991									
Mape K1	28.01.1991									
Mydlovary B6	28.01.1991									

Tab. 9d: Anionengehalte der untersuchten Grundwasserproben

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
RegensburgThurn&Taxis	03.09.1990				429,4	24,7
Pechbrunn Silvana I 1	26.03.1990	2,42	0,26	13,3	744	
Pechbrunn Silvana I 2	26.03.1990	2,11	0,31	12,2	537	
Pechbrunn Silvana I 3	26.03.1990	1,87	<0,04	9,71	323	1733,0
Pechbrunn Silvana I 4	30.03.1990	1,79	<0,04	9,43	307	2595,0
Pechbrunn Silvana I 5	04.04.1990	1,72	<0,5	10,3	256	1805,0
Pechbrunn Silvana I 6	24.04.1990	1,44	<0,5	10	248	2046,0
Pechbrunn Silvana I 7	03.05.1990	1,73	<0,5	8,06	213	2883,0
Pechbrunn Silvana alt A	24.03.1988	3,8		9,7	134	1837,0
Pechbrunn Silvana alt B	02.10.1985					
Pechbrunn Silvana alt C	15.01.1986					
Pechbrunn Silvana alt O	22.03.1990	2,0	<0,04	11,8	157	2144,0
Pechbrunn Silvana alt 1	26.03.1990	2,53	<0,04	11,7	144	
Pechbrunn Silvana alt 2	26.03.1990	2,38	0,12	11,7	138	
Pechbrunn Silvana alt 3	26.03.1990	2,68	0,16	11,6	141	2189,0
Pechbrunn Silvana alt 4	30.03.1990	2,16	<0,04	13	146	1546,0
Pechbrunn Silvana alt 5	04.04.1990	2,18	<0,5	11,7	140	1815,0
Pechbrunn Silvana alt 6	24.04.1990	2,2	<0,5	11,9	143	2076,0
Pechbrunn Silvana alt 7	03.05.1990					
Pechbrunn Silvana alt 8	29.06.1990	1,77	<0,5	11,1	139	1984,0
Pechbrunn St. Linus A	24.03.1988	3,7	0,7	20,4	67,1	1379,0
Pechbrunn St. Linus B	02.10.1985					
Pechbrunn St. Linus C	15.01.1986					
Pechbrunn St. Linus O	22.03.1990	2,31	<0,04	25,4	60	1547,0
Pechbrunn St. Linus 1	04.04.1990	1,52	<0,5	25,3	67,1	868,0
Pechbrunn St. Linus 2	24.04.1990	2,46	<0,5	22,5	67,1	1083,0
Pechbrunn St. Linus 3	03.05.1990	2,52	<0,5	19,4	67	1602,0
Pechbrunn St. Linus 4	29.06.1990	1,3	<0,5	21,1	61	847,5
Pechbrunn neu	03.08.1990					
Pechbrunn Silvana II 1	07.10.1991				177	1382,0

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
Pechbrunn Silvana II 2	23.11.1991					
Pechbrunn Silvana II 3	23.11.1991					
Pechbrunn Silvana II 4	27.11.1991					
Pechbrunn Silvana II 5	10.01.1991					
Karlsbad HJ 2 A	12.05.1990	412	<0,04	981	1641	665,3
Karlsbad HJ 2 B	13.05.1990	423	0,07	1089	1546	1002,0
Karlsbad HJ 2 C	14.05.1990					2420,0
Karlsbad BJ 36	13.05.1990	603	<0,04	1606	2371	148,3
Cham Brunnen 4	07.06.1990	2,9		17,7	24,7	51,5
Cham Brunnen 1	06.06.1990	4,1		28,1	280	
Erzgebirge Sadisdorf 3	26.07.1990					
Erzgebirge Bielatal S	26.07.1990	22	2,2		29,6	25,8
Dammfuß Schneckenstein	27.07.1990					
Menzenschwand 240 m 1	06.06.1990					
Menzenschwand 240 m 2	06.06.1990					
Menzenschwand 240 m	17.10.1990					
Menzenschwand 0 m Was	22.10.1990					
Menzenschwand 0 m Wer	22.10.1990					
Menzenschwand 240 m Rol	22.10.1990					
Blickweiler	20.06.1989					
Straubing Thermalwasser	19.08.1990	425,1	0,34	0,85	444,9	17,6
Straubing Thermalwasser	27.09.1990					
Kellerhaus 1	15.10.1990	4,3		32,0	246,2	5,9
Kellerhaus 2	15.10.1990	4,32		35,0	234,1	9,6
Kellerhaus 3	15.10.1990	4,34		36,0	244	16,1
Kellerhaus 4	19.10.1990	6,0	5,0	26,0	252,5	16,7
Südschwarzwald EF 1	26.11.1990	4,0	3,5	33,1	217,8	2,2
Südschwarzwald EF 6	26.11.1990	5,7	3,7	22,8	134,2	4,4
Südschwarzwald DF 1	26.11.1990	5,9	20,90	5,9	34,8	29,0
Südschwarzwald MF 2	26.11.1990	16	3,4	2,4	37,2	5,7

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
Südschwarzwald IF 4	27.11.1990	1,4	0,3	9	78,7	0,0
Südschwarzwald IF 5	27.11.1990	0,9	1,4	2,1	28,7	12,3
Südschwarzwald MT 2	27.11.1990	1,3	2,98	43,9	124,5	0,9
Ohlsbach	09.05.1977	5357,3	0	384,63	500,4	264,0
Kehl Marlen 1	12.11.1990	664	0	146	478	288,0
Kehl Marlen 2	12.11.1990	130	1,5	15	371	42,0
Kehl Marlen 3	12.11.1990	158	3,8	23,5	309	9,9
Kehl Marlen 4	12.11.1990	105	3,6	28,5	254	15,0
Kehl Marlen 5	12.11.1990	106	0,7	32	241	17,0
Bad Säckingen Frid	27.04.1988	3660	9	348,5	543	195,0
Bad Säckingen Bad	27.04.1988	1802		115,8	290	129,0
Bayreuth 1	19.11.1990					
Bayreuth 2	20.11.1990					
Bayreuth 3	23.11.1990	28,9		37,1	56,12	4,6
Bayreuth 4	24.11.1990					
Bayreuth 5	11.06.1991					
Geinberg	12.06.1990	165	1,8	20,2	506,3	13,2
Altheim Thermalquelle	11.06.1990	161	4,4	45,5	409,7	0,0
KTB-VB 3450 m	07.11.1988					
KTB-VB 3985 m	12.05.1989	33000				
KTB-VB 3930 m	13.05.1989	29300				
KTB-VB 3985 m	12.05.1989	38700				
KTB-VB 3930 m	17.05.1989	39400				
KTB-VB Pumpversuch 1 a	10.04.1990					
KTB-VB Pumpversuch 1 b	10.04.1990					
KTB-VB Pumpversuch 1 c	11.04.1990					
KTB Sampler	12.04.1990					
KTB Sampler	12.04.1990					
KTB-VB Pumpversuch 2 a	30.09.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 b	02.10.1991					

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
KTB-VB Pumpversuch 2 c	07.10.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 d	27.11.1991					
KTB-VB Pumpversuch 2 e	17.12.1991					
Sibyllenbad A 1	12.08.1986	35,0	<0,04	13,8	333,8	105,0
Sibyllenbad A 2/4	15.11.1988	34,7		20,1	372,1	38,4
Sibyllenbad T 11	15.11.1988				76,3	36,2
Sibyllenbad T 15	27.03.1987					
Sibyllenbad T 17	16.06.1989					
Sibyllenbad C 1	06.11.1986	99,6	<0,3	84,3	1244,0	2180,0
Sibyllenbad C 2	16.06.1987					
Sibyllenbad D	14.07.1987	18,2	<0,5	13,1	515,5	264,0
Sibyllenbad B	12.03.1987	61,4	0,9	23,8	426,7	176,0
Sibyllenbad E 1	15.10.1987	117,6	0,10	47,9	1623,0	1810,0
Sibyllenbad E 3	16.06.1989					
Sibyllenbad E 4	15.11.1988					
Sibyllenbad F 1	02.02.1988	239,1	0,86	190	707,8	626,9
Sibyllenbad F 2	23.03.1988	8,98	0,19	43,7	121,4	88,0
Sibyllenbad G 1	21.06.1988	153,5	2,18	129,2	579,6	348,8
Sibyllenbad G 2	20.07.1988	226,7	0,09	180,1	1026,0	50,0
Sibyllenbad G 3	01.09.1988	171,0	0	187,8	829,6	243,0
Sibyllenbad G 4	05.09.1988					
Sibyllenbad Muglbach	16.06.1987					
Sibyllenbad M 51	11.12.1970			283,5	994,3	976,0
Sibyllenbad M 52	17.12.1970	312,4		267,1	882,1	809,0
Sibyllenbad M 53	05.05.1982	758,7	2,54	572,0	2227,0	1014,0
Sibyllenbad M 54		705,5	2,27	536,0	2075,0	997,5
Sibyllenbad M 55	16.06.1987					
Sibyllenbad M 56	23.06.1989					
Sibyllenbad M 57	23.06.1989					
Weiden Geo 1	29.05.1989					

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
Weiden Geo 2	29.05.1989					
Weiden Geo 3	10.10.1989					
Weiden Geo 4	10.10.1989					
Weiden Geo 5	06.09.1989					
Weiden Geo 6	06.09.1989					
Weiden Geo 7	06.12.1989	183	0,0	11,1	345,5	
Weiden Geo 625	10.10.1989	900				
Weiden Geo 850	10.10.1989	1000				
Weiden Geo 1040	10.10.1989	880				
Weiden Geo 1215	10.10.1989	840				
Weiden Brunnen 17	05.09.1989					
Weiden Brunnen 22	05.09.1989					
Kondrau Antonienquelle 1	05.10.1988	37,2	0,0	73,9	631,4	985,6
Kondrau Antonienquelle 2	15.01.1986					
Kondrau Bayernquelle 1	20.09.1967	27,85		44,3	532,8	1254,0
Kondrau Bayernquelle 2	18.01.1988	25,3		43,7	262,3	470,0
Kondrau Prinz Ludwig 1	20.09.1967	60,99		91,39	568,0	1403,0
Kondrau Prinz Ludwig 4	29.11.1988					
Kondrau Neubohrung 1	15.06.1989	36,4	0,1	26,4	950,0	1646,0
Kondrau Neubohrung 2	22.06.1989					
Kondrau Neubohrung 3	18.07.1989					
Wiesau König Otto 1	08.07.1957	4,4		10,3	262,3	3210,0
Wiesau König Otto 3	02.06.1987	3,43		14,4	389,7	3403,0
Wiesau König Otto 4	13.11.1985					
Wiesau Neue Otto 1	25.07.1957	1,68	0,45	6,4	530,7	3347,0
Wiesau Neue Otto 2	13.11.1985					
Mitterteich Hösl 2	20.10.1989				183,0	53,0
Mitterteich M 2	06.09.1989					
Bad Alexandersbad 1						
Bad Alexandersbad 2						
Bad Alexandersbad 3	18.08.1989					

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
Krummennaab Porz 2	26.07.1989					
Höllensprudel 1	24.05.1983	3,62	0,61	8,05	780,1	2454,0
Höllensprudel 2	22.05.1989					
Höllensprudel Prinzenquelle 1	24.05.1983	5,46	0,5	12,9		1964,0
Falkenberg Sauerbrunnen	23.06.1989					
Falkenberg HB 4 A 1	08.11.1988					
Falkenberg HB 4 A 3	08.11.1988					
Falkenberg S 3	08.09.1988	173,1	0,0	251,9	375,2	211,0
Erbendorf Rotliegend 1	09.11.1988				148,0	
Poppenreuth 3	16.11.1988					
Hirschau Brunnen 11	25.02.1988					
Hirschau Brunnen 21	25.02.1988					
Neumarkt Gl Br	26.09.1988	1,7	0,0	26,5	292,8	29,5
Neumarkt Gl 91	04.01.1991					
Neumarkt Lammbräu	04.08.1989					
Neumarkt Lammbräu	14.10.1991					
Bad Steben Marienquelle 1	16.08.1989					
Bad Steben Neu W 1	16.08.1989					
Bad Steben Tempelquelle	16.08.1989					
Bad Steben Jean Paul Quelle	20.09.1989					
Weiherhammer Q 2	08.09.1989					
Schierling Hausbrunnen	12.06.1990	0,68	0,2	7,0	276,9	31,2
Riehen 2	01.02.1989					
Riehen 1	02.03.1989					
Hechts B1/70	05.05.1986	9,9	4,5	53,5	192,2	4,3
Hechts B1/120	05.05.1986	521,2	5,2	3011,7	349	81,5
Schönm. B2/70	06.05.1986	70,2	0	661	103	2,9
Schönm. B2/120	06.05.1986	118,4	0	1095,3	118,4	2,7
Kunkle B4/120	07.05.1986	2,1	8,4	11,9	63,5	0,6
Etters B5/70 A	07.05.1986	3,5	9,9	11,4	57,4	8,6
Etters B5/70 B	07.05.1986					

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
Etters B5/120	07.05.1986	3,55	15,0	15,95	46,37	
Geschas B6/50	06.05.1986	3,54	10,48	15,23	67,12	11,5
Wiesenfeld 4 a	23.03.1991					
Wiesenfeld 4 b	26.03.1991					
Wiesenfeld 4 1	02.04.1991				421,5	50,3
Wiesenfeld 4 2	02.04.1991				377,9	55,8
Wiesenfeld 4 3	02.04.1991				380,1	55,7
Wiesenfeld 4 4	05.04.1991					
Wiesenfeld 4 5	12.04.1991	42,0	30,0	114,0	357,0	51,0
Bruchsal GB 1	25.08.1989					
Bruchsal GB 1	11.09.1986					
Bruchsal GB 1	26.10.1986					
Bruchsal GB 2	25.03.1985	76933,0	0,0	331,0	295,0	418,0
Waren GTWA 1	04.06.1991	95615,0	1,2	900	163,0	940,0
Neubrandenburg	04.06.1991	80525,0	0,8	960	176,0	540,0
Eckersdorf 1	07.10.1991				115,9	4,4
Eckersdorf 2	07.10.1991				91,5	7,9
Eckersdorf 3	07.10.1991				97,6	8,8
Eckersdorf 4	08.10.1991					
Eckersdorf 5	11.10.1991				134,2	
Glattfelden 1	01.10.1991					
Glattfelden 2	17.02.1992					
Dylan/CR	10.06.1991					
Creussen 1	01.07.1991					
Creussen 2	15.07.1991				78,7	18,9
Creussen 3	15.07.1991				68,7	21,7
Creussen 4	15.07.1991				72,4	25,2
Creussen 5	17.07.1991					
Creussen 6	21.07.1991					
Creussen 7	23.07.1991					

Fortsetzung Tab. 9d:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	mg/l				
		Cl	NO_3	SO_4	HCO_3	CO_2
1	2	3	4	5	6	7
Bad Waldsee 1	28.07.1991					
Bad Waldsee 2	04.08.1991					
Bad Waldsee 3	09.08.1991				431,0	56,0
Wellenberg	04.08.1991					
Aqui-I	13.12.1990				414,2	
Aqui-II	13.12.1990	104	0	93	426,4	
Geißingen 6-9	28.10.1991					
Geisingen 6-9	28.10.1991					
Geisingen 6-9	28.10.1991					
Geisingen 12-15	30.10.1991					
Geisingen 12-15	30.10.1991					
Geisingen 12-15	30.10.1991					
Geisingen 15-18	29.10.1991					
Geisingen 15-18	29.10.1991					
Geisingen 15-18	29.10.1991					
Kochendorf	15.04.1991					
Treuchtling 1	28.01.1992					
Treuchtling 2	28.01.1992					
Treuchtling 3	28.01.1992					
Treuchtling 4	29.01.1992					
Treuchtling 5	29.01.1992					
Treuchtling 6	29.01.1992					
Nakriobstudn	28.01.1991					
Nakri 41	28.01.1991					
Nakri 52	28.01.1991					
Mape K9	28.01.1991					
Nakri 79	28.01.1991					
Mape K1	28.01.1991					
Mydlovary B6	28.01.1991					

Tab. 9e: Übersicht über Radium-Isotopenverhältnisse, Endteufen der Entnahmestellen, Pumpversuchszeiten und Pumpraten

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
RegensburgThurn&Taxis	03.09.1990		4,581			
Pechbrunn Silvana I 1	26.03.1990	1,317	3,127	0,5	125	0,1
Pechbrunn Silvana I 2	26.03.1990	1,395	2,698	0,5	125	0,4
Pechbrunn Silvana I 3	26.03.1990	1,639	2,653	0,5	125	0,9
Pechbrunn Silvana I 4	30.03.1990	1,574	2,109	0,5	125	4
Pechbrunn Silvana I 5	04.04.1990	2,113	1,833	0,5	125	9
Pechbrunn Silvana I 6	24.04.1990	1,58	2,005	1	125	29
Pechbrunn Silvana I 7	03.05.1990	1,664	2,154	1,5	125	38
Pechbrunn Silvana alt A	24.03.1988	0,765	0,412		21,5	
Pechbrunn Silvana alt B	02.10.1985				21,5	
Pechbrunn Silvana alt C	15.01.1986				21,5	
Pechbrunn Silvana alt O	22.03.1990	1,569	1,523	0,65	21,5	-4
Pechbrunn Silvana alt 1	26.03.1990	1,773	1,509	0,65	21,5	0,2
Pechbrunn Silvana alt 2	26.03.1990	5,089	1,518	0,65	21,5	0,5
Pechbrunn Silvana alt 3	26.03.1990	1,611	1,469	0,65	21,5	0,9
Pechbrunn Silvana alt 4	30.03.1990	1,736	1,585	0,65	21,5	4
Pechbrunn Silvana alt 5	04.04.1990	1,867	1,571	0,65	21,5	9
Pechbrunn Silvana alt 6	24.04.1990	1,731	1,546	0,65	21,5	29
Pechbrunn Silvana alt 7	03.05.1990	1,173	1,643	0,65	21,5	38
Pechbrunn Silvana alt 8	29.06.1990	5,234	1,673	0,65	21,5	
Pechbrunn St. Linus A	24.03.1988	1,192	1		29	
Pechbrunn St. Linus B	02.10.1985		1		29	
Pechbrunn St. Linus C	15.01.1986				29	
Pechbrunn St. Linus O	22.03.1990	1,094	0,871	1,15	29	-4
Pechbrunn St. Linus 1	04.04.1990	1,008	0,997	1,15	29	9

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Pechbrunn St. Linus 2	24.04.1990	1,18	0,918	1,15	29	29
Pechbrunn St. Linus 3	03.05.1990	1,345	0,928	1,15	29	38
Pechbrunn St. Linus 4	29.06.1990	1,072	0,978	1,15	29	
Pechbrunn neu	03.08.1990					
Pechbrunn Silvana II 1	07.10.1991	1,686	0,579	0,75		0,5
Pechbrunn Silvana II 2	23.11.1991	2,242	0,547			47
Pechbrunn Silvana II 3	23.11.1991	2,687	0,522			47,5
Pechbrunn Silvana II 4	27.11.1991	1,914	0,543			51
Pechbrunn Silvana II 5	10.01.1991	2,045	0,657			95
Karlsbad HJ 2 A	12.05.1990		1,977	0,12	1201,4	1
Karlsbad HJ 2 B	13.05.1990	0,831	1,781	0,12	1201,4	2
Karlsbad HJ 2 C	14.05.1990	0,893	1,721	0,12	1201,4	3
Karlsbad BJ 36	13.05.1990	1094	5,402	8,2	40	
Cham Brunnen 4	07.06.1990	1,113	1,32		154,3	
Cham Brunnen 1	06.06.1990				134,7	
Erzgebirge Sadisdorf 3	26.07.1990	0,913	0,435			
Erzgebirge Bielatal S	26.07.1990	1,523	0,488		0	
Dammfuß Schneckenstein	27.07.1990	1,172	15,764		0	
Menzenschwand 240 m 1	06.06.1990					
Menzenschwand 240 m 2	06.06.1990	1,5	17			
Menzenschwand 240 m	17.10.1990					
Menzenschwand 0 m Was	22.10.1990					
Menzenschwand 0 m Wer	22.10.1990					
Menzenschwand 240 m Rol	22.10.1990					
Blickweiler	20.06.1989	1,148	1,111			
Straubing Thermalwasser	19.08.1990			71,4		

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Straubing Thermalwasser	27.09.1990		1,268			
Kellerhaus 1	15.10.1990	1,07	0,712	5,1	150	1
Kellerhaus 2	15.10.1990	1,326	0,79	5,1	150	1,5
Kellerhaus 3	15.10.1990	1,129	0,715	5,1	150	1,8
Kellerhaus 4	19.10.1990		0,908		150	
Südschwarzwald EF 1	26.11.1990	1,44	13,214	0,02		
Südschwarzwald EF 6	26.11.1990	1,05	2,6	0,3		
Südschwarzwald DF 1	26.11.1990	0,833	0,583	0,08		
Südschwarzwald MF 2	26.11.1990	1,473	0,878	0,04		
Südschwarzwald IF 4	27.11.1990	0,771	0,588	0,08		
Südschwarzwald IF 5	27.11.1990	0,625	0,417	0,04		
Südschwarzwald MT 2	27.11.1990	0,628	1,345	0,015		
Ohlsbach	09.05.1977			0,75	65	
Kehl Marlen 1	12.11.1990	1,074	0,71	0,4	242	
Kehl Marlen 2	12.11.1990	0,88	1,12	0,2	139	
Kehl Marlen 3	12.11.1990	1,056	0,567	0,45	112	
Kehl Marlen 4	12.11.1990	1,333	0,444	0,25	45,5	
Kehl Marlen 5	12.11.1990	1,3	0,53	0,05	10	
Bad Säckingen Frid	27.04.1988	0,585	1,989		600	
Bad Säckingen Bad	27.04.1988	1,5	5,75		201,3	
Bayreuth 1	19.11.1990	0,839	0,611			1
Bayreuth 2	20.11.1990	0,859	0,617			2
Bayreuth 3	23.11.1990	0,889	0,598			5
Bayreuth 4	24.11.1990	0,859	0,583			6
Bayreuth 5	11.06.1991	0,891	0,625			10
Geinberg	12.06.1990	1,346	5,385			

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Altheim Thermalquelle	11.06.1990	1,375	8,562			
KTB-VB 3450 m	07.11.1988		1,069			
KTB-VB 3985 m	12.05.1989		0,164		3985	
KTB-VB 3930 m	13.05.1989		0,144		3930	
KTB-VB 3985 m	12.05.1989		0,164		3985	
KTB-VB 3930 m	17.05.1989	0,644	0,152		3930	
KTB-VB Pumpversuch 1 a	10.04.1990	0,754	0,156		4000	0,2
KTB-VB Pumpversuch 1 b	10.04.1990	0,851	0,193		4000	0,2
KTB-VB Pumpversuch 1 c	11.04.1990	0,824	0,282		4000	1,4
KTB Sampler	12.04.1990	0,843	0,31			
KTB Sampler	12.04.1990	0,54	0,223			
KTB-VB Pumpversuch 2 a	30.09.1991	0,481	0,353			
KTB-VB Pumpversuch 2 b	02.10.1991	0,378	0,378			
KTB-VB Pumpversuch 2 c	07.10.1991	0,384	0,412			
KTB-VB Pumpversuch 2 d	27.11.1991	0,776	0,668			
KTB-VB Pumpversuch 2 e	17.12.1991	0,829	0,688			
Sibyllenbad A 1	12.08.1986	1,273	0,591		250	
Sibyllenbad A 2/4	15.11.1988	0,745	0,828		250	
Sibyllenbad T 11	15.11.1988	0,667	7,1		91,5	
Sibyllenbad T 15	27.03.1987	1,311	10,444		91,5	
Sibyllenbad T 17	16.06.1989	0,932	10,364		91,5	
Sibyllenbad C 1	06.11.1986	0,681	0,479		211	
Sibyllenbad C 2	16.06.1987	0,669	0,511		211	
Sibyllenbad D	14.07.1987				213,8	
Sibyllenbad B	12.03.1987				223	
Sibyllenbad E 1	15.10.1987	0,906	0,659		245,7	

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$ Bq/kg	$^{226}Ra/^{228}Ra$ Bq/kg	Q l/s	Endteufe m u.GOK	PV-Zeit
1	2	3	4	5	6	7
Sibyllenbad E 3	16.06.1989	0,963	0,607		245,7	
Sibyllenbad E 4	15.11.1988	1	0,636		245,7	
Sibyllenbad F 1	02.02.1988				104,6	
Sibyllenbad F 2	23.03.1988	0,952	2,691		222	
Sibyllenbad G 1	21.06.1988				121,5	
Sibyllenbad G 2	20.07.1988				231	
Sibyllenbad G 3	01.09.1988	2,057	0,8		231	
Sibyllenbad G 4	05.09.1988	1,329	0,734		231	
Sibyllenbad Muglbach	16.06.1987					
Sibyllenbad M 51	11.12.1970				126,7	
Sibyllenbad M 52	17.12.1970				126,7	
Sibyllenbad M 53	05.05.1982				126,7	
Sibyllenbad M 54					126,7	
Sibyllenbad M 55	16.06.1987	0,508	0,521		126,7	
Sibyllenbad M 56	23.06.1989	0,935	0,389		126,7	
Sibyllenbad M 57	23.06.1989	1,014	0,533		126,7	
Weiden Geo 1	29.05.1989	1,5	2,5		1215	
Weiden Geo 2	29.05.1989	1,8	2,9		1215	
Weiden Geo 3	10.10.1989	1,15	0,8		1215	
Weiden Geo 4	10.10.1989	0,86	0,88		1215	
Weiden Geo 5	06.09.1989	2,229	1,971		1215	
Weiden Geo 6	06.09.1989	1,806	1,278		1215	
Weiden Geo 7	06.12.1989	0,733	1,027			
Weiden Geo 625	10.10.1989				625	
Weiden Geo 850	10.10.1989				850	
Weiden Geo 1040	10.10.1989				1040	

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Weiden Geo 1215	10.10.1989				1215	
Weiden Brunnen 17	05.09.1989	1,393	0,857			
Weiden Brunnen 22	05.09.1989	1,2	2,333			
Kondrau Antonienquelle 1	05.10.1988	1,451	0,549			
Kondrau Antonienquelle 2	15.01.1986		0,739			
Kondrau Bayernquelle 1	20.09.1967					
Kondrau Bayernquelle 2	18.01.1988		0,853			
Kondrau Prinz Ludwig 1	20.09.1967				87	
Kondrau Prinz Ludwig 4	29.11.1988				87	
Kondrau Neubohrung 1	15.06.1989	0,884	0,605	1,6	254,7	
Kondrau Neubohrung 2	22.06.1989	0,874	0,598		254,7	
Kondrau Neubohrung 3	18.07.1989	0,884	0,593		254,7	
Wiesau König Otto 1	08.07.1957				23,5	
Wiesau König Otto 3	02.06.1987		1,611		23,5	
Wiesau König Otto 4	13.11.1985		1,2		23,5	
Wiesau Neue Otto 1	25.07.1957				46	
Wiesau Neue Otto 2	13.11.1985		0,3		46	
Mitterteich Hösl 2	20.10.1989	1,425	0,675		1230	
Mitterteich M 2	06.09.1989	0,838	1		59,2	
Bad Alexandersbad 1					63	
Bad Alexandersbad 2					63	
Bad Alexandersbad 3	18.08.1989	1,201	0,42		63	
Krummennaab Porz 2	26.07.1989	1,327	4,727		57	
Höllensprudel 1	24.05.1983				262	
Höllensprudel 2	22.05.1989	3	0,706		262	
Höllensprudel Prinzenquelle 1	24.05.1983				162	

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Falkenberg Sauerbrunnen	23.06.1989					
Falkenberg HB 4 A 1	08.11.1988	1,688	1,781			
Falkenberg HB 4 A 3	08.11.1988	1,588	1,647			
Falkenberg S 3	08.09.1988	0,972	1,667			
Erbendorf Rotliegend 1	09.11.1988	2,167	1,333			
Poppenreuth 3	16.11.1988	0,667	0,867			
Hirschau Brunnen 11	25.02.1988	1,059	1,618			
Hirschau Brunnen 21	25.02.1988	1,103	2,586			
Neumarkt Gl Br	26.09.1988	0,849	2,014			
Neumarkt Gl 91	04.01.1991	0,915	2			
Neumarkt Lammbräu	04.08.1989	0,893	1,464			
Neumarkt Lammbräu	14.10.1991					
Bad Steben Marienquelle 1	16.08.1989	1,16	0,5			
Bad Steben Neu W 1	16.08.1989	0,651	3		120	
Bad Steben Tempelquelle	16.08.1989	1,016	23,065		46,3	
Bad Steben Jean Paul Quelle	20.09.1989	0,742	5,419		61	
Weiherhammer Q2	08.09.1989	1,361	0,819			
Schierling Hausbrunnen	12.06.1990	0,962	0,565			
Riehen 2	01.02.1989	1,113	5,563			
Riehen 1	02.03.1989	0,627	4,661			
Hechts B1/70	05.05.1986		0,22		300	
Hechts B1/120	05.05.1986		0,162	0,02	300	
Schönm. B2/70	06.05.1986			1	275	
Schönm. B2/120	06.05.1986			0,02	275	
Kunkle B4/120	07.05.1986			0,02	300	
Etters B5/70 A	07.05.1986			1	182	

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Etters B5/70 B	07.05.1986		1,125		182	
Etters B5/120	07.05.1986			0,02	182	
Geschas B6/50	06.05.1986			1	190	
Wiesenfeld 4 a	23.03.1991	1,927	0,6		35	-10
Wiesenfeld 4 b	26.03.1991	1,136	0,727		35	-7
Wiesenfeld 4 1	02.04.1991	2,019	0,685	10	35	0,1
Wiesenfeld 4 2	02.04.1991	1,625	0,729	10	35	0,3
Wiesenfeld 4 3	02.04.1991	1,358	0,642	10	35	0,6
Wiesenfeld 4 4	05.04.1991	1,31	0,762		35	3,5
Wiesenfeld 4 5	12.04.1991	1,419	0,744	38	35	10,5
Bruchsal GB 1	25.08.1989	0,75	1,895			
Bruchsal GB 1	11.09.1986	0,78	1,841			
Bruchsal GB 1	26.10.1986	0,805	1,902			
Bruchsal GB 2	25.03.1985			9,6	2542	
Waren GTWA 1	04.06.1991	0,805	1,581		1500	
Neubrandenburg	04.06.1991	0,772	1,196		1200	
Eckersdorf 1	07.10.1991	2,022	0,764	3	220	0,1
Eckersdorf 2	07.10.1991	1,782	0,713	3	220	0,3
Eckersdorf 3	07.10.1991	1,922	0,767	3	220	0,6
Eckersdorf 4	08.10.1991	1,584	0,721		220	1,8
Eckersdorf 5	11.10.1991	1,64	0,8		220	4
Glattfelden 1	01.10.1991	1,88	1063			
Glattfelden 2	17.02.1992	2,1	1,8			
Dylan/CR	10.06.1991	0,8	3,4			
Creussen 1	01.07.1991	1,255	1,291			

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Creussen 2	15.07.1991	1,393	1,321	31		-14
Creussen 3	15.07.1991	1,346	1,281	30		0,1
Creussen 4	15.07.1991	1,404	1,315	28,5		0,4
Creussen 5	17.07.1991	1,333	1,121			0,6
Creussen 6	21.07.1991	1,283	1,191			3
Creussen 7	23.07.1991	1,371	1,356			7
Bad Waldsee 1	28.07.1991					9
Bad Waldsee 2	04.08.1991	2,116	3,256			
Bad Waldsee 3	09.08.1991					
Wellenberg	04.08.1991					
Aqui-I	13.12.1990	1089	0,561			
Aqui-II	13.12.1990	0,875	0,813			
Geißingen 6-9	28.10.1991	1,044	0,692	0,05	9	0,1
Geisingen 6-9	28.10.1991	1,011	0,661	0,05	9	0,4
Geisingen 6-9	28.10.1991	0,976	0,6	0,05	9	0,8
Geisingen 12-15	30.10.1991	1,05	0,65	0,03	15	0,1
Geisingen 12-15	30.10.1991	1,02	0,586	0,03	15	0,4
Geisingen 12-15	30.10.1991	0,818	0,591	0,03	15	0,8
Geisingen 15-18	29.10.1991	1,159	0,535	0,003	18	0,1
Geisingen 15-18	29.10.1991	1,222	0,528	0,003	18	0,4
Geisingen 15-18	29.10.1991	1,01	0,482	0,003	18	0,8
Kochendorf	15.04.1991	1,216	2,451			
Treuchtling 1	28.01.1992	0,893	2,148			
Treuchtling 2	28.01.1992	0,881	1,881			
Treuchtling 3	28.01.1992	0,881	1,831			
Treuchtling 4	29.01.1992	0,841	1,754			

Fortsetzung Tab.9e:

Entnahmestelle	Entn.-Dat.	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	Q	Endteufe	PV-Zeit
		Bq/kg		l/s	m u.GOK	
1	2	3	4	5	6	7
Treuchtling 5	29.01.1992	0,931	1,914			
Treuchtling 6	29.01.1992	0,835	1,794			
Nakriobstudn	28.01.1991	1	0,76			
Nakri 41	28.01.1991	1	0,862			
Nakri 52	28.01.1991	0,542	0,548			
Mape K9	28.01.1991	0,507	1,352			
Nakri 79	28.01.1991	1,25	1,3			
Mape K1	28.01.1991	0,5	26,045			
Mydlovary B6	28.01.1991	1,556	2,222			

Tab. 10a: Ergebnisse von Tritiumgehaltsbestimmungen, sowie von Radium- und Radon- Aktivitätsbestimmungen von Grundwasser aus dem Südschwarzwald (Hotzenwald)

Entnahme: Dezember 1990

		Probe						
		DF 1	**EF 1**	**EF 6**	**IF 4**	**IF 5**	**MF 2**	**MT 2**
^{3}H	TU	28,1	30,5	44,9	32,9	23,0	27,3	4,0
Fehler ^{3}H	TU	3,4	4,2	4,7	2,9	3,0	3,3	2,2
^{226}Ra	mBq/kg	0,7	111,0	5,2	20,0	1,0	6,5	15,2
Fehler ^{226}Ra	mBq/kg	0,3	8,0	0,5	1,7	0,3	0,6	1,5
^{228}Ra	mBq/kg	1,2	8,4	2,0	34,0	2,4	7,4	11,3
Fehler ^{228}Ra	mBq/kg	1,0	3,5	1,5	3,0	1,1	2,7	1,7
^{224}Ra	mBq/kg	1,0	12,1	2,1	26,2	1,5	10,9	7,1
Fehler ^{224}Ra	mBq/kg	0,7	3,6	1,4	3,2	0,3	2,5	1,5
$^{226}Ra/^{228}Ra$		0,58	13,20	2,60	0,59	0,41	0,88	1,34
Fehler $^{226}Ra/^{228}Ra$		0,55	5,59	1,97	0,07	0,23	0,33	0,24
$^{224}Ra/^{228}Ra$		0,83	1,44	1,05	0,77	0,63	1,47	0,62
Fehler $^{224}Ra/^{228}Ra$		0,83	0,73	1,05	0,12	0,31	0,63	0,16
^{222}Rn	mBq/kg	94,5	932	140	530	206	529	
Fehler ^{222}Rn	mBq/kg	5	55	10	33	12	27	

Tab. 10b: Ergebnisse des Leaching-Tests an Gesteinsproben aus dem Südschwarzwald

		Probe			
		DF 1	**EF 1**	**EF 500m**	**MF 2**
^{226}Ra	Bq/l	3,2	1,18	1,26	3,58
Fehler ^{226}Ra		0,24	0,2	0,1	0,29
^{228}Ra	Bq/l	0,511	0,154	1,86	10,1
Fehler ^{228}Ra		0,1	0,15	0,22	0,8
Gestein $^{226}Ra/^{228}Ra$		6,26	7,66	0,67	0,35
Fehler Gestein $^{226}Ra/^{228}Ra$		1,31	2,85	1,36	0,04
Grundwasser $^{226}Ra/^{228}Ra$		0,58	13,2		0,33
Fehler Grundwasser $^{226}Ra/^{228}Ra$		0,55	5,59		0,33

Tab. 11: Ergebnisse von Radium-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserpeoben aus der Umgebung des Uran-Aufbereitungsbetriebes MAPE in Mydlovary (CSFR)

Entnahmedatum: 28.02.1991

Probe-Nr.		**Entnahmestelle**						
		Nakri ob Studna	**Nakri 41**	**Nakri 52**	**K 9**	**Nakri 79**	**K 1**	**Mydlovary B6**
		2	**3**	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**
^{226}Ra	mBq/kg	3,80	11,20	11,50	96,00	10,40	573,00	20,00
Fehler ^{226}Ra		0,50	1,00	1,00	9,00	1,10	46,00	2,00
^{228}Ra	mBq/kg	5,00	13,00	21,00	71,00	8,00	22,00	9,00
Fehler ^{228}Ra		3,80	4,60	4,00	15,50	4,60	10,90	4,60
^{224}Ra	mBq/kg	5,00	13,00	11,00	36,00	10,00	11,00	14,00
Fehler ^{224}Ra		2,80	3,40	3,50	8,20	3,50	7,50	3,30
$^{224}Ra/^{228}Ra$		1,00	1,00	0,52	0,51	1,25	0,50	1,55
Fehler $^{224}Ra/^{228}Ra$		0,94	0,44	0,19	0,16	0,78	0,42	0,88
$^{226}Ra226/^{228}Ra$		0,76	0,86	0,54	1,35	1,22	26,05	2,22
Fehler $^{226}Ra226/^{228}Ra$		0,62	0,34	0,14	0,38	0,82	14,36	1,25

Tab. 12a: Radium-Aktivitäten von Fluid- und Gesteinsproben aus der KTB-Vorbohrung

Tiefe, m	Gesteinsproben						Fluidproben						$^{226}Ra/^{228}Ra$				Gesten / Fluid	Fehler Gestein / Fluid
													Gestein		Fluid			
	^{226}Ra	Fehler ^{226}Ra	^{228}Ra	Fehler ^{228}Ra	^{228}Th	Fehler ^{228}Th	^{226}Ra	Fehler ^{226}Ra	^{228}Ra	Fehler ^{228}Ra	^{224}Ra	Fehler ^{224}Ra		Fehler		Fehler		
1995	43,9	8,8	42,9	10,5	40,2	8							1	0,3				
1995	44,1	8,8	35,7	8,8	43,2	8,6							1,2	0,4				
2500	35,6	8,8	25,7	8,7	34,5	10,4							1,4	0,6				
3450	33	8,3	30,8	10,5	30	9	1,09	0,1	1,02	0,15			1,1	0,5	1,1	0,2	1	0,5
3932	10,8	2,5	9,5	3,3	9,4	2,8	2,54	0,2	17,6	0,9	11,2	0,9	1,1	0,5	0,14	0,01	7,9	3,4
3932							2,64	0,2	17,4	1,1					0,15	0,02		
3986	9	2,7	17	5,8	18,5	5,6	2,74	0,2	16,7	1			0,5	0,2	0,16	0,02	3,2	1,5
3991	10,8	2,5	19,9	7	19,9	6							0,5	0,2				
3995	22,2	5,5	74,9	15	78,3	15,7	1,9	0,3	12,2	1,2	9,2	1,4	0,3	0,09	0,16	0,03	1,9	0,7
3995							2,2	0,3	11,4	1,1	9,7	1,5			0,19	0,03		
3995							2,4	0,4	8,5	0,9	7	1,1			0,28	0,06		

Tab. 12b: Ra-Isotopenverhältnisse der während des Pumpversuchs (PV) im April 1990 aus der KTB-VB entnommenen Fluidproben. Zunächst wurde das Leitungswasser, das vom Spülen des Bohrlochs stammte, abgepumpt. Nach dem Austausch dieses Wassers wurde mit Erreichen der ursprünglichen spez. Leitfähigkeit des Fluids die Beprobung begonnen. Entnahmetiefe 3850 bis 4000 m u. GOK.

Entnahmezeitpunkt (Stunden nach Abpumpen des Leitungswassers)	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$
		- Bq/kg -			
4	1.9 ±0.3	12.2 ±1.2/0.6	9.2±1.4/1.0	0.75±0.14/0.09	0.16±0.03
6	2.2 ±0.3	11.4 ±1.1/0.5	9.7±1.5/1.2	0.85±0.16/0.11	0.19±0.03
30	2.4 ±0.4	8.5 ±0.9/0.5	7.0±1.1/0.8	0.82±0.16/0.11	0.28±0.06

Tab. 12c: Ergebnisse der Radium- und ^{222}Rn-Untersuchungen an zwei mit dem Tiefensampler nach dem Pumpversuch am 12.04.1990 entnommenen Proben aus der KTB-VB:

	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra	^{222}Rn	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$
		- Bq/kg -				
1. Probe	2.14±0.17	6.90±0.58/0.24	5.82±0.55/0.26	4.4±3.0	0.84±0.11/0.05	0.31±0.04
2. Probe	2.22±0.18	6.96±0.62/0.26	5.38±0.60/0.34	5.7±3.6	0.77±0.11/0.06	0.32±0.04

Tab. 12d: Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen von Fluiden der KTB-VB. Entno während des Pumptests von September bis Dezember 1992.

Entn.-Dat.	^{226}Ra (Bq/kg)	^{228}Ra (Bq/kg)	^{224}Ra (Bq/kg)	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$
30.09.91	1.93±0.15	5.47±0.51/0.24	2.63±0.30/0.17	0.48±0.071/0.036	0.35±0.043
02.10.91	1.90±0.14	5.02±0.42/0.17	1.90±0.19/0.10	0.38±0.049/0.024	0.38±0.042
07.10.91	1.88±0.14	4.56±0.40/0.18	1.75±0.18/0.10	0.38±0.052/0.027	0.41±0.047
27.11.91	2.21±0.17	3.31±0.29/0.13	2.57±0.24/0.12	0.78±0.099/0.047	0.67±0.028
17.12.91	2.38±0.18	3.46±0.30/0.13	2.87±0.26/0.12	0.83±0.104/0.047	0.69±0.029

Tab. 12e: Ergebnisse der ^{222}Rn-Aktivitätsbestimmungen an Fluid- und Gasproben der KTB-VB.

Probenbezeichnung	Entnahme-Datum	Uhrzeit	^{222}Rn (Bq/kg)	^{222}Rn (Bq/l Gas)
KTB-VB Pumptest vor Degasser	17.12.91		2.54±0.3	
KTB-VB Pumptest nach Degasser	17.12.91		2.75±0.3	
KTB-VB Pumptest aus Degasser	17.12.91	9.00h		2.19±0.3
KTB-VB Pumptest aus Degasser	17.12.91	16.30h		1.12±0.2

Tab. 12f: Ergebnisse von ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th-Aktivitätsbestimmungen an Fluidproben aus der KTB-Hauptbohrung; Fs= Fluidsampler. Die Proben konnten wegen ihrer puddingartigen Konsistenz nicht aufbereitet werden, weshalb sie eingedampft wurden.

Probenbezeichnung	Entnahme-Datum	^{226}Ra (Bq/kg)	^{228}Ra (Bq/kg)	^{228}Th (Bq/kg)	$^{226}Ra/^{228}Ra$ (Bq/kg)/(Bq/kg)
KTB-HB Fs 3184 m	23.11.91	1.30±0.25	1.68±0.35	1.10±0.25	0.77±0.22
KTB-HB Fs 3162.5 m	24.03.92	1.08±0.20	1.35±0.30	0.66±0.20	0.80±0.23
KTB-HB Blank	13.03.92	1.04±0.15	0.86±0.20	0.84±0.20	1.21±0.11
KTB-HB Fs 3184 m ohne Blank	23.11.91	0.27±0.27	0.82±0.40	< 0.60	0.33±0.33
KTB-HB Fs 3162.5 m ohne Blank	24.03.92	< 0.26	0.48±0.35	< 0.15	<0.5

Tab. 13: Ergebnisse von Vor-Ort-Messungen und wasserchemischen Untersuchungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana I (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen während eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.90

	26.03.90 1. Probe	26.03.90 2. Probe	26.03.90 3. Probe	30.03.90 5.PV-Tag	04.04.90 10.PV-Tag	24.04.90 30.PV-Tag	03.05.90 39.PV-Tag	11.05.90 47.PV-Tag
Labornummer	20110	20111	20112	20182	20229	20523	21705	21706
Q (l/s)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	1.0	1.5	1.0
pH	5.5*	5.33*	5.36	5.14	5.26	4.71	5.34	5.28
LF (μS/cm)	851	751	543	383	372	332	326	370
T (°C)	9.3*	9.9*	9.9	9.8	9.9	9.7	10.1	n.b.
O_2 (mg/l)	n.b.	n.b.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.b.	n.b.
Na^+ (mg/l)	21.6	20.2	18.9	17.9	17.4	16.2	16.7	20.2
K^+ (mg/l)	4.52	3.57	2.78	2.08	2.28	1.71	1.94	1.47
NH_4^+ (mg/l)	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04
Ca^{2+} (mg/l)	89.1	57.3	26.8	30.2	26.1	26.8	19.1	22
Mg^{2+} (mg/l)	52.7	34	20.7	21.6	19	18.2	15.2	18.2
Sr^{2+} (mg/l)	0.401	0.311	0.201	0.151	n.b.	0.144	n.b.	n.b.
Ba^{2+} (mg/l)	0.178	0.288	0.038	0.024	n.b.	0.039	n.b.	n.b.
$Fe_{ges.}$ (mg/l)	80.6	67.5	46.4	32	20.7	22.2	19.4	22.5
Cl^- (mg/l)	2.42	2.11	1.87	1.79	1.72	1.44	1.73	1.52
NO_3^- (mg/l)	0.26	0.31	<0.04	<0.04	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
SO_4^{2-} (mg/l)	13.3	12.2	9.71	9.43	10.3	10	8.06	11.4
HCO_3^- (mg/l)	744	537	323	307	256	248	213	244
CO_2 (mg/l)	n.b.	n.b.	1733	2595	1805	2046	2883	n.b.

* = vor Ort von Herrn Betz bestimmt
n.n. = nicht nachweisbar
n.b. = nicht bestimmt
Die Parameter Na^+ bis SO_4^{2-} wurden jeweils vom Institut für Wasserchemie, München-Großhadern, bestimmt.

Tab. 14: Ergebnisse von Radium-und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana I (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen wärend eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.1990

		Entnahmedatum						
		26.03.1990			**30.03.1990**	**04.04.1990**	**24.04.1990**	**03.05.1990**
Entnahmeurzeit		09.00	12.30	17.00				
^{226}Ra	mBq/kg	197,0	116,0	77,2	38,5	30,8	41,5	32,1
Fehler ^{226}Ra		14,0	9,0	5,4	2,7	2,4	3,0	1,3
^{228}Ra	mBq/kg	63,0	43,0	29,1	18,3	16,8	20,7	14,9
Fehler (1)		7,0	5,0	3,0	2,0	2,5	2,5	1,8
Fehler (2)		3,9	2,9	1,6	1,1	1,7	1,5	1,1
^{224}Ra	mBq/kg	83,0	60,0	47,7	28,8	35,5	32,7	24,8
Fehler (1)		9,0	7,0	6,0	3,2	3,6	3,8	3,8
Fehler (2)		4,9	4,0	3,7	1,8	1,9	2,2	2,6
^{224}Ra/^{228}Ra		1,32	1,40	1,64	1,57	2,11	1,58	1,66
Fehler (1)		0,21	0,23	0,27	0,25	0,38	0,27	0,33
Fehler (2)		0,12	0,14	0,17	0,14	0,23	0,16	0,21
^{226}Ra/^{228}Ra		3,13	2,69	2,65	2,10	1,83	2,00	2,13
Fehler ^{226}Ra/^{228}Ra		0,41	0,38	0,33	0,27	0,31	0,28	0,27
^{222}Rn	Bq/kg		23,8	56,0	43,0	18,7	71,0	
Fehler ^{222}Rn			1,7	4,0	3,0	1,4	4,0	

Tab. 15: Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana (alt) (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen vor und während eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.90

Entnahmedatum/ -uhrzeit	^{226}Ra mBq/kg	^{228}Ra mBq/kg	^{224}Ra mBq/kg	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	^{222}Rn Bq/kg
22.03.90	16.8±1.4	10.9±1.4/0.9	17.1±2.2/1.4	1.57±0.29/0.18	1.54±0.24	488±30
26.03.90/ 9.00h	16.6±1.3	11.0±1.3/0.8	19.5±2.9/2.0	1.77±0.34/0.22	1.51±0.21	
26.03.90/12.30h	17.0±1.3	11.2±1.3/0.8	57.0±6.0/3.2	5.09±0.80/0.46	1.52±0.21	343±22
26.03.90/17.00h	16.6±1.3	11.3±1.4/0.9	18.2±2.7/1.8	1.61±0.31/0.20	1.47±0.22	520±32
30.03.90	16.8±1.4	10.6±1.5/1.0	18.4±2.6/1.7	1.74±0.35/0.23	1.59±0.26	459±29
04.04.90	16.5±1.4	10.5±1.4/0.9	19.6±2.4/1.5	1.87±0.34/0.21	1.57±0.25	287±17
24.04.90	16.7±1.4	10.8±1.4/0.9	18.7±2.3/1.4	1.73±0.31/0.19	1.55±0.24	222±16
03.05.90	16.1±1.5	9.8±1.6/1.2	11.5±1.8/1.3	1.17±0.27/0.20	1.64±0.31	
29.06.90	17.9±1.4	10.7±1.6/1.1	56.0±5.0/2.2	5.23±0.91/0.58	1.67±0.28	121±7

Tab. 16: Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung St. Linus (Pechbrunn/Oberpfalz) entnommen vor und während eines Pumpversuchs vom 26.03.-29.06.90

Entnahmedatum/ -uhrzeit	^{226}Ra mBq/kg	^{228}Ra mBq/kg	^{224}Ra mBq/kg	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	^{222}Rn Bq/kg
22.03.90	40.6±2.9	46.6±5.4/3.1	50.6±5.4/2.9	1.09±0.15/0.10	0.87±0.12	490±30
04.04.90	38.6±2.9	38.7±3.9/2.0	39.0±3.9/2.0	1.01±0.14/0.07	1.00±0.13	271±16
24.04.90	42.8±3.1	46.6±5.5/3.2	54.6±6.4/3.7	1.17±0.20/0.11	0.91±0.13	192±12
03.05.90	48.0±3.5	51.7±4.4/1.9	70.1±8.0/4.5	1.36±0.19/0.10	0.92±0.10	
29.06.90	39.2±2.9	40.1±3.8/1.8	43.0±3.9/1.8	1.07±0.14/0.07	0.98±0.12	359±23

Tab. 17: Ergebnisse von Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung Silvana II und den Brunnen Silvana I, Silvana (alt) und St. Linus, sowie einer Probebohrung in Pechbrunn; entnommen zwischen März 1990 und Januar 1992.
Ergebnisse mit zweifacher Standardabweichung.
Tritium (^{3}H) in Tritium-Units (TU). 1 TU = 0.119 Bq/l.
Sauerstoff-18 (^{18}O) und Deuterium (^{2}H) bezogen auf VSMOW-‰.
Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.
Kohlenstoff-14 (^{14}C) in % modern. 100% modern = 0.226 Bq/g Kohlenstoff.
^{18}O: ±0.15 $\delta^{18}O$-VSMOW-‰
^{2}H: ±1.5 $\delta^{2}H$-VSMOW-‰
^{13}C: ±0.5 $\delta^{13}C$-PDB-‰

Entnahmeort	Entnahmedatum/ -uhrzeit	^{3}H TU	$\delta^{13}C$ ‰	^{14}C %mod.
Silvana I	26.03.90/ 9.00h	1.3±1.3		
	26.03.90/12.30h	1.0±1.5		
	26.03.90/17.00h	1.3±1.4		
	30.03.90	1.4±1.4		
	24.04.90	< 0.5		
Silvana alt	22.03.90	12.2±1.2		
	26.03.90/ 9.00h	8.2±2.2		
	26.03.90/12.30h	11.2±3.2		
	26.03.90/17.00h	9.8±3.1		
	30.03.90	11.4±2.6		
	24.04.90	8.2±1.2		
	29.06.90	8.8±1.4		
St. Linus	22.03.90	21.9±2.1		
	24.04.90	18.2±2.3		
	29.06.90	22.8±2.2		
Probebohrung	03.08.90	< 0.5		
Silvana II	07.10.91/13.00h	4±1		
	27.11.91/16.00h	2±0.7	-3.37	< 3

Tab. 18: Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben entnommen aus der Bohrung Silvana II, Pechbrunn

		Entnahmedatum				
		07.10.1991	**23.11.1991**		**27.11.1991**	**13.01.1992**
Entnahmeuhrzeit		13.00	08.30	10.00	16.00	10.00
^{226}Ra	mBq/kg	8,1	5,2	6,0	5,7	4,4
Fehler ^{226}Ra		0,7	0,4	0,5	0,4	0,4
^{228}Ra	mBq/kg	16,4	9,5	11,5	10,5	6,7
Fehler (1)		2,4	1,7	1,9	1,9	1,1
Fehler (2)		1,6	1,2	1,4	1,4	0,8
^{224}Ra	mBq/kg	23,6	21,3	30,9	20,1	13,7
Fehler (1)		3,1	3,6	4,5	3,1	1,8
Fehler (2)		2,0	2,6	3,0	2,1	1,2
$^{224}Ra/^{228}Ra$		1,44	2,24	2,69	1,91	2,05
Fehler (1)		0,32	0,55	0,59	0,46	0,43
Fehler (2)		0,18	0,39	0,42	0,32	0,30
$^{226}Ra/^{228}Ra$		0,49	0,55	0,52	0,54	0,66
Fehler $^{226}Ra/^{228}Ra$		0,08	0,11	0,10	0,11	0,12
^{222}Rn	Bq/kg	75				
Fehler ^{222}Rn		6				

Tab. 19: Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen und der wasserchemischen Untersuchungen an Proben, die während des Pumpversuchs in Karlovy Vary an der Bohrung HJ-2 und an der Sprudelquelle BJ-36 entnommen wurden.

	HJ2 12.05.90	HJ2 13.05.90	HJ2 14.05.90	BJ36 13.05.90
Labornummer	20710	20711	21709	20712
Q (l/s)				8.2
pH	6.1	6.2		6.6/6.9
LF (µS/cm)	4430	5080		8600
T (°C)	22.5	23.2		72.7
O_2 (mg/l)	n.n.	n.n.		n.n.
Redox-Wert (mV)	-158	-62		-44
Na^+ (mg/l)	1070	1105		1800
K^+ (mg/l)	62	59		89
NH_4^+ (mg/l)	0.7	0.56		0.46
Ca^{2+} (mg/l)	40.2	39		128
Mg^{2+} (mg/l)	138	140		48.1
Sr^{2+} (mg/l)	5.6	5.6		*3.83
Fe_{ges} (mg/l)	41.3	43.5		*10.9
Ba^{2+} (µg/l)	65.8	90		96.0
Pb (µg/l)	7.19	7.0		8.51
Cd (µg/l)	0.93	0.79		0.8
Cr (µg/l)	22.8	25.0		2.85
Mn (µg/l)	1576	1530		86.0
F^- (mg/l)	3.6	3.9		6.2
Cl^- (mg/l)	412	423		603
Br^- (mg/l)	0.2	1.0		1.53
I^- (mg/l)	n.n.	n.n.		n.n.
NO_3^- (mg/l)	n.n.	0.07		n.n.
SO_4^{2-} (mg/l)	981	1089		1606
HCO_3^- (mg/l)	1641	1546		2371
Summe diss.	4395.6	4455.63		6657.12
Kieselsäure	117	130		123
Borsäure	2.07	2.31		3.67
Sum.undiss.	119.07	132.31		126.67
Sum.festgel	4514.67	4587.94		6783.79
CO_2 (mg/l)	665.3	1002	2420	148.3

n.n. = nicht nachweisbar
n.b. = nicht bestimmt
Die Parameter Na bis SO_4, sowie Borsäure und Kieselsäure, wurden jeweils vom Institut für Wasserchemie, München-Großhadern, bestimmt.
*(µg/l)

Tab. 20a: Ergebnisse der isotopenhydrologischen*),**) und der radiologischen Untersuchungen an Proben, die während des Pumpversuchs in Karlovy Vary an der Bohrung HJ-2 und an der Sprudelquelle BJ-36 entnommen wurden.

Ergebnisse mit zweifacher Standardabweichung.

Tritium (^{3}H) in Tritium-Units (TU). 1 TU = 0.119 Bq/l.

Sauerstoff-18 (^{18}O) und Deuterium (^{2}H) bezogen auf VSMOW-‰.

Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.

Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.

Kohlenstoff-14 (^{14}C) in % modern. 100% modern = 0.226 Bq/g Kohlenstoff.

Schwefel-34 bezogen auf CDT-‰

^{18}O: ±0.15 $\delta^{18}O$-VSMOW-‰

^{2}H: ±1.5 $\delta^{2}H$-VSMOW-‰

^{13}C: ±0.5 $\delta^{13}C$-PDB-‰

	HJ2 12.05.90	HJ2 13.05.90	HJ2 14.05.90	BJ36 13.05.90
Labornummer	20710	20711	21709	20712
$\delta^{18}O$	-10.05	-10.11		-10,5
$\delta^{2}H$	-69.2	-68.5		-70.9
^{3}H	4.1±0.8	3.3±0.5 2.7±0.5		0.4±0.4
$\delta^{13}C$	-2.26	-1.72		-1.55
$\delta^{34}S$	8.0±0.31	7.6±0.31		6.4±0.31
$\delta^{18}O$ von SO_4	6.85;5.88	6.17;5.9 2		6.58;5.91
$^{3}He/^{4}He$	$2.34*10^{-6}$ ±0.89			$2.85*10^{-6}$ ± 4.7
R/R_A	1.6			2.06
^{4}He(Nml/g)	$2.40*10^{-6}$			$2.39*10^{-8}$
^{20}Ne(Nml/g)	$4.51*10^{-8}$			$7.2*10^{-10}$
$^{87}Sr/^{86}Sr$**)	0.713922 ±0.000018			

*) Die Bestimmungen der Parameter ^{3}H, ^{2}H, ^{18}O, ^{13}C, ^{34}S, ^{3}He, ^{4}He und ^{20}Ne wurden an der GSF München-Neuherberg durchgeführt

**) Die Bestimmung des Sr-Isotopenverhältnisses wurde am Institut für Geochemie der Universität Tübingen vorgenommen

Tab. 20b: Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Proben, die während des Pumpversuchs in Karlovy Vary an der Bohrung HJ-2 und an der Sprudelquelle BJ-36 entnommen wurden.

Entnahmestelle-/ datum	^{226}Ra mBq/kg	^{228}Ra mBq/kg	^{224}Ra mBq/kg	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$	^{222}Rn Bq/kg
HJ2/12.05.90	257±20	130±11			1.96±0.23	15.3±1.2
HJ2/13.05.90	317±25	178±15/6.1	148±12/5	0.83±0.10/0.04	1.78±0.21	18.0±1.4
HJ2/14.05.90	339±27	197±16/7.1	176±17/8.2	0.89±0.11/0.05	1.72±0.20	
BJ36/13.05.90	2690±210	498±44	545±44	1.09±0.13	5.40±0.04	10.0±0.8

Tab. 21: Ergebnisse der Gasanalysen an Fluidproben, entnommen aus der Bohrung Karlovy Vary HJ-2 und der Sprudelquelle (BJ-36)

	HJ2 12.05.90	HJ2 13.05.90	BJ36 13.05.90
Labornummer	20710	20711	20712
He (Nml/kg)	< 0.01	0.01	< 0.01
H_2 (Nml/kg)	0.004	0.09	0.05
O_2 (Nml/kg)	0.17	0.25	0.12
N_2 (Nml/kg)	7.16	16.85	0.73
Ar (Nml/kg)	0.12	0.29	< 0.25
CO_2 (Nml/kg)	582.5	1039.4	884.7
CH_4 (Nml/kg)	0.101	0.23	0.0016
C_2H_6 (vpm)	0.05	< 0.5	< 0.05
C_3H_8 (vpm)	< 0.05	0.28	< 0.05
C_4H_{10} (vpm)	< 0.05	< 0.5	< 0.05
C_2H_4 (vpm)	< 0.05	0.6	< 0.05
C_3H_6 (vpm)	< 0.05	< 0.5	< 0.05
C_4H_8 (vpm)	< 0.05	< 0.5	< 0.05
Σ mit CO_2	590.105	1057.12	885.6
Σ ohne CO_2	7.605	17.72	0.9

Tab. 22a: Ergebnisse von Radium-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben entnommen aus der Bohrung Kellerhaus bei Mantel (Oberpfalz).

Entnahmedatum	^{226}Ra mBq/kg	^{228}Ra mBq/kg	^{224}Ra mBq/kg	^{222}Rn Bq/kg	$^{224}Ra/^{228}Ra$	$^{226}Ra/^{228}Ra$
15.10.90/ 8.00h	15.3±1.6	21.5±2.2/1.2	23.0±3.0/1.9	12.0±1.4	1.07±0.18/0.11	0.71±0.10
15.10.90/13.00h	14.3±1.5	18.2±2.1/1.2	24.0±3.0/1.8	14.9±1.5	1.32±0.24/0.13	0.79±0.12
15.10.90/17.30h	13.3±1.4	18.6±2.1/1.2	21.0±3.0/2.0	14.8±1.4	1.13±0.21/0.13	0.72±0.11
19.10.90/10.00h	11.8±0.9	13.0±3.0/2.4				0.91±0.22

Tab. 22b: Ergebnisse von hydrochemischen Untersuchungen und Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben entnommen aus der Bohrung Kellerhaus bei Mantel (Oberpfalz).
Ergebnisse mit zweifacher Standardabweichung.
Tritium (^3H) in Tritium-Units (TU). 1 TU = 0.119 Bq/l.
Sauerstoff-18 (^{18}O) bezogen auf VSMOW-‰.
^{18}O: ±0.15 $\delta^{18}O$-VSMOW-‰

Datum	15.10.90	15.10.90	15.10.90	18.10.90	19.10.90
Uhrzeit	8.00 h	13.00 h	17.30 h		10.00 h
Pumpzeit(h)	10.00	15.00	19.5	83	108.0
Q (l/s)	5.1	5.1	5.1	5.1	5.1
pH	7.33	7.56	7.33	7.49	
LF (µS/cm)	417	415	416		
T (°C)	10.1	10.1	10.2	9.8	
O_2 (mg/l)	6.0	5.0	6.0		
Redoxp.(mV)	202	242	236	433	
Li^+ (mg/l)	0.05	0.04	0.04		
Na^+ (mg/l)	11.0	11.5	14.0	12.8	
K^+ (mg/l)	3.0	3.5	3.5	2.5	
Ca^{2+} (mg/l)	50.0	50.5	50.5	40.8	
Mg^{2+} (mg/l)	25.4	24.9	25.4	28.6	
Sr^{2+} (mg/l)	1.55	1.53	1.57		
Ba^{2+} (mg/l)	0.506	0.6	0.6		
$Fe_{ges.}$ (mg/l	0.06	0.07	0.11	0.02	
Mn (mg/l)	0.002	0.005	0.005		
Rb (mg/l)	0.002	0.003	0.003		
Cl^- (mg/l)	4.30	4.32	4.34	6.0	
SO_4^{2-}(mg/l)	32.0	35.0	36.0	26.0	
HCO_3^-(mg/l)	246.2	234.1	244.0	252.5	
CO_2 (mg/l)	5.9	9.6	16.1	16.7	
^3H [TU]	13.0±1.	16.2±1.	14.8±1.7		13.2±1.9
$\delta^{18}O$ [‰]	-9.71	-9.70	-9.75		-9.74

Tab. 23a: Ergebnisse von Vor.Ort-Messungen und Isotopenhydrologischen Untersuchungen an Grundwasserproben aus der Bohrung TB Wiesenfeld IV:

Datum	02.04.91	02.04.91	02.04.91
Temp. (°C)	10.7	10.6	10.3
LF (μS/cm)	877	874	850
O_2 (mg/l)	6.0	6.1	6.0
pH-Wert	6.84	6.81	6.83
$SK_{4.3}$ (mg HCO_3/l)	421.5	377.9	380.1
$BK_{8.2}$ (mg CO_2/l)	50.4	55.8	55.7
^3H (TU)	31.1±3.3	34.7±2.9	33.0±2.5
$\delta^{13}C$ (‰)	-15.3		-15.2

Tab. 23b: Ergebnisse der chemischen Untersuchungen an TB Wiesenfeld IV (freundlicherweise zur Verfügung gestellt von Herrn Roh, Fa. IGI Niedermeyer, Westheim):

Farbe nach Augenschein	farblos	
Trübung nach Augenschein	klar	
Geruch	keiner	
Geschmack	keiner	
Volumenstrom	38	l/s
Wassertemperatur	9.9	°C
spez. elektr. Leitfähigkeit (25°C)	929	µS/cm
pH-Wert	7.05	
pH-Wert nach $CaCO_3$-Sättig.	7.05	
Pufferintensität	2.56	mmol/l
Sättigungsindex (Calcit)	-0.01	
Säurekapazität bis pH 4.3	5.85	mval/l
Basenkapazität bis pH 8.2	1.17	mval/l
Freie Kohlensäure (CO_2)	52.3	mg/l
Aggr. Kohlensäure (CO_2)	≤1	mg/l
Sauerstoff (O_2)	6.7	mg/l
Sauerstoffsättigung	61.2	%
Gesamthärte	26.6	°dH
Härtebereich (Waschmittelgesetz)	3	
Calcium (Ca)	143	mg/l
Magnesium (Mg)	28.6	mg/l
Natrium (Na)	6.5	mg/l
Kalium (K)	1.8	mg/l
Mangan (Mn)	≤0.001	mg/l
Mangan (Mn) unfiltriert	≤0.001	mg/l
Eisen ges. (Fe)	≤0.005	mg/l
Eisen ges. (Fe) unfilt.	0.008	mg/l
Ammonium (NH_4)	≤0.01	mg/l
Fluorid (F)	0.12	mg/l
Chlorid (Cl)	42	mg/l
Sulfat (SO_4)	114	mg/l
Nitrat (NO_3)	30	mg/l
Nitrit (NO_2)	≤0.007	mg/l
Orthophosphat (PO_4)	0.012	mg/l
Kieselsäure gel. (SiO_2)	9.3	mg/l
Oxidierbarkeit MnVII -> MnII (O_2)	0.4	mg/l
TOC (C)	<0.5	mg/l
Spektraler Absorptionskoeffizient bei 436 nm	<0.1	m^{-1}
Spektraler Absorptionskoeffizient bei 254 nm	0.7	m^{-1}
Spektraler Schwächungskoeffizient bei 436 nm	<0.1	m^{-1}
Spektraler Schwächungskoeffizient bei 254 nm	0.73	m^{-1}

Tab. 23c: Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung TB Wiesenfeld IV

		Entnahmedatum						
		23.03.1991	**26.03.1331**	**02.04.1991**			**05.04.1991**	**12.04.1991**
Entnahmeuhrzeit				09.15	12.00	16.30		
^{226}Ra	mBq/kg	3,3	3,2	3,7	3,5	3,4	3,2	3,2
Fehler ^{226}Ra		0,3	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3
^{228}Ra	mBq/kg	5,5	4,4	5,4	4,8	5,3	4,2	4,3
Fehler (1)		1,4	1,2	1,3	1,2	0,9	1,0	1,1
Fehler (2)		1,2	1,0	1,1	1,0	0,7	0,8	0,9
^{224}Ra	mBq/kg	10,6	5,0	10,9	7,8	7,2	5,5	6,1
Fehler (1)		3,0	1,7	2,1	1,4	1,5	1,6	1,4
Fehler (2)		2,5	1,5	1,6	1,1	0,8	1,4	1,1
^{224}Ra/^{228}Ra		1,93	1,14	2,02	1,63	1,36	1,31	1,42
Fehler (1)		0,73	0,50	0,62	0,50	0,37	0,49	0,49
Fehler (2)		0,62	0,43	0,51	0,41	0,23	0,42	0,39
^{226}Ra/^{228}Ra		0,60	0,73	0,69	0,73	0,64	0,76	0,74
Fehler ^{226}Ra/^{228}Ra		0,16	0,21	0,17	0,19	0,12	0,20	0,20
^{222}Rn	Bq/l			23,0	27,4	12,4		
Fehler ^{222}Rn				1,5	1,7	1,6		

Tab.24a: Ergebnisse von Tritiumbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Creußen/Neuhaidhof C, entnommen wärend eines Pumpversuchs vom 07. bis. 11.10.1991

Entn.-Datum	**Uhrzeit**	**^{3}H, TU**
01.07.1991	09.25	< 1,0
15.07.1991	12.45	< 1,5
23.07.1991	09.15	< 1,0

Tab.24b: Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Creußen/Neuhaidhof C, entnommen wärend eines Pumpversuchs vom 07. bis. 11.10.1991

		Entnahmedatum						
		Schockpump-phase: 01.07.1991	**15.07.1991**			**17.07.1991**	**21.07.1991**	**23.07.1991**
Entnahmeuhrzeit		09.25	09.03	12.45	18.30	16.30	16.30	09.15
^{226}Ra	mBq/kg	21,3	22,2	19,6	19,2	18,5	18,1	17,9
Fehler ^{226}Ra		1,7	1,9	1,6	1,6	1,5	1,5	1,4
^{228}Ra	mBq/kg	16,5	16,8	15,3	14,6	16,5	15,2	13,2
Fehler (1)		1,9	1,8	1,8	1,8	2,50	1,8	1,7
Fehler (2)		1,1	1,0	1,1	1,1	1,7	1,1	1,1
^{224}Ra	mBq/kg	20,7	23,4	20,6	20,5	22,0	19,5	18,1
Fehler (1)		3,3	2,8	2,4	2,4	3,0	2,3	2,1
Fehler (2)		2,3	1,8	1,0	1,4	1,9	1,4	1,2
^{224}Ra/^{228}Ra		1,25	1,39	1,34	1,40	1,33	1,28	1,37
Fehler (1)		0,25	0,22	0,22	0,24	0,27	0,21	0,24
Fehler (2)		0,16	0,14	0,12	0,14	0,18	0,13	0,15
^{226}Ra/^{228}Ra		1,29	1,32	1,28	1,32	1,12	1,19	1,36
Fehler		0,18	0,18	0,18	0,20	0,19	0,17	0,20
^{222}Rn	Bq/kg	20,3	23,5	27,7	23,2			30,0
Fehler		1,8	2,0	2,4	2,0			3,0

Tab. 25a: Ergebnisse der Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Thermalwasserbohrung Bayreuth

		Entnahmedatum				
		19.11.1990	**20.11.1990**	**23.11.1990**	**24.11.1990**	**11.06.1991**
^{226}Ra	mBq/kg	34,2	39,5	37,7	37,3	40
Fehler ^{226}Ra		3,5	3,5	3,5	3,5	3
^{228}Ra	mBq/kg	56	64	63	64	64
Fehler(1)		6,0	7,0	7	7	8
Fehler(2)		3,2	3,2	3,9	3,8	4,8
^{224}Ra	mBq/kg	47	55	56	55	57
Fehler(1)		5	6	6	6	6
Fehler(2)		2,7	3,3	3,2	3,3	3,2
$^{224}Ra/^{228}Ra$		0,84	0,86	0,87	0,89	0,86
Fehler (1)		0,13	0,13	0,14	0,15	0,13
Fehler (2)		0,07	0,07	0,08	0,07	0,08
$^{226}Ra/^{228}Ra$		0,61	0,62	0,59	0,58	0,63
Fehler $^{226}Ra/^{228}Ra$		0,09	0,09	0,09	0,08	0,09
^{222}Rn	mBq/kg				17,6	19,8
Fehler ^{222}Rn					1,1	6

Tab. 25b: Ergebnisse der Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben der Thermalwasserbohrung Bayreuth
Ergebnisse mit zweifacher Standardabweichung.
Tritium (^{3}H) in Tritium-Units (TU). 1 TU = 0.119 Bq/l.
Krypton-85 (^{85}Kr) in dpm/ml Kr. Derzeitiger Wert: 56 dpm/ml Kr.
Sauerstoff-18 (^{18}O) bezogen auf VSMOW-‰.
Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.
Kohlenstoff-14 (^{14}C) in % modern. 100% modern = 0.226 Bq/g Kohlenstoff.
Argon-39 (^{39}Ar) in % modern. 100% modern = 0.108 dpm/l Ar
^{18}O: ±0.15 $\delta^{18}O$-VSMOW-‰
^{13}C: ±0.5 $\delta^{13}C$-PDB-‰

	23.11.90	11.06.91
Labornummer	24196	27940
$^{3}He/^{4}He$ 10^{-6}		0.131±0.004
$^{4}He_{exc}$ 10^{-8} (Nml/gProbe)		2800±600
^{3}H (TU)	<1.0	<1.5
^{85}Kr (dpm/ml Kr)		0.096±0.029
^{39}Ar (%mod.)		50±8
^{14}C (%mod)	4±2	
$\delta^{13}C$ (‰)	-15.4	-15.3
$\delta^{18}O$ (‰)	-10.44	

Tab. 25c: Ergebnisse der quantitativen Gasuntersuchungen an Grundwasserproben die am 23.11.1990 und am 11.06.1991 an der Thermalwasserbohrung Bayreuth entnommen wurden.

	23.11.90	11.06.1991
	- Nml/kg -	
Wasserstoff (H_2)	≤ 0.003	<0.07
Helium (He)	≤ 0.03	<0.07
Sauerstoff (O_2)	≤ 0.1	1.5
Stickstoff (N_2)	19.5	25.6
Argon (Ar)	0.40	0.5
Kohlenstoffdioxid (CO_2)	3.0[1)]	41.3[1)]
Methan (CH_4)	0.003	0.02
Ethan (C_2H_6)	0.0001	≤0.00004
Propan (C_3H_8)	≤ 0.0001	≤0.00004
i-Butan (C_4H_{10})	≤ 0.0001	≤0.00004
n-Butan (C_4H_{10})	≤ 0.0001	≤0.00004
Gesamtgasgehalt	22.9	69.0
Gesamtgasgehalt ohne Kohlenstoffdioxid	18.9	27.6

1) frei extrahierbares CO_2

2) Kohlenstoffdioxid: gesamter anorganischer gelöster Kohlenstoff

Tab. 26a: Ergebnisse von Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Eckersdorf B2, entnommen während eines Pumpversuchs vom 07. bis 11.10.1991.
Ergebnisse mit zweifacher Standardabweichung.
Tritium (^{3}H) in Tritium-Units (TU). 1 TU = 0.119 Bq/l.
Sauerstoff-18 (^{18}O) und Deuterium (^{2}H) bezogen auf VSMOW-‰.
Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.
Kohlenstoff-14 (^{14}C) in % modern. 100% modern = 0.226 Bq/g Kohlenstoff.
^{18}O: ±0.15 $\delta^{18}O$-VSMOW-‰
^{2}H: ±1.5 $\delta^{2}H$-VSMOW-‰
^{13}C: ±0.5 $\delta^{13}C$-PDB-‰

Entn.-Datum/ Uhrzeit	^{3}H TU	$\delta^{2}H$ ‰	$\delta^{18}O$ ‰	$\delta^{13}C$ ‰	^{14}C %mod.
07.10.91/10.15	< 1.0			-18.7	5±2
07.10.91/19.00	< 1.0				
11.10.91/ 9.00	< 1.0	-72.6	-10.58		

Tab. 26b: Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Eckersdorf B2, entnommen während eines Pumpversuchs von 07. bis 11.10.1991

		Entnahmedatum				
		07.10.1991			**08.10.1991**	**11.10.1991**
Entnahmeuhrzeit		10.15	12.50	19.00		09.00
^{226}Ra	mBq/kg	6,8	6,2	6,9	7,5	8,0
Fehler ^{226}Ra		0,6	0,6	0,6	0,7	0,7
^{228}Ra	mBq/kg	8,9	8,7	9,0	10,4	10,0
Fehler (1)		1,8	1,9	1,8	1,9	1,9
Fehler (2)		1,4	1,5	1,4	1,4	1,4
^{224}Ra	mBq/kg	18,0	15,5	17,3	16,1	16,4
Fehler (1)		2,0	2,0	2,2	2,5	2,4
Fehler (2)		1,1	1,3	1,2	1,7	1,6
^{224}Ra/^{228}Ra		2,02	1,78	1,92	1,55	1,64
Fehler (1)		0,47	0,45	0,46	0,37	0,39
Fehler (2)		0,34	0,34	0,33	0,27	0,28
^{226}Ra/^{228}Ra		0,76	0,71	0,76	0,72	0,80
Fehler ^{226}Ra/^{228}Ra		0,17	0,17	0,17	0,15	0,17
^{222}Rn	Bq/kg	9,8	5,8	9,0		9,5
Fehler ^{222}Rn		0,8	0,6	0,7		0,8

Tab. 27: Ergebnisse von Radium-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung Treuchtlingen T2, entnommen während eines Pumpversuchs vom 28. bis 29.01.1992

		Entnahmedatum					
		28.01.1992			**29.01.1992**		
Entnahmeuhrzeit		09.00	17.55	18.20	03.55	04.10	13.30
^{226}Ra	mBq/kg	262	111	108	121	111	122
Fehler ^{226}Ra		19	8	8	9	8	9
^{228}Ra	mBq/kg	122	59	59	69	58	68
Fehler (1)		15	9	8	8	8	8
Fehler (2)		9	6,1	5,1	4,6	5,1	4,6
^{224}Ra	mBq/kg	109	52	52	58	54	58
Fehler (1)		11	7	6	7	7	7
Fehler (2)		5,6	4,4	3,4	4,1	4,3	4,1
^{224}Ra/^{228}Ra		0,89	0,88	0,88	0,84	0,93	0,85
Fehler (1)		0,14	0,18	0,16	0,14	0,18	0,14
Fehler (2)		0,08	0,12	0,10	0,08	0,11	0,08
^{226}Ra/^{228}Ra		2,15	1,88	1,83	1,75	1,91	1,79
Fehler ^{226}Ra/^{228}Ra		0,31	0,32	0,28	0,24	0,30	0,25

Tab. 28a: Ergebnisse der Vor-Ort-Messungen an Grundwasserproben aus der Bohrung KB13 bei Geisingen

		Entnahmedatum							
		28.10.1991			**29.10.1991**		**30.10.1991**		
Entnahmeuhrzeit		14.30	17.00	18.30	12.00	16.50	10.00	12.00	16.00
Entnahmetiefe	m u.GOK	6-9	6-9	6-9	15-18	15-18	12-15	12-15	12-15
Pumprate	l/m	3	3	3	0,2	0,2	2,0	2,0	2,0
Temperatur	^{0}C	10,2	9,4	9,3			10,0	10,6	10,0
Spez. el. LF	µS/cm	1140	901	880	1753	1842	1278	1139	1103
O_2	mg/l	0,3	0,2	0,1			0,7	0,2	0,2
Redox	mV	164	171	169			158	121	114
pH		6,9	6,9	7,0	7,6	7,4	7,2		7,1
SK 4,3	mmol/l	7,4	7,5	7,1	9,1	9,2	9,0		9,0
SK 4,3	mg/l	452	456	436	556	560	547		546
BK 8,2	mmol/l	1,03	0,99	0,66	0,30	0,43	0,87		0,98
BK 8,2	mg/l	45	43	29	< 20	< 20	38		43

Tab. 28b: Ergebnisse von Isotopengehaltsbestimmungen an Grundwasserproben der Bohrung KB 13 Geisingen.
Ergebnisse mit zweifacher Standardabweichung.
Tritium (^{3}H) in Tritium-Units (TU). 1 TU = 0.119 Bq/l.
Sauerstoff-18 (^{18}O) und Deuterium (^{2}H) bezogen auf VSMOW-‰.
Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.
Kohlenstoff-14 (^{14}C) in % modern. 100% modern = 0.226 Bq/g Kohlenstoff.
^{18}O: ±0.15 $\delta^{18}O$-VSMOW-‰
^{2}H: ±1.5 $\delta^{2}H$-VSMOW-‰
^{13}C: ±0.5 $\delta^{13}C$-PDB-‰
Entnahmedaten: 28.-30.10.1991

Entn.-Tiefe/ Uhrzeit	^{3}H TU	$\delta^{2}H$ ‰	$\delta^{18}O$ ‰	$\delta^{13}C$ ‰	^{14}C %mod.
6- 9m/14.00	3.0±1.0	-69.6	-9.8	-12.68	22±1
6- 9m/17.00					
6- 9m/19.00	1.7±1.0	-69.3	-9.97		
12-15m/ 9.00	0.5±0.8	-68.9	-10.08	-9.59	< 3
12-15m/12.00					
12-15m/16.30	<1.0	-68.8	-10.02		
15-18m/11.00	2.9±1.1[1)]	-70.7	-10.23		
15-18m/13.30					
15-18m/18.00	0.5±0.8	-70.9	-10.33	-9.37	< 3

1) dieser Wert zeigt, daß die Probenahme zu einem Zeitpunkt erfolgte, als das Mischwasser aus dem Packerintervall noch nicht ganz ausgetauscht war

Tab. 28c: Ergebnisse von Kohlenstoff-13- (^{13}C) und Sauerstoff-18-(^{18}O)-Bestimmungen an Gesteinsproben.
Sauerstoff-18 (^{18}O) bezogen auf PDB-‰.
Kohlenstoff-13 (^{13}C) bezogen auf PDB-‰.
^{18}O: ±0.2 $\delta^{18}O$-PDB-‰
^{13}C: ±0.2 $\delta^{13}C$-PDB-‰

Lab.-Nr.	Bezeichnung	Herkunft	$\delta^{13}C$ (‰)				$\delta^{18}O$ (‰)		
			1.Messg.	2.Messg.	3.Messg	MW	1.Messg.	2.Messg.	MW
32028	KB3 48.5m	Kluftbeläge	-0.72	-0.35		-0.54	-6.70		-6.70
32029	KB3 50-50.1	Kluftbeläge	-1.20	-2.21		-1.70	-6.11		-6.11
32030	KB3 50.5m	Gestein	-0.96	-1.03		-1.00	-7.23		-7.23
32031	KB9 8m	Gestein	-0.49	0.42		0.04	-7.19		-7.19
32032	KB9 8-9m	Kluft	0.02	0.47		0.25	-7.77		-7.77
32033	KB9 30m	Kluft	-0.18	-0.29	-0.00	-0.16	-8.33	-7.80	-8.06
32034	KB9 30.5m	Gestein	1.15	1.76		1.46	-5.33		-5.33
32035	KB13 8.9m	Gestein	-1.52	0.13		-0.70	-7.39		-7.39
32036	KB13 15m	Gestein	0.69	0.24		0.47	-7.55		-7.55
32037	KB13 18m	Gestein	-0.56	-0.70	-0.69	-0.65	-6.96	-7.01	-6.98

Tab. 28d: Ergebnisse von Radium- und Radon-Aktivitätsbestimmungen an Grundwasserproben aus der Bohrung KB 13, entnommen während 3 Pumpversuchen in unterschiedlichen Entnahmebereichen

		Entnahmeteufe, m								
		6-9	**6-9**	**6-9**	**12-15**	**12-15**	**12-15**	**15-18**	**15-18**	**15-18**
Entnahmeuhrzeit		14.00	17.00	19.00	09.00	12.00	16.50	11.00	13.50	18.00
^{226}Ra	mBq/kg	12,6	12,3	12,3	9,1	8,9	9,1	9,1	9,3	9,2
Fehler ^{226}Ra		0,9	0,9	0,9	0,7	0,7	0,7	0,7	0,7	0,7
^{228}Ra	mBq/kg	18,2	18,6	20,5	14,0	15,2	15,4	17,0	17,6	19,1
Fehler (1)		3,0	3,2	3,3	2,8	3,1	3,0	3,2	3,3	3,1
Fehler (2)		2,1	2,3	2,1	2,1	2,4	2,3	2,4	2,5	2,2
^{224}Ra	mBq/kg	19,0	18,8	20,0	14,7	15,5	12,6	19,7	21,5	19,3
Fehler (1)		3,2	3,3	3,5	2,9	3,2	2,5	3,5	4,2	3,4
Fehler (2)		2,3	2,4	2,5	2,2	2,5	1,9	2,6	3,2	2,5
^{224}Ra/^{228}Ra		1,04	1,01	0,98	1,05	1,02	0,82	1,16	1,22	1,01
Fehler (1)		0,25	0,25	0,23	0,30	0,30	0,23	0,30	0,33	0,24
Fehler (2)		0,18	0,18	0,16	0,22	0,23	0,17	0,22	0,25	0,18
^{226}Ra/^{228}Ra		0,69	0,66	0,6	0,65	0,59	0,54	0,54	0,53	0,48
Fehler ^{226}Ra/^{228}Ra		0,12	0,12	0,11	0,14	0,13	0,12	0,11	0,11	0,09
^{222}Rn	Bq/kg	3,7		6,6	2,8		4,8	2,7		5,5
Fehler ^{222}Rn		0,4		0,5	0,3		0,4	0,3		0,5

Tab. 29: Ergebnisse der geochemischen Untersuchungen an Gesteinsproben des Bohrkerns aus der Bohrung Karlovy Vary HJ 2.
NWG= Nachweisgrenze [1] bestimmt nach der Penfield-Methode

Oxid/Element	Oxid-/Elementgehalt				Standard-abweichung	NWG
	393.7-393.8m	395.9-396.0m	404.5-404.6m	406.5-406.6m		
SiO2 (%)	75.498	79.867	69.715	88.797	0.472 %	0.895 %
TiO2 (%)	0.047	0.048	0.353	0.161	0.021 %	0.036 %
Al2O3 (%)	13.403	12.225	16.126	3.787	0.166 %	0.286 %
Fe2O3 (%)	< NWG	< NWG	1.582	2.397	0.244 %	0.418 %
MnO (%)	0.012	< NWG	0.096	0.094	0.005 %	0.008 %
MgO (%)	< NWG	0.318	0.444	< NWG	0.131 %	0.222 %
CaO (%)	0.233	0.193	0.394	0.265	0.108 %	0.184 %
Na2O (%)	0.486	0.222	0.351	< NWG	0.077 %	0.131 %
K2O (%)	8.054	4.752	7.833	1.580	0.038 %	0.065 %
P2O5 (%)	0.074	0.048	0.257	0.114	0.017 %	0.029 %
Ba (ppm)	< NWG	< NWG	1704	296	32 ppm	55 ppm
Cr (ppm)	19	24	23	82	14 ppm	25 ppm
Nb (ppm)	< NWG	< NWG	11	8	4 ppm	7 ppm
Ni (ppm)	28	24	30	39	7 ppm	13 ppm
Rb (ppm)	294	200	323	118	5 ppm	9 ppm
Sr (ppm)	32	28	177	61	8 ppm	13 ppm
V (ppm)	< NWG	< NWG	24	< NWG	6 ppm	10 ppm
Y (ppm)	11	8	31	11	2 ppm	3 ppm
Zn (ppm)	13	24	36	46	6 ppm	11 ppm
Zr (ppm)	< NWG	62	168	84	12 ppm	21 ppm
FeO (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
CO_2 (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
H_2O (%) Glühverlust	1.490	2.340	1.140	2.360		
H_2O (%) Kristallwasser [1]	1.73/1.30	2.45/2.21	2.15/2.21	0.90		
Summe (%)	99.860	100.388	98.544	99.832		

Fortsetzung Tab. 29:

Oxid/Element	Oxid-/Element-Gehalt				Standard-abweichung	NWG
	408.5-408.6m	409.3-409.5m	411.4-411.5m	424.0-424.1m		
SiO2 (%)	77.457	76.856	83.213	82.171	0.472 %	0.895 %
TiO2 (%)	0.555	0.370	0.291	0.452	0.021 %	0.036 %
Al2O3 (%)	11.520	9.960	8.082	8.974	0.166 %	0.286 %
Fe2O3 (%)	1.372	2.794	1.622	2.942	0.244 %	0.418 %
MnO (%)	0.019	0.040	0.049	0.026	0.005 %	0.008 %
MgO (%)	0.825	0.655	0.404	0.466	0.131 %	0.222 %
CaO (%)	0.508	0.421	0.280	0.330	0.108 %	0.184 %
Na2O (%)	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG	0.077 %	0.131 %
K2O (%)	4.999	4.229	3.638	3.323	0.038 %	0.065 %
P2O5 (%)	0.292	0.251	0.166	0.235	0.017 %	0.029 %
Ba (ppm)	448	398	291	222	32 ppm	55 ppm
Cr (ppm)	40	44	39	< NWG	14 ppm	25 ppm
Nb (ppm)	21	22	13	36	4 ppm	7 ppm
Ni (ppm)	30	34	27	< NWG	7 ppm	13 ppm
Rb (ppm)	391	290	328	222	5 ppm	9 ppm
Sr (ppm)	74	58	60	202	8 ppm	13 ppm
V (ppm)	35	28	17	26	6 ppm	10 ppm
Y (ppm)	36	180	26	39	2 ppm	3 ppm
Zn (ppm)	252	121	232	56	6 ppm	11 ppm
Zr (ppm)	428	5939	303	206	12 ppm	21 ppm
FeO (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
CO2 (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
H2O (%)						
Glühverlust	1.950	3.010	1.870	2.030		
H_2O (%)						
Kristall-wasser [1]	1.61	2.26	1.23	0.40		
Summe (%)	99.804	99.432	99.852	101.177		

[1] bestimmt nach der Penfield-Methode

Fortsetzung Tab. 29: [1] bestimmt nach der Penfield-Methode

Oxid/Element	Oxid-/Element-Gehalt				Standard-abweichung	NWG
	426.4-426.5m	428.3-428.4m (hell)	428.3-428.4m (dkl)	428.4-428.5m		
SiO2 (%)	98.080	78.298	82.332	85.579	0.472 %	0.895 %
TiO2 (%)	0.042	0.480	0.048	0.149	0.021 %	0.036 %
Al2O3 (%)	0.741	11.054	1.730	6.081	0.166 %	0.286 %
Fe2O3 (%)	1.055	1.801	9.631	2.256	0.244 %	0.418 %
MnO (%)	0.015	0.018	0.356	0.067	0.005 %	0.008 %
MgO (%)	< NWG	0.585	0.261	< NWG	0.131 %	0.222 %
CaO (%)	< NWG	0.434	0.614	0.248	0.108 %	0.184 %
Na2O (%)	< NWG	< NWG	< NWG	< NWG	0.077 %	0.131 %
K2O (%)	< NWG	4.620	0.182	2.737	0.038 %	0.065 %
P2O5 (%)	0.031	0.307	0.045	0.106	0.017 %	0.029 %
Ba (ppm)	86	360	70	496	32 ppm	55 ppm
Cr (ppm)	72	22	52	77	14 ppm	25 ppm
Nb (ppm)	14	27	14	12	4 ppm	7 ppm
Ni (ppm)	53	20	35	48	7 ppm	13 ppm
Rb (ppm)	< NWG	377	< NWG	138	5 ppm	9 ppm
Sr (ppm)	64	242	117	169	8 ppm	13 ppm
V (ppm)	< NWG	32	40	19	6 ppm	10 ppm
Y (ppm)	7	36	< NWG	17	2 ppm	3 ppm
Zn (ppm)	< NWG	250	84	83	6 ppm	11 ppm
Zr (ppm)	< NWG	232	< NWG	77	12 ppm	21 ppm
FeO (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
CO2 (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
H2O (%)						
Glühverlust	1.080	2.280	5.520	2.290		
H_2O (%)						
Kristall-wasser [1]	0.14	1.93	0.82/0.65	1.13		
Summe (%)	101.260	100.159	100.770	99.894		

Fortsetzung Tab. 29:

Oxid/Element	Oxid-/Elementgehalt				Standard-abweichung	Nachweis-grenze
	428.9-429.0m	432.4-432.5m	461.5-461.6m	462.1-462.5m		
SiO2 (%)	73.208	97.862	98.811	99.961	0.472 %	0.895 %
TiO2 (%)	0.550	< NWG	< NWG	< NWG	0.021 %	0.036 %
Al2O3 (%)	13.698	0.531	0.480	0.417	0.166 %	0.286 %
Fe2O3 (%)	2.681	1.089	< NWG	< NWG	0.244 %	0.418 %
MnO (%)	0.026	0.010	0.013	0.011	0.005 %	0.008 %
MgO (%)	0.669	< NWG	< NWG	< NWG	0.131 %	0.222 %
CaO (%)	0.651	< NWG	< NWG	< NWG	0.108 %	0.184 %
Na2O (%)	0.248	< NWG	< NWG	< NWG	0.077 %	0.131 %
K2O (%)	5.744	< NWG	< NWG	< NWG	0.038 %	0.065 %
P2O5 (%)	0.451	0.042	< NWG	< NWG	0.017 %	0.029 %
Ba (ppm)	674	< NWG	72	< NWG	32 ppm	55 ppm
Cr (ppm)	44	212	29	< NWG	14 ppm	25 ppm
Nb (ppm)	32	< NWG	< NWG	< NWG	4 ppm	7 ppm
Ni (ppm)	25	143	23	< NWG	7 ppm	13 ppm
Rb (ppm)	414	< NWG	< NWG	< NWG	5 ppm	9 ppm
Sr (ppm)	176	89	14	< NWG	8 ppm	13 ppm
V (ppm)	34	< NWG	< NWG	< NWG	6 ppm	10 ppm
Y (ppm)	47	7	7	< NWG	2 ppm	3 ppm
Zn (ppm)	185	18	< NWG	< NWG	6 ppm	11 ppm
Zr (ppm)	272	< NWG	< NWG	< NWG	12 ppm	21 ppm
FeO (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
CO2 (%)	0.000	0.000	0.000	0.000		
H2O (%)						
H2O (%) Glühverlust	2.380	0.440	0.490	0.410		
Kristall-wasser [1]	2.38	0.02	0.31	0.17		
Summe (%)	100.477	100.163	100.306	101.216		

[1] bestimmt nach der Penfield-Methode

Tab. 30:
Radium- und Thorium-Isotopengehaltsbestimmungen an Gesteinsproben aus Karlovy Vary (Karlsbad)

Probenbezeichnung Karlovy Vary	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	$^{226}Ra/^{228}Ra$
	- Bq/kg -			
393.7-393.8m	48.0± 8.1	7.3± 8.1	10.0± 6.1	6.6±7.38
395.9-396.0m	49.7± 9.9	12.7±11.0	12.4± 8.1	3.9±3.48
404.5-404.6m	99.3± 13.6	91.0±16.2	84.6±14.2	1.1±0.25
406.5-406.6m	38.9± 6.2	31.6± 7.3	34.4± 5.7	1.2±0.35
408.5-408.6m	541.4± 48.2	101.8±19.1	125.6±18.7	5.3±1.10
409.3-409.5m	2645.3±160.6	89.6±19.5	99.2±18.7	29.5±6.67
411.4-411.5m	244.8± 24.7	41.5±11.6	47.3±10.2	9.9±1.75
424.0-424.1m	67.7± 11.1	67.4±13.8	71.8±13.8	1.0±0.26
426.4-426.5m	431.9± 38.3	23.8± 8.9	18.1± 6.9	18.1±6.97
428.3-428.4m/hell	81.9± 11.1	82.8±15.0	82.4±13.0	1.0±0.22
428.3-428.4m/dkl	53.7± 6.2	29.4± 5.7	30.0± 5.3	1.8±0.41
428.4-428.5m	44.4± 6.2	28.9± 6.1	33.2± 5.7	1.5±0.39
428.9-429.0m	85.8± 11.1	74.1±11.4	85.8±10.2	1.2±0.23
432.4-432.5m	11.3± 3.7	3.6± 3.3	4.4± 3.2	3.2±3.06
461.5-461.6m	9.6± 3.7	7.0± 4.5	2.0±<4.8	1.4±1.03
462.1-462.4m	7.6± 3.7	6.6± 3.7	2.9± 2.8	1.2±0.86
429.0-429.1m (rote,mürbe Zone)	155.1± 18.5	103.0±16.6	106.5±13.8	1.5±0.30

Tab. 31: Ergebnisse der $\delta^{18}O$-Messungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Karlovy Vary HJ-2:

Entnahmetiefe	$\delta^{18}O$ (‰)	Ausbeute (%)
393.7-393.8m (1.)	12.15	103
393.7-393.8m (2.)	11.88	106
395.9-396.0m	12.14	99
404.5-404.6m	11.98	107
406.5-406.6m	17.45	105
408.5-408.6m	13.59	106
409.3-409.5m	14.92	100
411.4-411.5m	14.95	103
424.0-424.1m	15.50	102
826.4-426.5m (1.)	19.41	85
426.4-426.5m (2.)	19.56	104
428.3-428.4m/hell	13.91	101
428.3-428.4m/dkl	18.98	86
428.4-428.5m	17.16	100
428.9-429.0m	13.70	100
432.4-432.5m (1.)	17.99	56
432.4-432.5m (2.)	18.01	104
461.5-461.6m	17.94	111
462.1-462.4m	20.23	104

Tab. 32a: Ergebnisse von Uran-238-Gehaltsbestimmungen und Bestimmungen der Isotopenverhältnisse von $^{234}U/^{238}U$ und $^{230}Th/^{234}U$ an ausgewählten Proben der Bohrung Karlovy Vary HJ-2. Die Gesteinsproben wurden zerkleinert (<2 mm) und in 0.1n HCl geleacht.
Die Bestimmungen der Konzentrationen und Verhältnisse in den Lösungen wurden dankenswerterweise von Prof. H.R. von Gunten in Würenlingen/CH (Paul Scherrer Institut) durchgeführt.

Tiefenbereich (m)	^{238}U (µg/g Gesteinsprobe)	$^{234}U/^{238}U$	$^{230}U/^{234}U$
395.9-306.0	0.75±0.05	1.383±0.026	0.037±0.006
404.5-404.6	1.25±0.10	1.413±0.020	0.458±0.010
409.3-409.5	5.55±0.25	11.942±0.039	0.004±0.001
461.5-461.6	0.10±0.015	1.444±0.133	0.696±0.091

Tab. 32b: Leaching-Test mit 0.1n HCl an Gesteinspulver der Bohrung HJ-2 Karlovy Vary. Die angegebenen Meßwerte beziehen sich auf die Aktivität der Leaching-Flüssigkeit nach einem 4-stündigen Batchversuch.

Tiefenbereich (m)	^{226}Ra (Bq/kg)	^{228}Ra (Bq/kg)	^{228}Th (Bq/kg)	$^{226}Ra/^{228}Ra$ (Bq/kg)/(Bq/kg)
395.9-396.0	0.4±0.1	0.1±0.1	0.04(<0.1)	4.0±4.0
404.5-404.6	0.3±0.1	0.2±0.18	0.05(<0.1)	1.5±1.4
409.3-409.5	8.0±1.6	0.4±0.3	0.07(<0.2)	20.0±15.5
461.5-461.6	0.1±0.1	0.2±0.1	0.06(<0.2)	0.5±00.5

Tab. 33: Ra-Isotopenverhältnisbestimmungen an Leaching-Fluid (HCl) von Gesteinsproben zweier Bohrkerne aus Sybillenbad.

Bohrung A			
Tiefen-bereich (m)	^{226}Ra (Bq/kg)	^{228}Ra (Bq/kg)	$^{226}Ra/^{228}Ra$
23	1.25±0.10	0.73±0.09	1.70±0.25
24.5	1.08±0.09	1.36±0.11	0.79±0.09
26	2.10±0.17	2.15±0.17	0.98±0.11
28	6.18±0.49	1.89±0.15	3.27±0.37
28.5	1.83±0.15	0.62±0.06	2.95±0.37
54	2.83±0.23	0.99±0.08	2.86±0.33
Bohrung E			
Tiefen-bereich (m)	^{226}Ra (Bq/kg)	^{228}Ra (Bq/kg)	$^{226}Ra/^{228}Ra$
15-16	0.24±0.02	0.32±0.03	0.75±0.09
16-17	0.61±0.05	0.85±0.09	0.72±0.10
20-21	0.57±0.05	0.66±0.08	0.86±0.13
23-24	0.42±0.03	0.94±0.11	0.45±0.06
24.5	0.32±0.03	0.40±0.07	0.80±0.16
25-26	0.83±0.07	1.27±0.17	0.65±0.10
33	2.03±0.16	2.89±0.35	0.70±0.10
36.5	1.15±0.09	1.74±0.23	0.66±0.10
40-41	0.46±0.04	0.65±0.08	0.71±0.11

Tab. 34: ^{226}Ra-, ^{228}Ra- und ^{228}Th-Aktivitätsbestimmungen an verschiedenen Gesteinsproben

Probenbezeichnung	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	$^{226}Ra/^{228}Ra$
		- Bq/kg -		
Südschwarzwald Eggberg-Fensterstollen				
Calciumstalagmit				
- junge Generation	5.0±2.5	8.7±2.3	6.3±2.2	0.58±0.33
- alte Generation	4.9±2.5	6.2±1.9	6.0±1.8	0.79±0.47
Ibach-Fensterst.				
Albtalgranit	149±15	144±14	156±16	1.04±0.15
Neubrandenburg				
Kreidesandstein	5.2±2.9	6.4±2.2	8.4±2.9	0.81±0.53
Kochendorf				
Muschelkalkdolomit	35.1±5.3	23.2±4.6	17.5±3.5	1.51±0.38
BB Drosen				
Lederschiefer	120±16	64.0±12	61.1±11	1.88±0.42
Creußen, 157.5 m				
Benkersandstein	17.2±5.1	21.7±6.5	27.0±8.1	0.79±0.33
Creußen, 170.2 m				
Benkersandstein	17.3±4.7	23.3±5.8	20.9±5.2	0.74±0.27
Creußen, 177.5 m				
Benkersandstein	21.1±5.7	20.0±5.0	24.0±6.0	1.06±0.39
Karlstadt				
Röt, ca. 30m	36.6±6.2	46.6±5.6	57.9±6.9	0.79±0.16

Tab. 35: Ergebnisse von radiologischen Untersuchungen an ausgewählten natürlichen Eisen- und Manganoxidhydroxidproben

EF : Südschwarzwald, Eggbergfensterstollen, in ca. 500 m Entfernung vom Stollenmundloch, ockerbraune Probe (Fe/Mn)

EF 448 m: Südschwarzwald, Eggbergfensterstollen, in 448 m Entfernung vom Stollenmundloch, ockerfarbene Probe (i.w. Fe)

EF 850 m: Südschwarzwald, Eggbergfst. Drainage, in 850 m Entfernung vom Stollenmundloch, schwarzbraune Probe (i.w. Mn)

MT 14 : westl. Südschwarzwald, Münstertal, Schindlergang des Wilhelmstollens (i.w. FE)

WT : westl. Südschwarzwald, Münstertal, Teufelsgrundgang des Wilhelmstollens (i.w. FE)

Drosen : Uran-Bergbaubetrieb Drosen bei Gera/Ronneburg, ockerfarben (i.w. Fe)

Proben-bezeichnung	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	$^{226}Ra/^{228}Ra$
		- Bq/kg -		
EF 448 m	546.8± 39.5	493.1± 39.4	449.1± 36.6	1.1±0.12
WT	121.2± 22.3	676.9± 69.0	645.3± 65.0	0.2±0.04
EF 850 m (1)	1833.0±148.3	1541.8±154.3	933.0±105.5	1.2±0.15
MT 14 (2)	10.3± 3.7	15.7± 4.5	12.8± 4.1	0.7±0.30
EF (3)	8447.8±844.8	3825.4±382.5	1687.3±202.5	2.2±0.31
Drosen (4)	5714.9±571.5	2212.2±287.6	248.1± 62.0	2.6±0.42

Fortsetzung Tab. 35: Ergebnisse von radiologischen Untersuchungen an ausgewählten Eisen- und Manganoxidhydroxidproben, die einer sequentiellen Extraktion unterzogen wurden.

1. Fraktion: Restsubstanz nach Extraktion

Proben-bezeichnung	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	$^{226}Ra/^{228}Ra$
	- Bq/kg -			
(1) EF 850 m	1593.22±191.2	2581.57±387.2	1598.56±238.4	0.62±0.12
(2) MT 14	< 6	8 ±12	11 ±11	
(3) EF	8229.57±823.0	2600.09±338.0	1074.78±161.2	3.16±0.52
(4) Drosen	2208.89±220.9	2994.98±359.4	2148.30±257.8	0.74±0.12

2. Fraktion: Restsubstanz nach Extraktion

Proben-bezeichnung	^{226}Ra	^{228}Ra	^{228}Th	$^{226}Ra/^{228}Ra$
	- Bq/kg -			
(1) EF 850 m	1675.5±335.1	1500.5±300.1	988.2±197.6	1.1±0.3
(2) MT 14	0.53 (<10)	3.5 (<15)	4.6 (<10)	
(3) EF	3551.9±710.4	1662.4±332.5	839.8±168.0	2.1±0.6
(4) Drosen	426.1±85.2	1354.6±270.9	1178.8±235.7	2.7±0.1

Fortsetzung Tab. 35:

Die Extraktionsflüssigkeit wurde mit $BaCl_2$ und H_2SO_4 versetzt und die Radium-Aktivitäten am ausgefällten $Ba(Ra)SO_4$ bestimmt.

Bezeichnung	^{226}Ra (Bq/kg)	^{228}Ra (Bq/kg)	^{228}Th (Bq/kg)	$^{226}Ra/^{228}Ra$
1. Fraktion (1)	0.6±0.2	0.3±0.2	0.05(<0.2)	2.0±1.5
2. Fraktion (1)	0.1±0.08	0.1±0.1	0.02(<0.1)	1.0±1.3
3. Fraktion (1)	2.1±0.4	0.5±0.2	1.3±0.32	4.2±1.9
4. Fraktion (1)	12.2±3.0	3.2±1.0	2.8±0.8	3.8±1.5
1. Fraktion (2)	0.05(<0.1)	0.07(<0.1)	0.05(<0.1)	
2. Fraktion (2)	0.1±0.06	0.1±0.1	<0.09	1.0±1.0
3. Fraktion (2)	0.1±0.07	0.03(<0.1)	0.05±(<0.1)	
4. Fraktion (2)	0.1±0.08	0.06(<0.2)	0.02(<0.1)	
1. Fraktion (3)	5.0±1.0	0.4±0.2	(<0.08)	12.5±6.7
2. Fraktion (3)	9.9±1.5	0.7±0.2	0.4±0.1	12.8±4.6
3. Fraktion (3)	14.2±2.1	1.1±0.3	0.08(<0.2)	12.9±4.0
4. Fraktion (3)	19.9±4.0	1.9±0.5	2.0±0.6	10.5±3.5
1. Fraktion (4)	0.4±0.13	0.3±0.2	0.02(<0.1)	1.3±1.0
2. Fraktion (4)	2.6±0.9	1.1±0.4	0.03(<0.2)	2.4±1.2
3. Fraktion (4)	5.2±1.04	1.7±0.5	1.4±0.4	3.0±1.1
4. Fraktion (4)	5.0±1.0	1.4±0.5	3.2±0.6	3.6±1.5

Tab. 36: Ergebnisse der Röntgenfloureszenzanalysen (RFA) an Eisen-/Manganhydroxid-Proben, die aus in Stollen austretenden Grundwässern ausgefällt wurden.
Die RFA der beiden Proben (1) und (2) wurden am Institut für Geochemie in Tübingen durchgeführt.
Die RFA der beiden Proben (4) und (5) wurden von Frau Renate Jordan, Inst. f. Mineralogie der TU München, durchgeführt.
Die Eichung erwies sich aufgrund der hohen Fe- und Mn-Konzentrationen als schwierig.
Die Konzentrationen sind in Gewichtsprozent (%) und ppm angegeben.
Die Radionuklid-Aktivitäten sind in Bq/kg angegeben.

(1) Eisen-/Manganhydroxid aus dem Südschwarzwald, Eggbergfst. Drainage, in 850 m Entfernung vom Stollenmundloch, schwarzbraune Probe (i.w. Mn)

Summe der Oxidprozente:		
Glühverlust:		
Substanz	Konzentration	Nachweisgrenze
Natriumoxid (Na_2O)	2.4 %	0.131 %
Magnesiumoxid (MgO)	0.6 %	0.222 %
Aluminiumoxid (Al_2O_3)	1.4 %	0.286 %
Siliziumdioxid (SiO_2)	9.7 %	0.895 %
Phosphorpentoxid (P_2O_5)	< NWG %	0.029 %
Kaliumoxid (K_2O)	< NWG %	0.065 %
Calciumoxid (Ca_2O)	1.1 %	0.184 %
Titandioxid (TiO_2)	< NWG %	0.036 %
Eisenoxid (Fe_2O_3)	68.5 %	0.418 %
Manganoxid (MnO)	0.3 %	0.008 %
Chrom (Cr)	< NWG ppm	25 ppm
Nickel (Ni)	57 ppm	13 ppm
Zink (Zn)	50000 ppm	11 ppm
Rubidium (Rb)	< NWG ppm	9 ppm
Strontium (Sr)	392 ppm	13 ppm
Yttrium (Y)	66 ppm	3 ppm
Zirkon (Zr)	< NWG ppm	21 ppm
Niob (Nb)	< NWG ppm	7 ppm
Barium (Ba)	< NWG ppm	55 ppm
Vanadium (V)	< NWG ppm	10 ppm

Fortsetzung Tab. 36 :

(2) Eisen-/Manganhydroxid aus dem westl. Südschwarzwald, Münstertal, Schindlergang des Wilhelmstollens (i.w. FE)

Summe der Oxidprozente:		
Glühverlust:		
Substanz	Konzentration	Nachweisgrenze
Natriumoxid (Na_2O)	0.5 %	0.131 %
Magnesiumoxid (MgO)	< NWG %	0.222 %
Aluminiumoxid (Al_2O_3)	22.0 %	0.286 %
Siliziumdioxid (SiO_2)	0.9 %	0.895 %
Phosphorpentoxid (P_2O_5)	< NWG %	0.029 %
Kaliumoxid (K_2O)	< NWG %	0.065 %
Calciumoxid (Ca_2O)	3.1 %	0.184 %
Titandioxid (TiO_2)	< NWG %	0.036 %
Eisenoxid (Fe_2O_3)	50.0 %	0.418 %
Manganoxid (MnO)	22.0 %	0.008 %
Chrom (Cr)	< NWG ppm	25 ppm
Nickel (Ni)	2350 ppm	13 ppm
Zink (Zn)	5880 ppm	11 ppm
Rubidium (Rb)	< NWG ppm	9 ppm
Strontium (Sr)	92 ppm	13 ppm
Yttrium (Y)	< NWG ppm	3 ppm
Zirkon (Zr)	< NWG ppm	21 ppm
Niob (Nb)	< NWG ppm	7 ppm
Barium (Ba)	2220 ppm	55 ppm
Vanadium (V)	< NWG ppm	10 ppm

Fortsetzung Tab. 36 :

(4) Eisen-/Manganhydroxid aus dem Eggberg-Fensterstollen (Schluchseewerke/Südschwarzwald)

Summe der Oxidprozente: 94.3 %		
Substanz	Konzentration	Nachweisgrenze
Fluor (F)	< NWG %	0.5 %
Natriumoxid (Na_2O)	< NWG %	0.1 %
Magnesiumoxid (MgO)	1.18 %	0.05 %
Aluminiumoxid (Al_2O_3)	0.5 %	0.05 %
Siliziumdioxid (SiO_2)	9.87 %	0.05 %
Phosphorpentoxid (P_2O_5)	0.59 %	0.05 %
Schwefel (S)	0.08 %	0.05 %
Kaliumoxid (K_2O)	0.19 %	0.002 %
Calciumoxid (Ca_2O)	6.25 %	0.002 %
Titandioxid (TiO_2)	0.03 %	0.002 %
Eisenoxid (Fe_2O_3)	54.4 %	0.02 %
Chrom (Cr)	358 ppm	8 ppm
Manganoxid (MnO)	200931 ppm	8 ppm
Cobalt (Co)	< NWG ppm	8 ppm
Nickel (Ni)	435 ppm	30 ppm
Blei (Pb)	< NWG ppm	8 ppm
Kupfer (Cu)	< NWG ppm	8 ppm
Zink (Zn)	1942 ppm	40 ppm
Arsen (As)	19506 ppm	20 ppm
Thorium (Th)	< NWG ppm	20 ppm
Uran (U)	26 ppm	8 ppm
Rubidium (Rb)	20 ppm	8 ppm
Strontium (Sr)	297 ppm	8 ppm
Yttrium (Y)	< NWG ppm	8 ppm
Zirkon (Zr)	14 ppm	8 ppm
Niob (Nb)	< NWG ppm	8 ppm
Lanthan (La)	59 ppm	31 ppm
Barium (Ba)	3371 ppm	40 ppm
Vanadium (V)	< NWG ppm	15 ppm
Chlor (Cl)	175 ppm	30 ppm

Fortsetzung Tab. 36:

(5) Eisen-/Manganhydroxid aus dem Bergwerk Drosen (südöstl. Gera)

Summe der Oxidprozente: 64.1 %
Glühverlust: 36 %

Substanz	Konzentration	Nachweisgrenze
Fluor (F)	< NWG %	0.5 %
Natriumoxid (Na_2O)	0.43 %	0.1 %
Magnesiumoxid (MgO)	0.43 %	0.05 %
Aluminiumoxid (Al_2O_3)	0.59 %	0.05 %
Siliziumdioxid (SiO_2)	7.68 %	0.05 %
Phosphorpentoxid (P_2O_5)	< NWG %	0.05 %
Schwefel (S)	0.81 %	0.05 %
Kaliumoxid (K_2O)	0.11 %	0.002 %
Calciumoxid (Ca_2O)	14.5 %	0.002 %
Titandioxid (TiO_2)	0.02 %	0.002 %
Eisenoxid (Fe_2O_3)	39.7 %	0.02 %
Chrom (Cr)	< NWG ppm	8 ppm
Manganoxid (MnO)	2721 ppm	8 ppm
Cobalt (Co)	138 ppm	8 ppm
Nickel (Ni)	16 ppm	30 ppm
Blei (Pb)	< NWG ppm	8 ppm
Kupfer (Cu)	< NWG ppm	8 ppm
Zink (Zn)	28 ppm	40 ppm
Arsen (As)	298 ppm	20 ppm
Thorium (Th)	< NWG ppm	20 ppm
Uran (U)	< NWG ppm	8 ppm
Rubidium (Rb)	< NWG ppm	8 ppm
Strontium (Sr)	1198 ppm	8 ppm
Yttrium (Y)	< NWG ppm	8 ppm
Zirkon (Zr)	46 ppm	8 ppm
Niob (Nb)	< NWG ppm	8 ppm
Lanthan (La)	37 ppm	31 ppm
Barium (Ba)	70 ppm	40 ppm
Vanadium (V)	< NWG ppm	15 ppm
Chlor (Cl)	434 ppm	30 ppm

ANHANG C: Aufnahmen der untersuchten Bohrkernabschnitte der Bohrung Karlovy Vary HJ 2.

KARLOVY VARY HJ 2
408 m
409 m
410 m
411 m

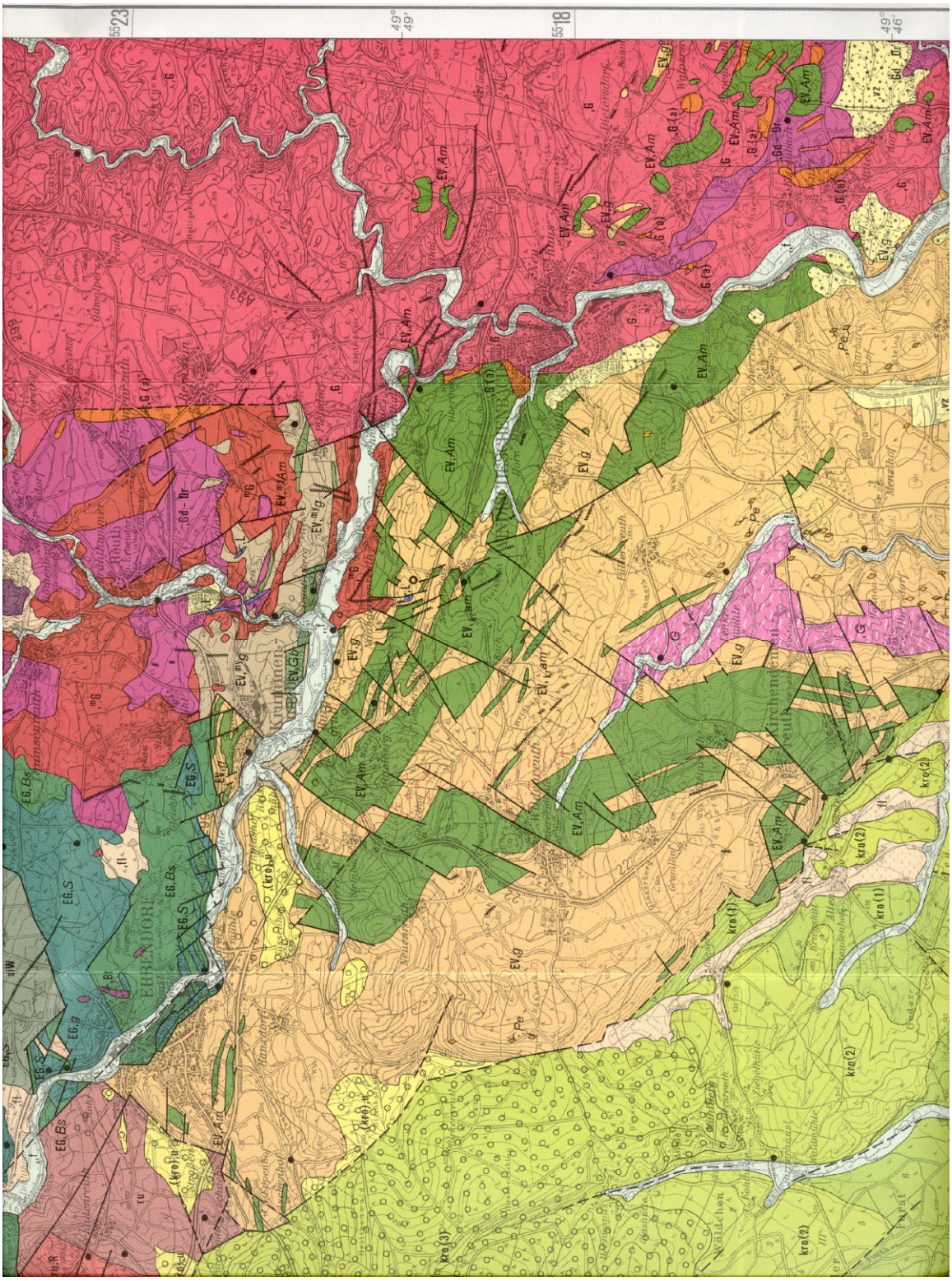
KARLOVY VARY HJ 2
424 m
425 m
426 m
427 m

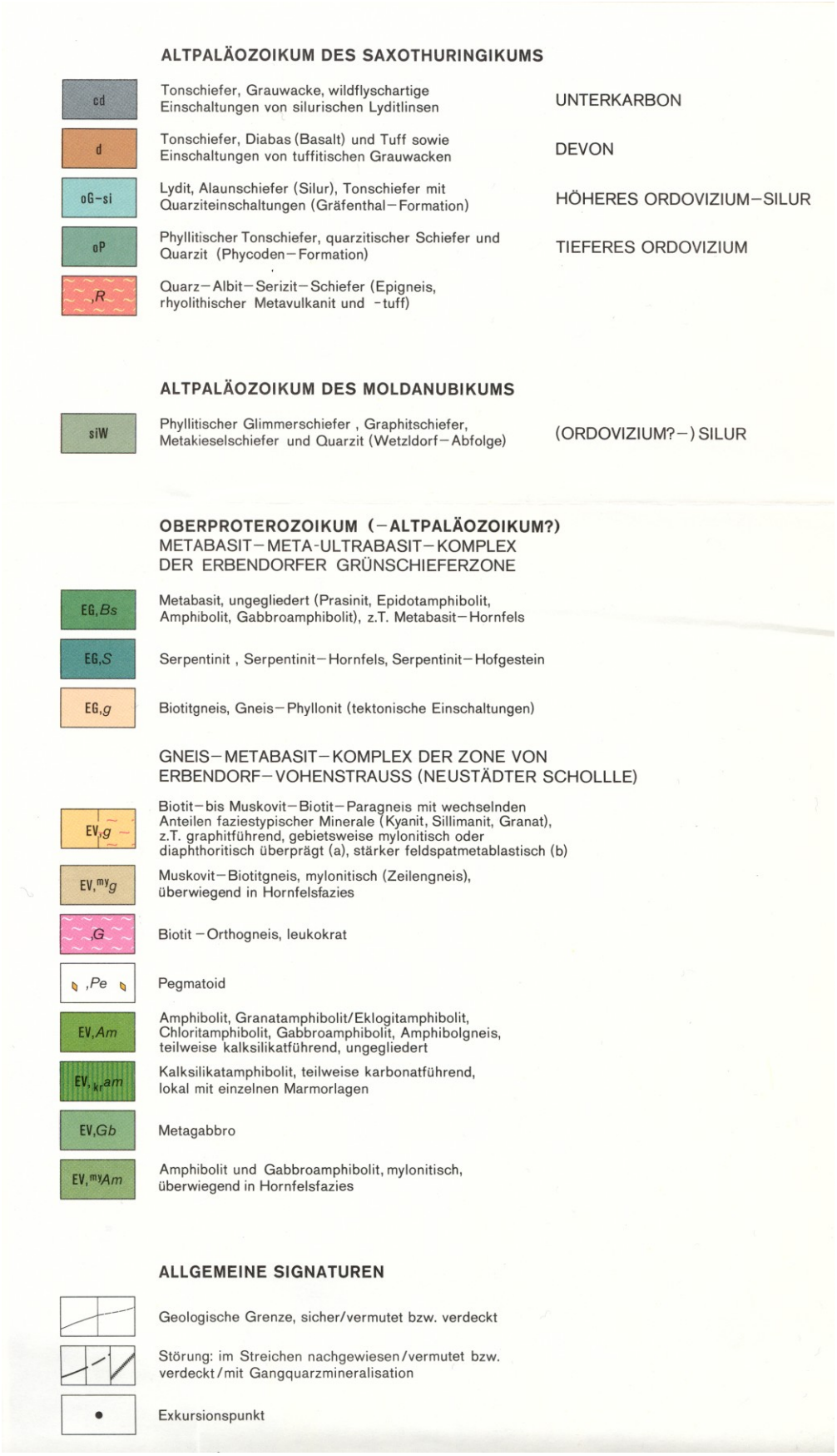
KARLOVY VARY HJ 2
932
428 m
429 m
430 m
431 m

KARLOVY VARY HJ 2
432 m
433 m
434 m
435 m

KARLOVY VARY HJ 2
460 m
461 m
462 m
463 m

ANHANG D: Geologie des KTB-Umfeldes (aus: Geolog. Karte des KTB-Umfeldes Oberpfalz 1: 50.000, Hannover 1991)




ALTPALÄOZOIKUM DES SAXOTHURINGIKUMS
cd
Tonschiefer, Grauwacke, wildflyschartige Einschaltungen von silurischen Lyditlinsen
UNTERKARBON
d
Tonschiefer, Diabas (Basalt) und Tuff sowie Einschaltungen von tuffitischen Grauwacken
DEVON
oG–si
Lydit, Alaunschiefer (Silur), Tonschiefer mit Quarziteinschaltungen (Gräfenthal–Formation)
HÖHERES ORDOVIZIUM–SILUR
oP
Phyllitischer Tonschiefer, quarzitischer Schiefer und Quarzit (Phycoden–Formation)
TIEFERES ORDOVIZIUM
,R
Quarz–Albit–Serizit–Schiefer (Epigneis, rhyolithischer Metavulkanit und -tuff)
ALTPALÄOZOIKUM DES MOLDANUBIKUMS
siW
Phyllitischer Glimmerschiefer , Graphitschiefer, Metakieselschiefer und Quarzit (Wetzldorf–Abfolge)
(ORDOVIZIUM?–) SILUR
OBERPROTEROZOIKUM (–ALTPALÄOZOIKUM?)
METABASIT–META-ULTRABASIT–KOMPLEX
DER ERBENDORFER GRÜNSCHIEFERZONE
EG,Bs
Metabasit, ungegliedert (Prasinit, Epidotamphibolit, Amphibolit, Gabbroamphibolit), z.T. Metabasit–Hornfels
EG,S
Serpentinit , Serpentinit–Hornfels, Serpentinit–Hofgestein
EG,g
Biotitgneis, Gneis–Phyllonit (tektonische Einschaltungen)
GNEIS–METABASIT–KOMPLEX DER ZONE VON
ERBENDORF–VOHENSTRAUSS (NEUSTÄDTER SCHOLLLE)
EV,g
Biotit–bis Muskovit–Biotit–Paragneis mit wechselnden Anteilen faziestypischer Minerale (Kyanit, Sillimanit, Granat), z.T. graphitführend, gebietsweise mylonitisch oder diaphthoritisch überprägt (a), stärker feldspatmetablastisch (b)
EV,myg
Muskovit–Biotitgneis, mylonitisch (Zeilengneis), überwiegend in Hornfelsfazies
,G
Biotit – Orthogneis, leukokrat
,Pe
Pegmatoid
EV,Am
Amphibolit, Granatamphibolit/Eklogitamphibolit, Chloritamphibolit, Gabbroamphibolit, Amphibolgneis, teilweise kalksilikatführend, ungegliedert
EV,kam
Kalksilikatamphibolit, teilweise karbonatführend, lokal mit einzelnen Marmorlagen
EV,Gb
Metagabbro
EV,myAm
Amphibolit und Gabbroamphibolit, mylonitisch, überwiegend in Hornfelsfazies
ALLGEMEINE SIGNATUREN
Geologische Grenze, sicher/vermutet bzw. verdeckt
Störung: im Streichen nachgewiesen/vermutet bzw. verdeckt/mit Gangquarzmineralisation
Exkursionspunkt

QUARTÄR

,,f	fluviatile Ablagerungen größerer Talauen: Auenlehm über pleistozänem Kies und Sand	HOLOZÄN
,fl	Fließerde, Fließlehm, Hangschutt in größerer Mächtigkeit und Verbreitung	PLEISTOZÄN
gp,,f	fluviatile Ablagerungen verschiedener Terrassen: Sand und Kies (a), Schotter und Geröllstreu (b)	

TERTIÄR (–QUARTÄR)

,(kro),u	Umlagerungsprodukte von Oberkreide–Schotter-material (a), Schotterstreu (Umlagerungsreste) (b)	NEOGEN–PLEISTOZÄN
,Bt	Basalt i.w.S., z.T. Schlotbrekzie und Basalt–Deckenreste	OLIGOZÄN–MIOZÄN
t	Ton, Sand, Kies, lokal Braunkohle	
,vz	Verwitterungsbildungen in größerer Mächtigkeit, z.T. mit Lehmdecke und mit kleineren Tertiärtonvorkommen (a), mit Schotter- und Geröllstreu (b)	(JURA?–) TERTIÄR

KREIDE

kro(3)	Polymiktes Konglomerat, Siltstein und Arkose	OBERKREIDE
kro(2)	Siltstein, glimmerreich, mit Pflanzenhäcksel, teilweise kohlig; polymiktes Konglomerat und Arkose	
kro(1)	Sandstein und Siltstein, rostbraun bis rot, mit Eisenkonkretionen; Arkose und Siltstein, gelb bis grau, mit Kohlelinsen	

TRIAS

km(4)	Arkose, Sandstein, z.T. geröllführend, Tonstein (Burgsandstein)	MITTLERER KEUPER
km(3)	Sandstein, Arkose, Tonstein, Karbonatbänke (Coburger Sandstein, Blasensandstein)	
km(2)	Tonstein, Sandstein, Mergelsteinbänke (Lehrbergschichten, Schilfsandstein, Estherienschichten)	
km(1)	Arkose, Sandstein, Tonstein (Benker Sandstein)	
mo–ku	Sandstein, z.T. karbonatisch , Tonstein	OBERER MUSCHELKALK– UNTERER KEUPER
mu	Muschelsandstein, Pflanzensandstein, Tonstein	UNTERER MUSCHELKALK
so	Sandstein, Arkose, Kaolinsandstein	OBERER BUNTSANDSTEIN

KARBON–PERM

ro	Geröllтonstein, Fanglomerat	HÖHERES ROTLIEGENDES
ru	Tonstein, Siltstein, Sandstein, Arkose, z.T. karbonatisch , mit Schwarzschiefer- und Kohleeinlagerungen	TIEFERES ROTLIEGENDES (einschließlich Anteile des Stefans)
ru,R	Rhyolith bis Rhyodazit und Tuff	

KREIDE

kro(3)	Polymiktes Konglomerat, Siltstein und Arkose	OBERKREIDE
kro(2)	Siltstein, glimmerreich, mit Pflanzenhäcksel, teilweise kohlig; polymiktes Konglomerat und Arkose	
kro(1)	Sandstein und Siltstein, rostbraun bis rot, mit Eisenkonkretionen; Arkose und Siltstein, gelb bis grau, mit Kohlelinsen	

TRIAS

km(4)	Arkose, Sandstein, z.T. geröllführend, Tonstein (Burgsandstein)	MITTLERER KEUPER
km(3)	Sandstein, Arkose, Tonstein, Karbonatbänke (Coburger Sandstein, Blasensandstein)	
km(2)	Tonstein, Sandstein, Mergelsteinbänke (Lehrbergschichten, Schilfsandstein, Estherienschichten)	
km(1)	Arkose, Sandstein, Tonstein (Benker Sandstein)	
mo-ku	Sandstein, z.T. karbonatisch , Tonstein	OBERER MUSCHELKALK– UNTERER KEUPER
mu	Muschelsandstein, Pflanzensandstein, Tonstein	UNTERER MUSCHELKALK
so	Sandstein, Arkose, Kaolinsandstein	OBERER BUNTSANDSTEIN

KARBON–PERM

ro	Gerölltonstein, Fanglomerat	HÖHERES ROTLIEGENDES
ru	Tonstein, Siltstein, Sandstein, Arkose, z.T. karbonatisch , mit Schwarzschiefer- und Kohleeinlagerungen	TIEFERES ROTLIEGENDES (einschließlich Anteile des Stefans)
ru,R	Rhyolith bis Rhyodazit und Tuff	

Ganggesteine und Plutonite

,L	Lamprophyr	OBERKARBON (–UNTERROTLIEGENDES)
,G (a)	Aplitgranit	
,kG_S	Granit, klein- bis mittelkörnig, gangförmig (Blaselberg–Granit)	
,G_S	Granit, mittel- bis grobkörnig (Steinwald–Granit)	
,G_{SF}	Granit, mittel- bis grobkörnig, schwach porphyrisch (Friedenfels–Granit)	
,^{m}G	Granit, klein- bis mittelkörnig, teilweise schwach porphyrisch, teilweise Übergänge zu Granodiorit	
,G	Granit, mittelkörnig, porphyrisch (Falkenberger und Leuchtenberger Granit)	
,Gd - Dr	Granodiorit bis Diorit, klein- bis mittelkörnig (Redwitzit), mit wechselnden granitischen Anteilen	