

Universität de Neuchâtel (Suisse)
Faculté des Sciences

Institut de Géologie
Centre d'Hydrogéologie

Natürliche Radionuklide in Grundwässern des Kantons Graubünden

Dissertation

von

Otmar Deflorin

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

zur Erlangung des akademischen Grades

Docteur ès Sciences

der

Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Universität Neuchâtel

16. Januar 2004

(Prüfungsdatum)

Jury:

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

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

Inhaltsverzeichnis

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

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

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

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

Abbildungen

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

Inhaltsverzeichnis

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

Tabellen

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

Resumaziun

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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